



A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA

KÖZPONTI FIZIKAI KUTATÓ INTÉZETÉNEK

KÖZLEMÉNYEI

VOL. 6.

No 1-2.

JANUÁR—ÁPRILIS 1958

4  
F 1156  
Budapest, 1960. márc. 3. nap  
1988  
Kovács

BUDAPEST





A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
KÖZPONTI FIZIKAI KUTATÓ INTÉZETÉNEK  
K Ö Z L E M É N Y E I

Bardócz Árpád, Erő János, Kiss István, Mátrai Tibor,  
Mertz János, Náray Zsolt, Pál Lénárd és Vödrös Dániel  
közreműködésével szerkeszti

Fenyves Ervin

6. évfolyam 1-2. szám

1958.január-április

T A R T A L O M J E G Y Z É K

	Oldal
1. Ádám András és Kosály György: A diffúziós és lelassulási-hossz meghatározásának néhány kérdéséről .....	3
2. Ádám András és Bata Lajos: A diffúziós és a lelassulási-hossz mérése vízben .....	14
3. Hrehuss Gyula, Neszmélyi András és Simonyi Károly: Gyors neutron spektrométer .....	22
4. Bozóki György, Fenyves Ervin, Sándor Tamás és Somogyi Antal: Magaktiv részecskéket tartalmazó kiterjedt légizapórok vizsgálata .....	36
5. Binder Gyula és Lajtai Albert: Plasztik-foszfórok kidolgozása és kimérése I. ....	49
6. Kántor Tibor: Alumíniumötvözetek spektroszkópos vizsgálata nitrogénatmoszférában .....	56
7. Molnár Ferenc és Tóth György: A Th, Zr és Nb anioncserés elválasztása szulfátos közegből..	66
8. Fodorné Csányi Piroska: Hidrogén-deutérium kicserélődésének vizsgálata heterogén fázisban, ionkicserélőkön. Kationcserélők.I.....	71
9. Bakos József: $10^{-6}$ sec felbontóképességű dekadikus impulzusosztó .....	99





## A DIFFUZIÓS ÉS A LEASSULÁSI-HOSSZ MÉRÉSE VIZBEN

Irta: **Ádám András és Bata Lajos**  
Neutronfizikai Osztály

### Összefoglalás

Meghatároztuk a diffúziós és a lelassulási-hossz értékét vízben. A diffúziós-hosszra  $L = 2,81 \pm 0,009$  cm, a termikus energiára való lelassulási hosszra  $L_s = 7,93 \pm 0,08$  cm adódott. A relaxációs hossz vízben Po-Be neutronforrásra  $\lambda / E_0 = 11,16 \pm 0,01$  cm.

Ujabban széleskörű érdeklődés nyilvánul meg a szerves moderátorok iránt. Ilyen anyagoknak hűtőközegként és moderátorként való felhasználása energetikai reaktorokban előnyökkel bíztat. Mivel ezek az anyagok hidrogéntartalmuk, célszerűnek láttuk a méréseket a természetes víz diffúziós és a lelassulási-hosszának meghatározásával elkezdni. Ezeket az adatokat vízben különböző neutronforrással már sokan megmérték. Azonban Po-Be neutronforrással, amelyet mi használtunk, még nem közöltek mérest. A vízben való mérés igazi célja azonban mérési módszerünk alkalmazásának és megbízhatóságának ellenőrzése.

A diffúziós-hossz vízben Po-Be neutronforrás esetében nem határozható meg közvetlenül a termikus neutronok eloszlásából, mivel a forrás által kibocsátott neutronok energiája nagy [1] /átlagban 4,36 MeV/, ezért a méréseket a Fermitől származó differenciál módszerrel végeztük el [2].

Helyezzünk el vizsgálandó lassító közegünk középpontjában neutronforrást. A lassító közeg méretei legyenek megfelelően

alapjai körül bizonyos tisztázatlanság tapasztalható. Ezért a továbbiakban részletesen foglalkozunk ezeknek az elvi alapoknak tisztázásával. Mindenekelőtt definiálni fogjuk a lassító közeg jellemzésére szolgáló neutronfizikai makroparamétereket.

## 2. Definíció

Valamely lassító közeg neutronfizikai makrotulajdonságait adott hőmérsékleten a moderátor makroszkópikus szórási és befogási hatáskeresztmetszete /  $\Sigma_s, \Sigma_a$  / és a moderátort felépítő atomok tömege határozza meg. A fenti mennyiségek helyett velük egyértelműen összefüggő mennyiségeket /paramétereket/ vezetnek be, amelyek a moderátor lassítási és diffúziós tulajdonságait szemléletesebben jellemzi.

Egy ilyen paraméter az ugynevezett lelassulási-hossz. Ez közvetlen kapcsolatban áll azon átlagos távolsággal, amelyre az  $E_0 > E$  energiával keletkező neutronok keletkezési helyüktől eldiffundálnak, mialatt energiájuk eléri az  $E$  értéket.

A lelassulási-hossz pontos definíciója érdekében tekintünk egy pontszerű minden irányban egyenlő intenzitással emittáló stacionárius neutronforrást. Tegyük fel, hogy ez a pontforrás végtelen homogén közegben foglal helyet. Jelöljük  $q(r, E)$ -vel azon neutronok átlagszámát, amelyet egy, a forrástól  $r$  távolságban lévő pont körüli egységnyi térfogatban, egységnyi idő alatt  $E$ -nél kisebb energia értékre lassulnak le.  $q(r, E)$  az ún. lelassulási sűrűségfüggvény.

Az  $E$  energiára való lelassuláshoz tartozó lelassulási-hosszat a következőképpen definiálják:

$$L_s(E) = + \sqrt{\frac{r_q^2(E)}{6}} \quad /2,1/$$

ahol

$$\frac{r_q^2(E)}{6} = \frac{\int_0^{\infty} r^4 q(r, E) dr}{\int_0^{\infty} r^2 q(r, E) dr}$$

/2,2/

azaz a  $4\pi r^2 q(r, E)$  radiális sűrűség második momentuma.



A definícióban a második momentum négyzetgyöke szerepel, habár a szemléletes jelentésnek jobban megfelelne, ha  $L_s(E)$ -t az  $\overline{r_q(E)}$  első momentum segítségével definiálnánk. A második momentum bevezetésének egyik oka az, hogy a neutrongáz adott közegben való viselkedését leíró kinetikai egyenletről származó közelítő formulákban a második momentum szerepel és így célszerű ezt a mennyiséget moderátor paraméterként bevezetni. Ezenkívül az is a második momentum felhasználása mellett szól, hogy - mint látni fogjuk -  $\overline{r_q(E)}$  ellentétben  $\overline{r_q^2(E)}$ -al nem minden energián mérhető mennyiség. Megjegyzendő, hogy nehéz magokból álló moderátor esetén  $r_q(E) \approx \sqrt{r_q^2(E)}$ .

Foglalkozunk ezután a diffúziós-hossz definíciójával. Ez azon átlagos távolsággal kapcsolatos, amelyre egy, már keletkezéskor termikus neutron eldiffundál, anélkül, hogy elnyelődne.

Tekintsünk ismét egy végtelen közegbe ágyazott, minden irányban egyenletes intenzitással termikus neutronokat emittáló stacionárius pontforrást. Jelöljük  $\psi(r)$ -el a termikus forrás által létrehozott neutronsűrűséget a forrástól  $r$  távolságban. Ebben az esetben  $\sum_a v_{th} \psi(r)$  /itt  $v_{th}$  a termikus neutronok sebessége/ jelenti a forrástól  $r$  távolságban egységnyi térfogatban, egységnyi idő alatt abszorbeálódó termikus neutronok átlagos számát. Diffúziós-hosszon a következő mennyiséget értik:

$$L_D = + \sqrt{\frac{\overline{r \psi^2}}{\delta}} \quad /2,3/$$

ahol

$$\overline{r \psi^2} = \frac{\int_0^\infty r^4 \sum_a v_{th} \psi(r) dr}{\int_0^\infty r \sum_a v_{th} \psi(r) dr} = \frac{\int_0^\infty r^4 \psi(r) dr}{\int_0^\infty r^2 \psi(r) dr} \quad /2,4/$$

A definícióhoz ismét a második momentumot használjuk fel. Ennek oka egyrészt újra a neutrongáz-fizikai formulák egyszerűbbé tétele, másrészt az, hogy  $L_s(E_{th})(E_{th})$ -val a termikus energiát jelöljük, méréséhez, mint látni fogjuk,  $\overline{r^2 \psi}$ -ra lesz szükség. Az  $\overline{r \psi}$  mérésének itt nincs semmi elvi akadály, úgyhogy ez a szempont itt nem indokolja a második momentum használatát. Könnyű belátni, hogy jelen esetben moderátor fajtától függetlenül elhanya-

golhatóan kicsiny az első momentum és a második momentum négyzetgyöke közötti különbség.

Ha a termikus sűrűség nem termikus, hanem gyors forrástól származik, akkor a migrációs-hossz  $/L_M/$  jellemző arra, hogy a gyors forrástól átlagosan mekkora távolságra abszorbeálódnak a termikus neutronok.  $L_M$  definíciója a következő:

$$L_M = + \sqrt{\frac{r_g^2}{6}} \quad /2,5/$$

ahol

$$\frac{1}{r_g^2} = \frac{\int_0^{\infty} r^4 \Sigma_a v_{th} \rho(r) dr}{\int_0^{\infty} r^2 \Sigma_a v_{th} \rho(r) dr} = \frac{\int_0^{\infty} r^4 \rho(r) dr}{\int_0^{\infty} r^2 \rho(r) dr} \quad /2,6/$$

Itt  $\rho(r)$  a gyors forrás által létesített termikus neutronsűrűség értéke az  $r$  helyen.

Nem nehéz belátni, hogy

$$L_M^2 = L_S^2(E_{th}) + L_D^2 \quad /2,7/$$

### 3. A lelassulási-hossz mérése

A  $q(r, E)$  függvény ismeretében /2,1/ és /2,2/ segítségével egyszerű numerikus integrálással meghatározhatjuk  $r_q^2(E)$ -t, majd ebből  $L_S(E)$ -t.

A lelassulási-hossz mérésével kapcsolatban fel lépő problémákat aszerint fogjuk osztályozni, hogy az  $E > E_{th}$  vagy az  $E = E_{th}$  esetről van-e szó, azaz a termikusnál nagyobb energiára, vagy éppen a termikus energiára való lefékezéshez szükséges átlagos uthosszat akarjuk-e meghatározni. Tegyük fel, hogy a forrás  $E_0 > E$  energiájú neutronokat bocsát ki.

a./ Vizsgáljuk először az  $E > E_{th}$  esetet. Itt a következő probléma lép fel:

A  $q(r, E)$  függvény nem közvetlenül mérhető mennyiség. A mérés által szolgáltatott számérték /pl. az indiumfólia aktivitása/ nem  $q(r, E)$ -vel, hanem  $n(r, E)$ -vel, azaz az  $E$  energiájú neutronok sűrűségével arányos. Így a mérési eredményekből képezve a térbeli második momentumot nem  $r_q^2(E)$  -t, hanem a következő mennyiséget kapjuk:



$$\overline{r_n^2(E)} = \frac{\int_0^{\infty} r^4 n(r, E) dr}{\int_0^{\infty} r^2 n(r, E) dr} \quad /3,1/$$

Látjuk, hogy a mérési adatokból nem  $\overline{r_q^2(E)}$ -t, hanem az  $\overline{r_n^2(E)}$  mennyiséget határozzuk meg.  $\overline{r_q^2(E)}$  és  $\overline{r_n^2(E)}$  közt azonban egy közelítő összefüggés áll fenn, amelynek segítségével az egyik ismeretében a másik számolható [1]. Nevezetesen a térbeli problémáknál szokásos diffúziós közelítést és a lassítás-elmélet Greuling-Goertzel közelítését egyszerre alkalmazva, továbbá feltevé, hogy a lassítás tartományában nincs befogás, az  $E > E_{tk}$  esetben a kinetikai egyenletből az adódik, hogy:

$$\overline{r_q^2(E)} = \overline{r_n^2(E)} - \frac{2 \epsilon}{\Sigma_s(E) \Sigma_{tr}(E)} \quad /3,2/$$

Itt  $\epsilon$  a Greuling-Goertzel közelítés paramétere. A /3,2/ formula csak homogén közegre vonatkozik, azonban a számítást nem nehéz arra az esetre módosítani, amikor a közeg többfajta atommagot tartalmaz.

A számítás során felhasználjuk azt a tényt, hogy  $q(r, E)$  és a kinetikai egyenlet  $E > E_{tk}$  esetre érvényes formájából számított  $n(r, E)$  a következőképpen függenek össze:

$$q(r, E) = \int_E^{\infty} \Sigma_s(E') \nu(E') n(r, E') W(E', E) dE' \quad /3,3/$$

ahol  $W(E', E)$  annak valószínűsége, hogy egy  $E'$  energiájú neutron energiája szóródáskor  $E$ -nél kisebbé válik.

Különböző moderátorok esetén különbözőképpen kell  $\epsilon$ -t megválasztani. Ha  $\epsilon \rightarrow 0$ , akkor a Greuling-Goertzel közelítés átmeny a Fermi-féle közelítésbe, amely szerint a lelassulás folytonosan történik. Ebben a közelítésben  $\overline{r_q^2(E)} = \overline{r_n^2(E)}$ , ami természetes is, hiszen a folytonos lelassulási modell szerint a  $q(r, E)$  és  $n(r, E)$  függvények arányosak egymással.

A Fermi-közelítés csak nehéz magokból álló moderátorok esetén alkalmazható. Már grafitnál, igen jó közelítést jelent és így a korrekciót csak könnyebb magokból álló moderátorok esetében kell alkalmazni. Természetes vízben  $E = 1,46 \text{ eV}$ -nál

/indium rezonancia/ a korrekció  $2,5 \text{ cm}^2$ -nek adódik. Hogy ez mennyire jelentős az attól függ, milyen energia spektrumu forrást használunk. Nagy energiájú neutronokat emittáló forrás esetében az  $r_n^2(1,46)$  mennyiség hibája rendszerint nagyobb, mint  $2,5 \text{ cm}^2$ , és így nincs értelme a korrekciónak. Például, hasadási neutronokra [2], [3]  $r_n^2(1,46) = 17,6,4 \pm 9 \text{ cm}^2$  látható, hogy a mérés hibája nagyobb mint a  $2,5 \text{ cm}^2$ .

Nagy energiájú neutronokat emittáló forrás alkalmazása esetén tehát ez a korrekció elhanyagolhatóan kicsi. Más a helyzet pl. a Barkov és társai [4] által használt Sb+Be fotoneutron forrással végrehajtott méréseknél. Az általuk mért

$$\underline{r_n^2(1,46)} = 32,88 \pm 0,9 \text{ cm}^2$$

értéket az  $r_q^2(1,46)$ -ra való áttéréssel kapcsolatban korrigálni kellett volna, azonban a szerzők ezt elmulasztották.

Ettől az esettől eltekintve az irodalomban nem találunk olyan mérést, amelynél a /3,2/ korrekció figyelembe vétele lényeges változást hozott volna a lelassulási hossz értékében. Az egész kérdésnek inkább fogalmi jelentősége van. Hogy ezen a téren az irodalomban fogalmi zavar uralkodik, azt mutatja pl. [2] is, ahol a szerzők azt állítják, hogy aktivitásméréssel természetes vízben lelassulási-sűrűséget mértek.

b./ Vizsgáljuk meg ezekután, hogy kell  $L_5(E_{th})$  -t, azaz a termikus energiára való lefékeződéshez szükséges lelassulási hosszt mérni. Evvel a méréssel kapcsolatban két probléma vetődik fel:

bi./  $L_5(E_{th})$  méréséhez  $q(r, E_{th})$  -t kellene mérni. Mint láttuk, ez nem mérhető. Előbb ezen úgy segítettünk, hogy az  $n(r, E)$  mennyiséget megmérve, meghatároztuk ennek második momentumát és ezt hoztuk kapcsolatba  $q(r, E)$  második momentumával. Termikus energián azonban  $n(r, E)$  sem mérhető. Ezt könnyen beláthatjuk, ha meggondoljuk, hogy /3,2/ levezetéséhez a lassítás tartományában érvényes kinetikai egyenletet használtuk fel. A /3,1/-ben szereplő  $n(r, E_{th})$  csak a lelassulási folyamat eredményeképpen keletkező termikus neutronok térbeli eloszlását adja meg. A moderátorban azonban azt a termikus sűrűséget, mérjük, amit a lelassulás során képződő, termikus neutronok diffúziója alakít ki. Ezt a sűrűséget  $\rho(r)$  -el jelöltük. A 2. fejezetben mondottak



szerint, tehát a mérésekből nem  $\overline{r_n^2(E_{th})}$  -t vagy  $\overline{r_q^2(E_{th})}$  -t, hanem a /2,6/-al definiált  $\overline{r\rho^2}$  -t kapjuk, amely az  $L_M$  migrációs hosszal függ össze.

Azonban  $L_M$  -et és  $L_D$  -t mérve  $L_S(E_{th})$  -t igen egyszerűen számolhatjuk a /2,7/ összefüggés alapján. Így látható, hogy  $L_S(E_{th})$  mérése azon alapszik, hogy a 2. fejezetben definiált hosszak négyzetei, illetve az ugyanott szereplő második momentumok additívek. Ugyanez nem igaz az első momentumokra.  $\overline{r_q(E_{th})}$  a  $\rho(r)$  és  $\psi(r)$  sűrűségek ismeretében nem határozható meg, tehát  $\overline{r_q(E)}$  nem minden energián mérhető. Éppen ez az egyik oka annak, hogy a lelassulási hosszt nem az első, hanem a második momentum segítségével definiálják.

bii./ Látjuk, hogy  $L_S(E_{th})$  meghatározásához  $L_M$  -et kell mérni.  $L_M$  mérése nem probléma mentes, ugyanis  $L_M$  definíciójában  $0$  -tól  $\infty$  -ig vett integrálok szerepelnek, és így a migrációs-hossz meghatározásához szükségünk van a  $\rho(r)$  termikus neutron-sűrűség asszimptotikus viselkedésének ismeretére.

$\rho(r)$  asszimptotikájának megállapítása céljából tekintsünk ismét egy végtelen moderátorba ágyazott gyors stacionárius neutronforrást, amely minden irányban egyenlő intenzitással emittál. Ez a forrás valamilyen  $q(r, E_{th})$  termikus lelassulási sűrűséget hoz létre. Ahhoz, hogy a  $\rho(r)$  függvényt megkapjuk, ezt a  $q(r, E_{th})$  függvényt kell betenni a termikus tartományban érvényes kinetika egyenlet forrástagjába és az így kapott egyenletet kell megoldani. Szerencsére bennünket csak  $\rho(r)$  asszimptotikus viselkedése érdekel. Ezért a termikus kinetika egyenlet helyett megelégedhetünk a diffúziós egyenlet alkalmazásával. Evvel számolva és a  $q(r, E_{th}) = q(r)$  jelölést alkalmazva az adódik, hogy

$$\rho(r) = (const) \cdot \left\{ \frac{e^{-\frac{r}{L_D}}}{r} \int_0^r r' s k \frac{r'}{L_D} q(r') dr + \frac{sk \frac{r}{L_D}}{r} \int_r^\infty r' e^{-\frac{r'}{L_D}} q(r') dr' \right\}$$

/3,4/

Ennek a függvénynek az asszimptotikus viselkedését kell tehát megállapítani. Ebből a célból úgy szokás eljárni /lásd pl. [7] -et/, hogy  $q(r)$  helyébe a Fermi-egyenlet megoldását írjuk és az így nyert függvény asszimptotikáját vizsgáljuk. Evvel

az eljárással az adódik, hogy nagy  $r$  -ekre  $\rho(r)$  úgy viselkedik, mint  $\frac{e^{-r/L_D}}{r}$  azaz a forrástól nagy távolságban egy pontszerű gyorsforrás úgy hat, mint egy pontszerű termikus forrás.

