

Vol. 12.No. 4.1964

KFKI

KÖZLEMÉNYEK

ОБЩЕНИЯ ЦЕНТРАЛЬНОГО ИНСТИТУТА ФИЗИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

REPORTS OF THE CENTRAL RESEARCH INSTITUTE FOR PHYSICS

Szerkeszti: Ádám 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
Megjelent: 1964. szept. 5.

Pédányszám: 580
Rotaszám: 1857

A kiadásért felelős: Jánossy Lajos

KFKI

KÖZLEMÉNYEK

T A R T A L O M

1. Szabó Pál: Diffrakciós intenzitás mérések pontossága és optimális mérési ideje 257
2. Vértés Péter és M.Kovács László: Heterogén uránvizes rendszerek abszorpciós és fissionális viszonyainak vizsgálata az epitermikus neutronenergia tartományban . . 263
3. Kósa Somogyi István és Vizesy Mária: $FeCl_3$ gyökcsapdát tartalmazó alacsony hőmérsékleten besugárzott dimetilanilin foszforeszcenciája 287
4. Almási Lajos és Sándor László: Nanoszekundumos tartományban működő idő- amplitudó konverter 299

Kísérleti technika

5. Várkonyi Lajos és Krebsz Ferenc: Targetforgató besugárzó berendezés 313
6. Bakos József, Fazekas Endre, Nagy György és Szigeti János: Többrétegű dielektrikum-tükör és -interferenciaszűrők előállítás a vákuumpárológatásos módszerrel 317
7. R.Lorenz Judit: Elektrokémiai higanytisztítás 329

Р е з ю м е

1. Точность и оптимальное время измерений дифракционных интенсивностей

П.Сабо

В статье показано, что при определении интегральных интенсивностей сумма необходимых времен, затраченных на измерения, проведенные в рефлекссионных и диффузных диапазонах, имеет оптимальное значение при предписанной точности интегральной интенсивности. При таком оптимальном значении сумма двух времен - минимальна. Дается расчет оптимальных значений времени измерения. Покажется как можно этот расчет перенести на более простой случай разности между полной интенсивностью и фоном, измеренными в одной точке.

2. Исследование поглощения нейтронов и деления нейтронами надтепловой энергии в уранводных системах

П.Вертеш - Л.М.Ковач

В этой статье исследовано поглощение нейтронов и деление нейтронами надтепловой энергии. Приняты во внимание: резонансное деление и внешний и внутренний блоковые эффекты. Несмотря на то, что эти исчисления из-за неточности экспериментальных данных имеют оценивающий характер, выяснилось, что процесс деления нейтронами надтепловой энергии играет весьма существенную роль в поддержании цепной реакции в реакторах на тепловых нейтронах.

3. Фосфоресценция облученного при низкой температуре диметиланилина, содержащего акцептор FeCl₃

И.Коша-Шомоди, М.Визеши

Фосфоресценция диметиланилина, содержащего акцептор FeCl₃, облученная излучением ⁶⁰Co -γ при температуре -196°C, была возбуждена термически и излучением IR. Из-за спектрального распределения спущенного света и величины возбуждающей энергии механизм фосфоресценции и передача энергии объясняются движением экситонов, связанных с триплетным состоянием и их реакцией с растворенным материалом.

4. Преобразователь времени и амплитуды, работающий в наносекундном диапазоне

Л.Алмаш, Л.Шандор

Настоящая статья занимается вопросами, возникшими во время разработки и настройки преобразователя времени и амплитуды, служащего для анализа в наносекундном диапазоне времени, кроме того, результатами, достигнутыми созданным преобразователем. На основании заданных диапазонов измерения и вытекающих из них требований спецификации были исследованы возможности преобразования. Среди методов перекрытия импульсов, системы старт-стоп, предварительного частотно-временного преобразования и дифференциальных преобразователей - наилучшим методом оказалась система старт-стоп. Выбранная система была осуществлена при помощи электронных ламп. Дается описание построения электрических цепей, назначение и работа отдельных блоков. Описывается электрическая настройка преобразователя, которая была проведена с помощью основной наносекундной системы измерения, разработанной в Институте и I28-канального анализатора амплитуд. Наконец, показывается калибровка преобразователя сцинтилляционными сигналами и несколько проверочных измерений.

5. Облучательное устройство для вращения мишени

Л.Варкони и Ф.Кребс

При анализе результатов экспериментов в области радиационной химии выяснилось, что образцы, излученные в одной и той же оболочке поглощали разную дозу излучения. Для устранения этой ошибки было изготовлено устройство для вращения мишени.

6. Изготовление многослойных диэлектрических зеркал и интерференционных светофильтров методом испарения в вакууме

Й.Бакош, Э.Фазекаш, Д.Надь и Я.Сигети

Нами было создано устройство, в котором под давлением $p < 10^{-5}$ торр были изготовлены зеркала и многослойные диэлектрические и интерференционные фильтры с максимальным числом слоев тринадцать, методом испарения таким образом, что во время процесса испаривания толщина слоев непрерывно измерялась оптическим и электронным путем. Отражающая способность зеркал, изготовленных нами, составляла $R_T > 99\%$, пропускающая способность фильтров - $T_{32} > 95\%$, а ширина полосы фильтров - $\Delta \lambda < 20\text{nm}$.

7. Электрохимическая очистка ртути

Ю. Лоренц

В статье описывается установка большой мощности для очистки ртути. Дается описание конструкции, принципа действия и применения установки. Сообщаются некоторые данные сравнительных исследований электролизованной, включенной как анод чистой и три раза дистиллированной в вакууме ртути.

S u m m a r i e s

1. Accuracy and Optimum Measuring Time in Diffraction Intensity Measurements

P.Szabó

It is shown that there is an optimum in the time required for the measurement of integral intensities. Namely, at a prescribed accuracy of the value of the integral intensity, the times used for the measurements in the reflexion and in the diffuse region, respectively, can be chosen so that their sum be a minimum. The calculation of these optimum measuring times is presented. The application of the method to the simpler case of the difference between the total and the background intensities measured at a given point is also shown.

2. Investigation of Fission and Absorption Processes in the Range of Epithermal Neutron Energies for Heterogeneous Uranium Water Reactors

P.Vértes and L.M.Kovács

Studying the fission and adsorption processes in the range of epithermal neutron energies the resonance fission as well as the internal and external lumping effects of $1/v$ absorption are considered. Though the calculations presented here, owing to the errors in the available nuclear data which have been used, are of an estimative character, the results definitely indicate the major importance of the fission processes during slowing down in maintaining the chain reaction in thermal reactors.

3. Phosphorescence of Dimethylaniline with $FeCl_3$ Scavenger Irradiated at Low Temperatures

L.Kósa Somogyi and M.Vizesy

The phosphorescence excited thermally and by IR radiation in dimethylaniline containing $FeCl_3$ scavenger and irradiated at $-196^{\circ}C$ with

^{60}Co gamma source is studied. It is inferred from the spectral distribution of the emitted light and from the values of the exciting energies that the phosphorescence and the energy transfer can be explained by the motion of the excitons involved in the triplet state and their reactions with the solute.

4. Millimicrosecond Time-to-Pulse Height Converter

L. Almási and L. Sándor

Problems in connection with the design and testing of a millimicrosecond time-to-pulse height converter are discussed and the system actually developed is described. Investigating possible conversion systems, in view of the given scope of measurements and specification requirements the start-stop principle proved to be the most suitable as compared with the pulse overlap, vernier and differential converter systems. The converter is assembled from tubes, circuit arrangements and the role and function of each block are described. Tests and calibration of the converter were performed on a millimicrosecond basic test set and 128 channel pulse height analyser and for scintillation signals.

5. Revolving Target Holder for Irradiation in Reactor

L. Várkonyi and F. Krebsz

A revolving target holder is described. The device has been developed to eliminate possible errors induced by the difference in dose rates absorbed by samples irradiated simultaneously in the same target holder. This fact was observed when evaluating results of radiation chemical experiments.

6. Production of Multilayer Dielectric Mirrors and Interference Filters by Vacuum Deposition

J. Bakos, E. Fazekas, Gy. Nagy and J. Szigeti

An apparatus has been developed for the production of mirrors and interference filters consisting of several - maximum 13 - layers of dielectrics. The layers are deposited at pressures of $p < 10^{-5}$ Torr while the thickness of each layer is being continuously measured both optically and electronically during deposition. Mirrors with reflection coefficient $R_T > 99$ p.c. and filters with transmission $T_{SZ} > 95$ p.c. and spectral widths $\Delta\lambda < 20$ nm are obtained in this way.

7. Electrochemical Purification of Mercury

R.J.Lorenz

A device of novel design by which mercury is electrochemically purified, is described. Full details of the design, construction, working principle and usage are discussed. Finally some comparative data on mercury purified by threefold vacuum distillation and on the product obtained with the novel purifier are presented.

DIFFRAKCIÓS INTENZITÁS MÉRÉSEK PONTOSSÁGA ÉS OPTIMÁLIS MÉRÉSI IDEJE

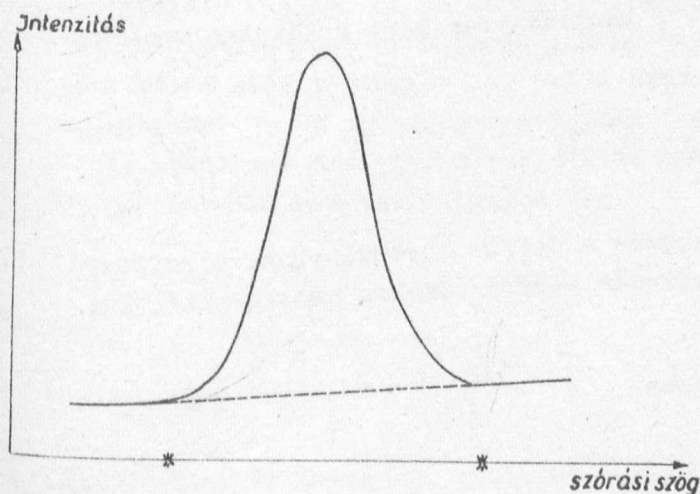
Irta: Szabó Pál

Összefoglalás

Megmutatjuk, hogy integrális intenzitások meghatározásánál a reflexiós és a diffúz tartományokban végzett mérésekre fordított időknél az integrális intenzitás előírt pontossága mellett optimuma van, amelynél a két idő összege minimális. Megadjuk az optimális mérési idők számítását. Végül megmutatjuk, hogy ez a számítás hogyan vihető át az egy pontban mért teljes és háttérintenzitás különbségének egyszerűbb esetére.

1/ Bevezetés

A diffrakciós intenzitás-méréseknél legtöbbször az ún. reflexiók integrális intenzitásának meghatározására van szükség. Egy reflexió integrális intenzitását úgy határozzuk meg, hogy képezzük a szórt intenzitás integrálját a szórási szög szerint egy, a reflexiós szöget körülvevő megfelelő szögtartományban és ebből kivonjuk a diffúz intenzitásnak ugyanarra a tartományra vonatkozó integrálját. A reflexiós szögtartományon kívül a szórt intenzitás magát a diffúz intenzitást adja. A reflexiós tartomány pontjaiban a diffúz intenzitás értékeit a reflexiós tartományon kívül, annak két oldalán szimmetrikusan mért értékekből lineáris interpolációval képezzük.



A mondottakat szemlélteti a mellékelt ábra. Ezen egy, a gyakorlatban előforduló intenzitás-görbékhez hasonló alakú fantázia-görbe látható folytonos vonallal jelölve. A diffúz intenzitásnak fent említett interpolált értékeit szaggatott vonallal jelöltük.

A valóságban a görbék csak diszkrét pontjait

mérjük és a görbe alatti területet közelítő téglányösszeggel pótoljuk. A pontokat természetesen olyan sűrűn határozzuk meg, hogy ez a kívánt pontosságot ne érintse.

A mért pontok véges sűrűségénél sokkal nagyobb gondot okoz az egyes pontokban mért intenzitás-értékek szórása. A következőkben megmutatjuk, hogyan lehet az integrális intenzitást előírt pontossággal optimális módon, ti. a legkisebb mérési idővel megkapni. A számításhoz feltetelezzük, hogy az egyes pontokban mért intenzitások Poisson-eloszlásúak.

Az optimális mérési idők meghatározása különösen fontos a neutron-diffrakciós méréseknél, ahol a kis intenzitások miatt sokszor igen nagy mérési időkre van szükség.

2/ A mért integrális intenzitások pontossága

Bontsuk a mérési szögtartományt két intervallumra. 1-gyel indexeljük az L nagyságu reflexiós tartományt, amely az ábrán az abszcissa-tengely két, csillaggal jelölt pontja közé esik, 2-vel pedig a diffúz tartományt, amely a reflexiós tartomány két oldalán helyezkedik el. Legyen n_1 , ill. n_2 a mért pontok száma a két tartományban, J_1 és J_2 a két tartomány egy-egy pontjában mért beütésszám. Az abszcissa-intervallum egyenletes beosztását és minden pontban azonos ideig való mérést tételezünk fel. Ettől eltérő esetekre a következő számítások könnyen átalakíthatók.

A teljes görbe alatti terület:

$$I_1 = \frac{L}{n_1} \sum J_1 \quad /1/$$

ahol az összegezés az L reflexiós tartományban mért értékekre vonatkozik. Ebből kivonva az

$$I_2 = \frac{L}{n_2} \sum J_2 \quad /2/$$

diffúz intenzitást /ahol az összegezés a diffúz tartományban, a reflexiós tartomány két oldalán szimmetrikusan mért értékekre vonatkozik/, kapjuk meg a keresett

$$I = I_1 - I_2 \quad /3/$$

integrális intenzitást.

Képezzük I_1 standard deviációját: σ_1 -et. Mivel J_1 standard deviációja $\sqrt{J_1}$, és mivel összeg standard deviációja a tagok standard deviációi négyzetösszegének gyöke, azért

$$\sigma_1 = \frac{L}{n_1} \sqrt{\sum J_1} \quad /4/$$

Ugyanígy I_2 standard deviációja:

$$\sigma_2 = \frac{L}{n_2} \sqrt{\sum J_2} \quad /5/$$

Az $I = I_1 - I_2$ integrális intenzitás standard deviációja:

$$\sigma = \sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} \quad ,$$

relativ hibája tehát a

$$\left| \frac{dI}{I} \right| = \frac{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}{I} = \frac{L \sqrt{\frac{\sum J_1}{n_1^2} + \frac{\sum J_2}{n_2^2}}}{I} \quad /6/$$

kifejezéssel jellemezhető.

3/ Az optimális mérési idő

Egy integrális intenzitás meghatározásához $n_1 + n_2$ mérési pontban mérünk, mindegyikben azonos t ideig. A teljes mérési idő adott pontosságnál akkor minimális tehát, ha $(n_1 + n_2)$ minimális. A következőkben ezt a minimumot határozzuk meg. Természetesen n_1 -et legalább akkorának kell vennünk, hogy a téglányössze -közelítés /1. a Bevezetést/ jó sága megfelelő legyen. Ha valamely esetben olyan kis n_1 és n_2 érték adódik a minimalizálási számításból, hogy ezzel a téglányösszeg-közelítés már nem volna elég jó, akkor n_1 -et a szükséges mértékben megnöveljük és ugyanakkor t -t ugyanolyan arányban lecsökkentjük. Könnyen belátható, hogy ezzel sem a teljes mérési időt, sem az integrális intenzitás statisztikus hibáját nem változtatjuk meg.

$(n_1 + n_2)$ minimumát előírt hiba mellett, tehát az

$$L \sqrt{\frac{\sum J_1}{n_1^2} + \frac{\sum J_2}{n_2^2}} = k \quad /konstans/ \quad /7/$$

mellékfeltétellel keressük, ahol k az I integrális intenzitás előírt

hányada. Pl. 1%-os hiba előírásánál $k = 10^{-2} I$. /1/ és /2/ felhasználásával a /7/ mellékfeltételt így írhatjuk:

$$\frac{I_1}{n_1} + \frac{I_2}{n_2} = \frac{k^2}{L} \quad /8/$$

A feltételes szélsőérték számítás határozatlan együtthatós módszerével az optimális, ti. $(n_1 + n_2)$ -t az adott hiba mellett minimálissá tevő n_1 -et és n_2 -t a következő egyenletrendszerből számíthatjuk ki:

$$1 - \frac{I_1}{n_1^2} = 0$$

$$1 - \frac{I_2}{n_2^2} = 0 \quad /9/$$

$$\frac{I_1}{n_1} + \frac{I_2}{n_2} = \frac{k^2}{L}$$

Ebből

$$n_1 = \frac{L}{k^2} \left[I_1 + \sqrt{I_1 I_2} \right]$$

$$n_2 = \frac{L}{k^2} \left[\sqrt{I_1 I_2} + I_2 \right] \quad /10/$$

Ha tájékoztató mérésből közelítőleg ismerjük I_1 -et, I_2 -t és L -t, akkor az optimális n_1 és n_2 /10/-ből kiszámítható.

A KFKI Szilárdtestfizikai Laboratóriumában folyó neutron-diffrakciós vizsgálatoknál igen jelentős időmegtakarításokat érünk el ennek a számításnak az alkalmazásával.

A fenti számítás azonnal átvihető arra az egyszerűbb kérdésre, hogy egy adott pontban az időegységre eső és t_1 , ill. t_2 idő alatt

mért $i_1 = \frac{J_1}{t_1}$ intenzitás és az ugyanabban a pontban mért $i_2 = \frac{J_2}{t_2}$

háttér-intenzitás $i = i_1 - i_2$ különbségének előírt hibájához milyen t_1 és t_2 mérési időket érdemes választani.

i_1 és i_2 standard deviációja:

$$\sigma_1 = \frac{\sqrt{J_1}}{t_1}, \quad \sigma_2 = \frac{\sqrt{J_2}}{t_2} \quad /11/$$

Feladatunk olyan t_1 és t_2 meghatározása, amelyekkel $(t_1 + t_2)$ minimális lesz i előírt hibája mellett, azaz a

$$\sqrt{\frac{J_1}{t_1^2} + \frac{J_2}{t_2^2}} = \sqrt{\frac{i_1}{t_1} + \frac{i_2}{t_2}} = k \text{ /konstans/}$$

.mellékfeltétellel.

Szemelláthatólag az eredmény azonos lesz /10/-zel, ha abban n_1 és n_2 helyébe t_1 -et és t_2 -t, I_1 és I_2 helyébe i_1 és i_2 -t, L helyébe 1-et írunk.

Érkezett: 1964. jul. 6.

KFKI Közl. 12. évf. 4. szám, 1964.

HETEROGÉN URÁN-VIZES RENDSZEREK ABSZORPCIÓS ÉS FISSZIÓS VISZONYAINAK VIZSGÁLATA AZ EPITERMIKUS NEUTRONENERGIA TARTOMÁNYBAN

Irta: Vértes Péter és M. Kovács László

Összefoglalás

Ebben a dolgozatban a lassítás alatti parazita befogással és hasítással foglalkozunk urán-vizes rendszerekben. Figyelembe vesszük a rezonancia físzót, és az $1/v$ abszorpció külső és belső blokkeffektusát. Bár a számítások a kísérleti adatok pontatlansága miatt csak becslő jellegűek, az eredményekből mégis világosan látszik, hogy a termikus reaktorokban a lassítás alatti hasításnak jelentős szerepe van a láncreakció fenntartásában.

1/ Bevezetés, alapösszefüggések

A termikus reaktorokban a hasadások tulnyomó többségét termikus neutronok okozzák. Azonban a sokszorozás pontosabb kiszámításához feltétlenül szükség van a lassítás alatti hasítások figyelembevételére is. Különösen jelentős ez az effektus dúsított urán-vizes rendszerekben [2], ezért ez a cikk ezeknek a rendszereknek a számítására alkalmas módszert mutat be. Ez a módszer azonban más rendszerek számítására is alkalmazható.

Könnyen belátható, hogy egy lelassulást megkezdő neutronra eső, a lassulás alatti hasításból keletkező neutronok száma ν továbbiakban ezt a mennyiséget röviden keletkezésnek nevezzük/:

$$\kappa^5 = \nu \int_0^{u_c} \sum_f^5(u) \cdot \phi(u) \, du \quad //$$

ahol u letargia változó, $\phi(u)$ a reaktor átlagos lassítási spektruma egy, a lelassulást megkezdő neutronra normálva. Ezt a reaktorzóna minden pontján azonosnak tekintjük. \sum_f^5 , \sum_a , \sum a zóna átlagos físzíós, abszorpció és totális hatáskeresztmetszete; az 5 jelzés az u^{235} -ös izotópra utal; u_c a termikus cut-off energiához tartozó letargia, \int az ütközésenkénti átlagos letargia csökkenés, ν a hasadási neutronok átlagos száma, $\phi(u)$ például Wigner közelítésben:

$$\phi(u) = \frac{1}{\sum} \cdot e^{-\int_0^u \frac{\sum a}{\sum} du}$$

Ha ξ a jól ismert gyors-sokszorozási tényező /amely az U^{238} hasadása miatt lép fel/, akkor $\xi \cdot K^5$ értelmezhető úgy, mint a végtelen sokszorozási tényező az U_c alatti letargia tartományban.

Mivel a \sum_f, \sum hatáskeresztmetszetek letargia függése bonyolult, /az $1/v$ függésen kívül tartalmaz rezonanciákat is,/ ezért célszerű a teljes letargia tartományt intervallumokra osztani:

$$0 \leq u_1 < u_2 < \dots < u_i < u_{i+1} < \dots < u_N \leq U_c$$

/az (u_{i+1}, u_i) intervallumot nevezzük i -dik intervallumnak/ és a keletkezést intervallumonként számítani:

$$K_i^5 = v \int_{u_i}^{u_{i+1}} \sum_f^5(u) \phi(u) \cdot du = v \cdot q_i \int_{u_i}^{u_{i+1}} \sum_f^5(u) \cdot \frac{1}{\sum(u)} \cdot e^{-\int_{u_i}^u \frac{\sum a}{\sum} du'} \cdot du \quad /2/$$

ahol

$$q_i = e^{-\int_0^{u_i} \frac{\sum a}{\sum} du}$$

és nyilván annak a valószínűsége, hogy a neutron az i -edik intervallum elérése előtt nem abszorbeálódik.

A teljes keletkezés nyilván az egyes intervallumokbeli keletkezések összege lesz

$$K^5 = \sum_{i=1}^N K_i^5$$

A keletkezés kiszámításához a hatáskeresztmetszetek háromféle formában álltak a rendelkezésünkre:

- 1/ Sokcsoport állandók [4]
- 2/ Rezonancia paraméterek [5, 6, 7]
- 3/ $1/v$ hatáskeresztmetszetek [8]

Ennek megfelelően az volt a feladatunk, hogy a keletkezés /1/ alatti általános definícióját olyan alakra hozzuk, hogy a fentemlitett

formában megadott hatáskeresztmetszet adatok közvetlenül felhasználhatóak legyenek.

2/ Keletkezés számítása sokcsoport állandók felhasználásával

Abban az esetben, ha sokcsoport állandókkal számolunk, a letargia tartomány felosztásának a sokcsoport konstansokhoz tartozó intervallum felosztást vesszük. Jelöljük az i -edik intervallumhoz tar-

tozó hatáskeresztmetszeteket $\sum_f^{5i}, \sum_a^i, \sum^i$ -vel, valamint legyen $u_{i+1} - u_i = \Delta u_i$ akkor /2/-ből:

$$K_{ics}^5 = v \int_{u_i}^{u_{i+1}} \sum_f^{5i} \frac{1}{\sum^i} \cdot e^{-\sum_{j=1}^{i-1} \frac{\sum_a^j}{\sum^j} \Delta u_j} - \frac{\sum_a^i}{\sum^i} \int_{u_i}^u du' \cdot du =$$

$$= v \cdot q_{ics} \cdot \frac{\sum_f^{5i}}{\sum_a^i} \cdot \left(1 - e^{-\frac{\sum_a^i}{\sum^i} \Delta u_i}\right) \quad /3/$$

ahol:

$$\sum_a^i = (N^5 \cdot b_a^{5i} + N^8 \cdot b_a^{8i}) \frac{V_u}{V}$$

$$q_{ics} = e^{-\sum_{j=1}^{i-1} \frac{\sum_a^j}{\sum^j} \Delta u_j}$$

ahol: V_u az üzemanyag térfogata és V a cella térfogata.

A /3/ tényezőinek a fizikai értelme könnyen megállapítható; q_{ics} annak a valószínűsége, hogy a neutron az i -edik intervallum előtt nem abszorbeálódott, $1 - e^{-\frac{\sum_a^i}{\sum^i} \Delta u_i}$ annak a valószínűsége, hogy az i -edik intervallumban abszorbeálódik; $\frac{\sum_f^{5i}}{\sum_a^i}$ pedig annak a valószínűségét jelenti, hogy az abszorpció hasitáshoz vezet. E három tényező szorzata, mint ahogy az elvárható, az egy gyors neutronra eső hasadások számát jelenti az i -edik letargia intervallumban.

Legyen N_{CS} a csoportok száma, akkor

$$K_{CS}^5 = \sum_{i=1}^{N_{CS}} K_{ics}^5 = \nu \sum_{i=1}^{N_{CS}} q_{ics} \frac{\sum_{f=1}^{5i}}{\sum_a} \left(1 - e^{-\frac{\sum_a^i}{\sum_f^i} \Delta u_i} \right) \quad /4.a/$$

és

$$q_{rcs} = e^{-(W + \Psi_r)_{cs}} = e^{-\sum_{j=1}^{N_{CS}} \frac{\sum_a^j}{\sum_f^j} \Delta u_j} \quad /4.b/$$

az abszorpció-elkerülés valószínűsége a csoportok által átfedett teljes intervallumban. / $W_{cs} = W_{cs}^5 + W_{cs}^8$ az $1/\nu$, és $\Psi_{rcs} = \Psi_{rcs}^5 + \Psi_{rcs}^8$ a rezonancia abszorpciót jellemzi/

3/ Keletkezés számítása a rezonanciaparaméterek felhasználásával

A zóna abszorpciós hatáskeresztmetszete általában a fissziós / \sum_f / és sugárzási abszorpció / \sum_γ / hatáskeresztmetszetből tevődik össze:

$$\sum_a = \sum_f + \sum_\gamma \quad /5/$$

A rezonancia keletkezés számításánál a szóbanforgó letargia tartományt úgy osztjuk fel, hogy egyrészt olyan intervallumokat választunk, ahol van egy rezonancia és az dominál, másrészt olyanokat, melyekben nincs rezonancia. Legyen az r_i sorszámú rezonancia az i -dik intervallumban, /számozásnál a letargia skálán alulról felfelé haladunk/ akkor /2/ alapján /5/ figyelembevételével:

$$K_{ri}^5 = -\nu \cdot q_i \int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{d}{du} \left(e^{-\int_{u_i}^u \frac{\sum_f^5}{\sum_a^5} du'} \right) \cdot e^{-\int_{u_i}^u \frac{\sum_\gamma^5}{\sum_a^5} du'} \cdot du \approx$$

$$\approx -\nu \cdot q_i \int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{d}{du} \left(e^{-\int_{u_i}^u \frac{\sum_f^5}{\sum_a^5} du'} \right) \left(1 - \int_{u_i}^u \frac{\sum_\gamma^5}{\sum_a^5} du' \right) du \approx$$

$$\approx \nu \cdot q_i (1 - p_f^i)$$

ahol

$$p_f^i = e^{-\int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{\sum_f^5}{\sum} du} = e^{-\psi_{ri}^{5f}}$$

Az alkalmazott elhanyagolások jogosak, mert az $\int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{\sum_f^5}{\sum} du$

mennyiség kicsi és így hatványai, valamint az

$$\int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{\sum_f^5}{\sum} du \cdot (1 - p_f^i)$$

szorzat elhagyható, továbbá felhasználható az alábbi egyenlőtlenség:

$$\left| \nu \cdot q_i \int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{d}{du} \left(e^{-\int_{u_i}^u \frac{\sum_f^5}{\sum} du'} \right) \left(\int_{u_i}^u \frac{\sum_f^5}{\sum} du' \right) du \right| \leq$$

$$\leq \nu \cdot q_i (1 - p_f^i) \cdot \int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{\sum_f^5}{\sum} du \ll \nu \cdot q_i (1 - p_f^i)$$

Legyen a rezonanciák száma N_r , akkora teljes rezonancia ke-
letkezés egy, a rezonanciatartományt elért neutronra vonatkoztatva:

$$K_r^5 = \sum_{i=1}^{N_r} K_{ri}^5 = \nu \sum_{i=1}^{N_r} q_{ri} (1 - p_f^i) \quad /6.a/$$

és

$$q_{ri} = e^{-\sum_{j=1}^{i-1} \psi_{rj}} - \sum_{j=1}^{i-1} w_j \quad /6.b/$$

Itt

$$\psi_{rj} = \psi_{rj}^f + \psi_{rj}^r$$

$$\psi_{ri}^{f,r} = \frac{N \cdot V u}{\sum_s^5 \cdot v} j_{effi}^{f,r} \quad /6.c/$$

ahol N az U^{235} vagy az U^{238} magok száma attól függően, hogy U^{235}

vagy U^{238} rezonancia vonaláról van-e szó és $\beta_{eff,i}$ az i -dik rezonancia effektív rezonancia integrálja, valamint

$$w_j = \int_{u_j}^{u_{j+1}} \frac{\sum_a^z}{\sum_s} du \quad /7/$$

az $1/v$ befogást leíró mennyiség. /Ebben az esetben $\sum_a \ll \sum_s$ miatt $\sum \approx \sum_s$ írható. / \sum_a^z és \sum_s a zónára átlagolt abszorpciós hatáskeresztmetszet, illetve lassítóképeség. $\sum_{a,z}$ számításánál alacsonyabb energián célszerű figyelembe venni a blokkeffektust, melynek oka a heterogén anyagösszetételű elemi cellában kialakuló inhomogén neutroneloszlás. /7/ tényezői fizikailag ugyanugy értelmezhetők mint /3/ egyetlen tényezői.

4/ A keletkezés számítása $1/v$ abszorpció esetén

Az $1/v$ abszorpcióból eredő keletkezés számításánál célszerű felhasználni a termikus magreaktorok neutronciklusából jól ismert η_t termikus befogásból eredő gyorsneutronhozam és az f_t termikus hasznosítási tényező tetszőleges letargiára általánosított fogalmát:

$$\eta(u) = \nu \cdot \frac{\sum_a^5 f(u)}{\sum_a \bar{u}_a(u)} \quad /8/$$

és a burkolat abszorpciójának elhanyagolásával:

$$f(u) = \frac{\int_{V_{ua}} \sum_a \bar{u}_a(u) \cdot \phi_{ua}(r,u) \cdot dV}{\int_{V_{ua}} \sum_a \bar{u}_a(u) \phi_{ua}(r,u) \cdot dV + \int_{V_m} \sum_a^m(u) \phi_m(r,u) \cdot dV} = \frac{1}{1 + \varphi(u)} \quad /9/$$

ahol

$$\varphi(u) = \frac{\int_{V_m} \sum_a^m(u) \cdot \phi_m(r,u) \cdot dV}{\int_{V_{ua}} \sum_a \bar{u}_a(u) \cdot \phi_{ua}(r,u) \cdot dV}$$

$\sum_a^m(u)$ a moderátor abszorpciós hatáskeresztmetszete,

$\sum_a^{\bar{u}a}(u)$ az üzemanyag abszorpciós hatáskeresztmetszete,

$\phi_{\bar{u}a}(r,u)$ a fluxus az üzemanyagban, $\phi_m(r,u)$ pedig a moderátorban.

/8/ és /9/ egyenletekkel a /2/ a következőképpen írható

$$K_{1/v_i}^5 = q_i \int_{u_i}^{u_{i+1}} \gamma(u) f(u) \frac{\sum_a^z}{\sum} e^{-\int_{u_i}^u \frac{\sum_a^z}{\sum} du'} \cdot du \quad /10/$$

A \sum_a^z , a reaktorzóna átlagos abszorpciója, a következőképpen írható:

$$\begin{aligned} \sum_a^z(u) &= \frac{\int_{V_m} \sum_a^m(u) \phi_m(r,u) \cdot dV + \int_{V_{\bar{u}a}} \sum_a^{\bar{u}a}(u) \phi_{\bar{u}a}(r,u) \cdot dV}{\int_{V_m} \phi_m(r,u) \cdot dV + \int_{V_{\bar{u}a}} \phi_{\bar{u}a}(r,u) \cdot dV} = \\ &= \frac{1+\varphi}{\varphi} \sum_a^m(u) \cdot \frac{V_m}{V} \cdot \frac{\frac{1}{V_m} \int_{V_m} \phi_m(r,u) \cdot dV}{\frac{1}{V} \left(\int_{V_m} \phi_m(r,u) \cdot dV + \int_{V_{\bar{u}a}} \phi_{\bar{u}a}(r,u) \cdot dV \right)} \end{aligned} \quad /11/$$

Galanyin [1] a /11/ formula helyett a

$$\sum_a^z(u) = \frac{1+\varphi}{\varphi} \sum_a^m(u) \cdot \frac{V_m}{V} \quad /12/$$

közelítő formulát ajánlja, azaz a

$$\frac{\frac{1}{V_m} \int_{V_m} \phi_m(r,u) \cdot dV}{\frac{1}{V} \left(\int_{V_m} \phi_m(r,u) \cdot dV + \int_{V_{\bar{u}a}} \phi_{\bar{u}a}(r,u) \cdot dV \right)}$$

tényező eltérését az egységtől elhanyagolja. Ugyanis ez a tényező a moderátor átlag neutronsűrűségének viszonya a cella átlag sűrűségéhez, ez pedig, ha a fűtőelem mérete jóval kisebb a celláénál, valóban

közel van 1-hez. A továbbiakban mi is a /12/ formulát használjuk.

/10/ a következőképpen alakítható át, figyelembevételével, hogy az i-dik intervallumban csak 1/v abszorpció szerepel:

$$K^5_{1/v_i} = q_i \eta_i \int_{u_i}^{u_{i+1}} f(u) \frac{\sum^z a}{\sum_s} e^{-\int_{u_i}^u \frac{\sum^z a}{\sum_s} du'} \cdot du = \quad /13/$$

$$= q_i \eta_i \mu_i (1 - e^{-W_i})$$

/ η -t egy intervallumon belül egy átlagértékkel helyettesítjük./

ahol

$$\mu_i = \frac{\int_{u_i}^{u_{i+1}} f(u) \frac{\sum^z a}{\sum_s} e^{-\int_{u_i}^u \frac{\sum^z a}{\sum_s} du'} \cdot du}{\int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{\sum^z a}{\sum_s} e^{-\int_{u_i}^u \frac{\sum^z a}{\sum_s} du'} \cdot du} \approx \frac{1}{W_i} \int_{u_i}^{u_{i+1}} f(u) \frac{\sum^z a}{\sum_s} du \quad /14/$$

A /14/-ben tett elhanyagolás azzal indokolható, hogy mivel $\frac{\sum^z a}{\sum_s}$ kicsi, $e^{-\int_{u_i}^u \frac{\sum^z a}{\sum_s} du'}$ egy lassan változó függvény, így az integráljel alól kiemelhető és így egyszerűsíteni lehet vele.

/13/ felírásához még felhasználtuk a

$$\int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{\sum^z a}{\sum_s} e^{-\int_{u_i}^u \frac{\sum^z a}{\sum_s} du'} \cdot du = 1 - e^{-W_i}$$

egyenlőséget.

Ha az i-dik, letargia intervallumban a blokkeffektus /lásd alább/ elhanyagolható, akkor $f(u) = f_i$, azaz nem függ a letargiától, tehát $f_i = \mu_i$.

A /13/-ból ezek figyelembevételével

$$K_{\nu i}^{5'} = \gamma_i \cdot q_i f_i (1 - e^{-W_i'}) \quad /15.a/$$

$$W_i' = 2 \frac{\sum_a^z \alpha(u_n)}{\sum_s} \cdot e^{-\frac{u_n}{2}} \left(e^{\frac{u_{i+1}}{2}} - e^{\frac{u_i}{2}} \right) \quad /15.b/$$

A blokkeffektus a neutroneloszlás cellán belüli helyfüggéséből ered. Két fajta blokkeffektust különböztetünk meg: külső és belső blokk-effektust. A külső blokkeffektus azt jelenti, hogy a moderátor összabszorpciója megváltozik a neutroneloszlás helyfüggése miatt / a fűtőelem közelében a fluxus lecsökken/. A belső blokkeffektus pedig azért lép fel, mert a neutronsűrűség a fűtőelem belsejében kisebb, mint a szé-lén. Ennek következtében a teljes fűtőelem abszorpció lecsökken, mert a fűtőelem külső rétegeiben lévő abszorbens magok mintegy leárnyékolják a fűtőelem belsejében lévőket.

A blokkeffektus számításához a $\Phi_{\bar{u}a}(r, u)$, illetve a $\Phi_m(r, u)$ ismerete szükséges. Ezek meghatározása legegyszerűbb módon, első köze-lítésben, a diffúziós elmélet segítségével történhet. Ha feltesszük, hogy a moderátorban az $u, u+du$ / letargia intervallumba beszóródó és ki-szóródó neutronok számának különbsége (Q) térben és letargiában ál-landó, akkor az u letargiájú neutronok térbeli eloszlását leíró e-gyenlet a moderátorban:

$$\Delta \Phi_m(r, u) - \frac{1}{L_m^2(u)} \Phi_m(r, u) = Q \quad /16/$$

és az uránrudban

$$\Delta \Phi_{\bar{u}a}(r, u) - \frac{1}{L_{\bar{u}a}^2(u)} \Phi_{\bar{u}a}(r, u) = 0 \quad /17/$$

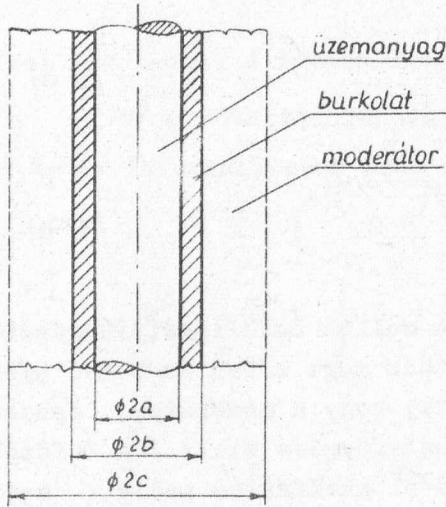
lesz, ahol

$$L_m^2(u) = \frac{D_m}{\sum_a^m}, \quad L_{\bar{u}a}^2(u) = \frac{D_{\bar{u}a}}{\sum_a^{\bar{u}a}}$$

A /16/ és /17/ egyenletek megoldásai hengersizmetrikus geo-metria esetén:

$$\Phi_m(r, u) = A \cdot I_0\left(\frac{r}{L_m(u)}\right) + B \cdot K_0\left(\frac{r}{L_m(u)}\right) + C \quad /18.a/$$

$$\Phi_{\bar{u}a}(r, u) = I_0\left(\frac{r}{L_{\bar{u}a}(u)}\right) \quad /18.b/$$



1. ábra. A cella keresztmetszete

Az A, B, C, integrációs állandók /feltételezve, hogy a fluxus a fűtőelem burkolatában állandó/

$$\Phi_m(b, u) = \Phi_{\dot{u}a}(a, u) \quad /19.a/$$

/19.b/

$$D_m \frac{\partial \Phi_m(r, u)}{\partial r} \Big|_{r=b} = D_{\dot{u}a} \frac{\partial \Phi_{\dot{u}a}(r, u)}{\partial r} \Big|_{r=a}$$

$$\frac{\partial \Phi_m(r, u)}{\partial r} \Big|_{r=c} = 0 \quad /19.c/$$

határfeltételekből állapítandók meg. A D_m és $D_{\dot{u}a}$ diffúziós együttható a kérdéses letargia-intervallumban a letargiától függetlennek tekinthető és így a letargiafüggést csak az L_m és $L_{\dot{u}a}$ esetében kell figyelembe venni.

A /18/-ből a /19/ határfeltételek segítségével kapjuk, hogy

$$\psi = \psi_0 \Psi + \psi_1 \quad /20/$$

ahol

$$\Psi = \frac{I_0\left(\frac{a}{L_{\dot{u}a}(u)}\right)}{2 \cdot \frac{L_{\dot{u}a}(u)}{a} \cdot I_1\left(\frac{a}{L_{\dot{u}a}(u)}\right)}, \quad \psi_0 = \frac{\sum_a^m(u) v_m}{\sum_a^{\dot{u}a}(u) v_{\dot{u}a}}$$

$$\psi_1 = \frac{c^2 - b^2}{2b \cdot L_m(u)} \cdot \frac{I_0\left(\frac{b}{L_m(u)}\right) \cdot K_1\left(\frac{c}{L_m(u)}\right) + K_0\left(\frac{b}{L_m(u)}\right) \cdot I_1\left(\frac{c}{L_m(u)}\right)}{I_1\left(\frac{c}{L_m(u)}\right) \cdot K_1\left(\frac{b}{L_m(u)}\right) - K_1\left(\frac{c}{L_m(u)}\right) \cdot I_1\left(\frac{b}{L_m(u)}\right)} - 1 \quad /21/$$

Ha $\frac{a}{L_{\dot{u}a}(u)} \ll 1$, akkor írható, hogy

$$\psi \approx 1 + \frac{1}{8} \left(\frac{a}{L_{\dot{u}a}(u)}\right)^2 \quad /22/$$

Ha $b^2, c^2 \ll L_m^2(u)$, akkor /21/ jó közelítéssel

$$\varphi_1 \approx \frac{c^2}{4 \cdot L_m^2(u)} \left[\frac{\ln \frac{c^2}{b^2}}{1 - \frac{b^2}{c^2}} + \frac{1}{2} \cdot \frac{b^2}{c^2} - \frac{3}{2} \right]$$

Ebből következik, hogy

$$\varphi_1(u) = \varphi_1(u_n) \cdot \frac{L_m^2(u_n)}{L_m^2(u)} \quad /23/$$

ahol u_n valamely vonatkoztatási /például termikus/ energiához tartozó letargia érték.

/23/ /21/ /20/ és /9/ összevetéséből /7/, illetve /14/ a következőképp írható, a felmerülő elemi integrálok elvégzése után:

$$W_i = \int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{\sum_s^Z a}{\sum_s} du = \frac{\sum_s^m a(u_n)}{\sum_s} \cdot e^{-\frac{u_n}{2}} \cdot \frac{V_m}{V} \int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{1+\varphi}{\varphi} \cdot e^{\frac{u}{2}} du =$$

/24/

$$= 2 \frac{\sum_s^m a(u_n)}{\sum_s} \cdot \frac{V_m}{V} \left[\frac{\ln \frac{\varphi_0 + A \cdot B_{i+1}}{\varphi_0 + A \cdot B_i}}{A} + B_{i+1} - B_i \right]$$

$$\mu_i = \frac{2 \sum_s^m a(u_n)}{\sum_s \cdot W_i} \cdot \frac{V_m}{V} \cdot \frac{\ln \frac{\varphi_0 + A \cdot B_{i+1}}{\varphi_0 + A \cdot B_i}}{A} \quad /25/$$

ahol a következő rövidítéseket vezettük be:

$$A = \varphi_0 \left[\psi(u_n) - 1 \right] + \varphi_1(u_n)$$

$$B_i = e^{\frac{u_i - u_n}{2}}$$

/26/

Ha $N'_{1/v}$ azon intervallumok száma, amelyben elhanyagolható az $1/v$ abszorpció blokkeffektusa és $N_{1/v}$ azoknak száma, amelyben az figyelembe veendő, akkor a teljes $1/v$ keletkezés /13/-ból és /15a/-ból:

$$K_{1/v}^5 \text{ teljes} = K_{1/v}^5 + K_{1/v}^{5'} = \sum_{j=1}^{N_{1/v}} K_{1/v_j}^5 + \sum_{j=1}^{N'_{1/v}} K_{1/v_j}^{5'} =$$

/27/

$$= \sum_{j=1}^{N_{1/v}} q_j \cdot \eta_j \cdot \mu_j (1 - e^{-w_j}) + \sum_{j=1}^{N'_{1/v}} \eta_j \cdot q'_j \cdot f_j (1 - e^{-w'_j})$$

Gyakran előfordul, hogy a fűtőelem burkolatának abszorpciója jelentős, /Pl. rozsdamentes-acél burkolat esetében/. Némileg komplikáltabb számolással ez is figyelembevehető. Kiindulva a /11/-hez hasonló formulából a /12/-höz analóg módon kapjuk:

$$\sum_a^z(u) = \frac{1 + \varphi_m + \varphi_c}{\varphi_m} \cdot \frac{V_m}{V} \sum_a^m(u)$$

$$\varphi_m = \psi \cdot \varphi_0 + \varphi_1 (1 + \psi \cdot \varphi_2)$$

ahol

$$\varphi_c = \psi \cdot \varphi_2$$

$$\varphi_2 = \frac{\sum_a^c V_c}{\sum_a^{\bar{u}a} V_{\bar{u}a}}$$

$\sum_a^c V_c$ a burkolat abszorpció hatáskeresztmetszete, illetve térfogata.

Tehát /7/-tel:

$$w_i = \frac{\sum_{\sum_s}^m a(u_n) \cdot e^{-\frac{u_n}{2}}}{\sum_s} \cdot \frac{V_m}{V} \int_{u_i}^{u_{i+1}} \frac{1 + \varphi_m + \varphi_c}{\varphi_m} \cdot e^{-\frac{u}{2}} \cdot du =$$

$$= \frac{2 \cdot \sum_{\sum_s}^m a(u_n)}{\sum_s} \cdot \frac{V_m}{V} \cdot \left[\left(1 + \varphi_2 - \frac{C_2(u_n)}{2 \cdot \varphi_1(u_n)} \right) \cdot \frac{1}{C_1(u_n)} \ln \frac{C_{4i}(u_n) \cdot C_{3i+1}(u_n)}{C_{4i+1}(u_n) \cdot C_{3i}(u_n)} + \right. \quad /28/$$

$$\left. + (B_{i+1} - B_i) + \frac{1}{2 \cdot \varphi_1(u_n)} \cdot \ln \frac{C_{5i+1}(u_n)}{C_{5i}(u_n)} \right]$$

ahol

$$C_1(u_n) = \left\{ C_2^2(u_n) - 4 \cdot \varphi_0 \cdot \varphi_1(u_n) [\psi(u_n) - 1] \cdot \varphi_2 \right\}^{1/2}$$

$$C_2(u_n) = A + \varphi_1(u_n) \cdot \varphi_2$$

$$C_{3i}(u_n) = 2 \cdot \varphi_0 \cdot \frac{1}{B_i} + C_2(u_n) + C_1(u_n)$$

$$C_{4i}(u_n) = C_{3i}(u_n) - 2 \cdot C_1(u_n)$$

$$C_{5i}(u_n) = \varphi_0 + C_2(u_n) \cdot B_i + \varphi_1(u_n) [\psi(u_n) - 1] \cdot \varphi_2 \cdot B_i^2$$

Mivel most

$$f = \frac{1}{1 + \varphi_m + \varphi_c} \quad /29/$$

ezért

$$\mu_i = \frac{1 - \frac{2 \cdot \sum_{\sum_s}^m a(u_n) \cdot V_m}{\sum_s w_i \cdot V} \left[B_{i+1} - B_i + \frac{\ln \frac{C_{5i+1}(u_n)}{C_{5i}(u_n)}}{2 \cdot \varphi_1(u_n)} \right]}{1 + \varphi_2 - \frac{C_2(u_n)}{2 \cdot \varphi_1(u_n)}}$$

A /28/, illetve a /29/ összefüggés $\varphi_2 = 0$ esetén természetesen átmegy a /24/, /25/ összefüggésekbe.

A /4/, /6/ és /27/ formulák birtokában a rendelkezésünkre álló adatokból, konkrét esetben kiszámíthatjuk a keletkezést.

5/ Numerikus eredmények

A rendelkezésünkre álló adatok megkivánták, hogy a teljes energia intervallumot a következőképpen osszuk fel:

1/ 19,4eV fölött a [4] riportban található sokcsoport állandókkal számoltunk. A felhasznált sok-csoport állandókat az I.,sz. táblázatban tüntettük fel./Lassítási spektrumról lévén szó, magas energiáknál a keletkezés elhanyagolható, ezért a csoportállandókat csak a 67330 eV alatti energia tartományban vettük tekintetbe./

I. táblázat

Sokcsoport hatáskeresztmetszetek [4]

Alsó energiahatár /eV/	Δu_i	σ_f^{235} [barn]	σ_a^{235} [barn]	σ_a^{238} [barn]
67330	1	1,7	1,9	0,27
24780	1	2,3	2,6	0,39
9118	1	3,4	4,1	0,58
3355	1	4,7	6,8	1
1234	1	6,4	9,3	1,61
454,0	1	9,6	14	3,11
319,9	0,35	13,0	20	5,47
225,5	0,35	16,5	25	10
112,0	0,70	20	30	8,9
61,47	0,60	26	39	35,0
33,74	0,60	36	53	90
19,4	0,553	41	59	75

E sok-csoportállandók használata egyben a blokkeffektus teljes elhanyagolását jelenti. A sok-csoport abszorpció, illetve fission hatáske-

resztmetszetek magukban foglalják mind az $1/v$, mind a rezonancia abszorpciót, illetve fissziót.

2/ 19,4 eV alatt /itt az U^{235} -nek egy rezonanciája van/, számításba vettük külön a rezonancia és külön az $1/v$ abszorpciót. Ez azért célszerű, mert az ilyen energia tartományba eső rezonanciáknál a blokk-effektus jelentős lehet. Az effektív rezonancia integrál kiszámítására a Gurjevics-Pomerancsuk féle formulát [1] használtuk:

$$J_{effi}^{f,\delta} = \frac{\sqrt{\pi}}{4} \cdot S \cdot \frac{\sqrt{l}}{v_u} \cdot \frac{1}{\sqrt{N}} \cdot \frac{\sqrt{\sigma_{or}^i \cdot \Gamma_{ri}^{f,\delta}}}{E_{ri}}$$

ahol S a fűtőelem köbűlete, N az U^{235} , vagy az U^{238} magok száma attól függően, hogy U^{235} , vagy U^{238} rezonancia vonaláról van-e szó. \sqrt{l} a hurátlag, geometriai függő tényező, amely henger alakú blokk esetében $\sqrt{l} = 1,375 \cdot \sqrt{r}$ / r a henger sugara/. σ_{or}^i , $\Gamma_{ri}^{f,\delta}$, E_{ri} az i -dik rezonancia paraméterei, $1/\Gamma_{ri}^{f,\delta}$ fissziós, illetve sugárzási nivószélesség, E_{ri} a rezonancia energia, σ_{or}^i a rezonancia amplitudója/, amelyeket a II. sz. táblázatban tüntettünk fel [5, 6, 7].