A fenti eljárás nem helyes hidrogén tartalmu moderátorok esetében, hiszen ekkor a Fermi-elmélet nem alkalmazható. Ez az eljárás azonban nem megnyugtató, nehéz magokból álló moderátorok esetén sem, ugyanis a Fermi-egyenlet, mint ismeretes, a forrástól nagy távolságban ezeknél sem érvényes és így a Fermi-elmélet eredményeit felhasználva nem lehet az asszimptotikus viselkedésre következtetni.

Ha a befogási hatáskeresztmetszet zérus a lassítás tartományában és a szórási hatáskeresztmetszet monoton csökken növekvő energiával, akkor nagy  $r$  -ekre, mint ismeretes [5] [6] [9]

$$n(r, E) \sim n(E) \frac{e^{-\frac{r}{\lambda_S(E_0)}}}{r^K} \quad /3,5/$$

/3,5/-ben  $\lambda_S(E_0)$  az  $E_0$  energiájú neutronok szórási szabaduthossza /a forrás  $E_0$  energiájú neutronokat emittál/.  $K$  értéke attól függ, milyen moderátorról és milyen energiájú forrásról van szó. /Mindenesetben igaz az, hogy  $K < 2$  /.

/3,5/-öt /3,3/-ba téve, a  $q(r, E)$  függvényre a

$$q(r, E) \sim q(E) \frac{e^{-r/\lambda_S(E_0)}}{r^K} \quad /3,6/$$

asszimptotikus formulát nyerjük.

/3,5/ és /3,6/ egyaránt asszimptotikus formulák, és mint ilyenek csak egy bizonyos  $r_0$  értéktől kezdve érvényesek./

/3,4/-et és /3,6/-ot felhasználva,  $r > r_0$  -ra  $\rho(r)$  így írható

$$\rho(r) = \frac{e^{-r/L_D}}{r} \left[ \alpha + \beta(r) \right] + \frac{sk}{r} \frac{r'/L_D}{r} \gamma(r) \quad /3,7/$$

Itt

$$\alpha = \alpha_1 \int_0^{r_0} r' sk \frac{r'}{L_D} q(r') dr' = const.$$

$$\beta(r) = \beta_1 \int_{r_0}^r r' sk \frac{r'}{L_D} \left( \frac{e^{-r'/\lambda_S(E_0)}}{r'^K} \right) dr'$$

$$\rho(r) = \rho_1 \int_r^{\infty} r' e^{-\frac{r'}{L_D}} \left( \frac{e^{-\frac{r'}{\lambda_S(E_0)}}}{r'^K} \right) dr'$$

$\alpha_1, \beta_1, \gamma_1$  konstansok.

/Megjegyezzük, hogy az  $\alpha$  -ban szereplő  $q(r)$  függvényt nem ismerjük, de erre nem is lesz szükségünk./

/3,7/ asszimptotikus viselkedését megvizsgálva azt találjuk, hogy  $r \gg r_0$  -ra

$$\rho(r) \sim \begin{cases} \frac{e^{-r/L_D}}{r} & , \text{ ha } L_D > \lambda_S(E_0) \\ \frac{e^{-r/\lambda_S(E_0)}}{r^K} & , \text{ ha } L_D < \lambda_S(E_0) \end{cases} \quad /3,8/$$

Látjuk tehát, hogy az, hogy egy gyors neutronokat emittáló forrást a tőle távol elhelyezett detektor termikusnak "érez-e" vagy sem, az egyrészt a szóbanforgó közegtől, másrészt a forrás által emittált neutronok energiájától függ. Az a gyakori állítás, amely szerint gyors forrástól elég távol a gyors forrást mindig termikusnak tekinthetjük, nem helyes.

/3,8/-at a mérések igazolják [10]. Az  $L_M$  meghatározásához szükséges numerikus integrálásokat tehát /3,8/ segítségével lehet elvégezni. Meg kell még jegyeznünk, hogy bár  $K < 2$ , mivel a forrástól távol már csak az exponenciális faktor viselkedése döntő, mégis  $K=2$  -t írhatunk a /3,8/ alatti kifejezésben.

#### 4. Diffúziós-hossz mérés

A termikus forrásból kilépő neutronok térbeli eloszlását a diffúziós egyenlet írja le, amelyben az  $L_D$  paraméter szerepel. Termikus forrás esetén a moderátorban létrejövő térbeli eloszlás mérése alapján lehetne  $L_D$  -t meghatározni.

A neutronforrások azonban mindig termikusnál nagyobb energiájú neutronokat szolgáltatnak. Így a diffúziós-hossz kiértékelésére /3,4/-et használhatnánk, mivel ebben is szerepel  $L_D$ . Azonban ez a formula egyrészt bonyolult, másrészt a benne szereplő  $q(r)$  függvényt sem ismerjük. Ha  $L_D > \lambda_S(E_0)$ , akkor a diffúziós-hosszt a /3,8/ asszimptotikus kifejezés alapján határoz-



hatjuk meg. Ha viszont  $L_D < \lambda_s(E_0)$ , akkor az asszimptotikus formulában  $L_D$  nem szerepel és így közvetlenül a termikus neutronok eloszlásából nem határozhatjuk meg a diffúziós-hosszt.

Például Ra-Be, hasadási, vagy más nagy energiájú forrást alkalmazva, természetesen vízben  $L_D < \lambda_s(E_0)$ . Ugyanekkor kis energiájú neutronokat emittáló fotonutronforrás esetén  $L_D > \lambda_s(E_0)$  és így az ilyen forrás által létrehozott termikus asszimptotikus viselkedésből  $L_D$  -t meghatározhatjuk természetes vízben is. Ezt használták fel Barkov és társai [4], akik Sb-Be forrással mérve /30 KeV,  $10^5$  neutron/sec/ a forrástól 15 cm-nél nagyobb távolságban természetes vízben  $\frac{e^{-r/L_D}}{r}$  alakú eloszlást találtak. A szerzők ezt azzal magyarázták /amint a cikkből kivehető/, hogy ilyen távolságban már nincsenek termikusnál nagyobb energiájú neutronok jelen, tehát nem is keletkeznek termikus neutronok és gömbszimmetrikus elrendezés esetén olyan térrészekben, ahol nincs termikus forrás, a diffúziós egyenlet megoldása éppen a fenti alakú. Az előző paragrafusban végzett számítás mutatja, hogy ez a megfontolás nem kielégítő. Ugyanis ugyanígy gondolkozva, azt lehetne mondani, hogy minden anyagban bármilyen energiájú forrás esetén  $\frac{e^{-r/L_D}}{r}$  alakú az asszimptotikus formula. Ez azonban, amint láttuk, nem igaz.

Grafitban  $L_D$  nagy értéke miatt ilyen problémák nem lépnek fel. Itt minden forrás esetén  $\frac{e^{-r/L_D}}{r}$  alakú az eloszlás. Az  $\frac{e^{-r/L_D}}{r}$  asszimptotikus kifejezés alkalmazhatóságát nem az dönti el, hogy a moderátor magjai könnyűek-e vagy sem; ebben a kérdésben csupán  $L_D$  és  $\lambda_s(E_0)$  viszonya döntő, pedig egyáltalán nem függ a lassító közeg atommagjainak tömegétől. Erre jó példa az, hogy nehésvíznél az asszimptotikus kifejezés alakja  $\frac{e^{-r/L_D}}{r}$ , mivel  $L_D > \lambda_s(E_0)$ .

A diffúziós-hossz meghatározására az  $L_D < \lambda_s(E_0)$  és az  $L_D > \lambda_s(E_0)$  esetekben egyaránt alkalmas a Fermi-féle [8] differenciás módszer. Az eljárásnak az a lényege, hogy megméri egy pontszerű gyors forrás által létesített termikus sűrűséget /  $\rho_1(r)$  /. Ezután körülveszik a forrást egy kadmiumból készített gömbfelülettel, amely negatív termikus neutronforrást jelent. Ezután ismét kimérve a termikus neutronsűrűséget, most már a negatív forrás jelenlétében /  $\rho_2(r)$  /, képezik a két mérési eredmény különbségét. A diffúzió egyenlet linearitása miatt viszont

$$\varphi_1(r) - \varphi_2(r) = \frac{e^{-r/L_D}}{r} \quad /4,1/$$

Ennekaz összefüggésnek alapján  $L_D$  könnyen meghatározható.

### I r o d a l o m

- [1] Reactor Handbook, 2, 365, /1955/ Geneva.
- [2] J.E.Hill, L.D.Roberts, T.E.Fitch  
Jorun.Appl.Phys. 26, 1013, /1955/
- [3] L.M.Barkov, V.K.Makarin, K.N.Mukhin  
J.Nucl.Energy, 4, 94, /1956/
- [4] L.M.Barkov, K.N.Mukhin  
J.Nucl.Energy, 4, 91, /1956/
- [5] G.C.Wick, Phys.Rev. 75, 738, /1949/
- [6] S.Flügge, Phys.Zeitschrift, 44, 445, /1943/
- [7] P.R.Wllace-J.LeCaine  
MT-12, NRC-1480
- [8] E.Amaldi, E.Fermi  
Phys.Rev. 50, 899 /1936/
- [9] G.Holte, Ark.f.Phys. 3, 209 /1951/
- [10] M.Goldhaber, R.D.O'Neal  
Phys.Rev. 60, 834 /1941/

Érkezett 1958 április 24.

# A DIFFUZIÓS ÉS LEASSULÁSI-HOSSZ MEGHATÁROZÁSÁNAK NÉHÁNY KÉRDÉSÉRŐL

Irta: Ádám András és Kosály György

Neutronfizikai Osztály

## Összefoglalás

A lelassulási hossz  $/L_s(E)/$ , diffúziós hossz  $/L_D/$  és migrációs-hossz  $/L_M/$  definíciójának ismertetése után az  $L_s(E)$ ,  $E > E_{th}$  mérése során felvetődő kérdéseket vizsgáljuk meg. E kérdések az-  
zal kapcsolatosak, hogy hidrogén tartalmú anyagokban a lelassulási sűrűség nem arányos a neutron sűrűséggel.  $L_M$  Mérésével kapcsolatban a gyors forrás által létesített termikus neutron sűrűség asszoptotikus viselkedésének kérdését vizsgáljuk meg. Ennek ismeretében utmutatást kapunk arra, hogy hogyan kell hidrogén tartalmú közegben  $L_D$  -t mérni.

## 1. Bevezetés

Különböző szerves vegyületek előnyösen használhatók lassító és hűtő közegként. Kiderült, hogy különösen a ciklikus organikus anyagok közöttük a difenil és néhány származéka /Pl. az izopropil-difenil/ mutatnak előnyös tulajdonságokat.

A szerves moderátorok hidrogén tartalmú anyagok és ezért ahhoz, hogy ezek neutronfizikai makrotulajdonságait tanulmányozhassuk, foglalkoznunk kell a hidrogén tartalmú moderátorok vizsgálata során felvetődő kérdésekkel. Természetes víz neutronfizikai makroparamétereinek meghatározására sok mérést végeztek, azonban a hidrogén tartalmú moderátorokban végzett mérések elvi



nagyok, hogy a neutronkifolyástól eltekinthessünk. A termikus neutronok térbeli eloszlását jelöljük  $n_1/r$ -rel, ahol  $r$  a forrástól mért távolság. A forrástól  $a$  távolságra helyezünk el egy 1 mm vastagságú kadmium síkot. Ez a sík gyakorlatilag minden termikus neutronot elnyel, s ezért úgy foghatjuk fel, mint egy negatív termikus síkforrást. A kadmium sík jelenlétében a termikus neutronok térbeli eloszlását az

$$n_2(r) = n_1(r) - A e^{-\frac{r}{L_D}}$$

összefüggés adja meg, ahol  $L_D$  a diffúziós-hossz és  $A$  a konstans. Tehát a két eloszlás különbségéből  $n_1/r - n_2/r$ -ből meghatározható a negatív síkforrás által létrehozott eloszlás, amiből a diffúziós-hossz értékét kiszámíthatjuk.

A méréseket természetes vízben, szobahőmérsékleten 160x80x90 méretű kádban végeztük el. A forrás erőssége  $18 \cdot 10^6$  n/sec, a detektor 3x5 cm-es és  $0,092$  g/cm<sup>2</sup> vastag indium fólia volt. A regisztrálást ólomtoronnyal árnyékolt IGV típusú GM-csővel és 256-os leosztású impulzus számlálóval végeztük. A kadmium síkot a Po-Be forrástól 3 cm-re helyeztük el.

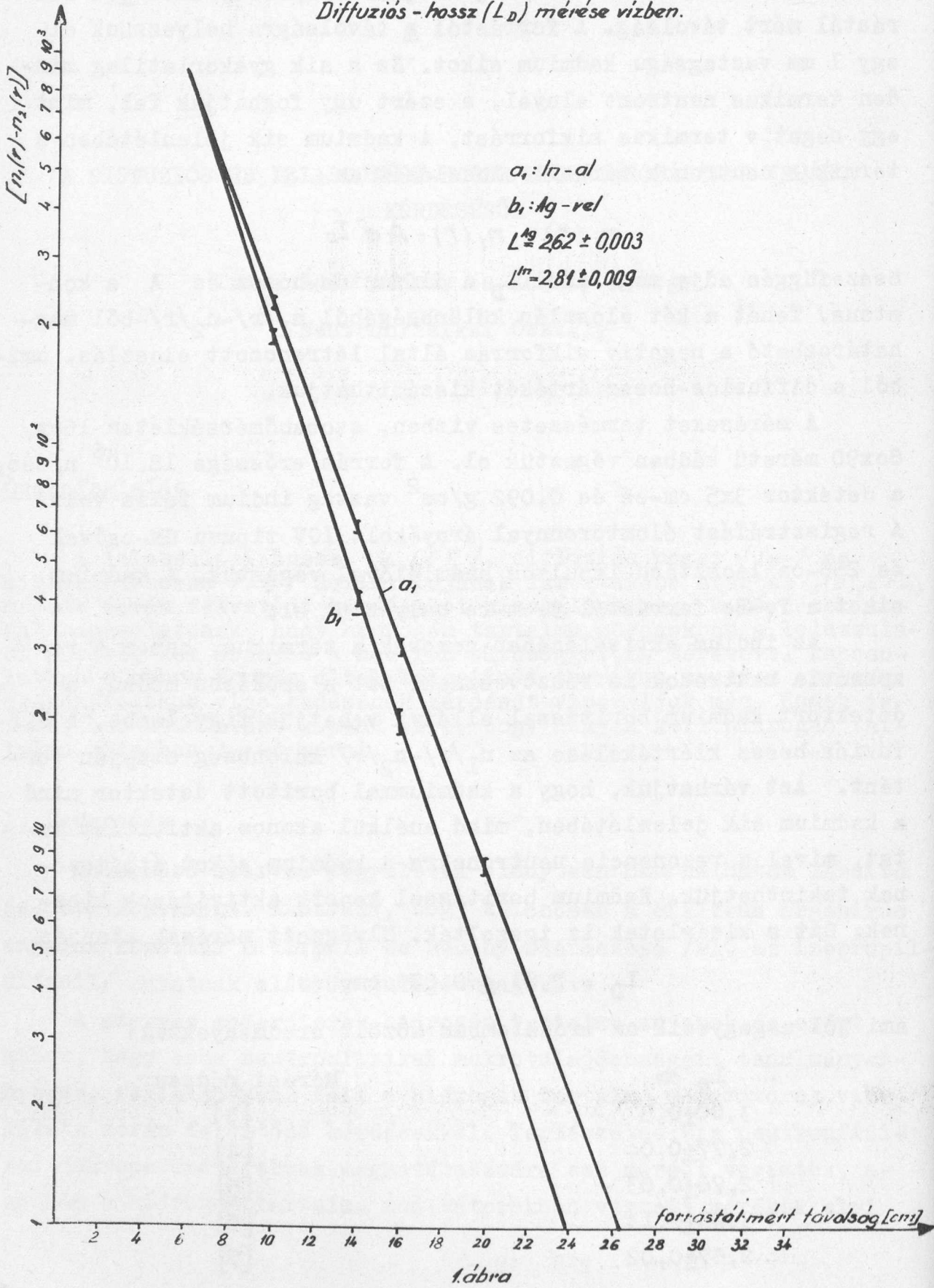
Az indium aktiválásában nemcsak a termikus, hanem a rezonancia neutronok is résztvesznek. Ezt a szokásos módon, a detektort kadmium borítással ellátva vehetjük figyelembe. A diffúziós-hossz kiértékelése az  $n_1/r - n_2/r$  különbség alapján történt. Azt várhatjuk, hogy a kadmiummal borított detektor mind a kadmium sík jelenlétében, mind anélkül azonos aktivitást mutat, mivel a rezonancia neutronokra a kadmium síkot átlátszónak tekinthetjük. Kadmium borítással kapott aktivitások kiesnek. Ezt a kísérletek is igazolták. Elvégzett mérések alapján

$$L_D = 2,81 \pm 0,009 \text{ cm,}$$

ami jól megegyezik az irodalomban közölt eredményekkel:

$L_D$ cm	Mérési módszer
$3,00 \pm 0,3$	[3]
$2,77 \pm 0,04$	[4]
$2,76 \pm 0,03$	[5]
$3,25 \pm 0,13$	[6]
$2,67 \pm 0,02$	[7]

Diffúziós - hossz ( $L_D$ ) mérése vízben.



$$2,72 \pm 0,04 \quad [8]$$

$$2,69 \pm 0,08 \quad [9]$$

$$2,85 \pm 0,05 \quad [10]$$

$$2,88 \quad [11]$$

Az 1. ábrán  $\log n_1/r / -n_2/r /$  látható a távolság függvényében.

### A lelassulási-hossz mérése. $/L_s/$

A lelassulási-hossz termikus energiánál közvetlenül nem mérhető, azonban a termikus neutronok eloszlása, illetve annak második momentuma alapján meghatározhatjuk az un. migrációs-hosszt

$$L_M^2 = \frac{\overline{r^2}}{6} = \frac{1}{6} \cdot \frac{\int_0^{\infty} r^4 n(r) dr}{\int_0^{\infty} r^2 n(r) dr}$$

és mivel a migrációs, a lelassulási- és a diffúziós-hossz között

$$L_M^2 = L_s^2 (E_{th}) + L_D^2$$

alaku összefüggés áll fenn, ebből  $L_s^2 (E_{th})$  kiszámítható.