II. táblázat

U^{235} és U^{238} rezonancia paraméterei

m	E_o /eV/	σ_{of}^m /barn/	Γ_{rm}^{δ} /mV/	Γ_{rm}^f /mV/	Γ_{rm}^n /mV/	Γ_{rm} /mV/	σ_{cr}^m /barn/
1	19,4	200	45	72	2,9	120	333
2	12,4	165	39	22	1,4	62	465
3	11,65	50	35	6	0,7	42	350
4	8,80	550	38	60	0,77	99	907,5
5	7,10	70	0	23	0,11	23	70
6	6,68	0	25	0	1,48	26,5	21700
7	6,4	110	0	9	0,25	9	110
8	4,84	20	25	4	0	29	145
9	3,60	80	37	45	0	82	146
10	3,14	45	0	115	0	115	45
11	2,04	25	31	12	0	43	89,6
12	1,138	100	42	106	0	148	139,6

m index a vizsgált rezonanciaszintet jellemzi, $m = 1-12$ / $m \neq 6$ / az U^{235} -re, $m = 6$ az U^{238} -ra vonatkozik.

σ_{or}^m meghatározása: $\sigma_{or}^m = \sigma_{of}^m \frac{\Gamma_{rm}}{\Gamma_{rm}^f}$

3/ Az $1/v$ abszorpciót, illetve fissziót 6,68- és 19,4 eV között a blokkeffektus figyelembevétele nélkül számoltuk a /15/ formula alapján. 6,68 eV-től az E_c cut-off energiáig /amely a rácsoztástól függően 0,11- és 0,16 eV között változik/ figyelembe vettük a blokkeffektust, azaz a /13/ formula alapján számoltunk. Az E_c , 19,4 eV /energiatartomáynak megfelelő letargia intervallum felosztásának, a rezonancia helyek mint osztópontok által nyújtott természetes felosztást vettük. /A rezonanciáknak mindenképpen az intervallumok osztópontjaiba kell esniük, ugyanis a rezonancia jelentősen lecsökkenti a fluxust és így egy rezonancia után az $1/v$ abszorpció és a belőle eredő keletkezés kisebb lesz, mint előtte volt/. A III.sz. táblázatban a /13/ és /15/ formula használatához szükséges paraméterek találhatóak.

III/a. táblázat

$N_H/N_{U5}, E_c$ és η táblázata

$d/mm/$	$N_{hydr}/N_{U^{235}}$	$E_c /eV/$
15	191,40	0,1195
17	282,61	0,1317
19	385,21	0,1420
21	499,22	0,1496
23	624,62	0,1560
25	761,43	0,1610

III/b. táblázat

$E_i /eV/$	η_i
19,4	
6,68	0,78
6,40	0,58
4,84	0,62
3,60	0,86
3,14	1,10
2,04	1,26
1,138	1,54
$E_c \approx 0,14$	1,90

A fent elmondottak és a /4a /, /6a/ és /27/ formulák figyelembevételével, a keletkezés kiszámítására közvetlenül alkalmazható formula a következő lesz:

$$K^5 = K_{cs}^5 + K_r^5 + K_{1/v}^5 + K_{1/v}^{5'} = v \sum_{i=1}^{12} q_{ics} \frac{\sum_{f=1}^{5_i} \Delta u_i}{\sum_a} (1 - e^{-\frac{\sum_a^i}{\sum_i} \Delta u_i}) +$$

$$+ v \cdot q_{cs} \sum_{l=1}^{12} q_{ri} (1 - p_f^i) + \sum_{l=6}^{12} q_l \eta_l \mu_l (1 - e^{-w_l}) +$$

$$+ \sum_{l=1}^5 \eta_l q_l^i f_l (1 - e^{-w_l^i})$$

ahol a /4b/ szerint:

$$q_{cs} = e^{-\sum_{j=1}^{12} \frac{\sum_a^j}{\sum_j} \Delta u_j}$$

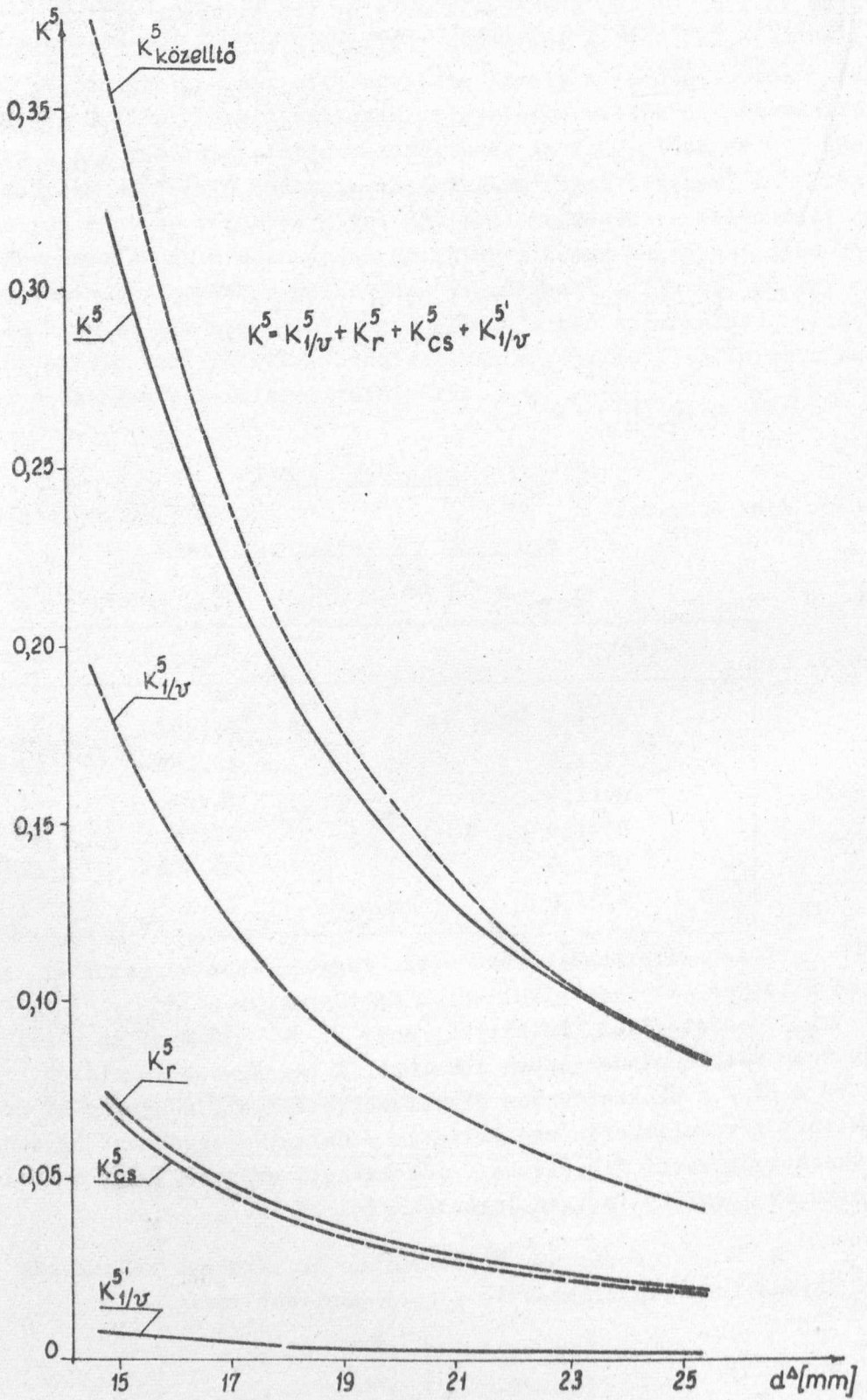
$$q_i = q_{cs} q_5^i \cdot e^{-\sum_{j=6}^i \psi_{rj} - \sum_{j=6}^{i-1} w_j}$$

$$q_i^i = q_{cs} \cdot e^{-\sum_{j=1}^i \psi_{rj} - \sum_{j=1}^{i-1} w_j^i}$$

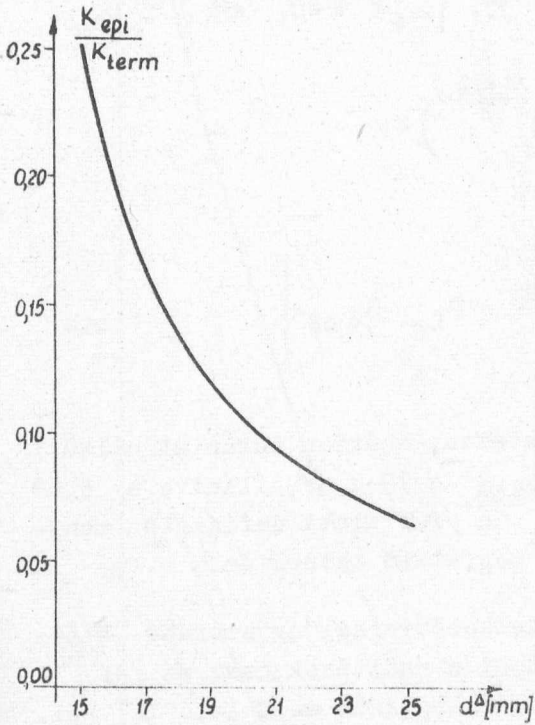
Vizsgálatainkat a rácsoztás függvényében végeztük el. A 2. sz. ábrán a teljes K^5 -ön kívül külön feltüntettük a K_r^5 , K_{cs}^5 , $K_{1/v}^5$ és $K_{1/v}^{5'}$ összetevőket. Láthatjuk, hogy a K^5 30 %-ot is eléri, tehát figyelembevétele mindenképpen indokolt. A legnagyobb járulékot / mintegy 50 %-ot / a blokkeffektus figyelembevételével, a néhány eV energián számított $1/v$ keletkezés szolgáltatja / Galanyin egyébként egyedül ezt az összetevőt veszi figyelembe/. Jól látható azonban, hogy a rezonancia keletkezés járuléka is igen jelentős /kb. 25 %/.

A 3. sz. ábrán az epi-termikus és termikus keletkezés arányát ábrázoltuk /figyelembevéve a gyorshasítást is/:

$$\frac{K_{epi}}{K_{term}} = \frac{\epsilon \cdot K^5}{\eta_t \cdot f_i \cdot p \cdot e^{-w}}$$



2. ábra. Lassulás alatti keletkezés



3. ábra. Nem-termikus és termikus keletkezés aránya

ahol ρ a teljes rezonanciaelkerülési valószínűség ($\rho = \rho^5 \rho^8$), e^{-W} az $1/v$ abszorpció elkerülési valószínűsége, ρ^8 az U^{238} ismert módon [10] számolt rezonancia elkerülési valószínűsége.

Az U^{235} teljes rezonancia befogásának elkerülési valószínűsége

$$\rho^5 = e^{-\Psi^5} = e^{-(\Psi_r^5 + \Psi_{rcs}^5)}$$

ahol a /6.c/ alapján

$$\Psi_r^5 = \sum_{i=1}^{12} \frac{N^5 \cdot V_{U_i}}{\sum_s V} [J_{eff_i}^f + J_{eff_i}^g]$$

és

$$\Psi_{rcs}^5 = (W + \Psi_r)^5_{cs} - W_{cs}^5$$

/4b/-ből

$$(W + \Psi_r)^5_{cs} = \sum_{j=1}^{N_{cs}} \frac{N^5 \cdot \sigma_{aj}^5}{\sum_s} \cdot \frac{V_{U_j}}{V} \Delta U_j$$

$E_H = 19,4$ eV feletti $1/v$ abszorpció a blokkeffektus figyelembevételével nélkül

$$W_{cs}^{5,8} = \int_0^{u_{19,4}} \frac{\sum_{a=5,8} \sigma_a(u)}{\sum_s} \cdot \frac{V_U}{V} du = \frac{2 \sum_{a=5,8} \sigma_a(u_n)}{\sum_s} \cdot \frac{V_U}{V} e^{-\frac{u_n}{2}} \left[e^{\frac{u_H}{2}} - 1 \right] \quad /30/$$

A 4.sz. ábrán a lelassulás alatti teljes $1/v$ befogás és az U^{235} rezonancia befogása, valamint egyes összetevői láthatók a rácsosztás függvényében, a ρ^8 -at kivéve. A teljes befogás a /4b/, /30/, /6c/, /13b/ és /24/ formulák alapján:

$$\Psi^5 + W = (W + \Psi)_{cs}^5 + W_{cs}^8 + \Psi_r^5 + W'_{1/v} + W_{1/v} = \sum_{i=1}^{12} \frac{N^5 \cdot \sigma_{ai}^5}{\sum_s} \cdot \frac{V_U}{V} \Delta U_i +$$

$$\begin{aligned}
 & + \frac{2 \sum_a^8(u_n)}{\sum_s} \cdot \frac{V_u}{V} \cdot e^{-\frac{u_n}{2}} \left[e^{\frac{u_H}{2}} - 1 \right] + \sum_{i=1}^{12} \frac{N^5 \cdot V_u}{\sum_s \cdot V} \left[J_{eff_i}^f + J_{eff_i}^r \right] + \\
 & + 2 \cdot \frac{\sum_a^z(u_n)}{\sum_s} \cdot e^{-\frac{u_n}{2}} \left(e^{\frac{u_{6,68}}{2}} - e^{\frac{u_{19,4}}{2}} \right) + \\
 & + 2 \cdot \frac{\sum_a^m(u_n)}{\sum_s} \cdot \frac{V_m}{V} \left[\frac{\ln \frac{\psi_0 + A \cdot B_{E_C}}{\psi_0 + A \cdot B_{6,68}}}{A} + B_{E_C} - B_{6,68} \right]
 \end{aligned}$$

/aluminium burkolat abszorpciója jelentéktelen, ezért a burkolat nélküli formulákkal számoltunk/ ahol $u_{19,4}$ és $u_{6,68}$ a 19,4 eV, illetve a 6,68 eV-hez tartozó letargia. $B_{6,68}$ és B_{E_C} a /26/ alatt definiált mennyiségek 6,68 eV, illetve E_C energiának megfelelő letargián.

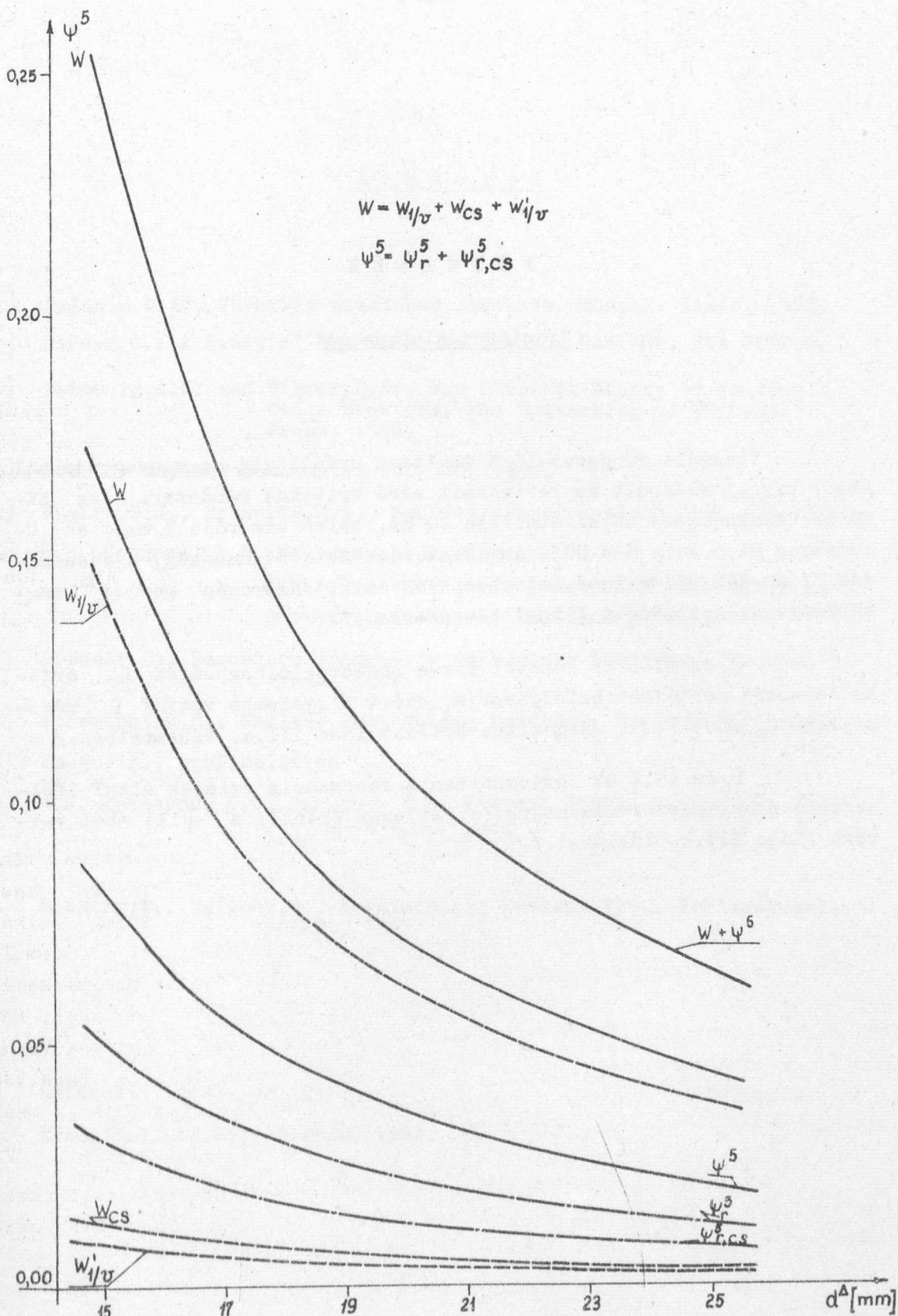
Bizonyos elhanyagolásokkal a keletkezésre egy egyszerűbb kifejezést is levezethetünk. Feltételezzük, hogy a hasítások csak az U^{238} rezonancianívó alatt történnek a termikus energiának megfelelő η_f -el. Ekkor

$$K_{köz}^5 = \eta_t \cdot f_t \cdot \rho^8 (1 - e^{-W \cdot \rho^5}) \quad /31/$$

E formulával számított keletkezést is feltüntettük a 2. sz. ábrán.

A /31/ formula kis rácsosztásoknál nagyobb keletkezést ad, mint a fenti pontosabb módszer. Ennek oka egyrészt az, hogy a /31/ nem veszi figyelembe az η csökkenését az energia növekedésével, valamint elhanyagolja az U^{235} rezonanciák fluxuscsökkentő hatását. A /31/ formula figyelmen kívül hagyja az U^{238} 6,68 eV-os rezonanciájának elhelyezkedését is, ez az elhanyagolás pedig csökkenti az így számított értéket. Ennek a formulának az az előnye /egyszerűségén kívül/, hogy segítségével az U^{235} rezonancia-integráljának ismeretében is kiszámítható a lassítás alatti keletkezés. /Akkor is, ha az U^{235} rezonancia-integrálja csak empirikus formában ismert./

Ezúton mondunk köszönetet Szeghő László és Vigassy József kollégáknak, hogy erre a problémára figyelmünket felhívták és diszkuszióikkal munkánkat támogatták.



4. ábra. Lassulás alatti $1/v$ befogás és U^{z3b} rezonancia befogás

F Ü G G E L É K

Számítási alapadatok

Vizsgált rendszer 10 % dúsítású urándioxid üzemanyagrudakból álló, vízzel moderált és reflektált zéró kritikus rendszer. Az EK-10-es üzemanyagrud külső átmérője 10 mm, belső átmérője 7 mm, az üzemanyag 86,5 súly %-a UO_2 . A cellakeresztmetszet hatszög, a rácsoztás 15 mm-től 25 mm-ig 2 mm-enként változik. /Hidrogén per U^{235} mag-sűrűségviszonyt lásd a III.a. táblázatban./

E_c és 6,68 eV közötti $1/v$ -s abszorpció nagyságát E_c értéke jelentős mértékben befolyásolja, ezért figyelembe vettük E_c rácsoztás-függését [9]. /Numerikus értéket lásd III.a. táblázatban./

E_c és 19,4 eV tartományban a rezonancia szintek által felosztott energiatartományokra η_i átlagos értékét a [11] -ből vettük. /Lásd III.b. táblázat./

I r o d a l o m

- [1] Galanin, D.A., Termikus reaktorok elmélete. Műszaki Kiadó, 1962.
- [2] Sofeer, G.: A Study of Wet Steam as Reactor Coolant, NDA 2132, 5.
- [3] Weinberg, A.M. and Wigner, E.P., The Physical Theory of Neutron Chain Reactors, The University of Chicago Press, 1958.
- [4] Reactor Physics Constants. ANL-580, 1958.
- [5] Hughes, D.J., Schwartz, R.B., Neutron cross sections, BNL 325, 1958.
- [6] И.В. Гордеев, Д.А. Кардашев, А.В. Малышев:
Справочник по ядерно-физическим константам для расчетов реакторов. Атомиздат, 1960.
- [7] Dresner, L., Resonance Absorption in Nuclear Reactors, Pergamon Press, 1960.
- [8] Etherington, H., Nuclear Engineering Handbook, MacGraw-Hill, 1958.
- [9] Szeghő L., publikálatlan
- [10] М.Б. Егизаров, В.С. Дикарев, В.Г. Мадеев: Доклад на сессии А.Н. СССР. июль 1955.
- [11] Riezler, W., Walcher, W., Kerntechnik; Teubner, B.G., Verlagsgesellschaft, 1958.

Érkezett: 1964. jun. 29.

KFKI Közl. 12.évf. 4.szám, 1964.

FeCl₃ GYÖKCSAPDÁT TARTALMAZÓ ALACSONY HŐMÉRSÉKLETEN BESUGÁRZOTT
DIMETILANILIN FOSZFORESZCENCIÁJA

Irta: Kósa Somogyi István, Vizesy Mária

Összefoglalás

A -196°C-on ⁶⁰Co- γ sugárzással besugárzott FeCl₃ gyökcsapdát tartalmazó dimetilanilin foszforeszcenciáját termikusan és IR sugárzással gerjesztettük. A kibocsátott fény spektrális eloszlásából és a gerjesztési energia nagyságából a foszforeszcencia és az energiaátadás mechanizmusát triplet állapottal kapcsolatos excitonok mozgásával és az oldott anyaggal való reakciójukkal magyarázzuk.

Gyökcsapdákat tartalmazó aromás szénhidrogéneket -196°C és 30°C közötti hőmérsékleteken besugározva Dainton és munkatársai [1] a szokásos gyökhozamoknak megfelelő G/S \cong 1 értékeknél egy nagyságrenddel nagyobb értékeket mértek. Az anomálishan nagy G/S értékeket, ahol S az oldott anyag /FeCl₃, J₂/, az oldószertől az oldott anyag felé irányuló energiaátadás okozza. A kapott eredmények alapján az energiát az aromás vegyületekben a besugárzás hatására keletkezett excitonok /a szilárd testek fizikájából ismeretes gerjesztett képződmények [7] / mozgása szállítja a kémiai reakciót pedig a gyökcsapdával történő kölcsönhatásuk okozza.

Az említett jelenség dimetilanilinnek /a továbbiakban DMA/ mint oldószernak alkalmazásakor is fellép [2]. Ez az anyag a cseppfolyós nitrogén hőmérsékletén aprókristályos átlátszatlan alakot vesz fel és így szilárd állapotban az oldott anyagot tartalmazó DMA-ban uralkodó energetikai viszonyokra csak a folyadékállapotban végzett spektrofotometriai mérésekből lehet következtetni. Az eddigi mérések szerint az energiaátadás csakis kristályos szilárd fázisban lép fel, így tehát a folyadék és szilárd fázis között sugárzaskémiaailag lényeges energetikai különbségek léteznek, s így a folyadék állapotából való extrapolálások nem látszanak megalapozottnak ebben az esetben.

Ezért arra gondoltunk, hogy az alacsony hőmérsékleten végzett besugárzásokat követő felmelegítésekkor megfigyelt foszforeszcencia tanulmányozásával szerezzünk adatokat a DMA+FeCl₃ rendszerben besugárzás hatására létrejött gerjesztési viszonyokról. Ez a molekulák energia nivó-

iról adatokat szolgáltató, ugyyszólván egyetlen lehetséges mérési módszer egyúttal arra is alkalmas, hogy az akceptorokat tartalmazó szilárd testek sugárzaskémiáját egy általánosan használt modell, a szilárd testek zónás elmélete alapján a félvezetők oldaláról közelítsük meg.

Kísérleti rész

A használt anyagok

A Fluka pract. tisztaságu dimetilanilint ecetsavanhidriddel 2-3 óráig visszafolyatással forraltuk, majd csökkentett nyomáson végzett desztilláció után a DMA frakciót még kétszer 10^{-5} Hgmm nyomáson desztilláltuk minden esetben csak a középső frakciót meghagyva. A végső terméket törőzárás ampullákba desztilláltuk és sötétben tároltuk.

A vas /III/ klorid anhidridet $/FeCl_3/$ klórgáz és hevitett spektroszkópai tisztaságu vas reakciójával állítottuk elő, előzetesen evakuált rendszerben. A palackból nyert klórt vizet, koncentrált kénsavat és magnéziumperklorátot tartalmazó szűrőkön tisztítottuk és szárítottuk. A keletkezett vas /III/ kloridot klór atmoszférában törőzárás ampullákba szublimáltuk.

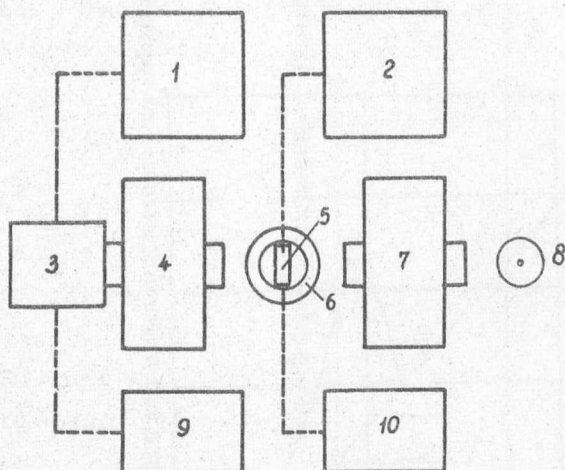
A berendezések és mérőműszerek

A sugárforrás 500 c névleges aktivitású ^{60}Co - γ preparátumot tartalmazott. A mintegy 5 ml-nyi 10-12 mm átmérőjű üvegcsőben lévő anyagot speciális Dewar-edényben sugároztuk be. A dózisteljesítmény a besugárzás helyén $2,6 \cdot 10^{18}$ eV/1 sec értékű volt, amelyet Fricke féle doziméterrel határoztunk meg.

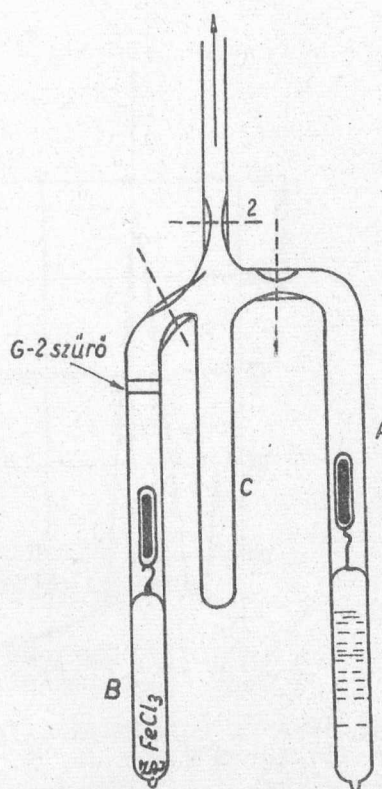
A fluoreszcencia mérésére használt berendezés, amelynek blokk-sémája az 1. ábrán látható, a kibocsátott fény intenzitásának, szinképének a termosztát és a minta hőmérés-kletének rögzítésére, valamint a foszforeszcencia IR sugárzással történt gerjesztésére volt alkalmas. Az összeállítás két Zeiss-Spiegel monokromatort, két Graphispot regisztrálót, RCA 1P28 típusu multipliert, 3 kV feszültségű tápegységet, Mazda "150 cp. Pointolite Lamp" fényforrást és N_2 gázzal hűtött kvarc-Dewar edényt tartalmazott.

A mérés

Az üvegedényeket permanganát-kénsavban, majd hidrogénperoxid és salétromsav elegyében mostuk és desztillált vizes öblítés után szárítottuk. A 2. ábrán látható üvegedény összeállítása után a falakra tapadó vi-



1. ábra. A mérőberendezés blokk sémája. 1, 2. Graphispot regisztráló készülék, 3. fotomultiplier, 4 és 7. monokromátorok, 5. besugárzóedény, 6. Dewar-edény, 8. fényforrás, 9. nagyfeszültségű tápegység, 10. hűtőberendezés



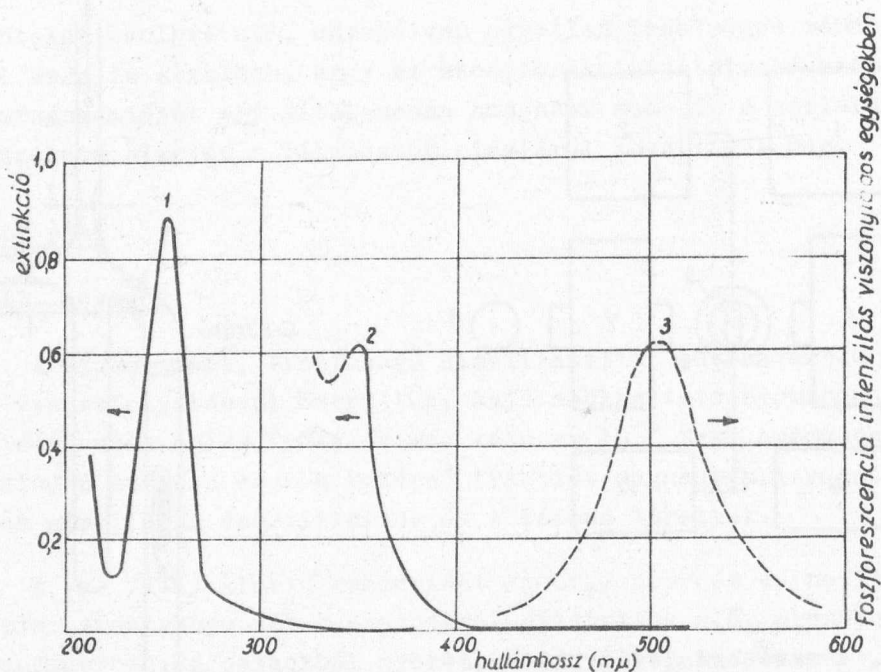
2. ábra. A besugárzóedény vázlatja

zet vákuum alatt enyhe lánggal melegítve eltávolítottuk. Ezután a B fiola törőzárának feltörése és a Cl_2 gáz leszivatása után a vas/III/ kloridot a cső felső részébe szublimáltuk, majd az B fiolában lévő anyagot desztillációval a C besugárzó csőbe juttattuk. Az 1 és 2 vonalalagnál a leszurásokat elvégezve a kívánt FeCl_3 koncentráció beállítása után B ampullát is eltávolítottuk. A C besugárzó edényben lévő anyagot a kívánt ideig cseppfolyós nitrogént tartalmazó Dewarban sugároztuk be, majd besugárzás után ugyanebben az edényben a fénytől elzárva a mérőberendezéshez juttattuk és ennek Dewarjába áthelyezve a méréseket elvégeztük. A hűtött optikai részek páramentesítését vízmentesített N_2 gáz fúvatásával biztosítottuk.

Eredmények

A foszforeszcencia spektruma

A -196°C -on besugárzott DMA + FeCl_3 rendszer foszforeszcenciájának spektrális eloszlása a 3. ábrán látható. A mérést 5 percig besugárzott mintákkal vettük fel, amelyek foszforeszcenciáját $+50^\circ\text{C}$ vízbe történő mártással gerjesztettük. A különböző hullámhosszakon felvett teljes intenzitás-ido görbék maximumait használtuk fel a 3. ábra megszer-

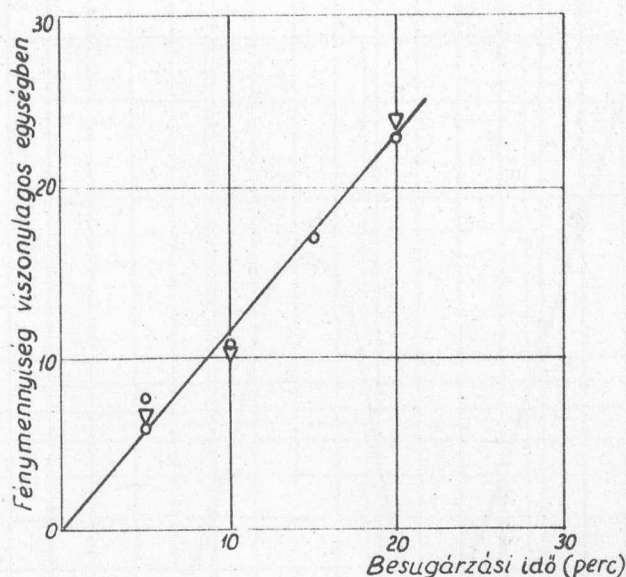


3. ábra. A különböző szinképek. 1. dimetilanilin dietiléterben $[DMA] = 5,8 \cdot 10^{-5} M$ $d = 1$ cm, 2. $FeCl_3$ dimetilanilinban $[FeCl_3] = 2 \cdot 10^{-4} M$ $d = 1$ cm, 3. a DMA- $FeCl_3$ rendszer foszforeszcencia szinképe. Az intenzitás önkényes egységekben

kesztéséhez. Hasonló lefutású görbét kaptunk akkor is, ha a monokromátor prizmját a lecsengési idő alatt forgattuk, bár ebben az esetben a lecsengési görbét is figyelembe kellett venni. A 3. ábrán vázoltuk a DMA és DMA-ban oldott $FeCl_3$ abszorpciós szinképét is, amelyből látható, hogy a foszforeszcencia szinkép a $FeCl_3$ elnyelési spektruma tükörképéhez közel áll, de a szinképek szokásos átfedése hiányzik.

A foszforeszcencia intenzitásának dóziszfüggése

Az intenzitás-idő görbék határolta területeket, vagy a görbék maximumait az elnyelt dózis függvényében ábrázolva /4. ábra/ látható, hogy a leadott fénymennyiség kezdetben lineárisan emelkedik az elnyelt dózissal. A besugárzás idejét növelve ettől a kezdeti lineáris összefüggéstől lényeges eltérések figyelhetők meg. / A görbe ezen szakasza az ábrán nincs feltüntetve. / Bizonyos dózisintervallumban a leadott fénymennyiség állandó értékű lesz, majd további besugárzás hatására erősen csökken és alig észlelhető minimális értéket vesz fel. A foszforeszcencia ezen változása a dózis függvényében feltehetően a $FeCl_3$ folyamatos redukciójával és a besugárzás folyamán keletkező nagy elektronaffinitással rendelkező szabad gyökök felgyülemlésével áll kapcsolatban, amelyet jelen munkában nem vizsgáltunk.



4. ábra. A foszforeszcencia intenzitásának változása a besugárzási idő függvényében. $\lambda = 505 \text{ m}\mu$ -nál mérve

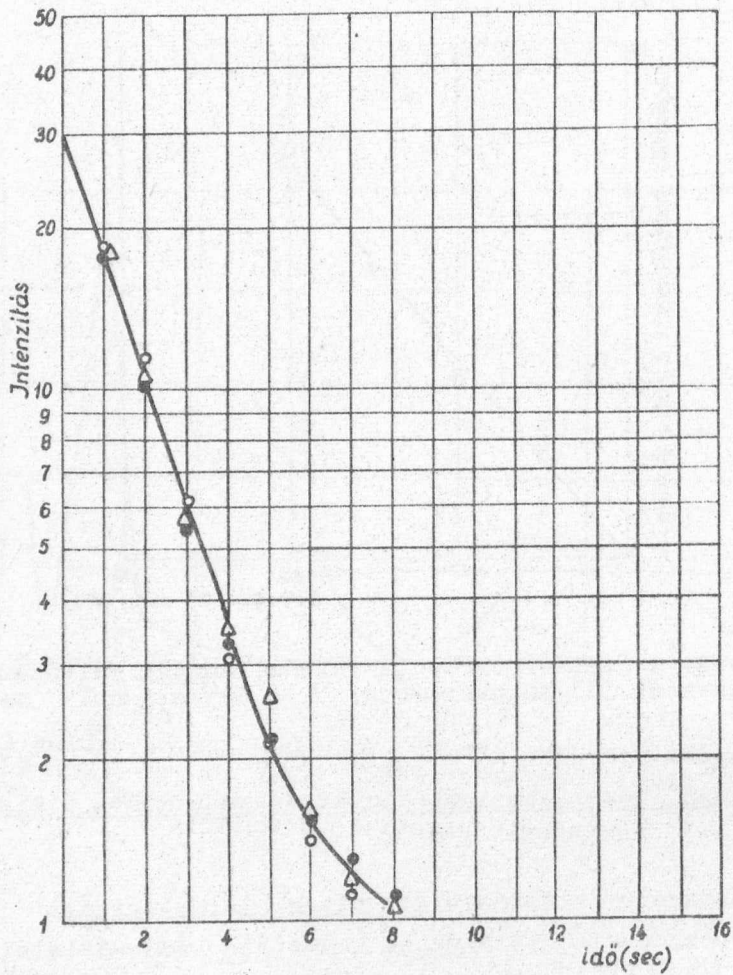
A foszforeszcencia intenzitás időbeli változása a minta pillanatszerű felfűtésekor

Pillanatszerű felfűtés alatt olyan felmelegítést értünk, amikor a foszforeszcencia maximumának megfelelő hőmérsékletet / esetünkben 160°K / a minta sokkal rövidebb idő alatt éri el mint a foszforeszcencia lecsengésének teljes ideje.

Ezen mérésekhez kb. 2 mm vastagságu folyadékréteget tartalmazó lapos üvegből készült besugárzó edényeket használtunk. A mintákat 5 percnyi besugárzás után forró vízbe mártottuk és elindítottuk a stopper-órát. A foszforeszcencia intenzitását az eltelt idő függvényében ábrázolva a görbék két határozottan kifejezett és egy, csak hosszú ideig tartó besugárzások után fellépő lapos csucst tartalmaznak. Az első éles csucst a besugárzáshoz használt üvegedény kék foszforeszcenciája okozza, amelyet külön mérésekkel is megállapítottunk. A második és harmadik csucs a besugárzott DMA- FeCl_3 rendszerben történő elektron átmenetekkel kapcsolatos. A második csucs intenzitásának csökkenő a... időben exponenciálisan változik, amit ez az 5. ábrán látható.

Az intenzitás változása a gerjesztési hőmérséklettel

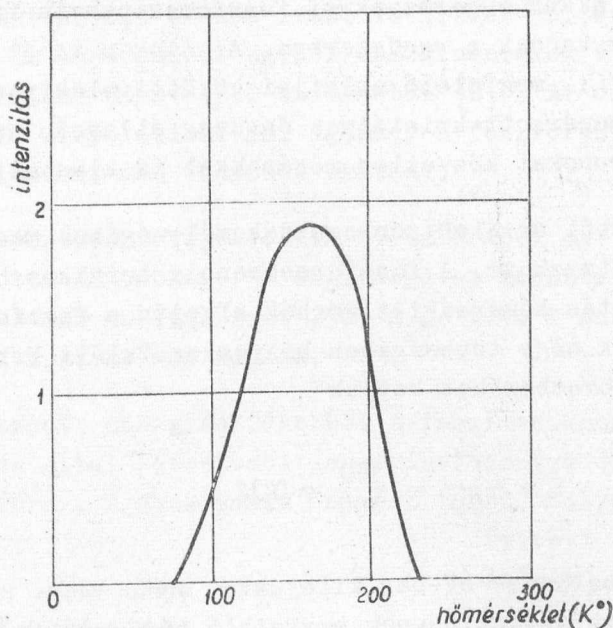
A minta hőmérsékletének változását külön mérésekkel határoztuk meg, mivel a termoelemek vákuumálló kivezetése mérési hibákat



5. ábra. A foszforeszcencia intenzitásának csökkenése az idő függvényében $\lambda = 505 \text{ m}\mu$ -nál mérve

okozhat és a sugárzásnak termoelektromotoros erőre kifejtett esetleges hatásait sem kívántuk kimérni. Mivel a felmelegítéseket mindig azonos módon hajtottuk végre, úgy gondoljuk, hogy a minta hőmérsékletét kielégítő pontossággal határoztuk meg. A minta hővezetése miatt kis hőmérsékletkülönbség lehetett az üvegfallal közvetlenül érintkező és belső rétegek között.

A foszforeszcencia intenzitását a minta hőmérsékletének függvényében ábrázolva egyetlen maximummal rendelkező folyamatos görbét kapunk /6. ábra/. A foszforeszcencia tehát -196°C és -50°C hőmérséklet-határok között játszódik le. A felső hőmérséklet-határ megállapítására külön méréseket is végeztünk úgy, hogy -50°C -on sugároztuk be a mintákat, majd a szokásos módon 50°C -os vízbe helyeztük őket. Ilyen esetekben foszforeszcencia felvillanást nem észleltünk.



6. ábra. A foszforeszcencia intenzitásának változása a -196°C -on besugárzott minta hőmérsékletének függvényében $\lambda = 505 \text{ m}\mu$ -nál mérve

Gerjesztés infravörös sugárzással

Az alacsony hőmérsékleten besugárzott mintákat cseppfolyós nitrogénbe helyeztük, majd különböző hullámhosszú IR sugárzással sugárroztuk be. A fotomultiplieres és vizuális megfigyelések alapján a foszforeszcencia $3,7 \mu$ hullámhosszú sugárzás hatására kezd felizzani és maximumát $1,5 \mu$ körül éri el. Más hullámhosszú sugárzás nem idézett elő foszforeszcenciát.

Az eredmények tárgyalása

Méréseink azt mutatják, hogy besugárzás hatására a rendszerben gerjesztett állapotú részecskék keletkeznek, amelyek a besugárzás hőmérsékletén csapdában foglalnak helyet. A csapda mélységének megfelelő aktivációs energia közlése után a gerjesztett részecskék feles energiájukat, vagy annak bizonyos részét sugárzás formájában leadják. Az ionizáló sugárzást gyakorlatilag teljes egészében a DMA molekulák nyelik el, mivel a FeCl_3 elektronhányada γ a rendszerben elenyészően kicsi 10^{-4} FeCl_3 tartalmu oldatban $\gamma = 2 \cdot 10^{-4}$. A foszforeszcencia létrehozásában a FeCl_3 molekuláknak mégis döntő szerepük van, mivel a besugárzott tiszta DMA felmelegítésekor fénykibocsátás nem észlelhető. A gerjesztett részecskék tehát minden valószínűséggel a DMA-ból keletkeznek, de feles

energiájukat csak akkor sugározzák ki foszforeszcencia formájában, ha FeCl_3 molekulák is vannak a rendszerben. A szinkép tehát a DMA gerjesztett és a FeCl_3 megfelelő szintjei közötti elektronátmenetekkel kapcsolatos. A besugárzott kristályos és üveg állapotú anyagokban fel szabadított elektronokat közvetlen mérésekkel is kimutatták [3], [4].

Méréseinkből az elektron-csapdák mélységének megállapítására három módszer alkalmazható. A foszforeszcencia termikus gerjesztésekor kapott intenzitás-hőmérséklet görbék alapján a foszforokra levezetett és az esetek nagy többségében helyesnek talált Urbach formulát [5] alkalmazva a következőket kapjuk

$$\varepsilon = \frac{\Gamma^*}{500} = \frac{160}{500} = 0,32 \quad /1/$$

ahol ε a csapda mélysége eV-ban kifejezve

Γ^* a maximális intenzitásnak megfelelő hőmérséklet.

A csapda mélysége a lecsengési időből is megbecsülhető. Az elektron közepes élettartama a csapdában τ és a kiszabadulás valószínűsége között a következő összefüggés van:

$$\tau = \frac{1}{\rho} \quad /2/$$

Termikus gerjesztést és az általánosan elfogadott Boltzmann eloszlást feltételezve

$$\rho = s \exp\left(-\frac{\varepsilon}{kT}\right) \quad /3/$$

$$\ln \tau = \frac{\varepsilon}{kT} - \ln s \quad /4/$$

A kiszabadulási hőmérsékletet a 6. ábra alapján 160°K -nak véve $s = 10^9 \text{ sec}^{-1}$ értékkel az aktiválási energia $0,31 \text{ eV}$ -nak adódik, amely jó egyezésben van az /1/ alapján nyert értékkel.

Az aktiválási energia nagysága a gerjesztő IR besugárzás hullámhosszából is meghatározható, az ismert összefüggés alapján:

$$\varepsilon = h\nu = \frac{hc}{\lambda} \quad \text{amelyből} \quad \varepsilon(\text{eV}) = \frac{1234}{\lambda(\text{m}\mu)} \quad /5/$$

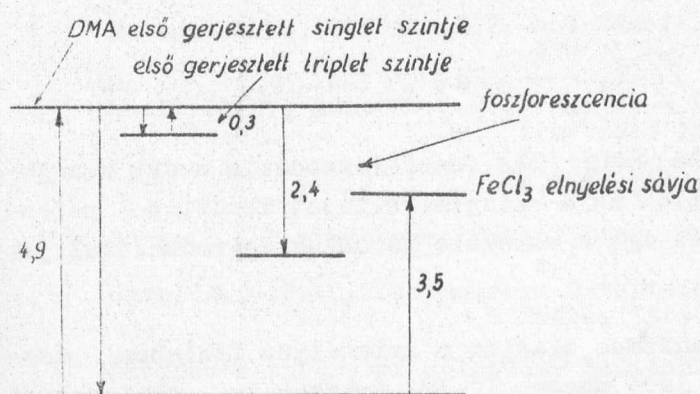
A mért értékeket behelyettesítve azt kapjuk, hogy a foszfo-

reszcencia gerjesztése 0,3 eV-nál indul és 1,2 eV-nál éri el maximális intenzitását. Az IR sugárzással kapott energiaértékek általában kissé különböznek a termikus uton nyert értékektől [6]. A dimetilanilinnek 1,2 eV körül nincs elnyelési sávja, úgyhogy a foszforeszcencia gerjesztésének eltolódását más tényezők okozzák.

A foszforeszcencia spektrális eloszlásából az átmenet energia szintjei közötti különbség [5] segítségével meghatározható. A görbe maximumához tartozó hullámhosszt [505 m μ] véve a számítás alapjául, ez az energia 2,44 eV-nak adódik.

Az így kapott energiaértékekből a foszforeszcencia kinetikája és a besugárzás által létrehozott energiaviszonyok diagrammon szemléltethetők [7. ábra]. A diagrammra felvázoltuk a folyékony fázisban

felvett szinképekből számítható adatokat is.



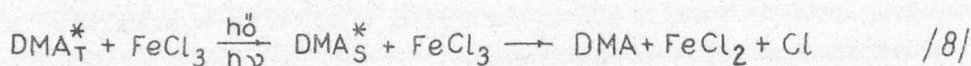
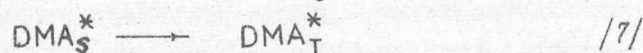
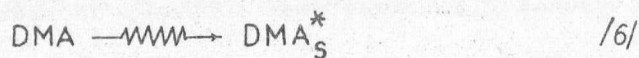
7. ábra. A foszforeszcencia energetikai sémája

sűrű elhelyezkedése és a felületek gyakori átmetszései miatt az elektronok gyorsan visszajutnak az első gerjesztési sávra, ahonnan egy részük a mintegy 0,3 eV-tal alacsonyabban fekvő triplet sávra jut. Ezen sáv elektronjai a valens zónában létrejött lyukakkal kölcsönhatásba vannak és excitonokként viselkednek. Az excitonok kristályos állapotú anyagon keresztül mindaddig szabadon vándorolnak egyik rácsponttól a másikra, míg egy $FeCl_3$ molekula, vagy $FeCl_3$ és DMA alkotta komplex közelébe nem kerülnek, ahol az exciton ezen komplex vonzásába kerülve energiáját megőrizve migrációját tovább nem folytatja.

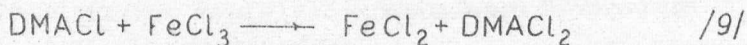
Az elektron a szükséges energia felvétele után a triplet állapotból a vezetési sávba emelkedik. Termikus gerjesztéskor ez az energia $h\nu$ energiájú fononok elnyelése útján közlődik a csapdával, amelyből a megfelelő rezgési energia elérése után az elektron kiszaba-

A séma alapján az alacsony hőmérsékleten végzett besugárzás és az ezt követő felmelegítés során a következő folyamatok játszódhatnak le. A nagyenergiájú ionizáló sugárzás a DMA molekulák valens zónájából elektronokat visz át a magasabb energiájú gerjesztett sávokba. Ezek

dulhat. A DMA-FeCl₃ komplex közelében lévő és a vezetési sávba került elektron a FeCl₃-mal reagál az energia különbséget fény formájában kisugározva. A folyamatok a következőképpen írhatók fel



Ahol DMA_S^{*} és DMA_T^{*} a gerjesztett szinglet és triplet állapotban lévő dimetilanilin molekulát jelképezi. A /8/ egyenlet szerinti reakcióban felszabadult Cl atom feltehetőleg egy DMA molekulához csatlakozva szabad gyököt hoz létre, amely további FeCl₃ molekula redukciójára képes.



A besugárzott tiszta DMA -ban foszforeszcencia azért nem jöhet létre, mert az első triplet és a szinglet állapot között a potenciálfelületek átmetsződnek és így a molekula termikus degradációval juthat vissza az alapállapotba.

Az itt vázolt mechanizmus alapján a kristályos fázisban észlelt energiaátadás és ezzel járó magas G(-S) értékek az excitonoknak a FeCl₃ "szennyező" molekulák irányában történő migrációjával és reakciójával magyarázhatók. Folyadék fázisban a triplet állapot termikus degradációja miatt energiaátadás csak magasabb feltehetőleg [FeCl₃] > 10⁻²M koncentrációknál várható.

A G(-S) érték és foszforeszcencia, valamint a felvázolt sémából levonható kvantitatív összefüggések vizsgálatára egy későbbi közleményünkben térünk ki.

I r o d a l o m

- [1] Collinson, E., Conlay, J.J. and Dainton, F.S., "Fundamental Processes in Radiation Chemistry" c. konferencián elhangzott előadás, Notre Dame U.S.A. Trans. Faraday Soc. /sajtó alatt/
Conlay, J.J., Dissertation, University of Leeds 1962.
- [2] Dainton, F.S., Kósa-Somogyi, I. and Salmon, G.A. /sajtó alatt/
Kósa-Somogyi, I., Report to the IAEA 1963.
- [3] Ronayne, M.R., Guarino, I.P. and Hamill, W.H., J. Am. Chem. Soc. 84,
4230 /1962/
- [4] Hamill, W.H., Guarino, J.P., Ronayne, M.R. and Ward, J.A., "Fundamental Processes in Radiation Chemistry" c. konferencián elhangzott előadás, Notre Dame U.S.A. Trans. Faraday Soc. /sajtó alatt/
- [5] Curie, D., Luminescence Cristalline. Dunod, Paris 1960
- [6] Garlick, G.F.J., Luminescent Materials, Oxford at the Clarendon Press, 1949.
- [7] Davydov's theory of molecular Excitons, translated by Kasha and Oppenheimer. MacGraw Hill, London, 1962

Érkezett: 1964. júl. 10.

KFKI Közl. 12. évf. 4.szám, 1964.