A termikus neutron sűrűséget a forrástól 36 cm távolságig tudtuk mérni. Így 36 cm-ig a kísérleti adatokat nagyobb távolságokra pedig a termikus neutron sűrűség asszimptotikus viselkedését [1] leíró

$$n(r)_{assz} = B \frac{e^{-\frac{r}{\lambda(E_0)}}}{r^2}$$

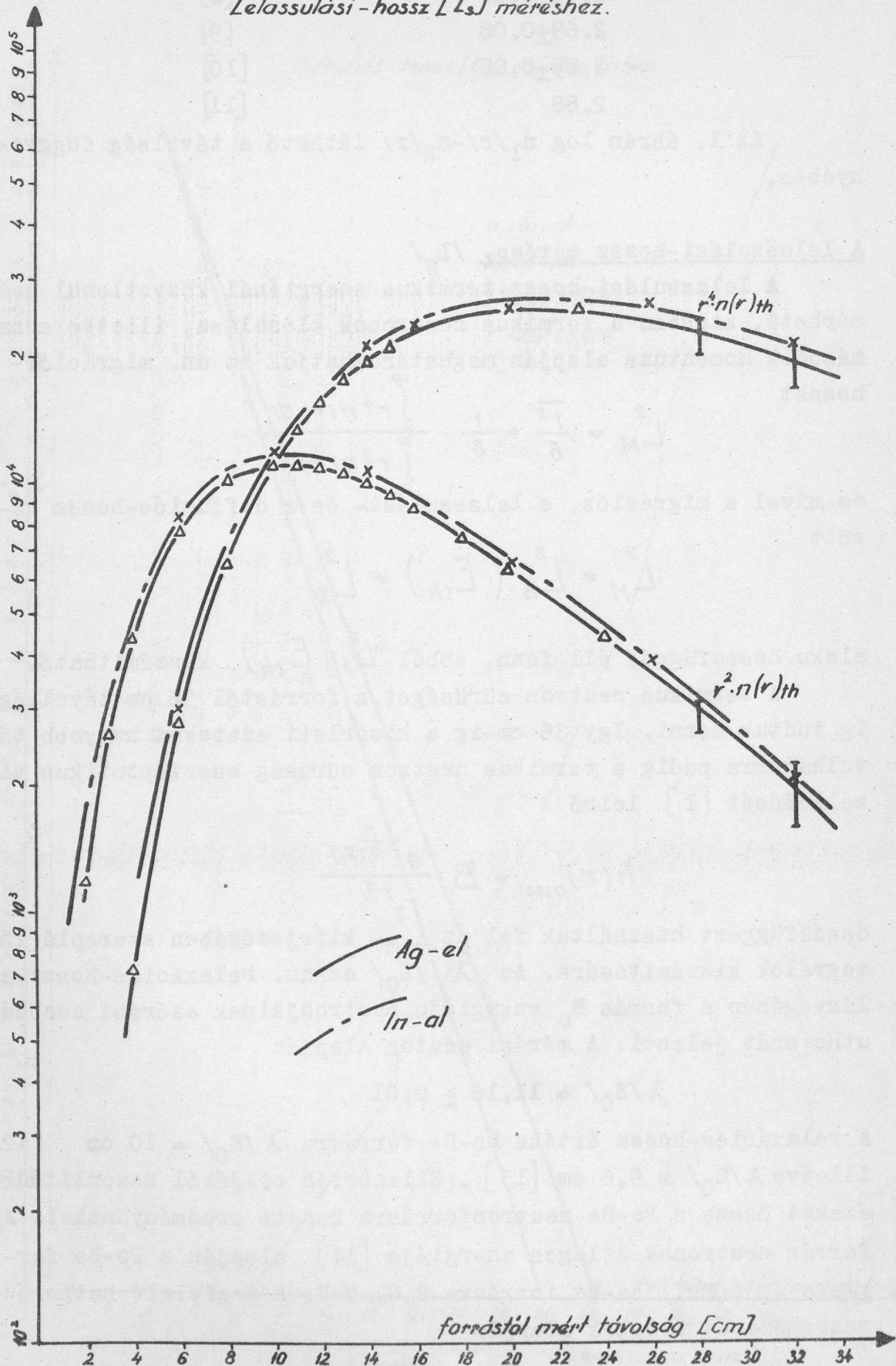
összefüggést használtuk fel az  $L_M^2$  kifejezésében szereplő integrálok kiszámítására. Az  $\lambda /E_0/$  az un. relaxációs-hossz, ami lényegében a forrás  $E_0$  energiájú neutronjainak szórási szabad uthosszát jelenti. A mérési adatok alapján

$$\lambda /E_0/ = 11,16 \pm 0,01$$

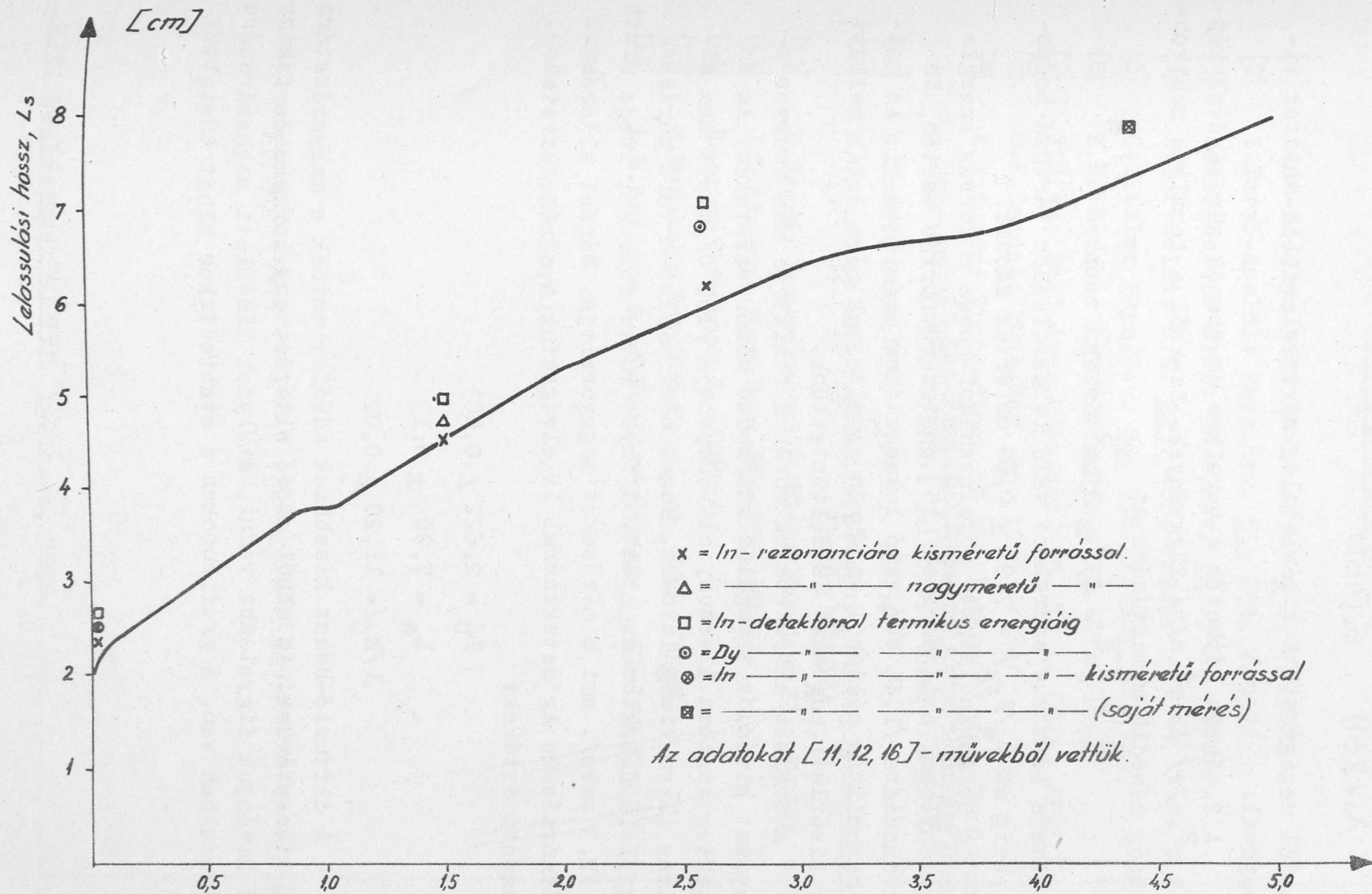
A relaxációs-hossz értéke Ra-Be forrásra  $\lambda /E_0/ = 10$  cm [12], illetve  $\lambda /E_0/ = 9,6$  cm [13]. Ellenőrzés céljából hasonlítottuk ezeket össze a Po-Be neutronforrásra kapott eredményünkkel. A forrás neutronok átlagos energiája [14] alapján a Po-Be forrásra 4,36 MeV, Ra-Be forrásra 2,61 MeV. A megfelelő hatáske- resztmetszet értékek alapján



Lelassulási-hossz [ $L_s$ ] méréshez.



2. ábra



3. ábra

$$\frac{\lambda_p(4,36)}{\lambda_p(2,61)} = \frac{\sigma_p(2,61)}{\sigma_p(4,36)} = \frac{6,1}{5,4} = 1,13$$

ami jól megegyezik a kísérletileg mért relaxációs hosszak viszonyával.

A 2. ábrán láthatók a termikus neutronok sűrűségével képzett  $r^2 \cdot n/r/$  és  $r^4 \cdot n/r/$  függvények. Ezekből a termikus neutron-sűrűség második momentumára az

$$\overline{r^2} = 431 \pm 8 \text{ cm}^2 \text{ érték}$$

illetve a termikus energiára való lelassuláshoz tartozó hosszra pedig az  $L_s/E_{th}/ = 7,93 \pm 0,08 \text{ cm}$  érték adódik.

A 3. ábrán látható a lelassulási-hossz a forrás energia függvényében, amit Marshak [15] pontszerű forrás esetén, In rezonanciára /1,46 eV/ való lelassulásra számított ki. Az összehasonlítás céljából az ábrán az általunk mért érték mellett más kísérleti adatokat is feltüntettünk.

A további kísérleteink során difenilt és más szerves anyagokat kívánunk vizsgálni különböző hőmérsékleteken. Az In detektor azonban alacsony olvadáspontja /156°C/ miatt nem alkalmas ilyen vizsgálatokra. Magas hőmérsékleten való méréshez megfelelő detektor az ezüst. Előnyös rövid felezési ideje miatt is /2,3 perc/, ami a méréseket meggyorsítja. Mérési eljárásunk ellenőrzésére Ag detektorral is elvégeztük a méréseket vízben. A kapott értékek:

$$L_D = 2,622 \pm 0,003$$

$$L_s = 7,90 \pm 0,13$$

$$\lambda/E_0/ = 11,20 \pm 0,02$$

A diffúzió-hossz kisebbnek adódik, aminek a magyarázatára még visszatérünk. Az ebből adódó eltérést egy korrekciós faktoral kívánjuk figyelembe venni, amelynek kísérleti meghatározása folyamatban van. A grafikonokon a statisztikus hibát tüntettük fel.



I r o d a l o m

- [1] Ádám-Kosály: KFKI Közlemények 6 3. /1958/
- [2] E.Fermi-Amaldi: Phys.Rev. 51. 896. /1937/
- [3] Gamertselder G.R.: Phys.Rev. 62. 556. /1942/
- [4] A.Berthelot, C.R. 225. 406. /1947/
- [5] C.Tittle: Phys.Rev. 80. 756. /1950/
- [6] K.E. Larson: Arkiv für Fysik, 2. 47. /1950/
- [7] F.Sisk: Bull.Amer.Phys.Soc. 26. No 1. 58/A. /1951/
- [8] G.E.Dardel: Phys.Rev. 96. 1245 /1954/
- [9] A.Antonov: Proceedings of the International Conference  
on the Peaceful uses of Atomic Energy, Geneva  
1955. Vol.Sp. 3. United Nation 1956.
- [10] F.Scott: Phys.Rev. 95. 583. /1954/
- [11] E.Glasstone and N.Edlund: Elements of Nuclear Reactor  
Theory /1952/
- [12] E.Segré: Experimental Nuclear Physics II. /1953/
- [13] J.Tittmann: Phys.Rev. 80. 756. /1950/
- [14] Reactor Handbook I. /1955/
- [15] E.Marshak: Rev.Mod.Phys. 19. 185. /1947/
- [16] L.M.Barkov: J.of Nuclear Energy 4. 91-102 /1957/

Érkezett 1958 április 24.

## GYORS NEUTRON SPEKTROMÉTER

Irta: Hrehuss Gyula, Neszmélyi András és Simonyi Károly  
Atomfizikai Osztály

### Összefoglalás

Egy repülési időt mérő gyors neutron spektrométert ismertetünk, amely a 0,8-14 MeV energiatartományban alkalmazható. A gyors neutron csomagok egy 200 kV kaszkádgenerátor deutron sugarának elektronikus szaggatásával keletkeznek. A neutron detektor plasztik szcintillátor, melynek jeleit egy gyors egyidőcsatornás rendszer analizálja. A neutron impulzusok időtartama 1-3  $\mu$ sec. Az egész rendszer feloldóképessége 5  $\mu$ sec.

A kisenergiájú magfizika legtöbb területén szükséges a magreakciókat kiváltó vagy azokból keletkező neutronok energiájának mérése. Igen nagyjelentőségű ez például a hatáskeresztmetszetek energiafüggésének vizsgálata szempontjából, továbbá magok magasan gerjesztett állapotainak rugalmatlan neutronszórással való tanulmányozásánál, különösen melyeknél az elméleti modellekkel való egybevetés lehetséges.

A gyors neutron tartományban neutron spektrumok mérésére számos jól ismert próbálkozás történt, a mérés gyors kiértékelését és viszonylag jó feloldóképességet azonban csak az egyre jobban elterjedő repülési időt mérő módszerek segítségével lehet elérni.

A gyors tartomány alatti energiáknál rövid neutron impulzusok  $\langle \Delta t \rangle > 1 \mu$ sec/ nyerhetők mechanikai módszerekkel /sebességválogatók/; 0,1 MeV felett a neutron reakciót létrehozó töltött részecske nyaláb elektronikus szaggatása a célszerű. Az energiát

egy adott távolság megfutásához szükséges idő elektronikus mérésével határozhatjuk meg. Az idő-energia összefüggés négyzetes jellege ugyan hátránya a rendszernek, a repülési pálya hosszabításával azonban ez ellensúlyozható, úgy, hogy e rendszer, ha az intenzitás viszonyok megengedik még a 100-200 MeV-es tartományban is jól használható [1].

Az alábbiakban leírt neutron spektrométer a 0,8 - 14 MeV energiatartomány mérésére készült, különös tekintettel magasan gerjesztett magok reakciómechanizmusának vizsgálatára rugalmatlan szórás segítségével /direkt kölcsönhatások/. A berendezés létesítése 1956 nyarán kezdődött; konstrukciónk nagyjából követi Cranberg és Levin elrendezését [2], némely részlete azonban általános érdeklődésre tarthat számot.

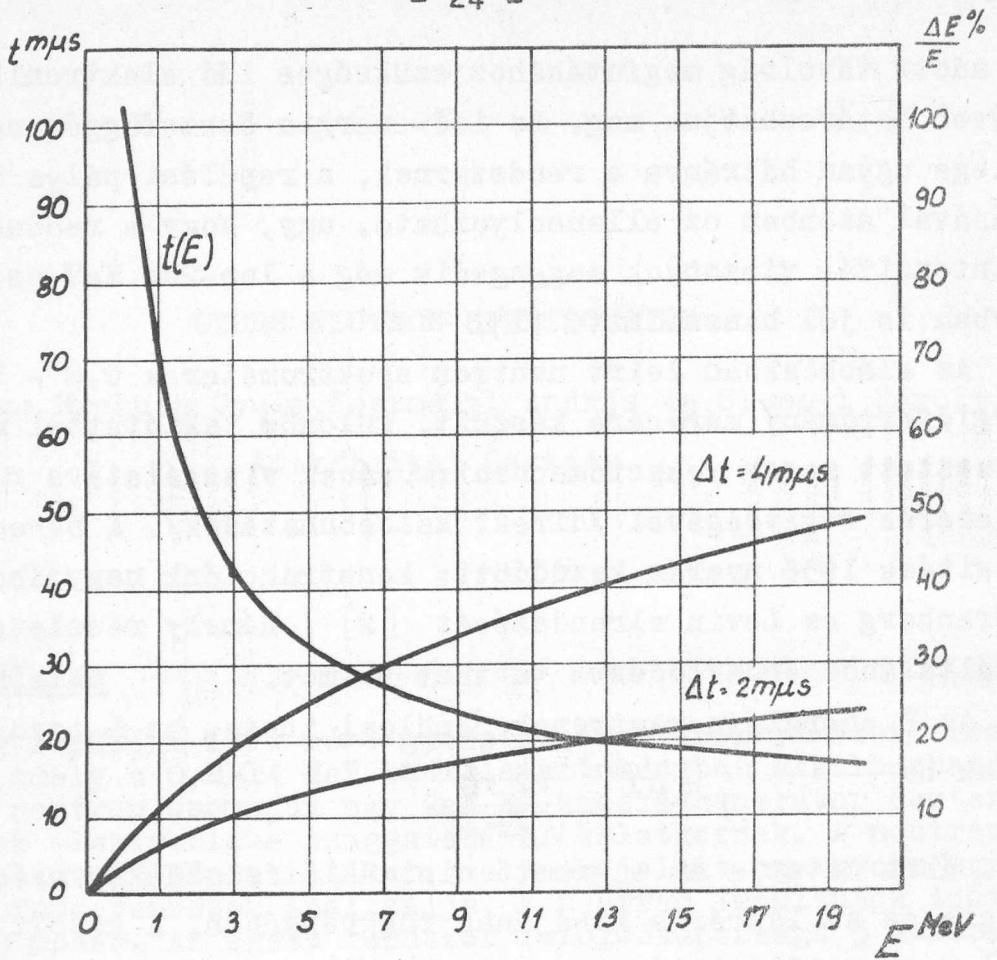
Az E energiájú neutronok repülési ideje, ha L távolságot futnak be