NANOSZEKUNDUMOS TARTOMÁNYBAN MŰKÖDŐ IDŐ- AMPLITUDÓ KONVERTER

Irta: Almási Lajos és Sándor László

Összefoglalás

A cikk, egy a nanoszekundumos időtartomány analizálására szolgáló idő- amplitudó konverter fejlesztése és bemérése során felmerült kérdésekkel, s a megvalósított konverterrel elért eredményekkel foglalkozik. A megadott mérésterületek és az ezekből adódó specifikációs követelmények alapján megvizsgáltuk az átalakítási lehetőségeket. Az impulzusok átfedésén alapuló módszer, a start-stop rendszer, az előzetes idő-frekvencia átalakítást tartalmazó módszer és a differenciál átalakítók közül a start-stop rendszer mutatkozott a célnak legmegfelelőbbnek. A választott rendszert elektroncsövekkel valósítottuk meg. Ismertetjük az áramköri felépítést, az egyes blokkok feladatait és működését.

Leírjuk a konverter elektronikus bemérését, melyet az Intézetben kifejlesztett nanoszekundumos alaplémérőrendszer és egy 128 csatornás amplitudó analizátor segítségével végeztünk el. Végül a konverter szcintillációs jelekkel való bemérését, illetve néhány ellenőrző mérést ismertetünk.

Intézetünkben több fizikai témánál felmerült a nanoszekundumos tartomány időanalizálásának szükségessége. Ilyen mérési problémák voltak például a gyors neutron repülési idő mérések, valamint gerjesztési élet-tartamok mérése során.

A nanoszekundumos időanalizálás problémáját egy idő-amplitudó konverter fejlesztésével kívántuk megoldani, mely az Intézetben kifejlesztett 128 csatornás amplitudó analizátorral együttesen végzi el a feladatot. Megjegyezzük, hogy az Intézetben már mások is foglalkoztak ezzel a témakörrel [1].

A konverterrel szemben támasztott követelmények:

- 1/ A különböző mérési feladatok által támasztott követelmények optimális kielégítése.
- 2/ Sorozatgyártásra alkalmas, nem túlságosan komplikált felépítés.

3/ Alkalmazkodják az Intézetben gyártott 128 csatornás amplitúdó analizátorhoz.

Megvizsgálva a mérések és a csatlakozó 128 csatornás analizátor által támasztott igényeket a következő előzetes specifikáció alakult ki:

Mért idő	max. 128 nsec.
Átalakítási tényező pontossága /a max. mérési időhöz viszonyítva/.	$\pm 1\%$
Átalakítási tényező stabilitása /8 h/	$\pm 1\%$
Holtidő	max. 210 μ sec
Bemenő imp.	50 ohm
Bemenő jelek polaritása	negatív
Kimenő impedancia	< 1 kohm
Kimenő jel lefutási ideje	kb. 400 nsec.
Kimenő jel lefutási ideje	kb. 5 μ sec

A következő feladat a számunkra legmegfelelőbb konvertálási módszer kiválasztása volt.

Az átalakítási módszer kiválasztása

Az irodalomban ismert átalakító fajták:

- 1/ Pulzusok átfedésén alapuló módszer,
- 2/ Start-stop rendszer,
- 3/ Előzetes idő-frekvencia átalakítót tartalmazó rendszer,
- 4/ Differenciál átalakító.

Vizsgálva az egyes módszereket a következő megfontolásokat tettük.

Az impulzusok átfedésén alapuló rendszer [1] egyszerű felépítésű, azonban hátrány, hogy az átfedő impulzusoknak rövid fel-, illetve lefutásuaknak kell lenniök, mivel a kezdő és vég-idők az egyik jel lefutásával, ill. a másik jel lefutásával jelölődnek ki. Továbbá az előidejű-

ség kijelölése egy lényegében hasonló áramkört kíván és a kapott amplitúdó spektrumot komplementálni kell.

A start-stop rendszer [2] szintén egyszerű felépítésű. Az idő kijelölés a jelek felfutására történik, így csak ezeknek kell megfelelőnek lenni. Az elérhető felbontási idő igen jó, 10^{-11} sec-et is kaphatunk ilyen jellegű konverterekkel. Hátránya a rendszernek, hogy az indító ágba érkezett egyes jel hatására is elindul az átalakítás, melyet később valahol semlegesíteni kell.

Az előzetes idő-frekvencia átalakítót tartalmazó rendszer [3] igen bonyolult felépítésű. Az idő-frekvencia átalakítás stabilitása automatikus korrekciót igényel és az egész rendszer után még kell egy - már rosszabb felbontású - idő-amplitúdó konverter. Az egész bonyolult megoldással sem lehet sokkal jobb felbontást elérni, mint az előbbi rendszerekkel, miután a benne szereplő áramköri elemek megegyeznek azokkal és így az idő-frekvencia átalakításnál nyert faktort nem lehet jól kihasználni.

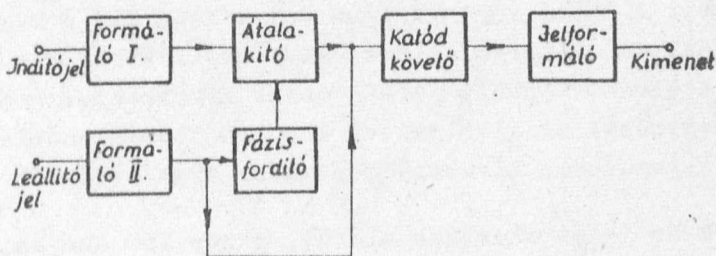
Előnye ennek a rendszernek, hogy nem amplitúdó függő, mint az előbbi áramkörök.

A differenciál átalakítók [4] szintén bonyolultabb felépítésűek, mint az első két rendszer. Előnyük, hogy igen érzékenyek; egészen a mV-os tartományig használhatók. Hátrányuk, hogy csak aránylag rövid időtartományok mérésére alkalmasak.

A fent felsorolt szempontok alapján a start-stop rendszer volt a logmegfelelőbb számunkra. Ezzel a módszerrel kb. 6 csővel megoldható a konverter kivitelezése.

A konverter felépítése

Az általunk felépített konverter blokk-sémáját az 1. sz. ábra mutatja.



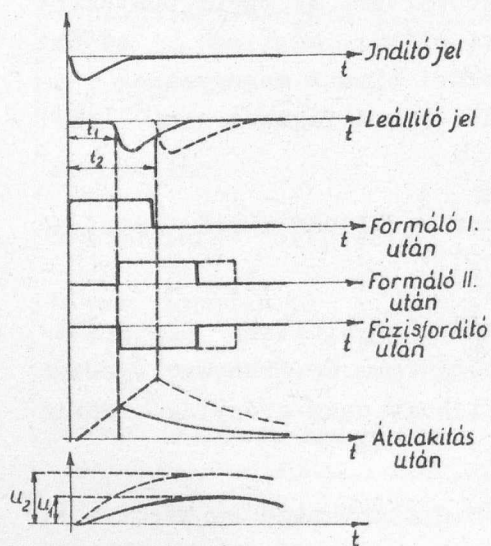
1. ábra. A konverter blokk sémája.

Az egyes blokkok feladatai.

Az I., és II. formáló áramkörök a fotómultipliererről érkező jeleket formálják a mérési tartomány hosszúságára és egyben limitálják is a jeleket.

Az átalakító egységben az indító jel hatására elkezdődik egy kondenzátor lineáris kisülése és a fázisfordítón keresztül érkező leállítójele hatására befejeződik a kisülés.

A katódkövető illeszti a kimenet felé az analóg jelet, melyet a jelformáló az amplitudó analizátor bemenetének megfelelő alakra formál.



2. ábra. A jelalak-idő diagramm

A blokkjának megfelelő jelalak idő-diagrammot a 2. ábra mutatja.

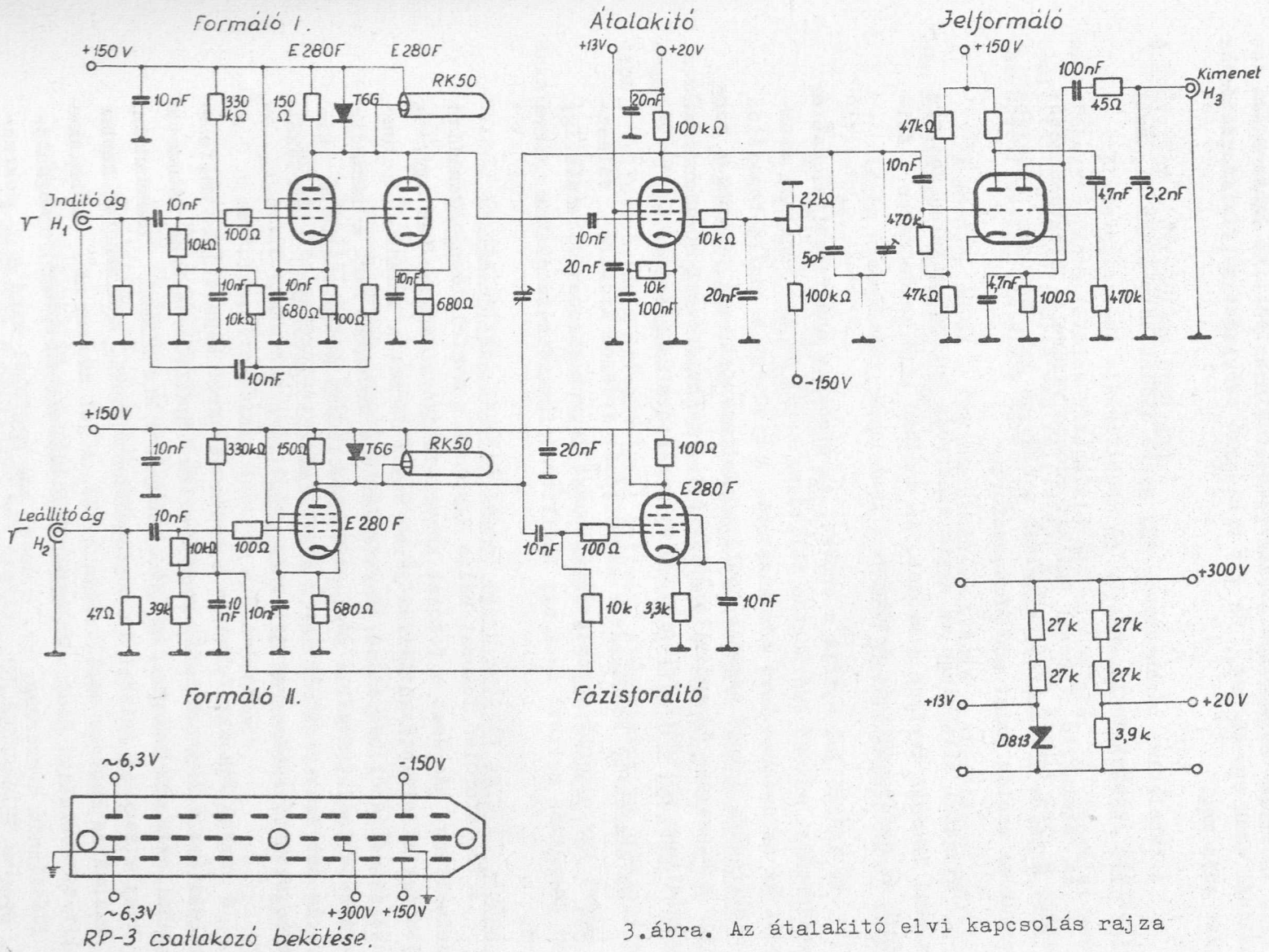
A konverter gyakorlati megvalósítása

Az elvi kapcsolási rajzot a 3.sz. ábra mutatja.

A bemenő fokozat kialakítását a méréseknél használt fotómultiplierek és a mért energianívok határozzák meg, RCA6810A és 56AVP fotómultiplierek használata esetén a 100 keV-től pár MeV-es energiáig még kis impedanciájú kimenet esetén is elérhető pár voltos jel.

A formáló fokozatokat nagymerekségű pentódákkal oldottuk meg, melyeket a vezérlő jelnek vezetéssből lezárásba kell vinniük. Az alkalmazott E280F csövek esetén 150 V anódfeszültség mellett 2V-os jel szükséges a teljes lezáráshoz. A formálást az anódkörbe helyezett kábellel végeztük el. A kábel vége rövidre van zárva, míg a bemenetnél a hullámellenállással van lezárva illesztési célból. Erről a lezáró ellenállásról kapjuk a kívánt formált jelet, ebből következik, hogy a kapott jel amplitudója egyrészt az alkalmazott kábel hullámellenállásától, másrészt a csőből folyamatosan kivehető maximális áram értéktől függ.

Mi kb 3V-os jelet akartunk elérni, s így 150 ohm-os hullámellenállású kábel alkalmazása mellett 2 db E280F csövet használtunk e-



3. ábra. Az átalakító elvi kapcsolás rajza

gyenként 25 mA anódárammal az I. Formálónál, míg a leállító ágban a II. Formálónál csak egy csövet, és itt a hiányzó erősítést a fázisfordító fokozat adja meg.

A kábelekkel párhuzamosan egy gyors diódát helyeztünk el, mely a reflektált jeleket vágja le.

Az átalakító fokozat egy két rácson vezérelt elektroncsőből áll. Erre a célra közismerten alkalmas a 6BN6-os cső, melynek anódjába helyezzük az analóg jelet adó kondenzátort.

Nyugalmi állapotban az egyik elektróda nullpotenciálon van, míg a másikkal lezárva tartjuk a csövet. Az anódban lévő kondenzátor feltöltődik az anódfeszültség értékére.

Az indító jel nyitja a csövet. Az alacsony anódfeszültséggel és kis anódárammal működő cső rögtön telítésbe kerül és így konstans árammal süti ki az anódban lévő kondenzátort. A kisütést a nullpotenciálon lévő elektródára érkező negatív leállító jel szünteti meg. Ezután a kondenzátor a kapacitás és anódellenállás által meghatározott időállandóval exponenciálisan töltődik fel a nyugalmi anódfeszültség értékére.

Az átalakító kondenzátor kapacitását érdemes kicsire választani, mivel így nagyobb feszültségváltozást kapunk azonos idő alatt. Így a szórt kapacitás mellett csak egy beállító trimmert használtunk erre a célra.

A fázisfordító fokozat célja egyrészt a megfelelő leállító jel kialakítása, másrészt e fokozat közbeiktatásával módunk van egy, a leállító jellel ellentétes fázisu jelet kapni és azt a kimenő jelhez kompenzálás céljából hozzáadni. Erre azért van szükség, mert a harmadik rácstra érkező leállító jel a rác-anód kapacitáson átcsatolódik a kimenetre és ezt semlegesíteni kell. A semlegesítő csatolás mértékét egy változtatható trimmerrel állítjuk be.

A kimenő fokozat feladata a kondenzátorról kapott jel megfelelő illesztése a kimenet felé. Erre a célra legalkalmasabbnak látszott a White-follower alkalmazása, melynek előnyei a kis kimenő impedancia és az, hogy a negatív jeleket is megfelelően átviszi. A kimeneten kapható jel maximális hasznos amplitudója 1,28V. A jel hossza az előbbieken említett átalakító kondenzátor és anód ellenállás által meghatározott időállandó ötszöröse, kb. 5 μ sec, ami megfelel mind a sokcsatornás, mind az egycsatornás analizátorok felbontásának.

A kimenő jel felfutását passzív elemekkel történő jelformálás-

sal megnöveltük kb. 400 nsec értékűre, amit a csatlakozó amplitudó analízátor bemenete kívánt meg.

A konverter elektronikus bemérése

A konvertereket elkészítésük és egyenáramu bemérésük után először fokozatonkénti jelalak vizsgálatoknak vettük alá. A vizsgálat során beállítottuk az optimális neutralizálást is. Ezután került sor a konverter specifikációs adatainak mérésére.

A mérések során a 128 csatornás amplitudó analízátorral együttesen megmértük a konvertereknél:

- 1/ Az átalakítási tényezőnek a bemenő feszültségtől való függését;
- 2/ Az átalakítás linearitását;
- 3/ A felbontási időt.

A mérések során az Intézetben kifejlesztett nanoszekundumos alpmérőrendszer egyes elemeit használtuk fel. A mérőrendszer tagjai egyégesen 50 ohm-os hullámellenállásúak. Segítségükkel 0,2 nsec-nál rövidebb felfutási idejű jeleket lehet kelteni, elágaztatni és átkapcsolni.

Ily módon az alábbi méréseket, megfelelő pontossággal és reprodukálhatóan tudtuk elvégezni.

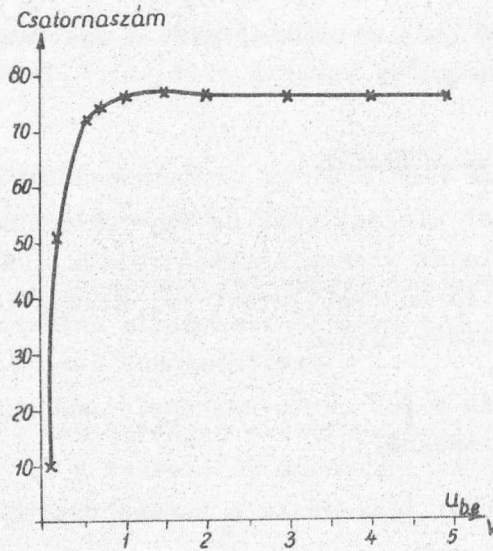
1/ Az átalakítási tényező bemenő feszültségtől való függésének a mérése

A mérésnél a konverter bemenő jeleit egy gyorsfelfutású háromcsatornás impulzusgenerátor adta. Az indító és leállító jel közötti késleltetést egy késleltető szekrényvel állítottuk be. Ezután egyszerre változtattuk a bemenő jelek amplitudóját és a 128 csatornás amplitudó analízátoron leolvastuk az egyes bemenő feszültségekhez tartozó csatornaszámot.

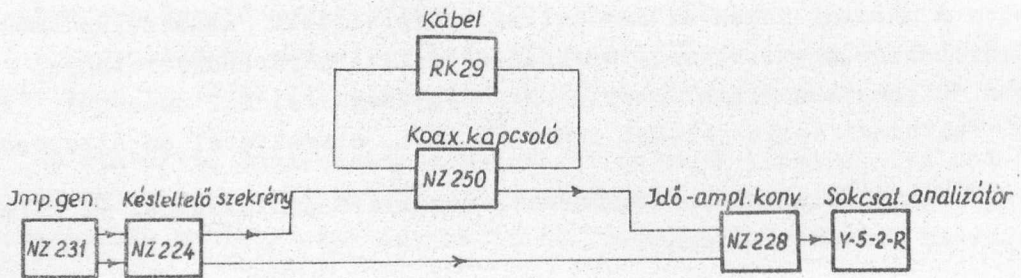
A mért értékeket a 4.sz. ábra mutatja. Az ábrából látható, hogy 2V bemenő feszültségtől felfelé az átalakítási tényező változása 1%-on belül van.

2/ Az átalakítás linearitásának mérése

A mérésnél a generátor két csatornáját használjuk fel. A kimenő jeleket -2V-ra állítjuk be 150 nsec hosszúság mellett. Az indító jelet keresztül vezetjük a késleltető szekrény alap-



4. ábra. Átalakítási tényező változása a bemenő jelek amplitudójának függvényében



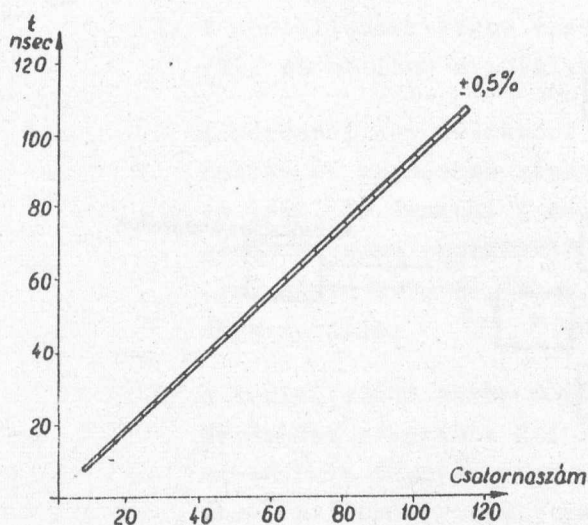
5. ábra. Az átalakítás linearitásának mérése

késleltetésén és a leállító jel ehhez az alapkésleltetéshez képest kapja meg a névleges késleltetést /lásd 5. ábra/. Az egész 128 nsec tartomány kiméréséhez szükség van arra, hogy 60 nsec után egy koaxiális kapcsoló segítségével plusz késleltetést iktassunk be. A mérést úgy végeztük el, hogy csatornaváltásra álltunk be az analízátoron, ezután két-csatornánként lépkedtünk és leolvastuk hozzá a késleltetőszekrényen a változást.

Az így mért értékeket a 6.sz. ábra mutatja. Az ábrából látható, hogy a konverternek az analízátorral együttesen mért linearitása $\pm 0,5\%$.

3/ Felbontási idő mérése

A felbontási idő mérésénél az előbbihez hasonló elrendezést használtunk és a késleltető ágba még beiktattunk egy változtatható hosszúságú koaxiális vezetékét. Kis késleltetés és nagy erősítés mellett elértük azt, hogy egy csatorna szé-



6. ábra. Konverter linearitás mérése 128. csatornás amplitúdó analízátorral

tert több kísérleti módszer útján vizsgáltuk detektortól származó jelekkel.

A vizsgálati módszerek:

- 1/ Késleltetési görbe mérése önkoincidencia jelekkel.
- 2/ Késleltetési görbe mérése valódi, promptkoincidenciákkal. /Na²² pozitronjaival keltett megsemmisülési γ -sugárzással./
- 3/ Ismert élettartamu gerjesztett nivók lebomlási görbéjének mérése.

A méréseket RCA6810A típusu fotómultiplierrel 1,5"x1,5" NaJ /Tl/, illetve 1"x1" stilben kristállyal végeztük. A sokszorozók jeleit az anódból közvetlenül a konverter bemeneti csatlakozóra adtuk, 50 ohm-os hullámellenállású kábelon keresztül

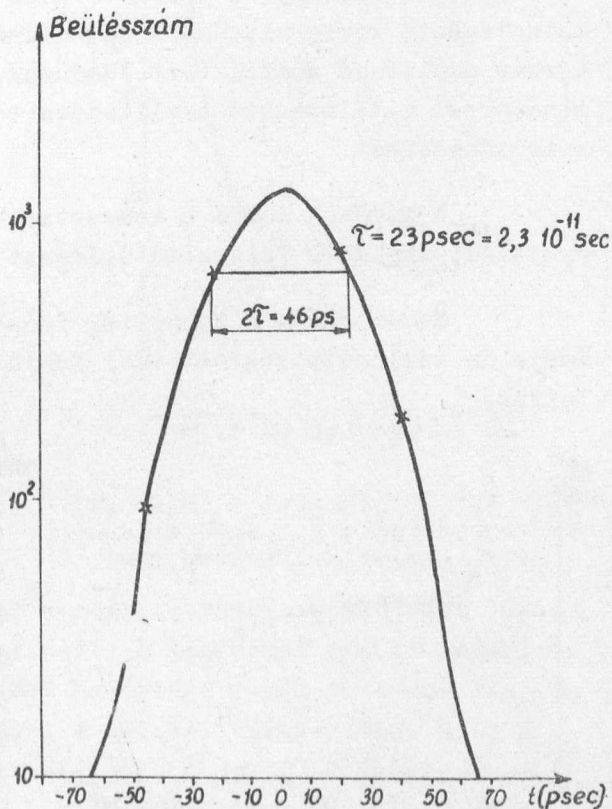
/8. ábra/. A sokszorozó 11-ik dinódájáról levett jeleket erősítőbe és disz-

lessége 22 psec-nak felelt meg. Ezután egy perces méréseket végeztünk. A mért szórásgörbét a 7. sz. ábra mutatja.

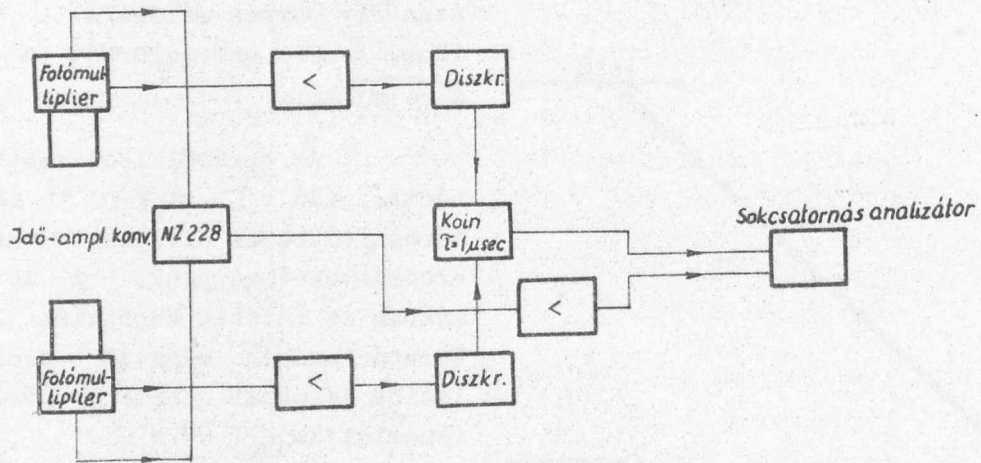
Az ábrából leolvasott felbontási idő $\tau = 2,3 \cdot 10^{-11}$ sec. A mérést többször elvégezve hasonló eredményeket kaptunk. A következőkben az Intézet Magfizika I. Laboratóriumában végzett szcintillációs jelekkel történt méréseket ismertetjük.

A konverter bemérése nukleáris módszerekkel

Az idő-amplitúdó konver-



7. ábra. A konverter felbontási idő mérése

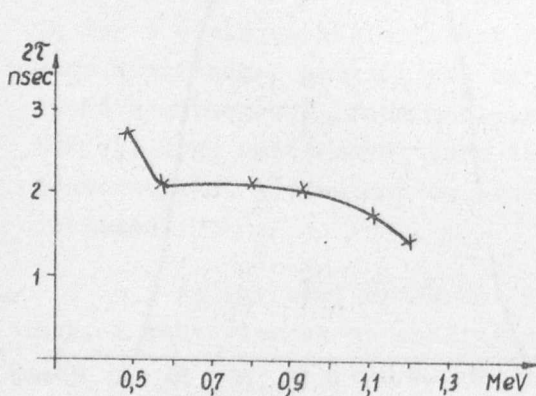


8. ábra. A szcintillációs jelekkel való bemérés elrendezése

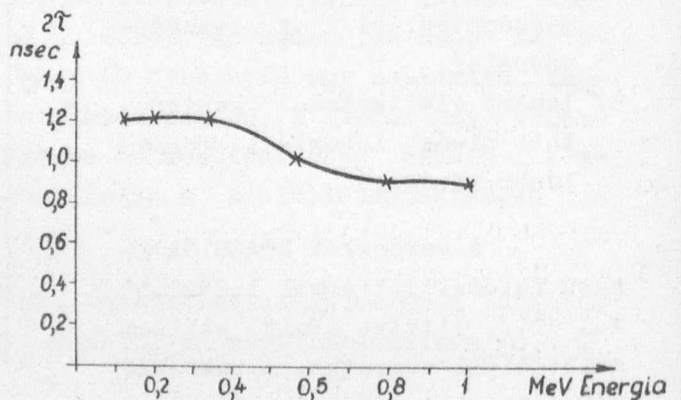
kriminátorba juttattuk. A diszkriminátornál a kívánt energiatartományt választottuk ki, majd a jeleket lassu /felbontási idő $\tau = 1 \mu\text{sec}$ / koincidencia körbe vittük. A koincidencia jelekkel kapuztuk a sokcsatornás amplitúdó analízátort /Raduga/, amely ily módon csak a diszkriminátorral kiválasztott amplitúdótartományba eső impulzusokra adott koincideneciákat.

A mérések során a konverter bemenő kapcsaihoz a bemenő jelek nyújtását szolgáló félvezető diódákat alkalmaztuk.

Mérés előtt a konverter időskáláját a γ -sugárzás repülési ideje és kalibrált késleltetési idejű kábelek segítségével hitelesítettük.



9. ábra. A felbontási időnek a γ energiától való függése NaJ/Tl kristály használata esetén

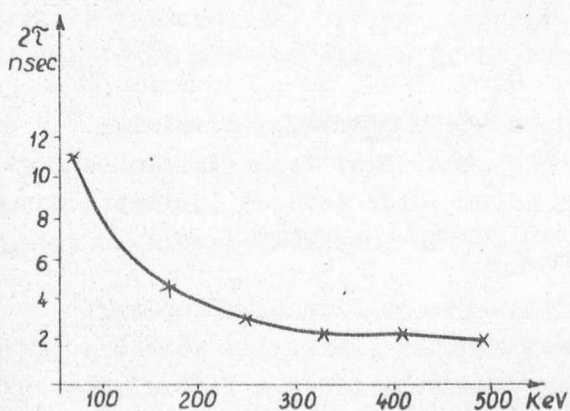


10. ábra. A felbontási időnek a γ energiától való függése stilben kristály használata esetén

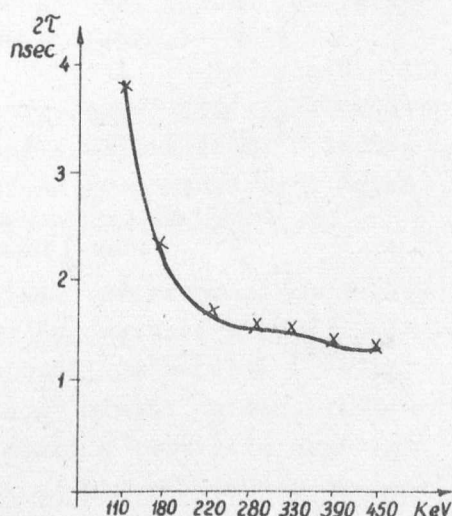
- 1/ A késleltetési görbe vizsgálata önkoincidencia jelekkel NaJ /Tl/ és stilben kristályok használatával.

A mérésnél egy detektort használtunk, melynek jelét ketté osztva és egymáshoz képest megkésleltetve adtuk az indító és leállító ágakba. A késleltetési görbe félértékszélességének a gamma energiától való függését NaJ /Tl/ kristállyal mérve a 9. sz. ábra, stilben kristállyal mérve a 10.sz. ábra mutatja.

- 2/ A késleltetési görbe mérése valódi prompt koincidenciákkal. Méréseket végeztünk NaJ /Tl/ és stilben kristállyal a gamma-energia függvényében. NaJ /Tl/ kristály esetén a 11.sz. ábra, stilben kristály esetén a 12.sz. ábra mutatja a mért félértékszélesség 2τ / értékek energiafüggését.



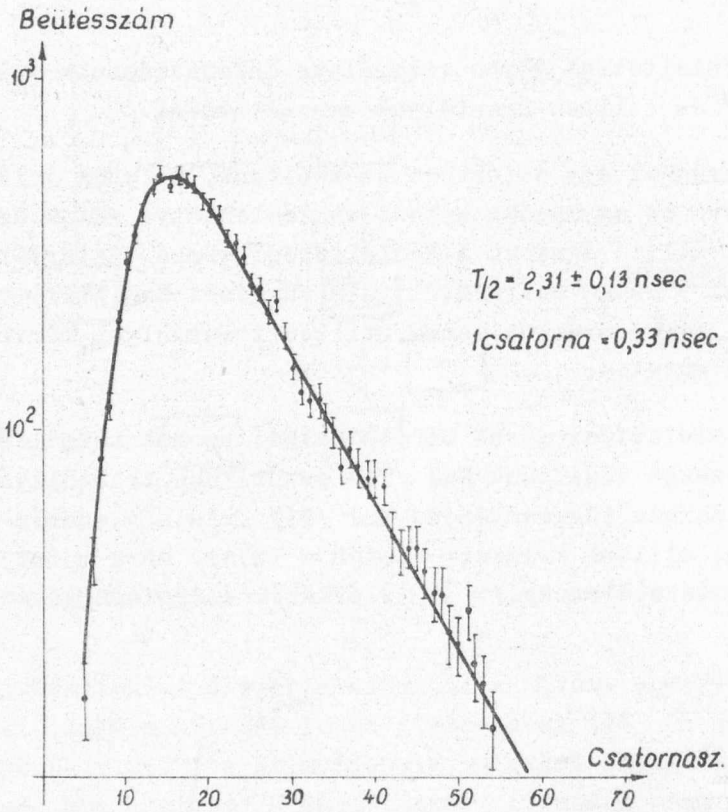
11. ábra. A felbontási idő energiafüggése NaJ /Tl/ kristály használata esetén



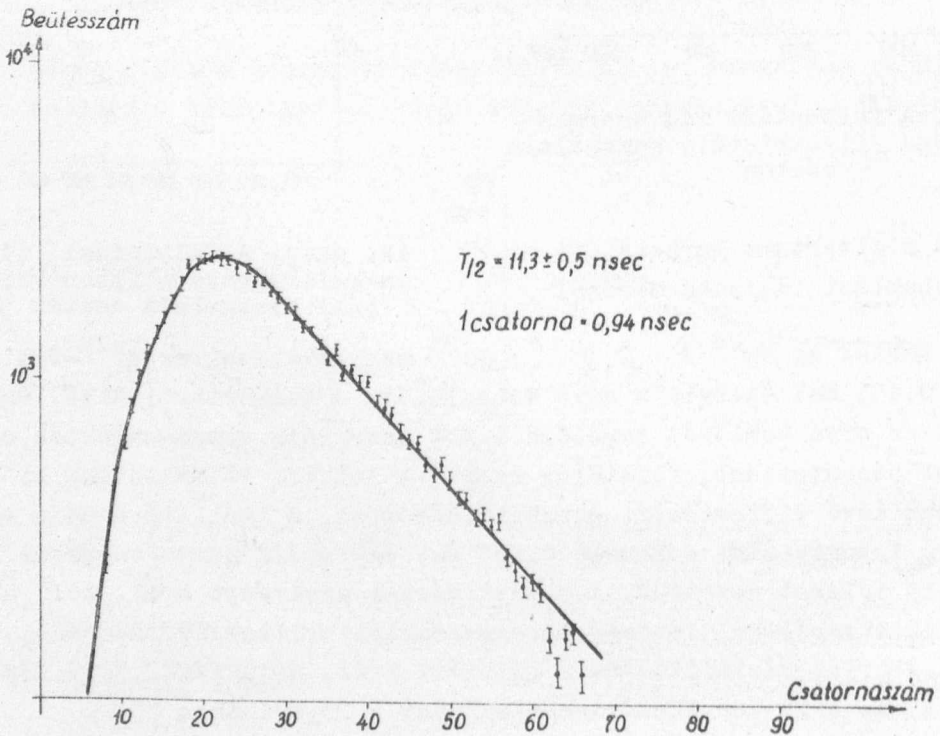
12. ábra. A felbontási idő energiafüggése stilben kristály használata esetén

- 3/ Ismert élettartamu gerjesztett nívók lebomlási idejének mérése.

Mértük az $Mg^{24} / \rho, \gamma / Al^{25}$ magreakcióval az Al^{25} -ben gerjesztett 0,455 MeV energiájú nívó lebomlását. A konverter indító ágába 0,445 MeV-es nívó bomlását megelőző 2 MeV energiájú gamma-sugárzás okozta jeleket bocsátottunk, illetőleg ezeket a jeleket választottuk ki a lassu ágban lévő differenciál diszkriminátorral. A leállító ágba a kérdéses nívó lebomlásából származó 0,455 MeV energiájú gamma sugárzás által keltett jeleket vezettük. A kapott mérési eredményt a 13. sz. ábra mutatja. Az ábrából jól látható az exponenciális lebomlás. A mérési eredmények alapján kiszámítottuk a felezési időt, amire $T/2=2,31 \pm 0,13$ nsec adódott ki. Az erre vonatkozó irodalmi adat $2,23 \pm 0,1$ nsec [5].



13. ábra. Az Al^{25} -ös mag 455 keV energiájú nivójának lebomlási görbéje



14. ábra. A Ta^{181} -es mag 482 keV energiájú nivójának lebomlási görbéje

Mértük továbbá Ta^{181} -es mag 482 keV energiájú nivójának a lebomlási görbéjét. A nivótól származó gamma-sugárzást 136 keV energiájú gamma-sugárzás előzi meg, és ez indította a konvertert. A mérési eredményt a 14. sz. ábrán láthatjuk. A mérésből $T/2 = 11,3 \pm 0,5$ nsec értéket kaptunk, az erre vonatkozó irodalmi adat 10,6 nsec [6].

Mérési tapasztalatok és további feladatok

Az idő-amplitudó konverterrel végzett mérések azt mutatták, hogy a kitüzött előzetes specifikációt a készülék teljesítette. A konverter elektronikusan mért felbontási ideje $\tau = 2,3 \cdot 10^{-11}$ sec jó eredmény, mely biztosítja, hogy a fotomultiplierrel végzett mérések során az elektronika nem torzítja a mért értékeket.

A fizikusok által végzett mérések során, azonban további igények is felmerültek. Ilyen igény volt a 100 keV-nél kisebb energiák mérése, ahol már nem elég a 2V-os bemeneti érzékenység.

Továbbá az általánosan használt "gyors-lassu" mérési elrendezés igen sok egységet tartalmaz, hiszen az egyes analizálandó eseményekhez tartozó jeleket külön-külön amplitudóban /energiában/, egyes esetekben időtartományban, előidejűségben kell szelektálni.

A sok különálló egység kezelése, helyes összekapcsolása a közbeeső erősítők beiktatása nagyban komplikálja és nehezíti a mérés elvégzését, növeli a hibalehetőségek számát és rontja a mérések reprodukálhatóságát. Kellemetlen tényező még az, hogy miután a szelektálásokat párhuzamos lassabb rendszerek végzik, ezért a multiplierekből ki jövő egész energia spektrum bejut a konverterbe és méréshamisítást okozhat.

Fent felsorolt hátrányok kiküszöbölésére egy félvezetős /tunnel diódás, lavinatranzisztoros/ rendszer fejlesztése látszik célszerűnek, mely egyrészt megoldja a bemenő érzékenység növelését, másrészt már a gyors ágban lehetővé tesz amplitudó, valamint előidejűség kiválasztást és így a mérések egyszerűsödnek.

Köszönetnyilvánítás

Köszönetünket fejezzük ki Keszthelyi Lajos, Berkes István és Fodor Ilona tudományos munkatársaknak a konverter szcintillációs jelekkel való bemérésének elvégzéséért és a mérési eredményeknek a rendelkezésünkre bocsájtásáért.

I r o d a l o m

- [1] Dési S., Lajtai A., Nagy L., U-235 hasadásánál keletkező gamma-sugárzás időbeli eloszlásának vizsgálata. KFKI Közl. 5-6, 1961.
- [2] Weber, W., Johnstone, C.W. and Cronberg, L., Time-to-Pulse-Height Converter for Measurement of Millimicrosecond Time Intervals. The Review of Scientific Instruments March 1956.
- [3] Cottini, C. and Gatti, E., Millimicrosecond Time Analiser. Nouvo Cimento 4. 156 /1956/.
- [4] Meiling, W., Schintlmeister, J. and Stary, F., Ein Differential - Koinzidenzkreis für den Nanosekunden-Bereich. Nuclear Instruments and Methods 11, 1961.
- [5] Ajzenberg-Selove, F. and Lauritsen, T., Nuclear Physics 11 /1959/ 1.
- [6] Dselepow, B.S., Peker, L. and Szergejev, V.O., Decay Schemes of Radioactiv Nuclei $A \geq 100$ Academy of Science of the USSR Press Moscöw 1963.

Erkezett: 1964. márc. 10.

KFKI Közl. 12.évf. 4. szám, 1964.

TARGETFORGATÓ BESUGÁRZÓ BERENDEZÉS

Irta: Várkonyi Lajos és Krebsz Ferenc

Összefoglalás

Sugárkémiai kísérletek eredményeinek kiértékelése során kiderült, hogy az egy azonos tokban besugárzott minták egymástól különböző sugárdózist nyeltek el. Ennek a hibának a megszüntetése érdekében készült el a cikkben leírt targetforgató berendezés.

A reaktor egyik /21/6/ függőleges csatornájában szerves moderátor anyagok sugárállósági kutatásaihoz rendszeresen folyik a minták besugárzása.

A sugárkémiai vizsgálatok számára az egyidejűleg besugárzandó minták egy tokban nyerne elhelyezést. A minták kiértékelésekor /gázfejlődés, polimerképződés, stb./ megállapítást nyert, hogy az azonos tokban besugárzott azonos összetételű minták bomlásának mértéke kb.20%-kal eltér egymástól.

Mint hogy a reaktorban, illetve a reflektorban a sugárdózisnak radiális gradiense van, az egy tokban elhelyezett minták integrál dózisa hely-függő. Mivel egy besugárzási tokban legkevesebb négy minta helyezkedik el, könnyen belátható, hogy a kísérleti eredmények szórásának egyik oka a dóziskülönbségekben keresendő. A kutatómunka sikere érdekében szükséges volt a besugárzásnál valamennyi egyidejű minta részére az azonos dózis biztosítása.

A reaktorban a sugárdózisnak a besugárzási hely szerinti kiegyenlítése nem valósítható meg, ha azonban a besugárzó tokot egyenletesen forgatjuk függőleges tengelye körül, úgy az aktív zóna radiális irányú dózis gradiense az egyes minták integrál dózisában nem okoz eltérést. Mint már említettük, a forgatás előtt, az azonos anyaggal töltött ampullák esetén is, az egy tokon belüli ampulláknál a mért bomlási adatok viszonya, amely a dózisokkal arányos

$$\frac{D_{\max}}{D_{\min}} > 1,20$$

volt, míg a készülék üzembehelyezése után ez a viszonyszám 1,03-ra csökkent.

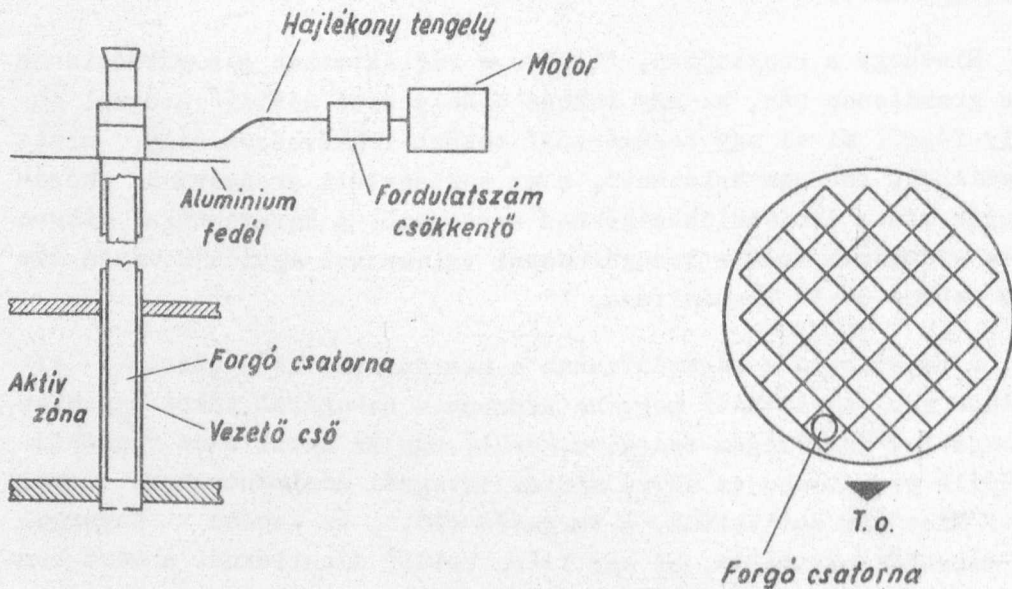
Ez azt jelenti, hogy a besugárzási egyenlőtlenség gyakorlatilag megszűnt.

Az azonos anyagból készült egyes minták felvett integrál dózisa változatlan besugárzási idő alatt kisebb lett ugyan, mint a forgatás előtt a maximális dózis volt, de a target tartó tok forgatásával biztosítható, hogy valamennyi, a tokban lévő minta azonos dózist kapjon, ha azok egyforma távolságra vannak a forgástengelytől.

A mintákat tartalmazó ampullák fő méreteinek meghatározásánál szem előtt kell tartani, hogy a dózis a függőleges tengely mentén is változik. Fontos tehát, hogy az ampullák hossza egyforma legyen. Az ampulla-átmérő különbségekből származó dózis differencia a gyakorlati esetekben elhanyagolható.

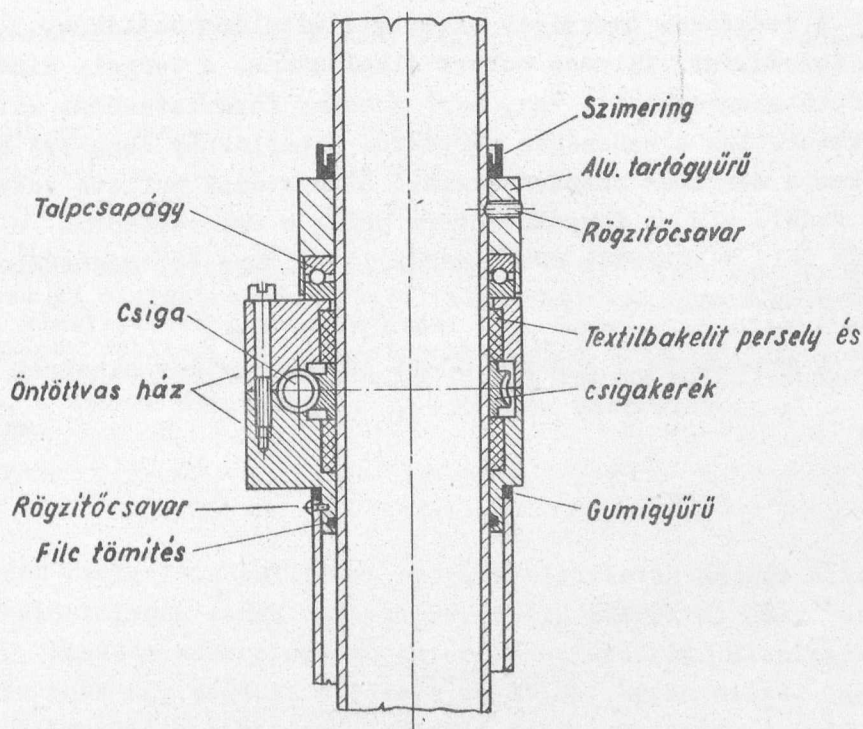
Műszaki leírás

A targetforgató készülék az aktív zóna 21/6 sz. pozíciójában van. A csatorna a reaktor működése közben is kiszolgálható, tehát bármilyen időtartamu besugárzás elvégezhető benne /1. sz. ábra/.



1. ábra

A kettős falu csatorna az aktiv zóna aljától a reaktor vízszintje fölé nyulik fel. A készülék külső méreteit úgy választottuk meg, hogy a környező csatornákhöz is hozzá lehessen férni a reaktor fedelén elhelyezett zónamanipulátorokkal. A csatorna hasznos átmérője 40 mm. A külső, a vezető cső, biztosítja a csatorna zónabeli helyét, a belső csövet pedig a 2. sz. ábrán látható készülék forgatja. A forgási sebesség kicsi:



2. ábra

0,75 ford./perc, ami egyrészt mechanikailag nem terheli az aktiv zóna rácsát, másrészt viszont elégséges arra, hogy a reális, szokásos besugárzási idő alatt több fordulatot tegyen meg a target. Az egy körforgás ideje 80 sec, ez számítható a legrövidebb besugárzás idejének is.

A 2.sz. ábra jól áttekinthető képet ad a szerkezeti megoldásról. Az öntöttvasház két részből áll és magába foglalja a csigakerékes hajtóművet, amely egyuttal fordulatszám csökkentő is. A textilbakelitből készült csigakerék és alsó-felső persely szoros illesztéssel a besugárzó csatornára van rápréselve. Az elfordulás ellen úgy biztosítottuk a csigakeréket, hogy a tengelyéül szolgáló csatorna külső falát hosszirányu ro-

vátkolással láttuk el. A csatorna egyetlen talpcsapágyon forog a függőleges tengely körül. A több helyen alkalmazott tömítés biztosítja, hogy az öntöttvasház belsejébe víz nem kerül és onnan kenőanyag vagy kopási termék nem jut be a reaktor vizébe.

Az öntöttvasház a vezetőcsőhöz van rögzítve, míg az egész készülék a vezetőcsőre szerelt bilincs segítségével van az alumínium fedélre felerősítve.

A forgáshoz szükséges energia átvitelére hajlékony tengelyt, energia forrásként villamos motort alkalmazunk. A tengely mindkét végén fordulatszámcsökkentő van, mert a motor fordulatszámát két lépcsőben csökkentettük a szükséges mértékre. A hajlékony tengelyt az ionizációs kamra mozgatás számára készült átvezetések mellett vezettük be a reaktor fedele alá, a forgató motort pedig a szervomotorok paneljára szereltük fel. A készülék működésekor jelzőlámpa ég, meghibásodási jelzést nem alkalmazunk.

A berendezés 3 hónapos üzemi próbája teljes sikerrel zárult.

Érkezett: 1964. aug. 11.

KFKI Közl. 12.évf. 4.szám, 1964.

TÖBBRÉTEGŰ DIELEKTRIKUM-TÜKRÖK ÉS -INTERFERENCIASZŰRŐK ELŐÁLLÍTÁSA VÁKUUMPÁROLOGTATÁSOS MÓDSZERREL

Irtta: Bakos József, Fazekas Endre, Nagy György és Szigeti János

Összefoglalás

Épitettünk egy berendezést, amelyben $p < 10^{-5}$ torr nyomás mellett maximálisan 13 dielektrikum rétegből álló tükröket, ill. interferenciaszűrőket készítettünk párologtatással úgy, hogy a dielektrikumrétegek vastagságát optikai, ill. elektronikus úton folyamatosan mérjük párologtatás közben. Az általunk előállított tükrök reflexióképes sége: $R_T > 99\%$, a szűrők átteresztése: $T_{SZ} > 95\%$ és sáv szélessége: $\Delta\lambda < 20$ nm.

Bevezetés

A modern fizikai és különösen optikai kísérletek ma már elképzelhetetlenek különlegesen magas reflexióképességű tükrök és nagy átteresztőképességű, keskeny sáv szélességű interferenciaszűrők alkalmazása nélkül. Elég, ha csak egy példát, a lasert említjük. Éppen ezért laboratóriumunkban felmerült a szükségessége ezen tükrök rendszeres előállításának.

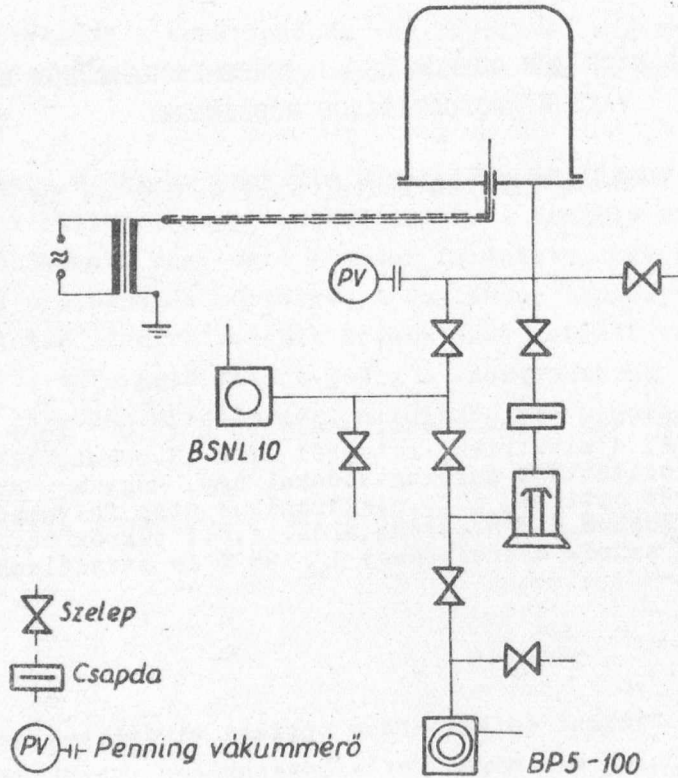
Az előállítás módja minden esetben olyan vákuumgözléses eljárás, ahol az egymásután párologtatott vékony rétegek vastagsága az előállítás folyamán folyamatosan mérhető.