$$t \text{ m}\mu\text{s} = \frac{72,3 L^m}{\sqrt{E \text{ MeV}}}$$

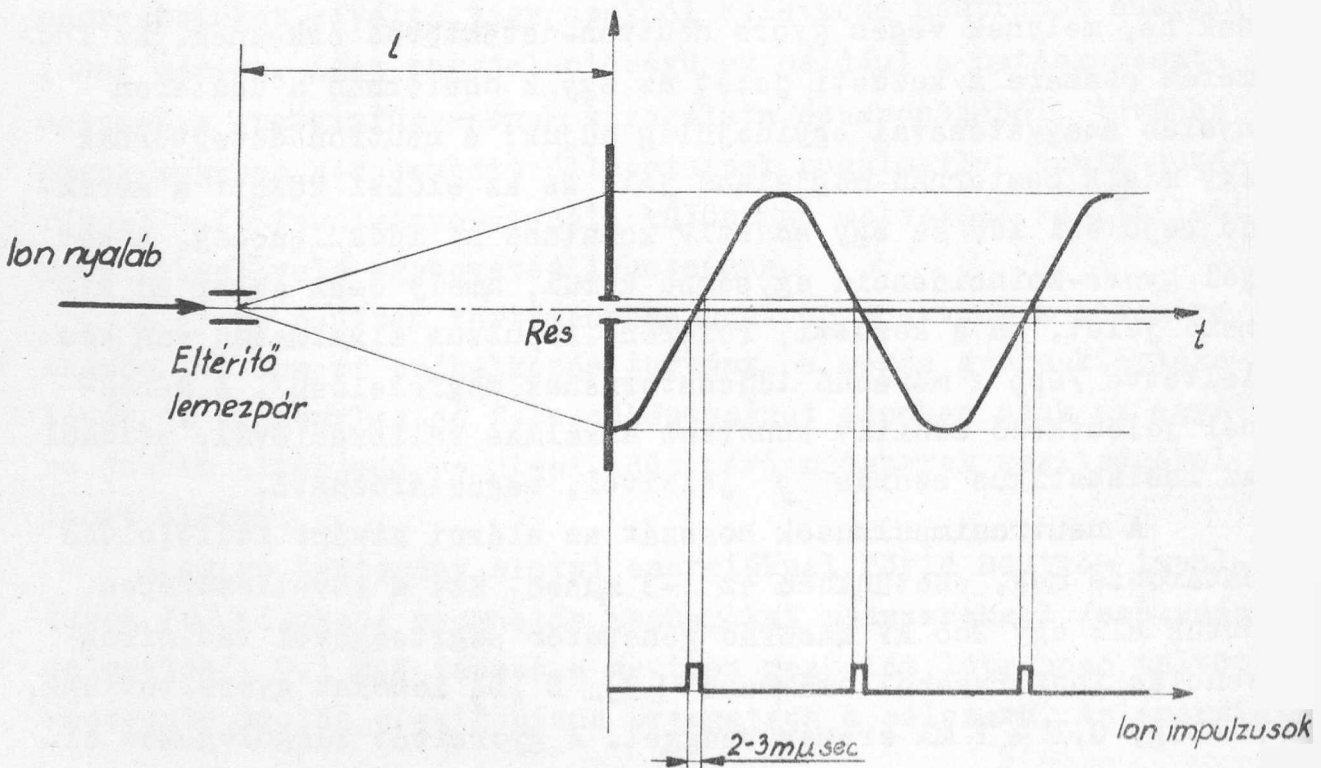
Az 1. ábra mutatja az elérhető minimális feloldóképességet az energia és az időmérés hibájának függvényében. A közölt értékek 1 m-es repülési távra vonatkoznak. A rövid impulzusokban keletkező neutronok a szórás után 1,2-1,8 m repülési utat futnak be, melynek végén gyors neutron-detektorba érkeznek. Az időmérés számára a kezdeti jelet az egyik csatornán a deuteron nyaláb szaggatásával egyidejűleg adjuk: a neutron detektornak egy másik csatornán megjelenő jele és az előbbi között a mérendő repülési idő és egy additív konstans az időkülönbség. A két jel gyors-koincidencia egységbe kerül, amely csak akkor ad ki-menő jelet, ha a kezdeti, referens impulzus alkalmasan van késleltetve /épp a mérendő időcsatornának megfelelően/. A mérésnél jelentkező additív konstans alkalmas kalibrációval, például az inelasztikus szórás  $\gamma$  jeleivel, meghatározható.

A neutronimpulzusok hosszát az elérni kívánt időfeloldás határozza meg, esetünkben ez 1-3  $\mu\text{sec}$ . Ezt a következőképen értük el: egy 200 kV kaszkád generátor segítségével rádiófrekvenciás ionforrásból származó [3]  $D^+$ ,  $D_2^+$  ionokat gyorsítottunk, mintegy 0,1 - 1 mA áramerősséggel. A gyorsítót függőlegesen elhagyó ion-nyaláb tömeg és energia analizáló mágneses térbe kerül,

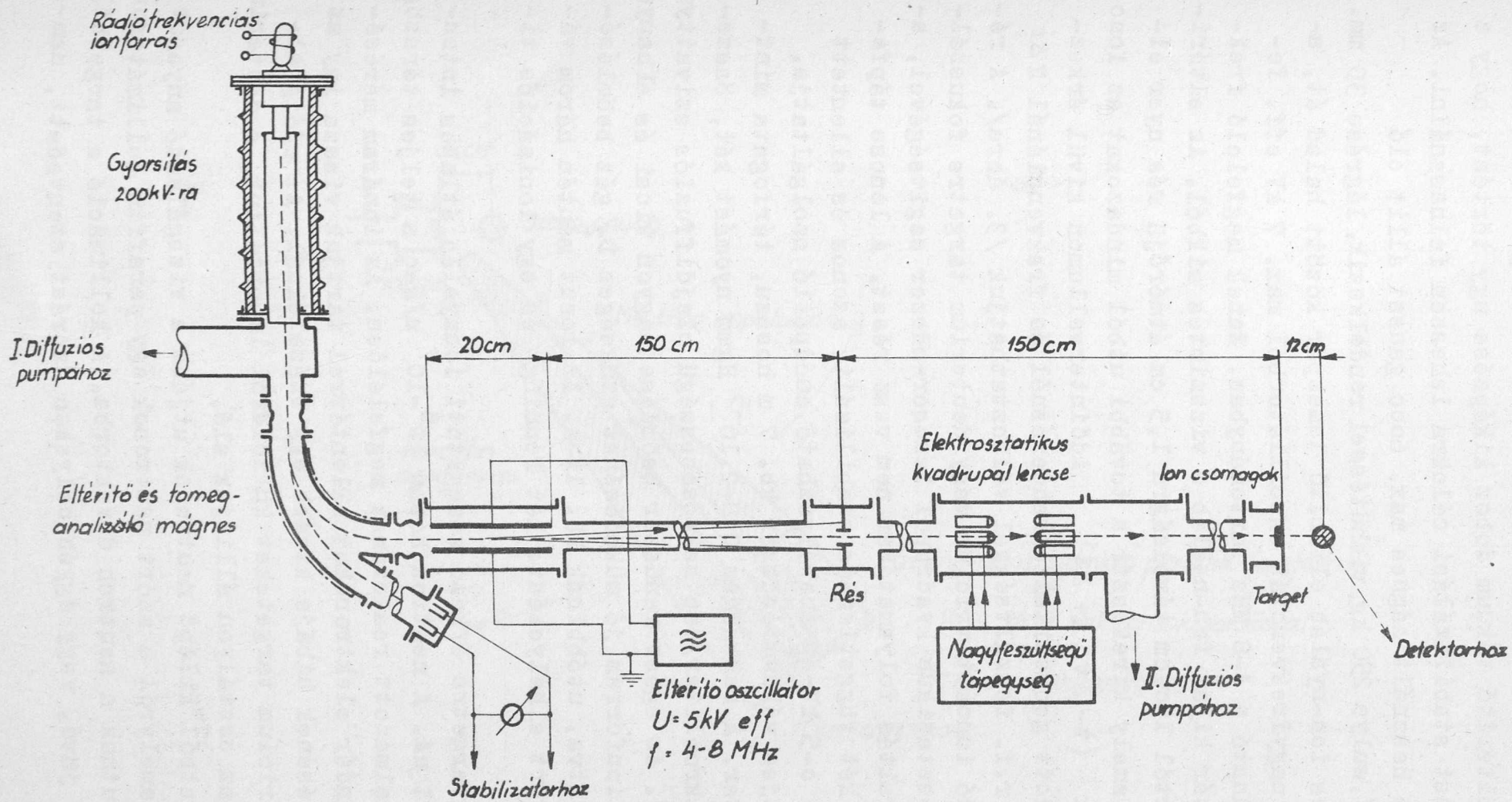




1. ábra



3. ábra.



2. ábra.

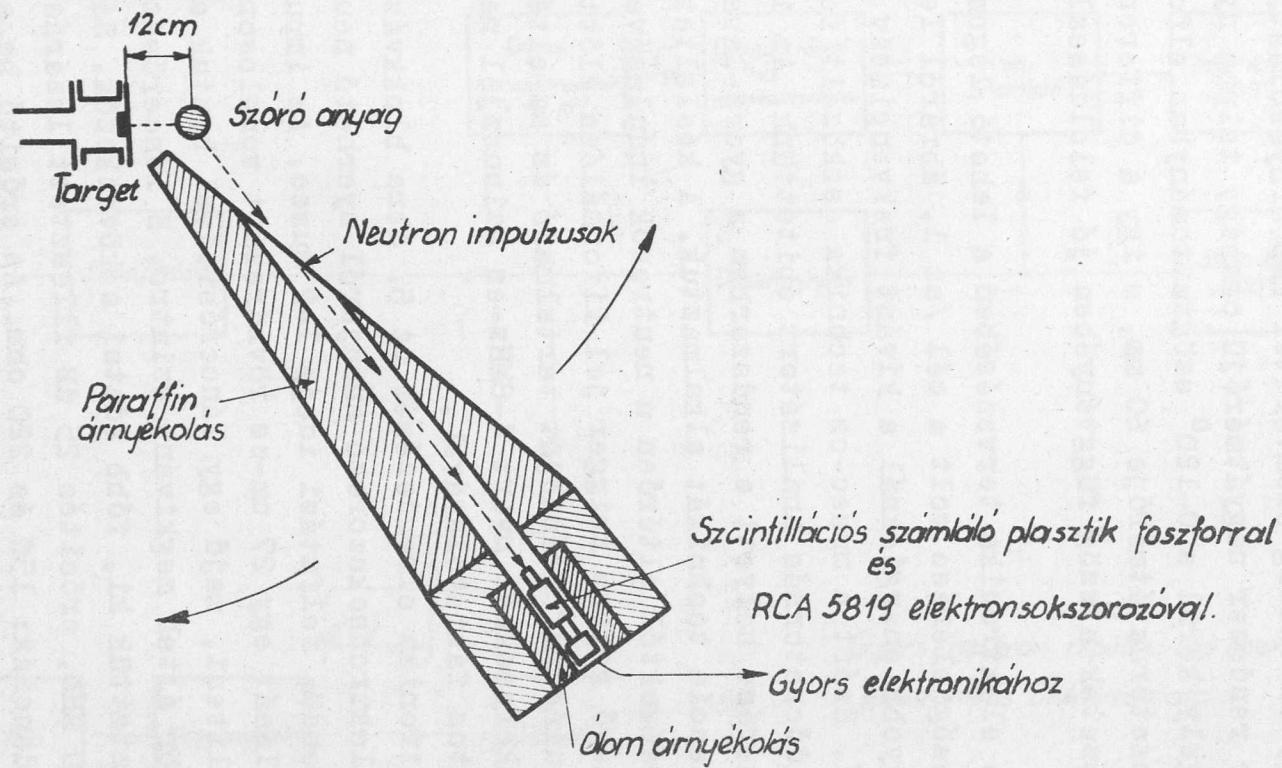
amely a  $D^+$  komponenst  $90^\circ$ -al, vízszintes irányba eltéríti /2. ábra/. Az eltérítő vákuum doboz kiképzése úgy történt, hogy a  $D_2^+$  komponenst stabilizálási célokra lehessen felhasználni. Az eltérítésre használt mágnes max. 6000 gausst állít elő /300 V, 6 A/, súlya 250 kg, vízhűtéssel rendelkezik, légrése 30 mm. A vízszintes ion-nyaláb eltérítő lemezpár között halad át, amelyre egy nagyfrekvenciás oszcillátorból max. 7 kV eff. feszültség adható a 4-8 MHz tartományban. Ennek megfelelő frekvenciával tér ki az ion-nyaláb a vízszintes síkból. Az eltérítő lemezpártól 150 cm távolságra 1,5 cm átmérőjű rés nyer elhelyezést, amely kirekeszti a további utból mindazokat az ionokat amelyek  $(t - \Delta t, t + \Delta t)$  időintervallumon kívül érkeztek. Egy adott geometriai elrendezésnél és frekvenciánál  $2\Delta t$  értékét az r.f. feszültséggel változtathatjuk /3. ábra/. A résen áthaladó ionokat trícium vagy deuterium targetre fókuszáljuk elektrosztatikus kvadrupól lencserendszer segítségével, amely a gyorsítás folyamatában nem vesz részt. A lencse tápfeszültségét két független és stabilizált, azonos és ellentett polaritású, 0-5 kV-ig szabályozható anódpótló szolgáltatja.

A teljes vákuumrendszer kb. 7 m hosszú, térfogata mintegy 100 liter. A szükséges  $0,8-2 \cdot 10^{-5}$  Hgmm nyomást két, összesen 1750 mikronliter/sec szívósebességű olajdiffúziós szivattyú állítja elő. Az egész rendszer beömlése nagyon kicsi és elhanyagolható az ionforrás jó működéséhez szükséges  $D_2$  gáz beömléséhez viszonyítva, utóbbinak kb. 1%-a. Az ionut mentén három vákuummérő nyert elhelyezést: két Penning- és egy ionizációs típusú.

A végtargetre érkező szaggatott ionnyaláb átlagos intenzitása kb.  $1 \mu A$ . A neutron hozam  $10^6-10^7$  n/sec a teljes térszögben, az alkalmazott reakciónak megfelelően. Az ionáram mérésénél a szekundér elektronokat ellentérrel tartjuk vissza így az ionáram mérésének hibája kisebb egy százaléknál. Az eddig alkalmazott trícium targeteket külföldről importáltuk, a deuterium targeteket az osztályon állítjuk elő.

A targetből kilépő neutronok útjába a vizsgálandó anyagot helyezzük, amelyről a szórt neutronok egy paraffin kollimátoron keresztül jutnak a neutron detektorba. A kollimáció a targetből közvetlenül jövő, vagy egyéb helyeken szórást szenvedett, nem-





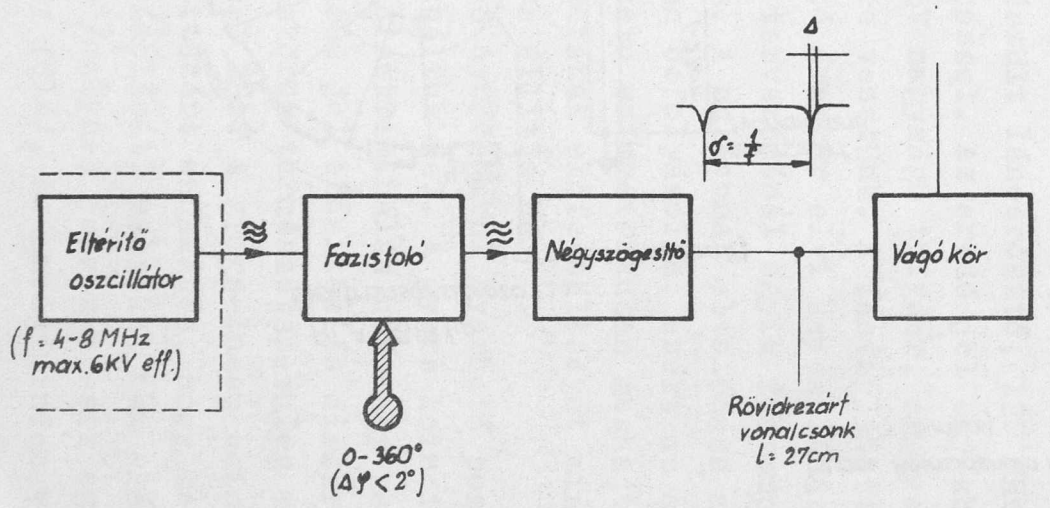
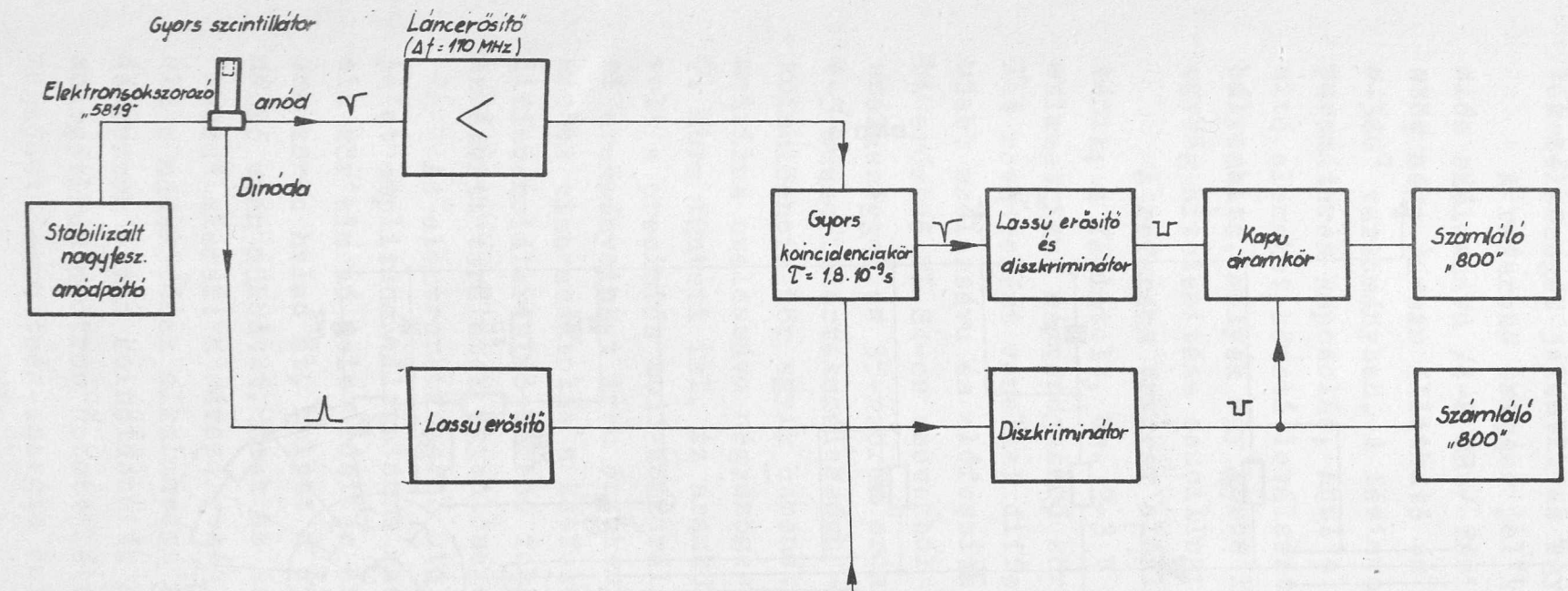
4. ábra

kivánatos neutronok távoltartására szolgál /4. ábra/. A neutron detektor plasztik szcintillátor /Nash és Thompson gyártmányu; utánvilágítási ideje 2,5  $\mu$ sec, méretei: átmérő 1,5" hossza 2"/. Az alkalmazott elektronsokszorozó RCA 5819 típusu, amely a foszforral együtt 5 cm vastag ólomvértel kap árnyékolást. A detektor-kollimátor rendszer nagyátmérőjű csapágy talpon nyugszik és a szórótengely körül a 0-120° szögtartományban elforgatható. A kollimátor csatorna átmérője 60 mm, s így a differenciális hatáskeresztmetszetek a szög függvényében jó feloldással lesznek mérhetőek.