I.

Épitettünk egy olyan párologtató berendezést, amely a fenti követelményeknek megfelel; többretegű dielektrikum-tükrök, -interferenciaszűrők, valamint egyéb párologtatással készülő kísérleti elemek, pl. fémtükrök, reflektorok, fémrétegenállások, stb. ellenőrzött körülmények között való előállítására alkalmas.

A párologtatás egy 500 mm belső átmérőjű és 600 mm magas acélhengerben /harangban/ történik 10^{-5} torr vagy annál alacsonyabb nyomás mellett.

Ezt a nyomást az 1. ábrán látható vákuumrendszerben állítjuk elő egy 500 l/sec névleges szivásebbességű, DC 702-es szilikonolajjal töltött diffúziós szivattyú segítségével.



1. ábra. A vákuumrendszer sematikus rajza

A két elővákuumszivattyú /Tungsram BP-5-ös kétfokozatu 5 m³/ó; ill. Tungsram BSNL-10-es egyfokozatu 10 m³/ó./ szükség esetén egyszerre szivja a diffúziós szivattyú kimenetét. Egyébként a BSNL-10-es a harang közvetlenlőszívására szolgál. A vákuumtér belső felületein adszorbeált anyagok gyorsabb eltávolítására az elővákuumtartományban a harangban nagyfeszültségű /3kV/ gázki-sülést lehet létesíteni

II.

A berendezés célja elsősorban dielektrikumtükörök, ill. interferenciaszűrők készítése.

Ezek az irodalomból ismert módon többféle dielektrikum felhasználásával tetszőleges hullámhossz értékekre készíthetők.

Az eljárás lényege az, hogy egy magas és egy alacsony törés-

mutatóju anyagot felváltva párologtatunk egy üveg alaplemeze-re úgy, hogy a keletkező dielektrikumrétegek vastagsága mindig meghatározott értékű, dielektrikumtükrök esetén pl. az illető anyagra vonatkoztatott λ fényhullámhossz negyedrésze legyen.

Nagy törésmutatóju anyagként mi ZnS -ot / $n=2,3$ / használunk, párologtatási hőmérséklete $1040^{\circ}C$ körül van. Alacsony törésmutatóju anyag a MgF_2 / $n=1,38$ / párologtatási hőfoka kb. $1260^{\circ}C$. Mindkét anyag párologtatása egy-egy molibdén csónakból történik, amelyeket külön-külön /vagy esetleg egyszerre/ egyenként max. 1500 W fűtőtéljesítményel tudunk izzítani.

A csónakok hőmérsékletét - amelyre mindkét anyag igen érzékeny - párologtatás közben $P_t - P_t - R_h$ termopárral mérjük oly módon, hogy egy-egy termoelem van mindkét csónak alsó részére erősítve ponthegesztéssel. A párologtatási hőmérsékleten a MgF_2 olvadt állapotban van a csónakban és párolgási sebessége a hőmérséklettel oly rohamosan változik, hogy a párologtatás folyamán $\pm 10^{\circ}C$ -os hőfokingadozásnál nagyobbban nem szabad lennie.

Ugyanez a kritérium a ZnS -ra is fennáll, habár ez a párologtatási hőfokon még szilárd halmazállapotú és szublimál, de az eredetileg finom por a csónakban néhány nagyobb szemcsévé szinterelődik össze, és ha a megadott hőfok fölé jut néhány fokkal, akkor a gyors párolgáskor keletkező gőz ezeket a szemcséket a csónakból kidobja. Ennek az utóbbi, igen kellemetlen jelenségnek a megakadályozására a ZnS -ot tartalmazó csónakot vékony molibdén huzallal tekertük körül, amelynek hézagain a gőz akadálytalanul kijöhet, az összeszinterelt szemcsék azonban nem tudnak kiszóródni.

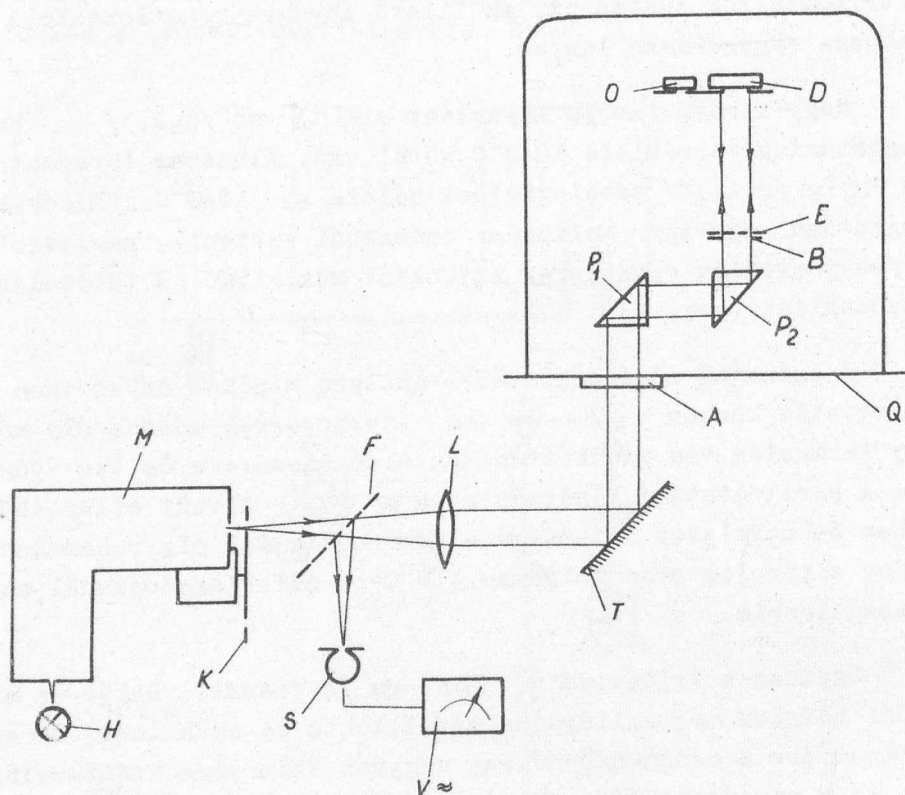
III.

A felvitt rétegek vastagságának párologtatás alatti mérésére és beállítására két egymást kiegészítő berendezést építettünk: egy optikai /közvetlen/ és egy elektronikus /közvetett/ mérőberendezést.

Az optikai mérés azon alapul, hogy a tükör reflexióképessége egy adott λ hullámhossz esetén a rétegvastagsággal változik, aszerint, hogy a réteg első és hátsó felületéről visszaverődő fény a kialakuló interferencia miatt erősíti, vagy gyengíti egymást.

A párologtatás közben tehát amikor az egyes rétegek eléri a szükséges $\lambda/4$ vastagságot, akkor a tükör reflexióképességében maximum, vagy minimum jelentkezik. Ekkor a párologtatást hirtelen meg kell szakítani.

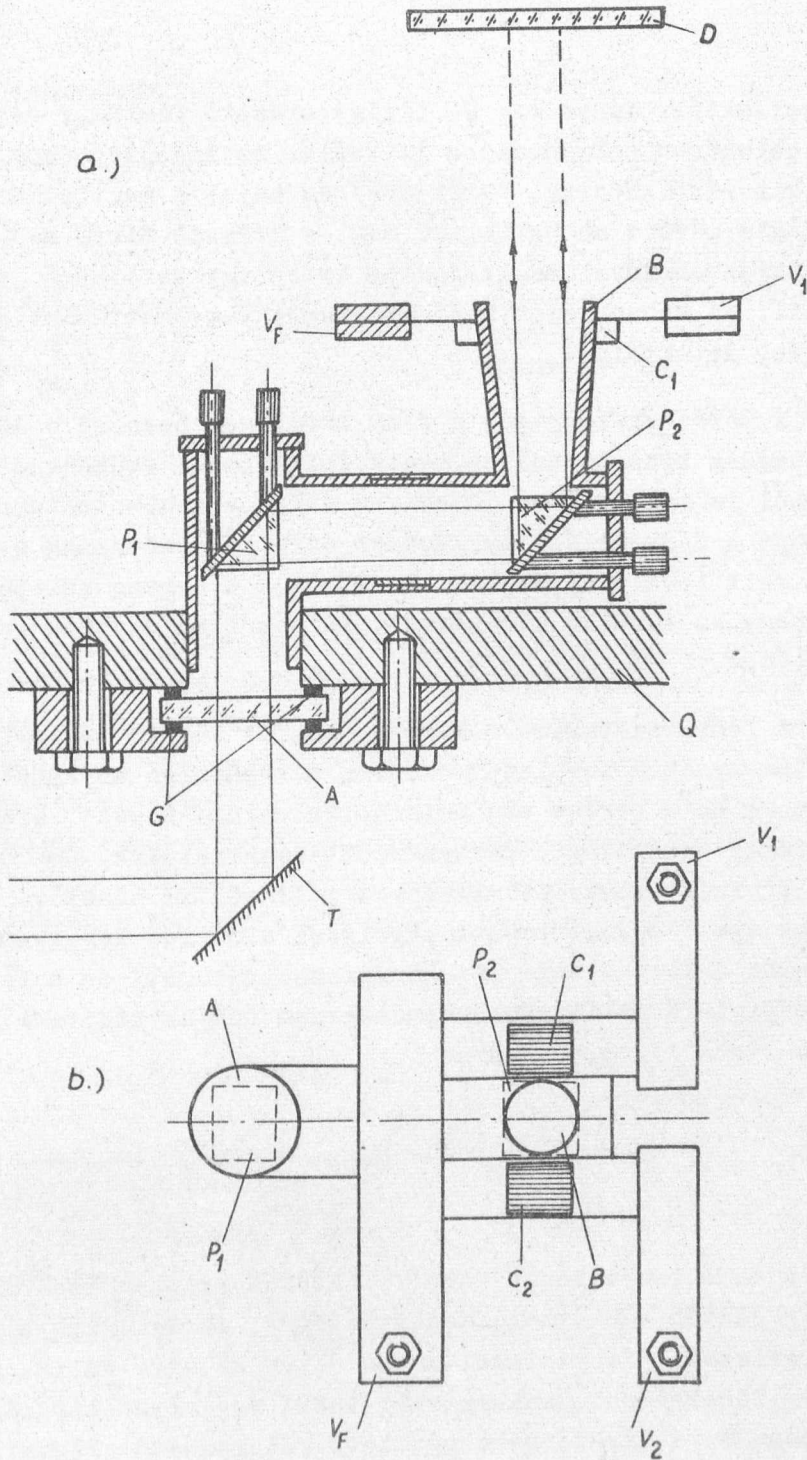
Ennek megvalósítására a 2. ábrán látható összeállítást építettük.



2. ábra. Az optikai mérőberendezés elvi vázlata:

- H: HBO -107-es egyenáramu magasnyomású higanygőz iv ki-
sülésű lámpa,
M: UM - 2 típusu monokromátor,
K: lyukakkal ellátott forgó korong a fény szaggatá-
sára,
F: féligáteresztő siktükör,
L: leképező lencse,
T: teljestükör, amely a harang belsejébe vetíti a lámpa
fényét,
A: a harang alján lévő planparalell üveg ablak,
P₁, P₂: a fény vezetésére szolgáló periszkóp /lásd 3. ábra/
prizmái,
B: a harangba lépő fénynyaláb határoló nyílása,
E: a párologtatás gyors megszüntetéséhez szükséges
kivülről mozgatható takaróernyő,
D: a bepárologtatandó lemez,
S: a fotoelektronsokszorozó a visszavert fény átalakítá-
sához,
V ≈ : váltóáramu csővoltmérő a visszavert fény által keltett
áram detektálásához,
O: az elektronikus mérőberendezés rezgő kvarckristályának
foglalata /lásd 6. ábra/,
Q: a harang fala és alaplapja.

A H lámpa fényét egy UM-2 típusu monokromátoron / M / keresz-
tül az L lencse merőlegesen a D mérendő dielektrikumtükkörre vetíti,



3. ábra. A két csónak és a fénybevezető prizmák elhelyezése a harangban

- | | | |
|-----------------|---|----------------------------|
| C_1, C_2 | a két csónak, | } /lásd még a
2. ábrát/ |
| V_1, V_2, V_F | a nagyáramú elektromos bevezetők a csónakok fűtésére, | |
| G: | gumi tömitőgyűrű, | |
| A: | a fény belépő ablaka, | |
| B: | a fénynyaláb határoló nyílása, | |
| P_1, P_2 | a fényt vezető prizmák | |
| Q: | a harang alaplapja | |
| D: | a bepárolagtatatandó lemez | |
| T: | a fény sugarat a harangba vetítő tükör | |

majd a reflektált fényt az F féligáteresztő fémtükör segítségével az S fotoelektron sokszorozóba juttatja. Az izzó csónakok fénye azonban, ha kis mértékben is, /szóródva/ de bejut a multiplierbe. Hogy ez a jelenség a mérést ne hamisítsa meg, a mérendő fényt a K forgókorong kb. 1 Kc frekvenciával megszaggatja és az így keletkező váltófeszültséget, ill. az abban jelentkező minimumot vagy maximumot a $V \approx$ cső-voltmérővel detektáljuk.

A mérésnél lényeges a fény merőleges beesése. Az egyenletes rétegvastagság kialakulásához pedig feltétlenül szükséges az, hogy a csónakokból is merőlegesen jusson az anyag a szubsztrátumra. Ez azt jelenti, hogy a fény belépő nyílásának és a két csónaknak a lehető legközelebb kell lennie egymáshoz. A csónakok a harang közepén helyezkednek el, hogy az általuk kisugárzott hő se okozzon nagy lokális felmelegedést.

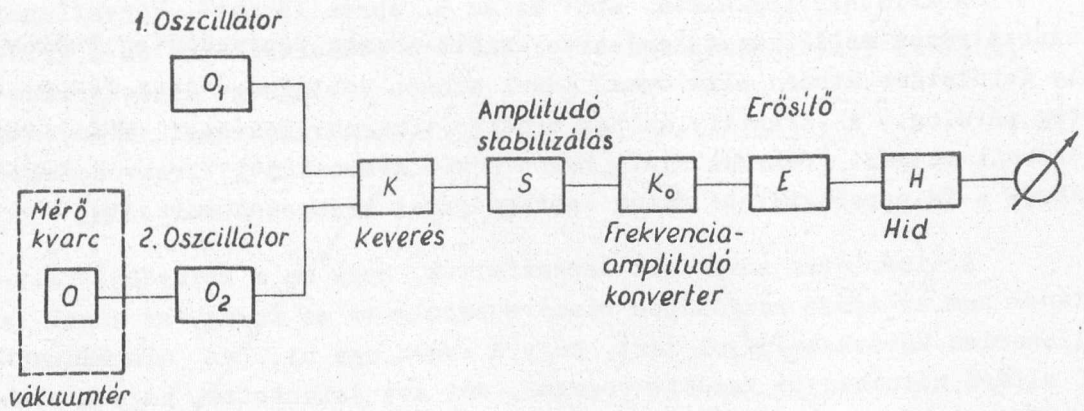
A fény vezetésére a harangon belül két 45° -os prizmat alkalmaztunk, amelynek a felületét azonban a rápárolgó anyagoktól meg kell védeni, mert az a mérést meghamisította volna. Ennek érdekében egy változtatható hosszúságú "periszkópot" készítettünk, amelynek a belsejében lévő prizmak helyzetét szabályozni lehet. Ez lehetővé tette, hogy a csónakok által meghatározott párolgási eloszlás legegyszerűsebb részére tegyük a bepárolandó lemezt /szubsztrátumot/ és a fénysugarat a prizmak megfelelő állításával merőlegesen tudjuk ráejteni a párolgatás irányából /3. a, b ábra/.

IV.

A fent leírt módon való detektálás azonban csak az első néhány réteg esetén tekinthető megbízhatónak, mert később a relatív változás a reflektált fényintenzitásban olyan kicsivé válik, hogy pontos mérése nem lehetséges. Szükség volt tehát egy olyan eljárásra, mellyel folyamatosan és a már felpárolgatott rétegszámtól függetlenül lehet detektálni az éppen folyamatban lévő réteg vastagságváltozását.

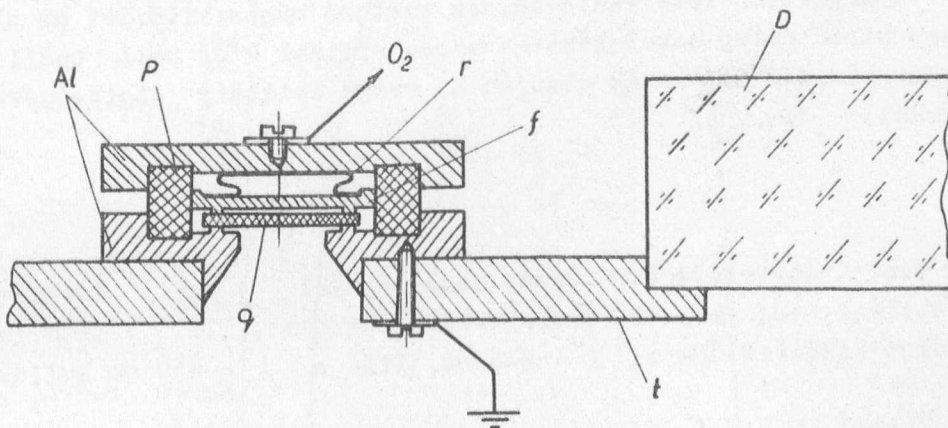
Ezt a feladatot egy rezgő kvarckristály segítségével oldottuk meg, amely a rápárolgatott dielektrikum hatására rezgési frekvenciáját a rétegvastagsággal arányosan változtatja. Mértük ezt a változást.

A berendezés vázlatát a 4. ábra mutatja:



4. ábra. Az elektronikus mérőberendezés bloksémája

Az O_1 -es és O_2 -es két oszcillátorfokozat közül az O_1 -es egy stabil 10 MHz-es frekvenciát szolgáltat a rács körében lévő rezgő kvarckristály segítségével, a másik O_2 fokozathoz tartozó rezgő kvarckristály - amelynek saját frekvenciája kb. 10 kHz-cel különbözik az elsőtől - a vákuumtérben van elhelyezve oly módon, hogy a teljes rezgő felületét q - amelyre előzőleg egy vékony ezüstréteget párologtattunk - szabadon hagyjuk a párologtató csónakok felé /5. ábra/. Az ezüstréteg létesítette a rezgéshez szükséges homogén elektromos teret egy kondenzátor egyik fegyverzeteként.



5. ábra. A rétegvastagságmérő kvarclemes foglalata és elhelyezése a bepárolgatott lemez /D/ mellett

- | | | | |
|-----|--------------------------------|---------|---|
| Al: | Aluminium tárcsák, | q: | kvarclemes alsó felületének ezüstbevonatával alkotja a homogén teret létesítő kondenzátort, |
| P: | plexi szigetelő gyűrű, | t: | az acél tartólap, |
| r: | leszorító rugó /bronzlemezből/ | O_2 : | az oszcillátor hozzávezetése |
| f: | leszorító lemez, mely a | | |

A kristály foglalata, mint az az 5. ábrán látható, közvetlenül a szubsztrátum mellé van felerősítve. Ezért a szubsztrátumra és a kristály felületére minden alkalommal közel azonos vastagságu dielektrikumréteg párolog. A kristály az így előálló tömegnövekedéssel arányosan csökkenti rezgési frekvenciáját, tehát a két kvarc közti frekvenciakülönbség a felpárologtatott réteg vastagságával arányosan változik.

A kísérletek során azt tapasztaltuk, hogy ha a kristály felületének nem az egész rezgőképes részére párologt az anyag, az azzal a kellemetlen következménnyel járt, hogy a kvarc egy új, az alapmódusától eltérő módusban is kezdett rezegni, ami azt jelentette, hogy a különbségi frekvencia nem monoton, hanem periódikus függvénye lett a rétegvastagságnak.

A két kristály közötti különbségi frekvenciát a következő módon mérjük. Egy keverő fokozat /4. ábra/ /K/ segítségével leválasztjuk az alapfrekvenciáktól, és egy szabályozó körrel / S / állandó amplitudóju, változó frekvenciájú jelként továbbítjuk a konvertáló fokozat / K_0 / felé. Ez a fokozat a frekvenciaváltozást amplitudóváltozássá alakítja. Az így kapott jelet erősítőfokozat / ϵ / után a mérőhidra (H) vezetjük. A hidat az egyes rétegek után ismételtelen nulla helyzetbe állítjuk és így azonos rétegvastagsághoz mindig azonos mutatókitérés tartozik.

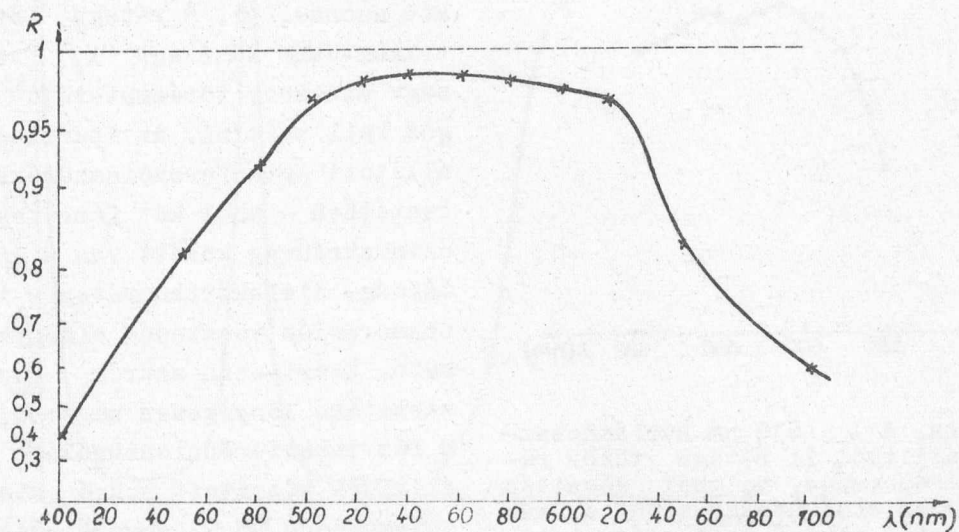
Többrétegű dielektrikum-tükör, vagy -interferenciaszűrő készítése esetén a megfelelő rétegvastagsághoz tartozó műszerkitérést az első két, vagy három réteg párologtatása során optikai úton kell beállítani, a többi réteget már ennek alapján a rezgő kristály segítségével lehet felrakni.

V.

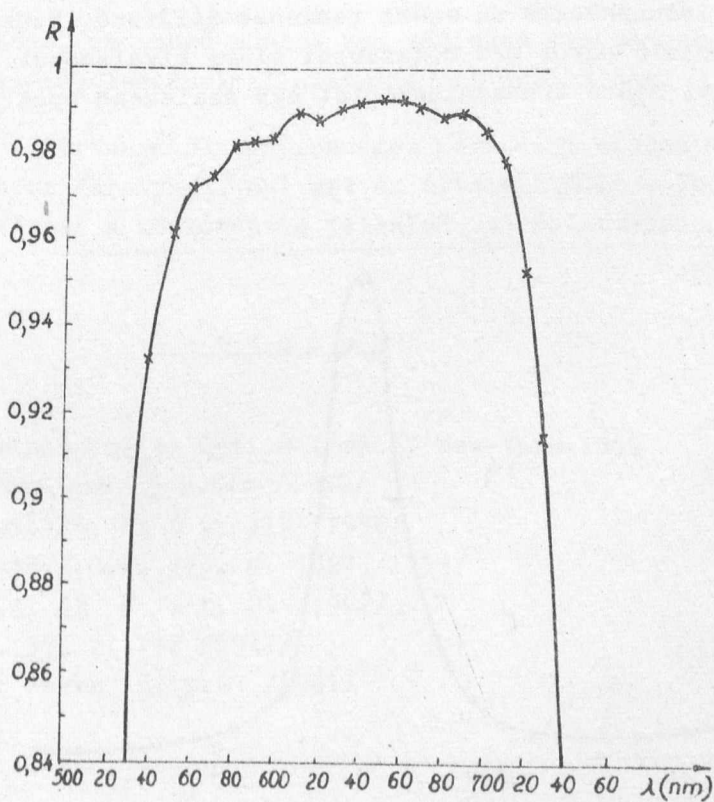
A fent ismertetett berendezés segítségével $\lambda/10$ felületi finomságu optikai üveglemezekre dielektrikum tükröket, ill. interferenciaszűrőket készítettünk a $\lambda = 546$ nm, ill. a $\lambda = 630$ nm hullámhosszakra.

A felpárologtatott rétegek száma összesen maximálisan 13 volt. Ezzel a reflexióképesség a tükröknél 99 % felett volt, amíg a veszteség nem haladta meg a 0,5 %-ot /6. 7. ábra/. Ennél magasabb rétegszám esetén a reflexióképesség lényegesen nem változik, esetleg csökken, viszont a veszteség rohamosan növekszik. A rétegek pontatlan felvitele a reflexióképesség görbe sima felületét elrontja /8. ábra/. Elvileg 11, ill. 9 réteggel is lehetséges 97 % feletti reflexióképességet elérni. Ehhez

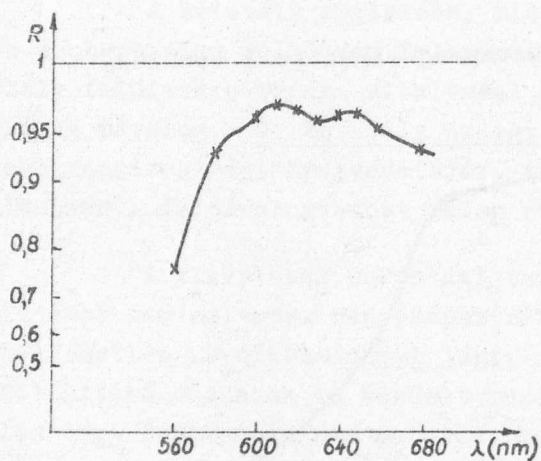
azonban a rétegeknek nagyon definit vastagságúknak kell lenniük.



6. ábra. A $\lambda = 546$ nm hullámhosszra beállított 13 rétegű tükör reflexióképessége a hullámhossz függvényében

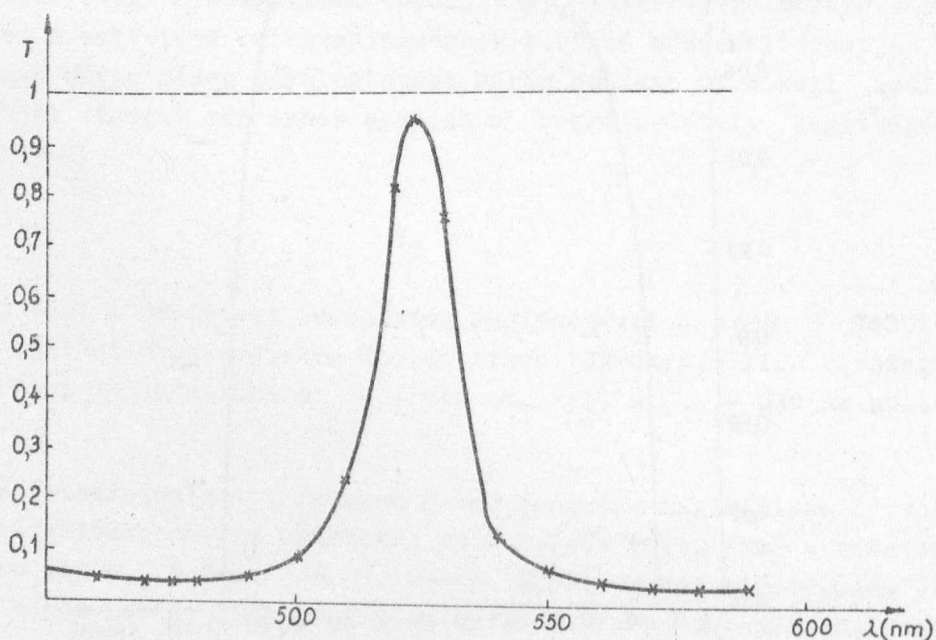


7. ábra. A $\lambda = 630$ nm hullámhosszra beállított 13 rétegű tükör reflexióképessége a hullámhossz függvényében

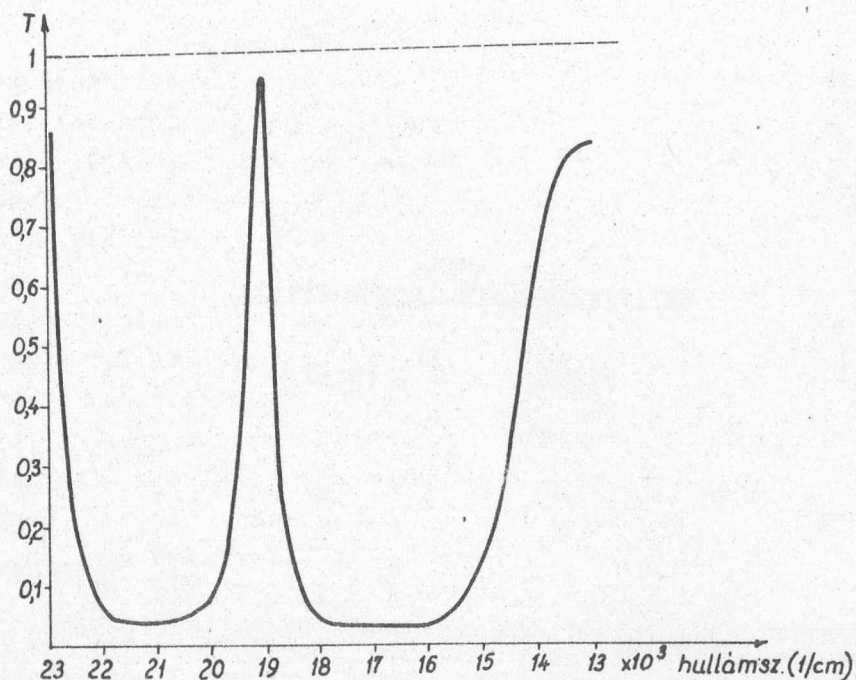


8. ábra. A $\lambda = 630$ nm hullámhosszra beállított 11 rétegű tükör reflexióképessége, melynél készítés közben az első néhány réteg a szűkségestől eltérő vastagságu volt

Interferenciaszűrő készítésekor a fenti eljárással készült két azonos, pl. 5 rétegű dielektrikumtükör közé egy $\lambda/2$ vastagságu alacsony törésmutatóju anyagot kell párolni. Az iparilag előállított interferenciaszűrőkkel ellentétben - ahol két fémréteg és színszűrőüveg között van a $\lambda/2$ vastagságu dielektrikumréteg - itt az abszorpciós veszteség elhanyagolható. Ezért ezen szűrők csúcseresztése lényegesen nagyobb, mint a fém-interferenciaszűrőké. / Az általunk készített szűrő áteresztőképessége 95 %, sávszélessége kisebb mint 20 nm. lásd 9. ábrát/. Hátrányuk, hogy a dielektrikumtükör maga is csak egy spektrumtartományban reflektál s ezért az ezen kívül eső hullámhosszakra az egész rendszer átlátszó. Szükséges tehát, hogy a megfelelő sávot más módszerrel előre kiválasszuk. A 10. ábra mutatja a fenti szűrő transzmisszióját egy szélesebb spektrumtartományban.



9. ábra. A $\lambda = 546$ nm hullámhosszra beállított 5+1+5 réteges interferenciaszűrő transzmisszióképessége a maximum környezetében a hullámhossz függvényében



10. ábra. A 9. ábrán szereplő szűrő áteresztőképessége a hullámszám függvényében

A fenti tükrő-, és szűrő-adatok nem végleges eredmények, csupán a berendezés teljesítőképességének illusztrálására szolgálnak.

A reflexió és transzmisszióképességek méréséért ezuton mondunk hálás köszönetet Kántor Károlynak, aki azt az általa kidolgozott új módszerrel végezte, amelynek a közzététele jelenleg van folyamatban.

I r o d a l o m

- Born, M., Wolf, E., Principles of Optics London, New-York 1959
Abeles, F., Ann. de Physique 5, p. 611 /1950/
Giacomo, P., Rev. d. Opt. 35, No 6 p. 317 /1956/
Giacomo, P., Compt. Rend. A. S. P. 235, p. 1627 /1952/
Polster, H. D., J. O. S. A. 42, No 1 p. 21 /1952/
Banning, M., J. O. S. A. 37, p. 792 /1947/
Heavens, O. S., Hilger Journ. 6, p. 63 /1961/

Érkezett: 1964. jul. 16.

KFKI Közl. 12. évf. 4. szám, 1964.

ELEKTROKÉMIAI HIGANYTISZTÍTÁS

Irta: R. Lorenz Judit

Összefoglalás

Nagyteljesítményű higanytisztító berendezést ismertetünk. Leírjuk a készülék felépítését, működési elvét és felhasználását. Közöljük a tiszta, a háromszor vákuum-desztillált és az anódosan elektrolizált higany összehasonlító vizsgálatának néhány adatát.

A higany fizikai sajátosságai már nyomszennyezés hatására zárt rendszerben, állás közben is megváltoznak. Polarográfiai, potenciosztátos mérésekhez fizikai-kémiai állandók meghatározásához ezért a higanyregenerálást célszerű felhasználás előtt elvégezni. Mivel a szokványos eljárás: előkezelés után a higany háromszori vákuumdesztillációja kevésbé eredményes és emellett fülkét, munkaerőt és jelentősen több időt vesz igénybe, a higany anódos elektrolizissal történő tisztítására tértünk át. Készüléket konstruáltunk, amely alapelvben meg egyezik a Brummer és Náray-Szabó [1] által korábban ismertetett eljárással, néhány kilogramm higany mennyiség gyors feldolgozására /1.sz. ábra/.

Az elektrokémiai higanytisztítás elve

A higanyt hig. salétromsavval savanyított tömény merkuro-nitrát oldatban anódként kapcsolva, a fém szennyezések /pl. Zn, Cd, Sn stb./ anódos elektród folyamat során oldatba mennek, kivéve azokat a szennyezéseket /pl. Ag, Au, Pt/, amelyeknél a fémamalgám-fémion rendszer potenciálja pozitívabb, mint a fémhigany-merkuro rendszer potenciálja, ez esetben ugyanis az oldódás a kémiai potenciál növekedésével járna. Az ezüst, amelynek elektródpotenciálja közel akkora, mint a higanyé, jelentős mértékben oldódik, mert az oldat merkuro-ionokra nézve tömény, míg ezüstionokra nézve végtelen hig. Arra, hogy a szennyező fém anódos oxidációja milyen elektródpotenciálnál következik be elméleti úton - az elektro-kémiai standard potenciálok ismeretében - legfeljebb csak következtetni tudunk. Kiskoncentrációjú rendszerekben u-

gyanis a számítás alapjául szolgáló

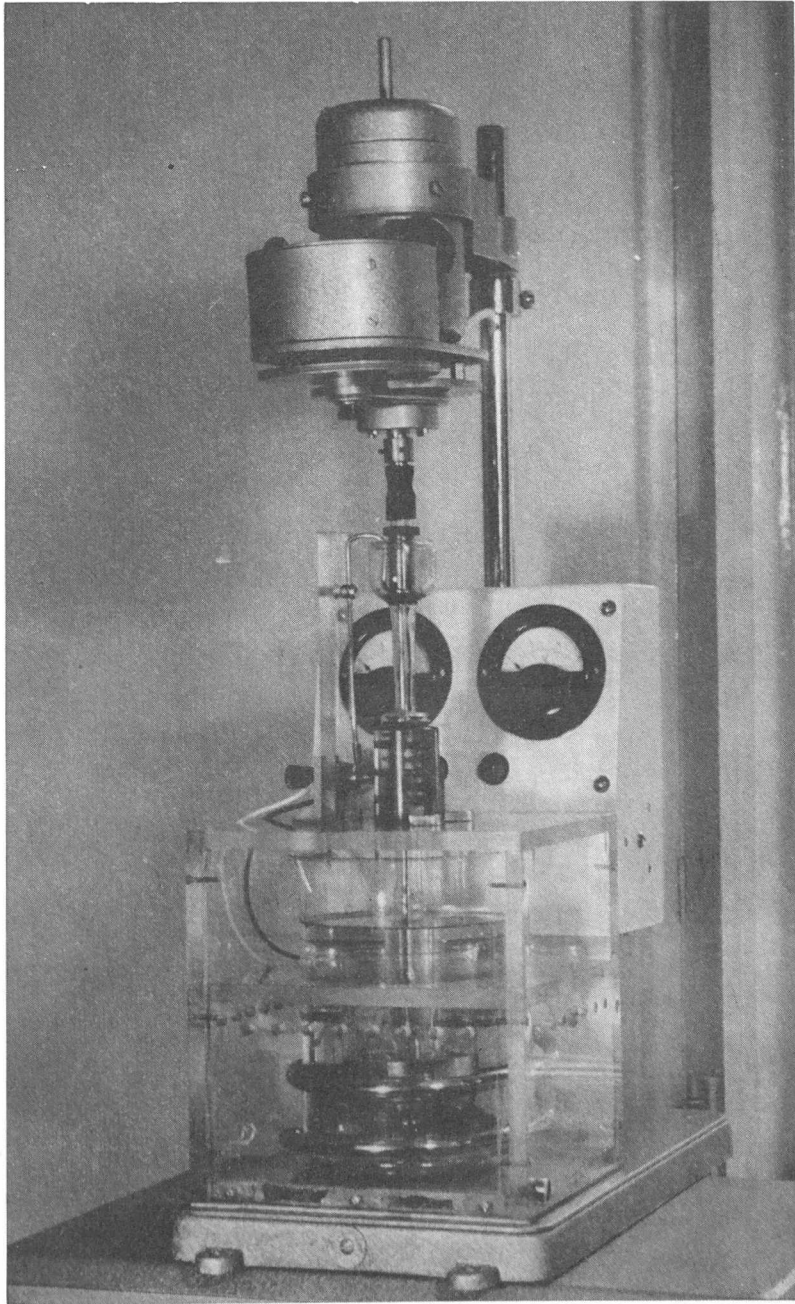
$$\xi = \xi^{\circ} + \frac{RT}{zF} \ln a_{\text{ion}}$$

Nernst-féle egyenlet érvényessége sok esetben megszűnik. A fémszennyezéseket oxidáló anódos polarizáció során az anódtérben elhelyezett tisztítandó higanynak csupán néhány százaléka oldódik szemben azokkal az eljárásokkal, amelyek a teljes higany mennyiséget oldatba viszik, s katódosan újból leválasztják. Így jelentős idő és energia megtakarítást lehet elérni.

A készülék leírása

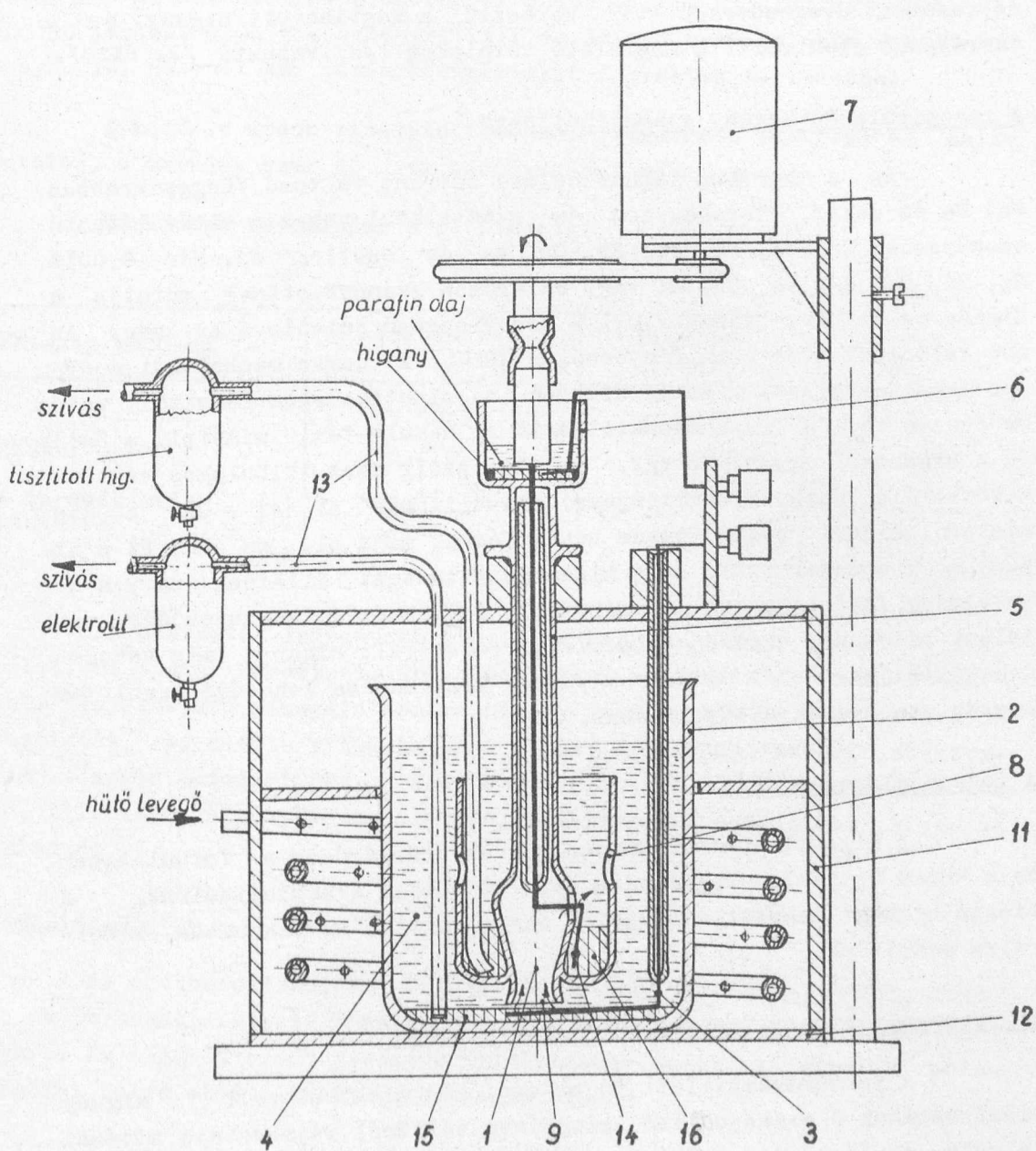
A különleges szerkezetű keverő anód /1/ üvegedénybe /2/ nyulik, amelynek alján higanyban /15/ foglal helyet a Pt. katód /3/, fellette pedig az elektrolit /4/. A készülék a centrifugális erőt és az ennek hatására bekövetkező szivást használja fel keverésre. Az anód felül nyitott, oldalán három széles nyílással ellátott hengeres üvegedény, amely üvegcsőből készült tengelyen /5/ függ. A tengely alsó része kiszélesedik. Ezen a részén három nyílást találunk: egyet legalul, amely a folyadék felemelkedését teszi lehetővé és kettőt oldalt. Ezek közül az egyik egyuttal az áram hozzávezetésére szolgáló platina anódnak /14/ is utat enged. A tisztítandó higanyt a hengeres rész és a tengely közé öntjük. A tengely felső része fémgűrűvel van ellátva, s üvegcsésze /6/ veszi körül, amelybe az áram hozzávezetést higanykontaktus eszközli. Ennek a higanynak párolgását és oxidálódását a felületére rétegezett paraffinolaj gátolja meg. A forgó anód műanyag csapágyazással van ellátva, melynek folyamatos kenését beépített, zsírral átítatott filcgyűrűk látják el. A keverőt - villanymotor /7/ és fogaskerék áttétel segítségével - percenként 150 fordulattal járattva a higany alapos keverését érjük el. A higany felszínén keletkező kristályos merkuronitrát a centrifugális erő hatására az oldalsó nyíláson /8/ kihatól. Ugyanakkor az alsó nyíláson /9/ át friss, a katód felszínén felhigult oldat áramlik be. Ennek a keverőnek az alkalmazásával az áramsűrűség 50-60 A/dm²-ig fokozható. Az elektrolizishez szükséges 12 V és 10 A-es stabilizált egyenáramot megfelelő tápegység biztosítja. Az elektrolizis ideje alatt az áramerősséget 10 A, a feszültséget 20 V mérés határu egyenáramu műszerekkel mérjük. A készülék úgy van kiképezve, hogy a nagyobb áramsűrűségnél jelentkező hő fokozott lég, vagy víz hűtéssel elvezetjük.

Az elektróda rendszer és a hűtőspirál plexiházban /11/ foglal helyet, amely biztosítja törés esetén a higany felfogását, megóvjá az



1. ábra

Az anódos elektrolízis berendezése



2. ábra. Az elektródarendszer keresztmetszete

anódhiganyt /16/ a külső szennyeződéstől és egészségvédelmi célt szolgál. A plexiház alatt elhelyezett gumiréteg /12/ lehetővé teszi a nagyterhelésű anód zökkenésmentes forgását. A plexiház fedőlapján át vezetett üvegcsöveken /13/ keresztül a megtisztult higany és a cserélendő elektrolit a megfelelő tárolókba leszivatható /2. ábra/.

A regenerálandó higany szennyezettsége

Ez a korábbi felhasználása szerint változó./Leggyakrabban Cu, Na és zsír/. Természetes és nyomtalanul nehezen eltávolítható szennyezése Zn, Co, Pb, Sn, Sb, Cu, Ag és esetleg Au. Már 0,001% Mg, Zn, Cd, Sn, Pb, Cu, Bi vagy Sb erősen szennyezettnek mutatja a higany felszínét. Viszont 0,1 % mennyiségben jelenlevő Ag, vagy Au nem változtat a felszín fényességén [2]. A durva mechanikai szennyezés eltávolítása után kerül sor az oldott idegen fémektől való mentesítésre. A vákuumdesztillációnál némely fém, mint pl. a Zn [3], Cd a higanyal együtt átmegegy, az Au pedig csak különleges vákuumdesztilláló készülék segítségével távolítható el [4]. Az anódos elektrolízisnél pedig egyes nehéz fémek, mint pl. az Au, Pt a higanyban visszamaradnak. Ha a higany tisztaságát illetően nagy a követelmény /hat kilences nagyságrend/ és nehézfém szennyeződés van jelen, akkor az anódos oxidációval regenerált higanyt még vákuumdesztilláljuk. A két módszer együttes alkalmazása lehetővé teszi az összes szennyezők eltávolítását.

A regenerálási eljárás

A higanyt anódnak kapcsolva, az áramsűrűség, a fordulatszám és a hűtés optimális beállítása után 90 percig elektrolizálunk. A tiszta higanyt desztillált vízzel savtalanítjuk és vákuumban kiforrálva szárítjuk.

A regenerált higany tisztaságának ellenőrzése

A vákuumdesztillált és az anódosan elektrolizált higany tisztaságának összehasonlító vizsgálata céljából tájékoztató mérésül fajsúly, érzékeny módszerként pedig EME meghatározást végeztünk és a kétféle módon tisztított higanyt vákuumban lehajtva, a maradékot szikráztattuk. Az összehasonlítás alapjául tiszta higanyt [5, 6] használtunk, melyet kétszer átkristályosított merkuronitrátból állítottunk elő úgy, hogy a hevítéssel kapott HgO-t égetőcsőben enyhe veres izzáson megbontottuk.

A fajsúlymérés piknométerrel történt 20°C-on. Az EME-t Du Bois-Reymond módszerével mértük oly módon, hogy az alapul vett EME-t tiszta higanyal készült 0,1 n kalomel-elektrod segítségével határoztuk meg, miután 2 n merkuroszulfát elektróddal galvánelemmé állítottuk össze. Hasonlóan jártunk el a vákuumdesztillált és az anódosan elektrolizált higanyal is. Hét-hét EME mérés középértékét foglaltuk táblázatba.

A kétféle módon tisztított higany vákuumban lehajtva és szikráztatva, a maradék csak az üveg szennyezését mutatta.

Méréseink eredményei a következők:

Fajsúly 20°C-on	Vákuumdesztillált	Elektrolizált	Tiszta Hg
EME V	13,5441 0,2700	13,5463 0,2660	13,5461 0,2660
A maradék szikráztatva	Ca ⁺⁺ Mg ⁺⁺	Ca ⁺⁺ Mg ⁺⁺	

Az elérhető legnagyobb tisztaság megállapítása, és az eljárás elméleti alapjának kérdése további analitikai vizsgálatot tesz szükségessé. Tájékoztató vizsgálatként a higany félkvantitatív spektrográfós vizsgálatát, speciális vizsgálatként a 2537 Å rezonanciavonal adszorpcióján alapuló módszert [7], érzékeny analitikai eljárásként pedig az anód, ill. katód higany és az elektrolit aktivációs analízisét kívánjuk alkalmazni.

A készülék előnyei

Az anódos oxidációval regenerált higany veszteség nélkül, rövidebb eljárással, tisztábbnak adódik a háromszor vákuumdesztillált higanynál. Az eljárás eredményessége feleslegessé teszi a direkt polarografiai célra előállított higany importálását.

A készülék szerkezetileg lehetővé teszi:

- a - a nagy áram hatására fellépő szikrázásveszély, beégés és kopás elkerülését,
- b - a nagyterhelésű anód zökkenésmentes forgását,
- c - a csapágy folyamatos kenését anélkül, hogy külső szennyezés jutna az anód higanyba,
- d - az elektrolízis során keletkező hő elvezetését,

- e - a kapocsfeszültség és áram közvetlen ellenőrzését,
- f - az egészségvédelmet.

A készülék a tisztítandó higany mennyiségéhez mérten kisebb, vagy nagyobb méretben elkészíthető. Használata folytán igen célszerűnek mutatkozott és alkalmasnak látszik - megfelelő üzemeltetéssel - más fémek hasonló elven való tisztítására is.

I r o d a l o m

- [1] Brummer, E., Náray Szabó S., Z. Electrochem. 31, 95 /1925/
- [2] N.N., Franklin Inst. 212, 800 /1931/
- [3] Abegg, Handbuch d. anorg. Chem. II. Bd. 2. I. 9. 315.
- [4] Duhme, E., Lotz, A., Wiss. Veröff. Siemens Konzern 5 Nr.1. 128/51, 129/30. /1926/
- [5] v.Halban, H.H., Helv. Phys. Acta 7, 856 /1935/
- [6] v.Halban, H.H., Ibid 8, 65 /1935/
- [7] Philips' techn. Rdsch. 11, 50, 94, 100 /1949/

Érkezett: 1964. júl. 16.

KFKI Közl. 12. évf. 4. szám, 1964.