A gyors elektronika tervezésében a lehető legnagyobb működési sebesség elérése volt a cél /az 1. ábráról leolvasható, hogy a nagyobb energiáknál a kívánt frekvenciasáv a 2-300 MHz-ig terjed/. Ezért a  $\mu$ sec-os technika eszközeit felhasználva gyors egy-időcsatornás analizátort építettünk. Az időtartam közvetlen megmérése helyett e rendszerben a gyors-lassu késleltetett koincidencia technikát alkalmaztuk. A késleltetést az irodalmi megoldásoktól eltérően a neutronok indulásával merev kapcsolatban levő referens trigger jel kiformalása előtt végeztük el: az indulás információját tartalmazó és az eltérítő nagyfrekvenciás tekercsekből nyert 4-8MHz-es szinuszjel nagyfrekvenciás és pontos fázistolásával.

Az elektronika elrendezését az 5. ábra blokkvázlata tünteti fel. Az elektronsokszorozó anódjáról nyerhető neutronjel 0,1 V nagyságrendű, felfutási ideje 1-2  $\mu$ sec. Az impulzus hosszának egalizálását egy 27 cm-es rövidrezárt vonalcsonkkal próbáltuk megközelíteni, majd egy láncerősítővel hoztuk a jelet a koincidencia kör által megkívánt szintre. E láncerősítőt külön e célra fejlesztettük ki, főbb adatai a következők. Sávszélesség: 50 kHz-170 MHz, erősítés 25 dB illesztett lezárásnál, ki és bemenő impedanciák: 150 és 220 ohm. Az erősítő hazai gyártmányu 11 db EF 80 típusu elektroncsövet használ fel.

A koincidencia körünk kristály dióda-híd típusu, felépítése követi Minton megoldását [4]. Elvi kapcsolási rajzát a 6. ábra tünteti fel. E kapcsolatban a kör felbontóképességére 1,8  $\mu$ sec értéket mértünk. További mérések megmutatták, hogy láncerősítő használata, a felfutási idő korlátozása miatt,

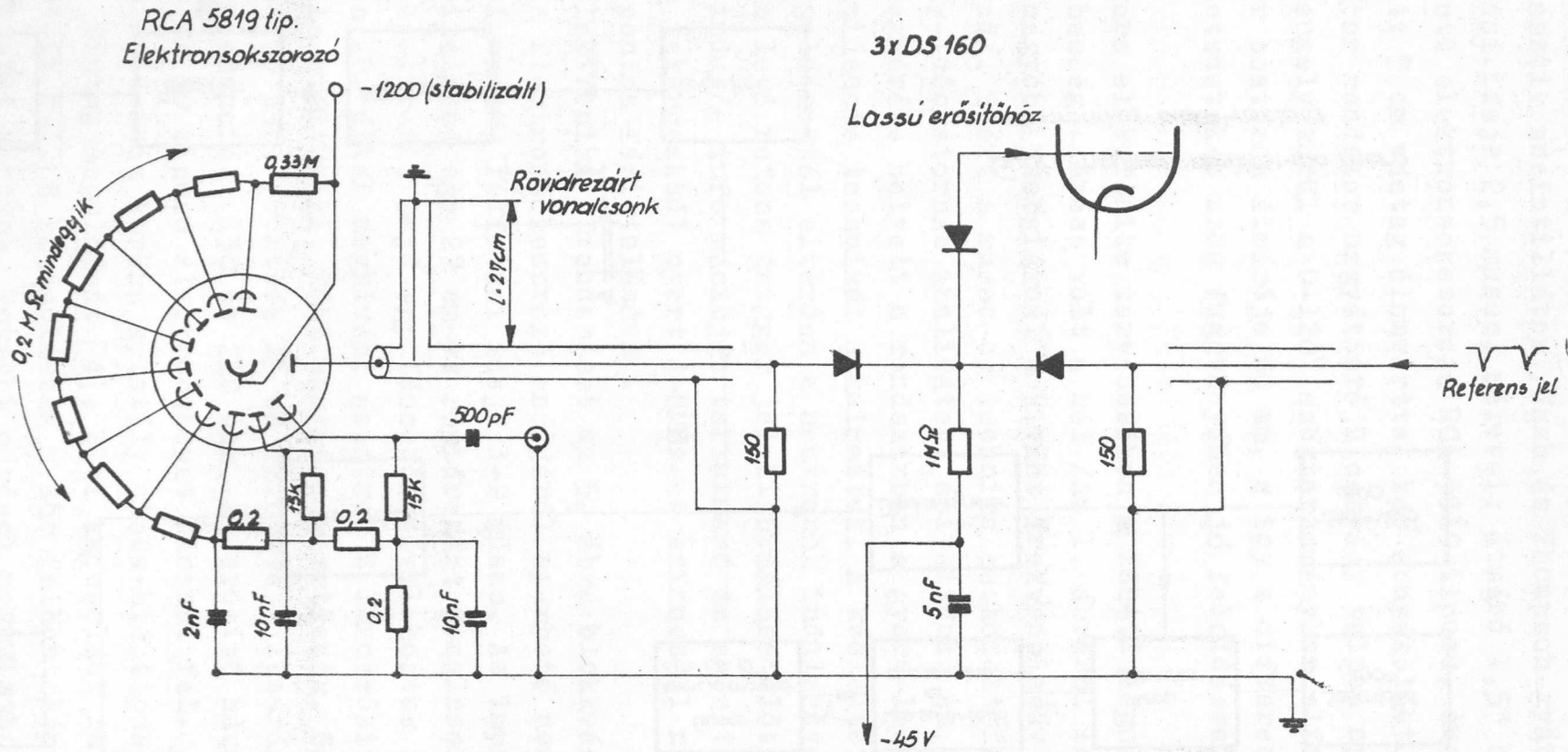


Gyors-neutron repülési-idő mérő elektronikus blokk-vázlata

5. ábra



Gyors koincidencia kör  
 ( $\tau = 1,8 \text{ m}\mu\text{s}$ )



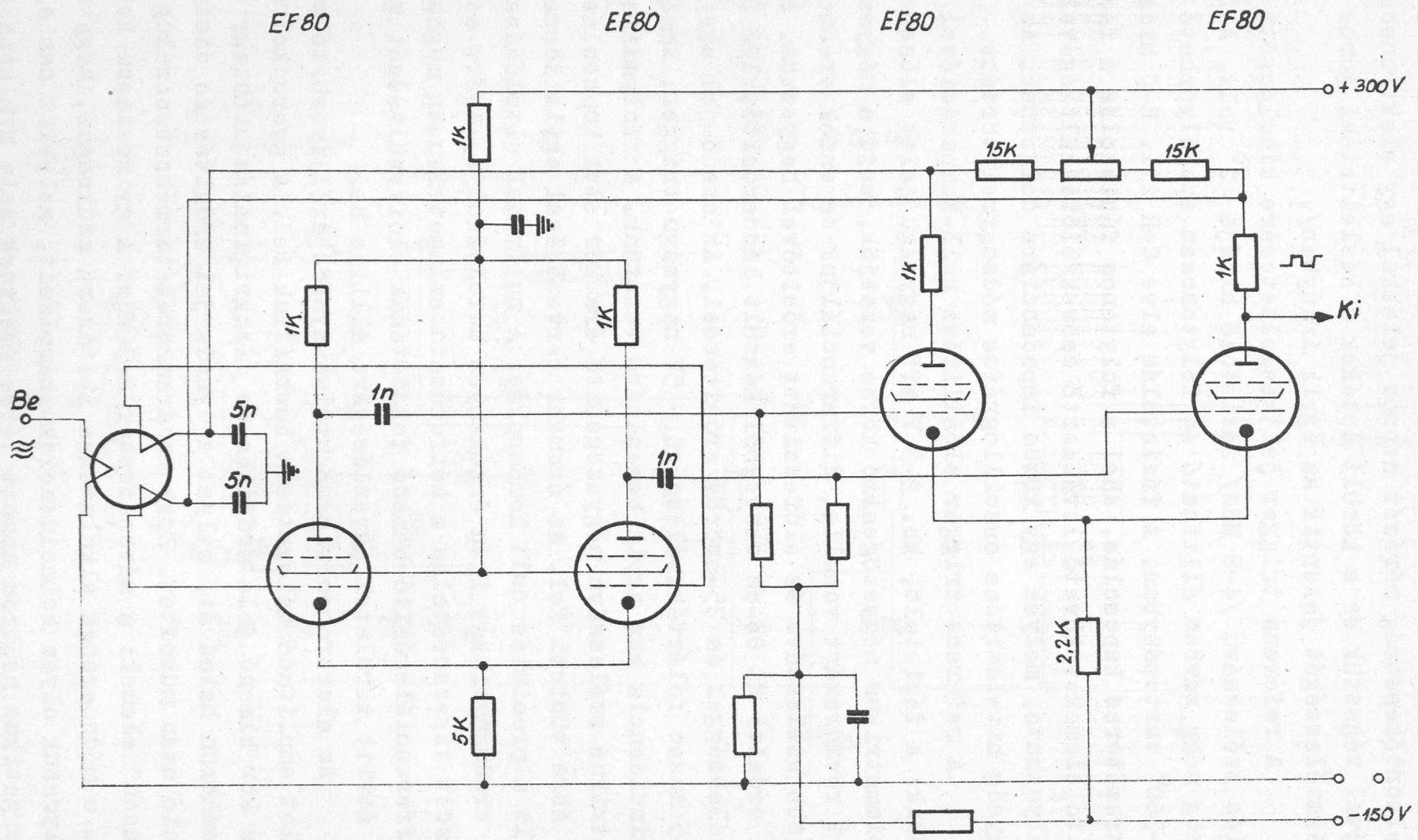
6. ábra

lényegesen nem befolyásolta a rendszer felbontóképességét. /A felbontóképesség mérését azonos jelekkel egy elektronsokszorozóval végeztük és a közölt értékek a késleltetési görbe félértékszélességét jelentik az egyik irányban/.

A referens trigger jel késleltetésére kidolgozott precíziós szélessávu /4-8 MHz/ fázistoló hibája  $< 2^\circ$  volt. A fáziszög négy sávban állítható és folytonosan szabályozható a  $0-360^\circ$  tartományban. A fázistolás elve C-R ill. R-C hidas fixparaméteres kapcsolás, ahol a folytonos fázistolás a fázishasító elemeket követő leválasztó csövek előfeszültségével szabályozható, melyek egy közös impedanciára dolgoznak. Az egész egység hitelesítése oszcillográfos módszerrel történt.

A referens trigger előállítása null-komparációval történik; a fázistolót, kb. 2-3 V eff nagyságu jelet először egy szimmetrikus négyszögesítő körbe vezetjük, majd a négyszögjelet rövidrezárt vonallal differenciáljuk és ennek eredményét újabb szélessávu és előfeszített erősítővel hegyezzük. Az utóbbi erősítő EL 84-es csövekből készült láncerősítő, 120 MHz sáv szélességgel és 35-szörös erősítéssel. Az eredő jel egy kb. 4-5  $\mu$ sec félértékszélességű - 5V nagyságu trigger, amelyet a koincidencia kör egyik bemenetére vezetünk. A fentemlitett szimmetrikus szélessávu négyszögesítő áramkör elvi kapcsolását a 7. ábra tünteti fel. Az áramkör tervezésénél egyik főszempontunk volt a precíziós null komparálás. A nullvonal eltolódása mérési eredményeinket igen érzékenyen befolyásolja, ezért az alkalmazott visszacsatolás a kétfokozatu szimmetrikusan meghajtott differenciálerősítő bemenő fokozatának előfeszültségét mindig az átvitt területek egyenlőségére állítja be.

Az elektronsokszorzó utolsó dynódájáról nyerhető pozitív jelet amplitudó válogatásra használtuk fel. A gyors koincidencia kör kimenő jele erősítés és diszkriminálás után egy kapu áramkörön halad át, melyet a dynóda jel erősítés és diszkrimináció után működtet. Ezek az áramkörök természetesen mind "lassu" elemek: a sáv szélesség 2-3 MHz. A gyors-lassu koincidencia e módszerének alkalmazása itt azért szükséges, hogy megakadályozzuk olyan koincidenciák számolását, melyeket nem elég energetikus neutron hozott létre /melynek jele nem esik egy megadott feszültség-energia szint fölé/, és amely minden való-



7. abra



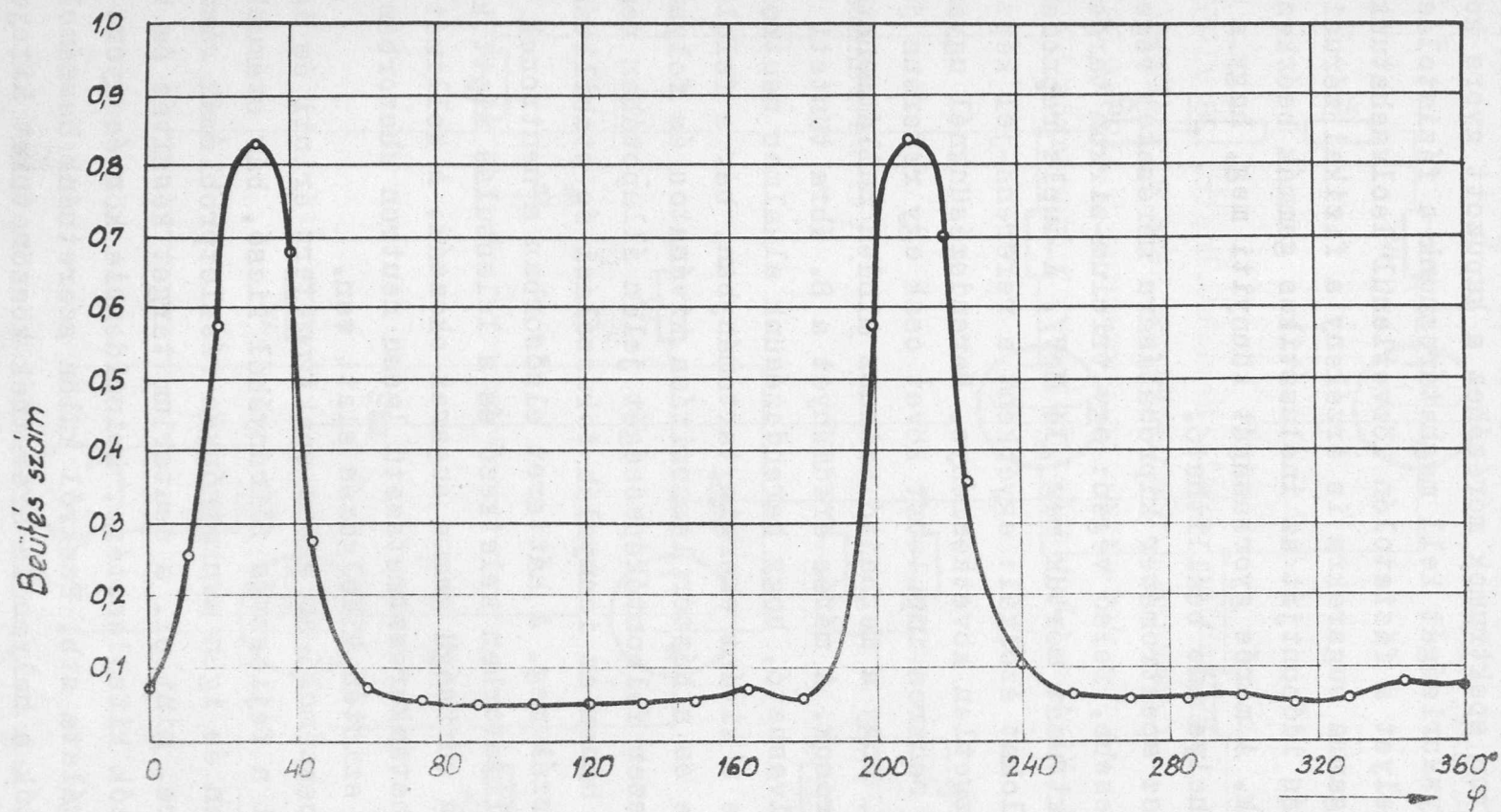
szinuség szerint egy korábbi impulzusból vagy egyéb nem kívánatos folyamatból származik. A lassu rendszer egyuttal monitorként működik.

A neutron spektrumok méréséhez a kapuzott gyors koinciden-  
cia jelek gyakoriságát kell meghatároznunk a fázistolás függ-  
vényében, melyet a fázistolón közvetlenül leolvashatunk. Mivel  
a detektor gamma sugarakra is érzékeny a fizikai zérusidőt,  
azaz a szórás időpontját az inelasztikus gammák beérkezésével  
rögzíthetjük. A mérés gyorsaságát könnyíti meg, hogy a fázis-  
toló zérus helye ide beállítható.

Az egész spektrométer kipróbálására méréseket végeztünk a  
sáv legkényesebb, felső végén: egy trícium-zirkon target direkt  
neutron spektrumát mértük meg /14 MeV/. A dupla reprezentáció  
kontroll célokat szolgál: egyébként a referens-jel képzés rend-  
szerének közvetlen következménye. Berendezésünkönél ugyanis min-  
den második neutron impulzust követ csak egy referens jel, annak  
megfelelően, hogy a meghajtó szinusz minden nullátmeneténél kép-  
ződnek neutronok. A mérés eredményét a 8. ábra tünteti fel,  
melyről leolvasható, hogy berendezésünk alkalmas neutron spektru-  
mok mérésére a kívánt energia tartományban, bár a feloldóképes-  
ség növelése és a háttér leszorítása kívánatos és folyamatban  
van. A rendszer felbontóképességét jelen állapotában nem az  
elektronika hanem az ionnyaláb fókuszálási és stabilitás viszo-  
nyai határozzák meg. A háttérrel elsősorban a neutronok befogá-  
sából a kollimátorban keletkező és a lelassulás miatt konstans  
valószínűségű sűrűségű gamma sugarak okozzák. A kollimátor anya-  
gának nagy hatáskeresztmetszetű lassu neutron abszorbenssel va-  
ló telítése szintén kidolgozás alatt van.

Jelen beszámoló az egész spektrométert érinti és így nem  
térhetett ki a fejlesztés főirányából kieső, bár számunkra nél-  
külözhetetlen és igen munkaigényes részletproblémák részletes  
ismertetésére, mint pl. a deuterium target készítés és bemérés,  
a láncerosztók kifejlesztése, koincidenca kör és gyors hullám-  
alakok vizsgálata stb. Ezekről külön szeretnénk beszámolni.

A szerzők e helyen is szeretnék köszönetüket kifejezni  
mindazoknak akik munkájukban segítségükre voltak, különösképen  
Mérey Imrének a mechanikus konstrukcióban, Uzsoky Miklósnak  
a rendszertechnikában és gyors áramkörökben, Dr. Sárkány Tamásnak



8. ábra.

a fázistoló kifejlesztésében nyújtott értékes segítségükért, továbbá Messik György mérnöknek a nagyfrekvenciás oszcillátor tervezéséért, Debreceni Etelének és az osztály gyengeáramu csoportjának a bemérésben ill. a lassu körök kivitelezésében nyújtott munkájukért.

I r o d a l o m

- [1] J.P.Scanlon et al., Rev.Sci.Instr. 28 /1957/ 749.
- [2] L.Cranberg, J.S.Levin. Phys.Rev. 103 /1956/ 343.
- [3] J.Erő, Acta Physica Hungarica 5 /1955/ 391.
- [4] Minton, J. Res. Nat. Bureau of Standards 57 /1956 Sept/ 119.

Érkezett 1958. május 12.

Rövidített alakban elhangzott az 1957. évi Mátraháza-i magfizikai kollokviumon.



# MAGAKTIV RÉSZECSKÉKET TARTALMAZÓ KITERJEDT LÉGIZÁPOROK VIZSGÁLATA

Irta: Bozóki György, Fenyves Ervin, Sándor Tamás, Somogyi Antal

Kozmikus Sugárzási Osztály

## Összefoglalás:

A szerzők meghatározták a magaktív részecskéket tartalmazó kiterjedt légizáporok elektronkomponense sűrűség-spektrumának kitevőjét /  $\gamma = 1,34 \pm 0,08$  /, azzal a feltevéssel, hogy a magaktív részecskék sűrűsége arányos a légizáporok elektronjainak sűrűségével. A jelen kísérletnél kapott kitevő megegyezése egy korábban meghatározott  $\gamma = 1,43 \pm 0,02$  értékkel alátámasztja ezt a feltevést; ez utóbbi mérésnél a készülék csak az elektron-detektorokat tartalmazta. Fentiekből következik, hogy a magaktív részecskék sűrűség-spektruma hatványtörvényt követ, melynek kitevője  $\sim \gamma$ . A továbbiakban az elektron és a magaktív részecske detektorok közötti dekoherencia görbét mérték és a kísérleti eredményeket röviden diszkutálták.

## 1. Bevezetés

A kiterjedt légizáporok magaktív komponensére vonatkozó mérések során vizsgálatokat végeztünk a magaktív részecskét tartalmazó kiterjedt légizáporok sűrűség-spektrumára.

Jánossy egy korábbi dolgozatában [1] kifejtette, hogy egy  $n$  darab  $S$  felületű számlálóból álló kiterjedt záporberendezéshez /  $n + 1$  /-szeres koincidenzába kapcsolt viszonylag kis felületű  $s$  számláló  $1$ -el csökkenti az "effektív" sűrűségi spektrum kitevőjét. Ez azt jelenti, hogy ha

$$s \ll S$$

akkor az /  $n + 1$  /-szeres koincidenzák száma mint az  $S$  felületű számlálók függvénye

$$c(S_1, S_2, \dots, S_n, \beta) = \text{konst. } S^{\gamma-1} \quad /1/$$

alaku lesz<sup>x</sup>, ahol  $\gamma$  az

$$N(x) = Hx^{-\gamma} \quad /2/$$

eredeti integrálspektrum kitevője.

Ez az elv - mint azt Jánossy javasolta - kiterjeszhető egy olyan kiterjedt záporkészülék esetére, mely n darab árnyékolatlan számlálócső sorozatból és egy magaktiv részecske detektorból áll, melynek D effektív felülete nem sokkal nagyobb mint S.<sup>xx</sup> Ez utóbbi feltétel gyakorlatilag az eddig használt összes berendezéseknél teljesítve van.

Ha feltételezzük, hogy a magaktiv részecskék sűrűsége az elektronok sűrűségével egy  $10^{-2}$  nagyságrendű konstans tényezővel arányos, olyan energiatartományu és záportengelytől mért távolságu záporok esetében, melyeket az általánosan használt kísérleti berendezések választanak ki, akkor azt várhatjuk, hogy a magaktiv részecske detektornak ugyanolyan hatása van, mint egy árnyékolatlan kis számlálócsőnek.

Másrészt ez az effektus felhasználható az eredeti feltevésnek, nevezetesen az elektronok és magaktiv részecskék sűrűségeloszlása arányosságának ellenőrzésére [1]. Ezt az elvet követve megmértük a magaktiv részecskéket tartalmazó kiterjedt légizáporok /kiterjedt áthatoló záporok/ gyakoriságát egy koincidenzába kapcsolt kiterjedt zápor - [3] és áthatoló zápor-készülék [4] segítségével.

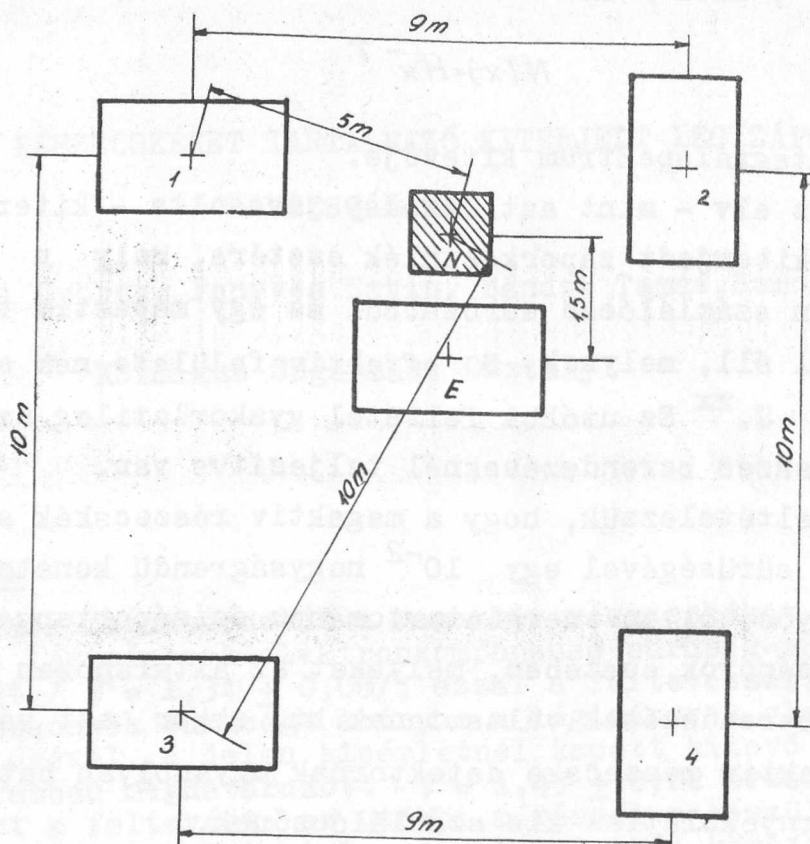
## 2. Kísérleti berendezés

A teljes berendezés négy árnyékolatlan számlálócső sorozatból /1, 2, 3, 4,/ álló elektrondetektorból és egy magaktiv részecske detektorból /N/ állt /1. ábra/. Minden számlálócső sorozatban 10 darab egyenként  $320 \text{ cm}^2$  érzékeny felületű számlálócső volt elhelyezve. Ennek megfelelően az árnyékolatlan cső-

<sup>x</sup> A részletes számításra vonatkozóan lásd [1] -et.

<sup>xx</sup> A magaktiv részecskedetektornak a sűrűség spektrumra gyakorolt hatásáról lásd még [2] -t.

sorozatok S felülete  $320 \text{ cm}^2$ -től  $3200 \text{ cm}^2$ -ig volt változtatható.



1. ábra.

A kiterjedt záporberendezés az N magaktív részecske-detektorral.

A magaktív részecske-detektor /N/ egy szokásos áthatoló záporkészülék volt /2. ábra/ ólomtömbbe ágyazva. Az A és B számlálósövek között lévő ólomrétegek összmennyisége  $170 \text{ g/cm}^2$  volt, az A számlálósövek feletti ólomréteg pedig  $110$  és  $230 \text{ g/cm}^2$  között változott.<sup>x</sup>

Diszkriminátorok segítségével olyan eseményeket választottunk ki, amelyeknél A, B, C, és D számlálósősorozatok mindegyikében legalább 2 illetve 3 számláló szólalt meg

<sup>x</sup> A fedőabszorbensnek ez a kis változása a kiterjedt áthatoló záporok gyakoriságára elhanyagolható mértékben hatott és az összes /lokális és kiterjedt/ áthatoló záporok intenzitását is csak oly kevésbé befolyásolta, hogy ez a kis intenzitásváltozás mindkét esetben a statisztikus hibán belül volt.



egyidejűleg. Ezeket a koincidenenciákat  $N_2$ -vel illetve  $N_3$ -al je-  
löltük.  $N_2$ -t és  $N_3$ -at az árnyékolatlan számlálócsősorozatokkal  
koincidenenciába kapcsolva a következő kombinációkat mértük:

$/N_2, 1/$ ,  $/N_3, 1/$ ,  $/N_2, 1, 2/$ ,  $/N_3, 1, 2/$   $/N_2, 1, 2, 3, 4/$  és  $/N_3, 1, 2, 3, 4/$ .

Egy további, az 1-4 csősorozatokhoz teljesen hasonló ár-  
nyékolatlan számlálócsősorozatot /E/ helyeztünk még el 1,5  
méterre az N detektortól és az  $/N, E/$  koincidenenciákat mértük.

A méréseket Csillebércen /Budapest/ 410 méter tengerszint  
feletti magasságban végeztük.

### 3. A mérési eredmények

#### 3.1. A magaktív részecskéket tartalmazó kiterjedt légizáporok sűrűsége spektruma

Gyakorlatilag az összes  $N_2$  és  $N_3$  koincidenenciákat az ólom-  
abszorbensben bekövetkező magrobbanások okozzák, melyeket a  
beérkező magaktív részecskék keltenek és így az  $N_2$  /vagy  $N_3/$   
és az árnyékolatlan számlálócsősorozatok közötti koincidenenciák  
magaktív részecskéket tartalmazó kiterjedt légizáporoknak fe-  
lelnek meg.

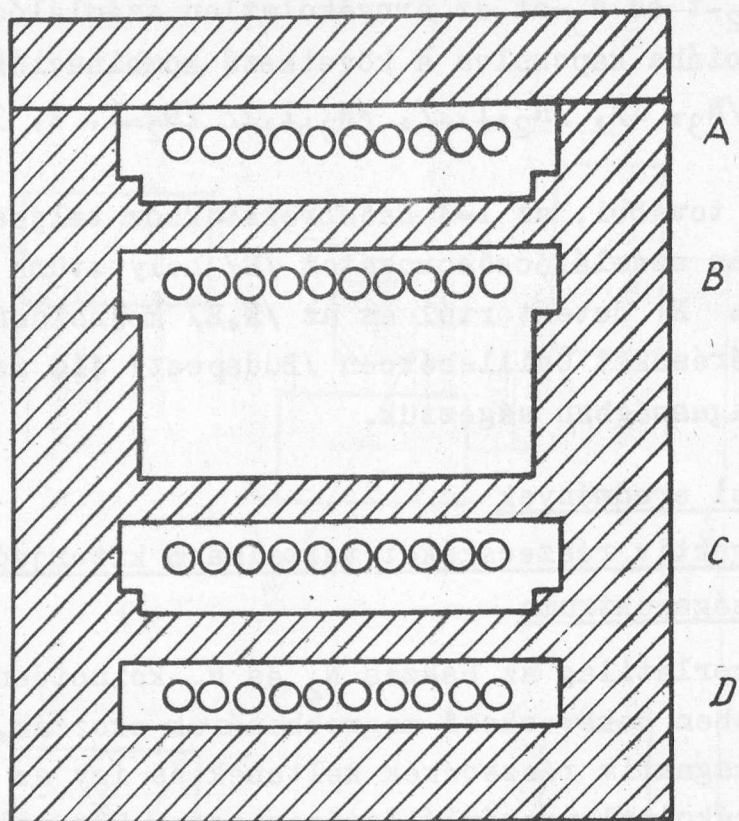
Ez az állítás azon alapszik, hogy a  $\mu$ -mezon komponens  
által, pl. a  $\mu$ -mezonok és ólomban keltett knock-on záporaik  
által az A, B, C és D számlálócsősorozatokban 2 vagy több  
számláló megszólaltatásának valószínűsége elhanyagolhatóan ki-  
csi. Ezt a valószínűséget mindegyik csősorozatra vonatkozóan  
kísérletileg meghatároztuk és átlagos értéknek  $\sim 3\%$  adódott.<sup>x</sup>  
Ebből az értékből a  $\mu$ -mezon komponens által okozott  $N_2$  konci-  
denciák várható maximális gyakorisága  $\sim 0,01$  c/h /és  $N_3$ -ra  
még sokkal kevesebb/. Ez az érték  $N_2$  ténylegesen észlelt szá-  
mának kb. 0,2 %-a /és  $N_3$  esetében még sokkal kevesebb/.

A fentiek alapján tehát azt állíthatjuk, hogy gyakorlati-  
lag az észlelt összes eseményeket magaktív részecskéket tartal-  
mazó kiterjedt légizáporok okozzák.

Amint azt a jelen dolgozat bevezetésében már kifejtettük  
egy N detektor, melynek nincs túl nagy effektív felülete,

---

<sup>x</sup> E mérések részletes leírását másutt közöljük.



2. ábra

### A magaktív részecske detektor

ugyanolyan telítési effektust okozhat, mint egy járulékos kis számlálócső. Az N detektor effektív felületének nagyságát nem tudjuk pontosan meghatározni, a nagyságrendjét azonban könnyen megbecsülhetjük a következőképpen:

Az A, B, C és D számlálócsősorozatok felülete  $1600 \text{ cm}^2$ , az effektív abszorbens, melyben a magrobbanások létrejönnek, ugyanolyan nagyságrendű és a detektornak a fedőabszorbensen áthatoló magaktív részecskékre vonatkozó megszólalási valószínűsége  $10^{-1}$  nagyságrendű. Figyelembevéve, hogy a nagyenergiájú magaktív részecskék sűrűsége kb.  $10^{-2}$ -szorosa az elektronok sűrűségének - vagy még kisebb [5]- és hogy az elek-

tron-detektor felülete hasonló nagyságrendű, mint az N detektor felülete, úgy az N detektor által okozott effektusnak közel egyenlőnek kell lenni egy három nagyságrenddel kisebb felületű számlálócső által okozott effektussal.

Igy azt várhatjuk, ha eredeti feltevéseink helyesek, hogy /1/ egyenlet valóban fennáll és az észlelt kiterjedt áthatoló záporok száma  $S^{\gamma-1}$  szerint változik.

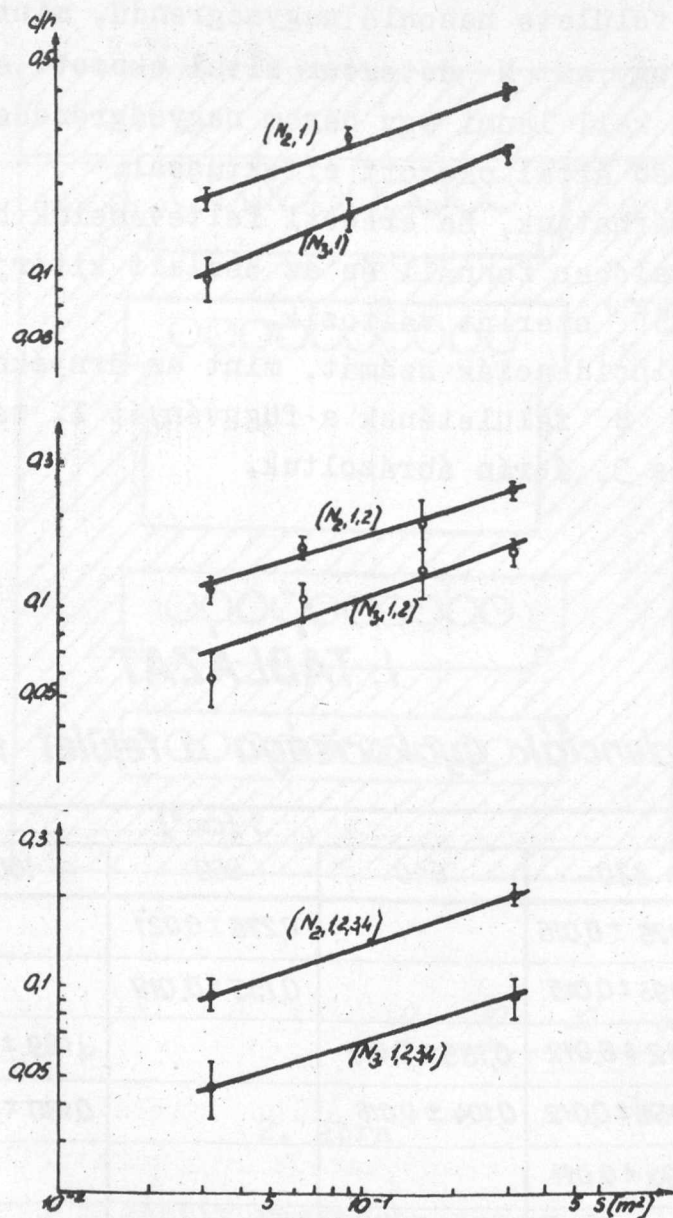
A mért koincidenciák számát, mint az árnyékolatlan számlálócsősorozatok S felületének a függvényét I. táblázatban tüntettük fel és a 3. ábrán ábráztuk.

## I. TÁBLÁZAT.

*A koincidenciák gyakorisága a felület függvényében.*

A koincidenciák típusa	S (cm <sup>2</sup> )				
	320	640	960	1600	3200
(N <sub>2</sub> , 1)	0,176 ± 0,016		0,276 ± 0,021		0,379 ± 0,016
(N <sub>3</sub> , 1)	0,095 ± 0,015		0,155 ± 0,019		0,240 ± 0,018
(N <sub>2</sub> , 1, 2)	0,112 ± 0,012	0,155 ± 0,013		0,189 ± 0,035	0,241 ± 0,013
(N <sub>3</sub> , 1, 2)	0,058 ± 0,012	0,104 ± 0,015		0,130 ± 0,025	0,150 ± 0,015
(N <sub>2</sub> , 1, 2, 3, 4)	0,093 ± 0,011				0,200 ± 0,017
(N <sub>3</sub> , 1, 2, 3, 4)	0,046 ± 0,010				0,091 ± 0,014





3. ábra

A koincidencia-gyakoriság az árnyékolatlan számlálócsőcsoportok felületének függvényében

Az ábrából világosan látható, hogy azon görbék - melyek legalább három mérési pontot tartalmaznak - hatványtörvénnyel írhatók le és a különböző görbék meredeksége közel ugyanaz. A hatványfüggvények kitevőit a legkisebb négyzetek módszerével határoztuk meg és értékeiket a II. táblázatban tüntettük fel.

## II. TÁBLÁZAT

<i>A</i> koincidenziák típusa	<i>A</i> c/h vs <i>S</i> görbe exponense
$(N_2, 1)$	$0,32 \pm 0,09$
$(N_3, 1)$	$0,39 \pm 0,16$
$(N_2, 1,2)$	$0,31 \pm 0,10$
$(N_3, 1,2)$	$0,33 \pm 0,19$
$(N_2, 1,2,3,4)$	$0,34 \pm 0,15$
$(N_3, 1,2,3,4)$	$0,30 \pm 0,27$

A különböző görbék által reprezentált hatványfüggvények kitevői a statisztikus hibahatárokon belül azonosak. A különböző görbék ugyanazon fizikai jelenségnek felelnek meg és ezért a  $\gamma$  kitevő legjobb értékét a különböző kitevők súlyozott átlaga szolgáltatja. Mivel az árnyékolatlan számlálócsősorozatok és  $N_2$  ill.  $N_3$  közötti különböző kombinációju koincidenziákat szimultán mértük, azaz a mérések egy részében az összes  $N_2$ -nek megfelelő, a mérések másik részében az összes  $N_3$ -nak megfelelő koincidenziákat regisztráltuk, ezért csak  $/N_{2,1}/$  és  $/N_{3,1}/$  az a független koincidenziaszám, mely a legtöbb információt szolgáltatja. Ezen görbék kitevőinek középértéke:

$$\gamma - 1 = 0,34 \pm 0,08$$

és így a magaktiv részecskéket tartalmazó kiterjedt légizáporok elektronkomponense sűrűség spektrumának kitevője

$$\gamma = 1,34 \pm 0,08$$

A szerzők közül ketten [3], [6] ugyanezzel a berendezéssel az árnyékolatlan csősorozatok *S* felületét változtatva már régebben meghatározták a  $\gamma$  értékét:

$$\bar{r} = 1,43 \pm 0,02$$

Ez az érték jó egyezésben van a magaktiv részecskéket tartalmazó kiterjedt légizáporokra vonatkozó  $\bar{r}$  értékkel.

### 3.2 A koincidenciaszám változása az elektron- és a magaktiv részecske-detektorok közötti távolsággal.

A fentemlitett koincidenciákon kívül még az N detektor és az N detektortól 1,5, 5 és 10 méterre lévő elektron detektorok közötti  $/N_2, E/$ ,  $/N_2, 1/$ ,  $/N_2, 3/$  illetve  $/N_3, E/$ ,  $N_3, 1/$ ,  $/N_3, 3/$  koincidenciákat is regisztráltuk.

A mért adatokat a III. Táblázatban adtuk meg és a dekoherencia görbéket a 4. ábrán tüntettük fel. A kísérleti adatok nem kielégítő statisztikája következtében a görbékől nem vonhatunk le exakt következtetéseket, csupán a kapott adatok közeli értékelését tárgyalhatjuk meg.

## III. TÁBLÁZAT.

### *A koincidenciák gyakorisága a felület függvényében.*

Az N detektor koincidenciáinak típusa	d(m)		
	1,5	5	10
$N_2$	$0,459 \pm 0,022$	$0,379 \pm 0,016$	$0,401 \pm 0,023$
$N_3$	$0,269 \pm 0,018$	$0,240 \pm 0,018$	$0,204 \pm 0,025$

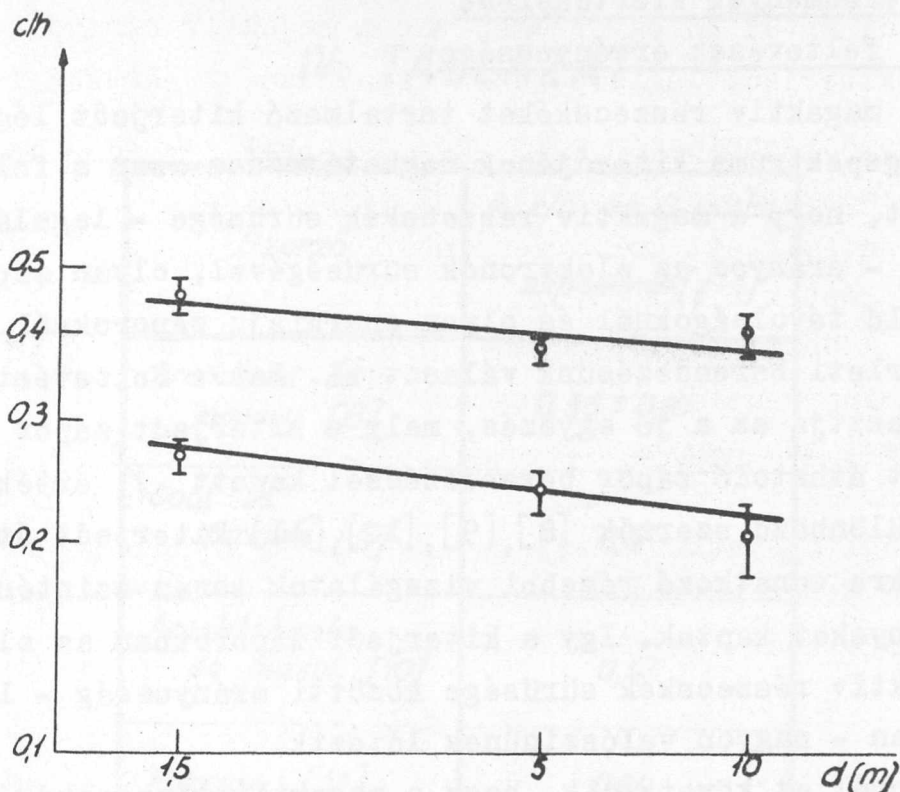
A dekoherencia görbéket a szokásos módon

$$C/N, S, d/ = \text{konst. } d^{-\beta} \quad /3/$$

alaku hatványfüggvénnyel közelíthetjük, ahol  $C/N, S, d/$  a koincidenciák gyakorisága,  $d$  az N- és az elektron-detektorok közötti távolság és  $\beta$  a dekoherenciakitevő. Az ábrából látható, hogy mindkét görbe meredeksége a statisztikus hibákon belül egyenlő. A  $\beta$ -k súlyozott közepére az alábbi érték adódik:

$$\beta = 0,10 \pm 0,08$$





4. ábra.

A koincidencia-gyakoriság az elektron- és a magaktív részecske-detektorok közötti távolság függvényében

Ha feltételezzük, épp úgy mint a  $\mathcal{T}$  értékek meghatározásánál, hogy a magaktív komponens sűrűsége arányos az elektronok sűrűségével, azt láthatjuk, hogy a fenti kitevő értékének közel egyenlőnek kell lennie azzal a dekoherenciakitevővel, melyet csak árnyékolatlan számlálókkal határoztak meg. A szerzők közül ketten ezt az értéket négy árnyékolatlan számlálósorozatával már régebben meghatározták, úgy hogy a számlálósorozatok által alkotott négyszög oldalhosszát változtatták és a következő értéket kapták [6], [7] :

$$\beta' = 0,20 \pm 0,01$$

Figyelembe véve az általunk kapott  $\beta$  érték nagy statisztikus hibáját, a két érték egymástól nem különbözik szignifikánsan, s nem mond ellent az elektronok és a magaktív részecskék sűrűsége arányosságára vonatkozó eredeti feltevésnek.

#### 4. Az eredmények kiértékelése

##### 4.1. A feltevések érvényessége

A magaktiv részecskéket tartalmazó kiterjedt légizáporok sűrűség spektruma kitevőjének meghatározása azon a feltevésen alapult, hogy a magaktiv részecskék sűrűsége - legalábbis átlagban - arányos az elektronok sűrűségével, olyan záportengelytől való távolságoknál és olyan energiájú záporoknál, melyeket a kísérleti berendezésünk választ ki. Ezt a feltevést erősen alátámasztja az a jó egyezés, mely a kiterjedt zápor és a kiterjedt áthatoló zápor berendezéssel kapott  $\gamma$  értékek között van. Különböző szerzők [8],[9],[10],[11] kiterjedt áthatoló záporokra vonatkozó régebbi vizsgálatok során szintén hasonló eredményeket kaptak. Így a kiterjedt záporokban az elektron és a magaktiv részecskék sűrűsége közötti arányosság - legalábbis átlagban - nagyon valószínűnek látszik.

Ebből az következik, hogy a magaktiv részecskék sűrűség spektruma hatványtörvényt követ, melynek a kitevője közel egyenlő az elektron komponensre kapott  $\gamma$  értékkel, nevezetesen

$$N/x_{\text{magaktiv}} = H x_{\text{magaktiv}}^{-\gamma'}; \gamma' \sim \gamma \quad /4/$$

ahol  $N/x_{\text{magaktiv}}$  a magaktiv részecskék integrális sűrűsége és  $H$  pedig egy állandó.

##### 4.2. Összehasonlítás más kísérletekkel

Kiterjedt áthatoló záporok elektron komponensére vonatkozó hasonló kísérleteket tengersizint közelében Broadbent és Jánossy [8], hegymagasságokon pedig Cool és Piccioni [9], Anischtchenko és munkatársai [10], valamint Farrow [11] végeztek. E szerzők által kapott  $(\gamma - 1)$  kitevők értékeit a IV. Táblázatban gyűjtöttük össze.

Figyelembe véve a statisztikus hibákat /vagy azon mérések nagy pontatlanságát, ahol a hibák nincsenek feltüntetve/ és a különböző kísérleti körülményeket, nem látszik szignifikáns eltérés az általuk nyert és a korábban publikált eredmények között.

## IV. TÁBLÁZAT

Szerző	A $c/h$ vs $S$ görbe exponense ( $\gamma-1$ )
Broadbent és Jánossy [8]	$0,56 \pm 0,10$
Cool és Piccioni [9]	0,5
Anishtchenko és mások [10]	0,4
Farrow [11]	0,64
jelen mérés	$0,34 \pm 0,08$

Anishtchenko és munkatársai rámutattak arra, hogy a kiterjedt áthatoló záporokra általuk kapott kitevő értéke jól egyezik a Zatsepin és munkatársainak [12] kiterjedt légizáporokra régebben kapott /  $\gamma = 1,4$ / értékével, amelyből szintén az elektron és a magaktív részecskék sűrűségének arányossága következik.

A dekoherencia görbét Broadbent és Jánossy is mérte és a koincidencia-gyakoriságban ugyancsak egy nagyon lassu csökkenést talált az áthatoló zápor- és az elektron-detektorok közötti távolság növelésével. Az adataikból a /3/ egyenlet alapján meghatározott  $\beta$  érték / $0,11 \pm 0,09$ / jó egyezésben van a jelen kísérlet során talált  $\beta$  értékkel.

A szerzők köszönetüket fejezik ki Jánossy Lajos professzornak a probléma felvetéséért a mérések során tanúsított állandó érdeklődéséért és az eredmények kiértékelésénél nyújtott segítségéért.



I r o d a l o m

- [1] L. Jánossy, Colston Papers, 1, /1949/ 103
- [2] D. Broadbent and L. Jánossy, Proc. Roy. Soc. A 192, 364 1948/
- [3] Koch J. Sándor T. Somogyi A. és Szivek J. KFKI Közleményei, 1, 61, /1953/
- [4] Bozóki G. Fenyves E. és Jánossy L. KFKI Közleményei /megjelenés alatt/
- [5] K. Greisen, The Extensive Air Showers, Progress in Cosmic Ray Physics III, /North Holland Publ. Co., Amsterdam, /1956/
- [6] L. Jánossy, Nuovo Cim. Suppl. 1, 247 /1955/
- [7] Sándor T. és Somogyi A. KFKI Közleményei, 2, 466 /1954/
- [8] D. Broadbent and L. Jánossy, Proc. Roy. Soc. A 191, 517, /1947/
- [9] R. L. Cool and O. Piccioni, Phys. Rev. 82, 306, /1951/
- [10] J. W. Anishtchenko, G. I. Zatsepin, I. L. Rosenthal and L. I. Saritcheva, JRTF 22, 143, /1952/
- [11] L. A. Farrow, Phys. Rev. 107, 1687 /1957/
- [12] G. I. Zatsepin, V. V. Miller, I. L. Rosenthal and L. H. Eidus, JETF 17, 1125 /1947/

Érkezett 1958 április 15.

## PLASZTIK-FOSZFOROK KIDOLGOZÁSA ÉS KIMÉRÉSE I.

Irta: Binder Gyula és Lajtai Albert

Radiológiai Osztály

### Összefoglalás:

Szcintilláló plasztik-foszforokkal megkezdett munka első lépéseként kidolgoztuk plasztik-foszforokhoz szükséges két szerves szcintilláló vegyület szintézisét hazai alapanyagokból és kipróbáltunk egy polimerizációs eljárást. Megkezdjük az így előállított plasztik-foszforok radiológiai kimérését.

### Bevezetés:

Magfizikai, radiológiai és hasonló jellegű méréseknél igen gyakran használnak plasztik-foszforokat [1], vagyis polistírolba vagy poliviniltoluolba beépített szerves szcintilláló vegyületeket. Ez annak tudható be, hogy a plasztikfoszforok több előnyös tulajdonsággal rendelkeznek:

1. Tetszőleges méretben és alakban készíthetők, ugyanakkor könnyebben kezelhetők és felhasználhatók mint a cseppfolyós szcintillátorok.
2. A foszforok megfelelő szerkezetű és tisztaságú vegyszerekből viszonylag könnyen előállíthatók.
3. Utánvilágítási idejük  $10^{-8}$  sec. nagyságrendű és ennek megfelelően igen nagy felbontóképességűek.
4. A kibocsájtott fény szinképtartománya egybeesik a leggyakrabban használt fotomultiplierek érzékenységi sávjával.
5. Közepes rendszám tekintetében a plasztik-foszforok nem térnek el lényegesen az élő szövetanyagtól.

6. A foszforok gyors neutronokra megfelelően érzékenyek.
7. Az abszorbeált energia és a kibocsájtott fényimpulzus közötti összefüggés 125 keV-nél nagyobb energiájú elektronokra lineáris.

Egyes alkalmazásoknál bizonyos tulajdonságok hátrányt jelentenek.

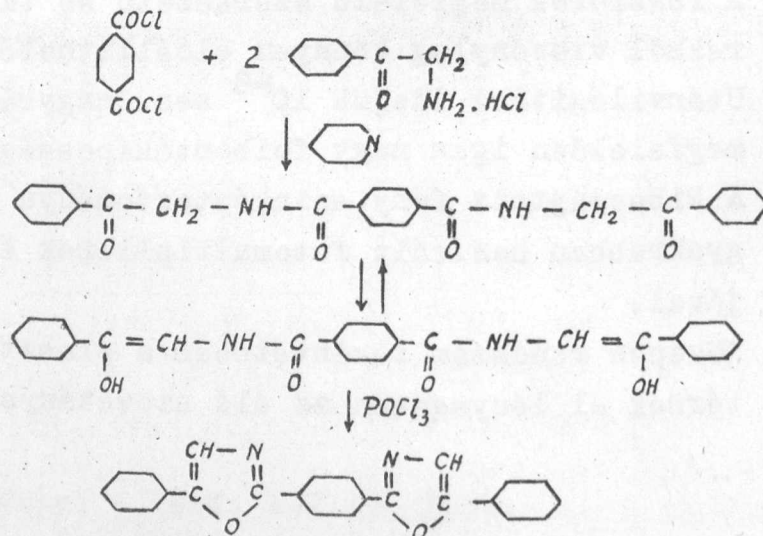
1. Az alacsony közepes rendszám és a kis sűrűség miatt  $\gamma$  sugarakra kisebb hatásfokuk.
2. Nehéz részecskéknél az abszorbeált energia és a kibocsájtott fényimpulzus között nem lineáris az összefüggés.
3. Az egy foton kibocsájtásához szükséges energiaabszorpció nagyobb, mint a szervetlen szcintilláló anyagoknál.

A plastik-foszforok ezen előnyös és hátrányos tulajdonságait összevetve célszerűnek mutatkozott ilyen típusu foszforok kémiai szintézisének kidolgozása, a foszforok előállítása és a foszforokkal kapcsolatos mérések elvégzése osztályunkon.

A szerves szcintilláló vegyületek előállításánál a szempontunk az volt, hogy hazai alapanyagokból kiindulva, a lehetőséghez képest jó kitermelésű reakciók útján, jussunk el a végtermékig. Két szerves szcintilláló vegyület előállítását dolgoztuk ki:

- 1./ 1,4-di- [2-/5-feniloxazil/ ]-benzol /POPOP/
- 2./ 1,1',4,4'-tetrafenilbutadién-1,4 /TPB/

A POPOP-ot a következő reakcióegyenletek alapján állítottuk elő:





A két kiindulási anyag, a tereftalilklorid és a fenacilammoniumklorid előállítása a következő:

Tereftalilklorid:

A tereftalilklorid előállításánál legcélszerűbben para-xyloból indultunk ki. Para-xyloból krómsavas oxidációval nyers tereftálsavat állítottunk elő, melyet lugban való oldással és savban való kicsapással tisztítottunk. Szublimációs tisztításra nem volt szükség, mert a sav a további felhasználáshoz így is elég tisztának bizonyult [2]. A sav klórozását foszforpentakloriddal végeztük, amely módszer egyértelműen a tereftalilkloridot szolgáltatta. A nyers kloridot ligroinból való átkristályosítással tisztítottuk s ezután irodalmi olvadáspontu terméket nyertünk.

Fenacilammoniumklorid:

Fenacilammoniumklorid előállításához acetofenonból indultunk ki. Az acetofenont vizes közegben direkt bróm-hozzáadásával megbrómoztuk és az így nyert  $\omega$ -brómacetofenont a gyantás melléktermékektől alkoholból való átkristályosítással tisztítottuk. A kristályos brómacetofenont, a Sommelet-reakció alapján, hexametilentetraminnal reagáltattuk. Az így keletkezett addíciós terméket savas hidrolízisnek vetettük alá, és a felszabaduló szabad aminből sósavas bepárlással a nyers fenacilammoniumkloridot nyertük. A terméket alkoholból átkristályosítva irodalmi olvadáspontu anyagot kaptunk.

N-N'-Difenaciltereftalamid: [3]

A tereftalilkloridot és a fenacilammoniumkloridot száraz piridines közegben, erős keverés mellett, 15 percig a visszacsépegés hőfokán tartottuk, ezután a rendszert lehűtöttük és vízzel hígítottuk. A kivált nyersterméket leszűrtük, megszáritottuk és piridinből átkristályosítottuk.

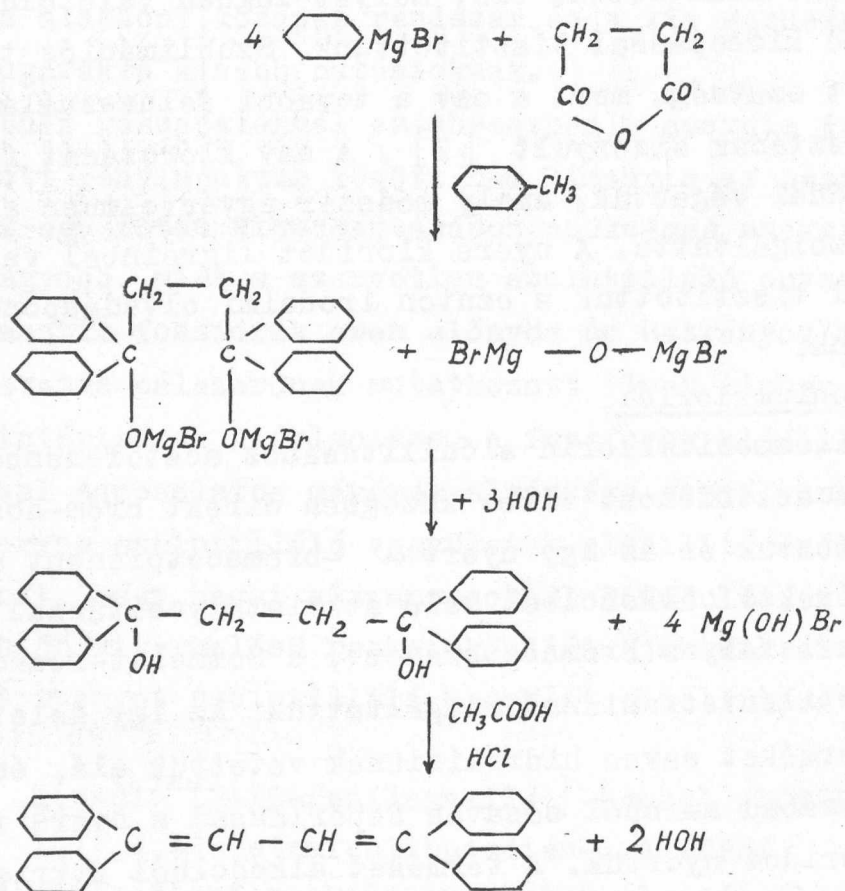
1,4-di[2-/5-feniloxazil/] -benzol /POPOP/: [3]

A fentiek alapján előállított N-N'-Difenaciltereftalamidot foszforoxikloridos közegben éjszakán át visszafolyó-hűtővel forraltuk, amely reakcióval vízlehasadás következtében létrejöttek az oxazolgyűrűk.

A reakció befejeződése után a rendszerből a foszforoxikloridot kidesztilláltuk s a visszamaradt anyagot nagyobb mennyiségű

vizbe öntöttük. A kivált szilárd terméket szűrtük, vízzel jól kimostuk, megszáritottuk és piridinből átkristályosítottuk. Az így nyert termék az irodalmi követelményeknek megfelelő POPOP.

A TPB-t a következő reakcióegyenletek alapján állítottuk elő:



A TPB előállításánál brómbenzolból és borostyánkősavanhidridből indultunk ki. A brómbenzolból fenilmagnéziumbromidot készítettünk és ezt abszolút-éteres oldatban reagáltattuk a borostyánkősavanhidriddel. Ezután az étert azonos mennyiségű száraz toluolra cseréltük ki és a rendszert 1 óra hosszat a toluol forrponjtján tartottuk. Ezután a rendszert lehűtöttük, és nagyobb mennyiségű vízbe öntöttük. Fehér szilárd anyag vált ki, mely tömény sósavval való savanyítás után, sárgásszinű olaj formájában helyezkedett el a vizes fázis tetején. Ezt az olajat leválasztottuk, megszáritottuk és vákuumban kidesztilláltuk belőle a toluolt. A visszamaradó sűrű, narancssárga olajat egy napig

állni hagytuk, a belőle kivált szilárd részt leszivattuk és acetontól átkristályosítottuk. Az így nyert termék az 1,1',4,4'-tetrafenil-1,4 butándiol [4]. A tetrafenilbutándiolból jégacet és tömény sósav segítségével vizet hasítottunk le. A reakció befejeződése után a kivált sárga, szilárd terméket leszivattuk és etilacetáttól átkristályosítottuk. Az így nyert zöldessárga kristályos termék irodalmi olvadáspontu TPB [5].

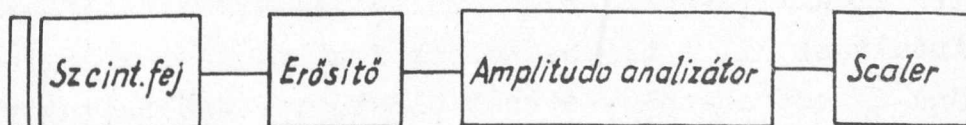
### Polimerizáció:

Fenti vegyületek műanyag hordozójaként a poliviniltoluolt választottuk. A kereskedelmi viniltoluolt felhasználás előtt vákuumban történő kétszeri ledesztillálással tisztítottuk. A polimerizációt vákuumban végeztük a következőképpen [1]: A viniltoluolba bemértünk katalizátorként 0.5 % benzoilperoxidot, valamint 2 % terfenilt azonkívül vagy 0.1 % POPOP-ot, vagy 0.05% TPB-t.

Az elegyet üvegtubusba töltöttük, majd azt 0.1 Hgmm vákuumra leszivtuk és leforrasztottuk. A polimerizációt 115 C<sup>o</sup>-on indítottuk be, majd 1 nap után a hőmérsékletet 135 C<sup>o</sup>-ra emeltük és így tartottuk 5 napig. Ezután 1 nap alatt a hőmérsékletet 75 C<sup>o</sup>-ra csökkentettük, majd további 1 nap után a termosztátot kikapcsoltuk. Teljes kihülés után a foszforokat az üvegből kivéve a kívánt formára esztergáltuk és poliroztuk.

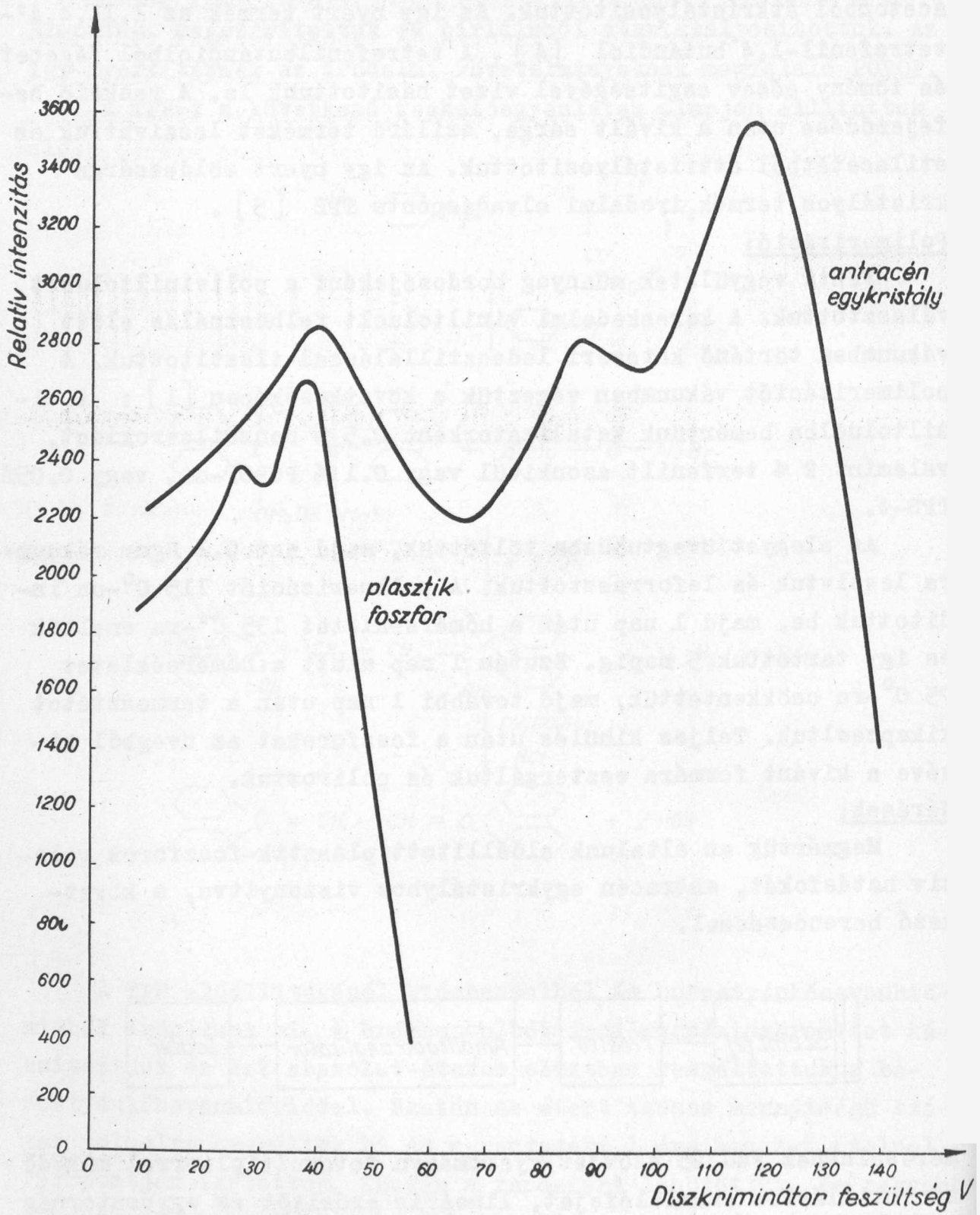
### Mérések:

Megmértük az általunk előállított plastik-foszforok relatív hatásfokát, antracén egykristályhoz viszonyítva, a következő berendezéssel.



Méréseinkhez FEU 25 szovjet gyártmányu fotomultiplierrel működő szcintillációs számlálófejet, lineáris erősítőt és egycsatornás amplitudó analízátort használtunk. Az erősítő 10 MC feletti sáv szélességű, 150 V-os kimenő impulzusu impulzuserősítő, az amplitudó analízátor 0-150 V-ig folyamatosan változtatható előfeszültségű és 0-75 V-ig szintén folyamatosan változtatható csa-





$Cs^{137}$  spektruma

1. ábra

torna-szélességü volt. A méréseink alapján, mint az 1. ábrán látható, a plastik foszforok relativ hatásfoka 0.3-nak adódott. A differenciális amplitudó eloszlásból kapott relativ félérték-szélesség reciprokaként definiált energia felbontóképesség 25 %, ami egyezik az irodalom alapján ismeretes felbontó képességgel. Egyéb tulajdonságok, pl. abszolút hatásfok és fluoreszcenciaszinkép kimérése, további munkák tárgyát képezi.

A polimerizációs műveleteknél nyújtott értékes segítségért Csetényi János kollegánknak ezuttal is köszönetünket fejezzük ki.

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

- [1] Warren L. Buch és Robert K. Swank  
Nucleonics 11, 48. /1953./
- [2] Vogel: Practical Organic Chemistry 760. Longmans /1956/
- [3] F.N.Hayes, B.S.Rogers, G.D.Ott  
J.Am.Chem.Soc. 77, 1850. /1955/
- [4] J.Houben, A.Hahn Berichte 41, 1582. /1908/
- [5] G.Wittig, F.V.Lupin Berichte 61, 1630. /1928/

Érkezett 1958 március 14.

# ALUMINIUMÖTVÖZETEK SPEKTROSKÓPOS VIZSGÁLATA

## NITROGÉNATMOSZFÉRÁBAN

Irta: Kántor Tibor

Spektroszkópai Osztály

### Összefoglalás:

A közlemény egy olyan gázcella típust ismertet, amely nagyobb méretű fémtestek ellenelektrodos iveltetésénél is alkalmas a levegő kizárására. A levegő-, argon- és nitrogénatmoszférás gerjesztések nyertek összehasonlítást az alumínium spektroszkópos elemzésénél. Nitrogénatmoszférában nő az ivkisülés stabilitása, kiküszöbölődnek a látható szinképtartományban zavaró alumíniumoxid-sávok, nő az érzékenység és a pontosság. A szokásos ellenelektrod anyagok közül nitrogénben a szén a legelőnyösebb.

### Bevezetés

A fémek spektroszkópos vizsgálata az ipar és fémkereskedelem számára rendkívül előnyös, mert percekben belül, szinte roncsolásmentesen meg lehet állapítani, hogy valamely nyersanyag, félkész vagy kész termék anyaga megfelel-e a követelményeknek. Ilyen vizsgálati mód a vas- és acélötvözeteknél jól bevált, de nincs megoldva az alumíniumötvözeteknél. Vannak ugyan utalások az irodalomban, melyek ez utóbbiakkal kapcsolatban is bizonyos eredményekről számolnak be [1,2,3,4], de sok a nehézség és bizonytalanság. Mások a vizuális megfigyelés tökéletesítésével igyekeznek az elemzés pontosságát növelni [5,6,7]. A nehézségek leküzdése érdekében a fényforrás működését tanulmányoztam az alumíniumelemzéseknel szokásos szén, réz, valamint a nagyszámu



vonatkoztató szinképvonalat adó vas ellenelektrodokkal. Általánosan ismert tapasztalat, hogy spektroszkópos vizsgálatokhoz az ivgerjesztés, éspedig kisebb olvasztó hatása miatt a váltóáramu ivgerjesztés felel meg a legtöbb esetben, csak egyes ötvözők /pl. szilícium/ esetében szükséges a szikragerjesztés, amikor a látható szinképtartományban csak magas gerjesztési potenciálu szinképvonalakat találunk.

### Készülékek és eszközök

#### Spektroszkóp:

TB-2 hordozható spektroszkóp [8],

Módosított elektródállvány és leképező rendszer.

#### Spektrográf:

Autokollimációs kvarcspektrográf és

ISzP-51 háromprizmás üvegspektrográf.

#### Gerjesztő:

Elektronikus vezérlésű egyen-, váltóáramu iv és alacsony-feszültségű szikragerjesztő [9], [10]

A fényforrás működésének tanulmányozásánál a szokásos gerjesztési körülményeket alkalmaztam, melyek a következőkben foglalhatók össze:

Alsó elektród: síkfelületű próba, súlya kb. 200 gr.

#### Felső elektród:

enyhén kupos, 6 mm átmérőjű szinképtiszta szén, ötvözetlen vas, elektrolit réz.

Ivköz: 2 mm

Gerjesztés: váltóáramu iv 6 A /rövidzár/

Gyújtásszám: 100/sec.

Siettetett gyújtás.

### Az alumíniumötvözetek viselkedése elektromos ivben, levegőn

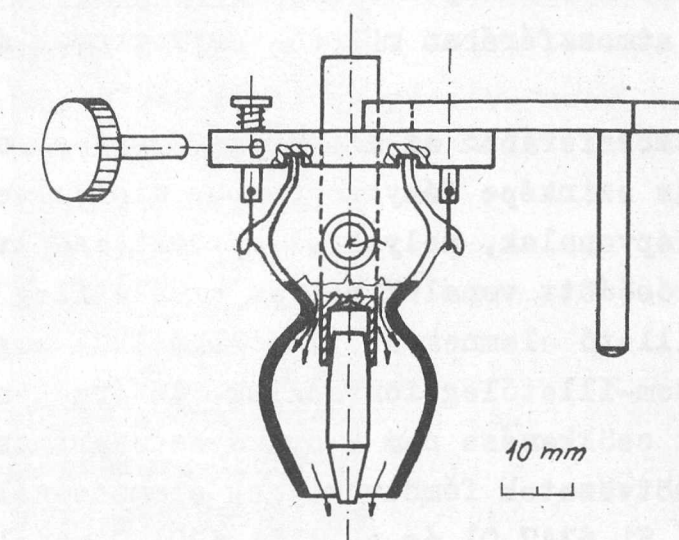
Az alumíniumpróba felülete az ivkisülés hatására növekvő sebességgel oxidálódik. Ez az oxidréteg bizonytalanná teszi az ivkisülést. Különösen egyenetlen lesz az ivkisülés vas ellenelektrod alkalmazása esetén, amikor a próba felületén keletkező vasoxid és alumíniumoxid keverék egyenirányító hatást fejt ki a váltóáramu ivre. Viszonylag a réz ellenelektrod eredményez legoxidmentesebb krátert és a legkisebb az iv oldalirányú kuszása.

Az ivoszlop körül az elpárolgó alumíniumgőzökből keletkező  $\text{Al}_2\text{O}_3$  intenzív ibolya, kék és zöld sávszínképet emittál, mely fontos színképrészeket fed át. Vas ellenelektród esetén, az Al és ötvöző vonalak valamint az  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -sávok intenzitása a vasvonalakkal ellentétesen változik, tehát nem valósul meg a homológ vonalpárok elve. Az Al 6698,8 vonal intenzitásváltozását figyelemmel kísérve a legerősebb és legegyszerűsebb alumíniumpárolgást réz ellenelektróddal nyerhetünk, de az  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -sávok intenzitása is fokozott mértékben jelentkezik.

#### Védőgáztér létesítésére szolgáló gázcella

A nehézségeket tehát egyrészt a próba felületén keletkező fémoxidok, másrészt az ivoszlop körül képződő  $\text{Al}_2\text{O}_3$  sugárzása okozza. Ezen hibák kiküszöbölése érdekében kívánatosnak látszott az oxigénmentes atmoszférában való ivgerjesztés bevezetése.

Semleges gázteret az elektródok körül olymódon létesíthetünk, hogy az ellenelektródot alkalmas alakú üvegburával vesszük körül, melyen az állandóan átáramló védőgáz a levegőnek a fényforráshoz jutását megakadályozza. Ilyen burával, u.n. gázcellával szemben a főkövetelmény, hogy egyszerűen legyen kezelhető, ne rontsa le a spektroszkópos vizsgálat fő előnyét, a gyorsaságot, és nagyobb méretű próbák vizsgálatát is el lehessen végezni. E követelményeknek részben megfelel a Török-Szikora-féle gázcella [11], melyet a szerzők acél szénttartalmának meghatározásánál alkalmaztak, de ennél egyszerűbb cella kialakítására törekedtem. Az új cella /1. ábra/ felső terébe a gáz az ellenelektródra merőlegesen érkezik, melyből a leszűkített keresztmetszeten át áramlik az alsó térbe. Itt egyenletesen burkolja körül az ellenelektródot és annak tengelyével párhuzamos irányban hagyja el a cellát. A próba felületére irányított gázáram távoltartja a levegőt. Az ellenelektród a gázcellában központosan van elhelyezve, alsó vége kb. 1 mm-re nyulik ki. A bura tehát nem fekszik rá a próbára, a kisülés a cellán kívül jön létre, így az üvegbura nem akadályozza meg az ultraibolya színképtartomány spektrográfus vizsgálatát sem. A gázcellát a próba alá, vagy fölé lehet elhelyezni, a levegő kizárása megfelelő gázárammal pólcaalaku próbák esetén is tökéletes. Kísérleti megfigyelés szerint a gázsebesség akkor elegendő, amikor az  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -sávok eltűnnek, s ez kb. 5 liter percenkénti áramlás.



1. ábra. Gázcella a spektroszkópos vizsgálatokhoz.

A gázcella alkalmazása miatt módosítani kellett a TB-2 spektroszkóp leképzését is. A fény utja vízszintes lett és megrövidült, ezért kisebb gyújtótávolságú  $f=55$  mm/ külső leképző lencsét alkalmaztam, melyet a réstől 70 mm-re rögzítettem. A fényforrás tartására egytetemes állvány szolgál és az elektrodok beállítását kiiktatható mutató könnyíti meg. A gázcella a Zeiss és ISzP típusú állványok méreteihez igazodik.

#### A védőgáz kiválasztása

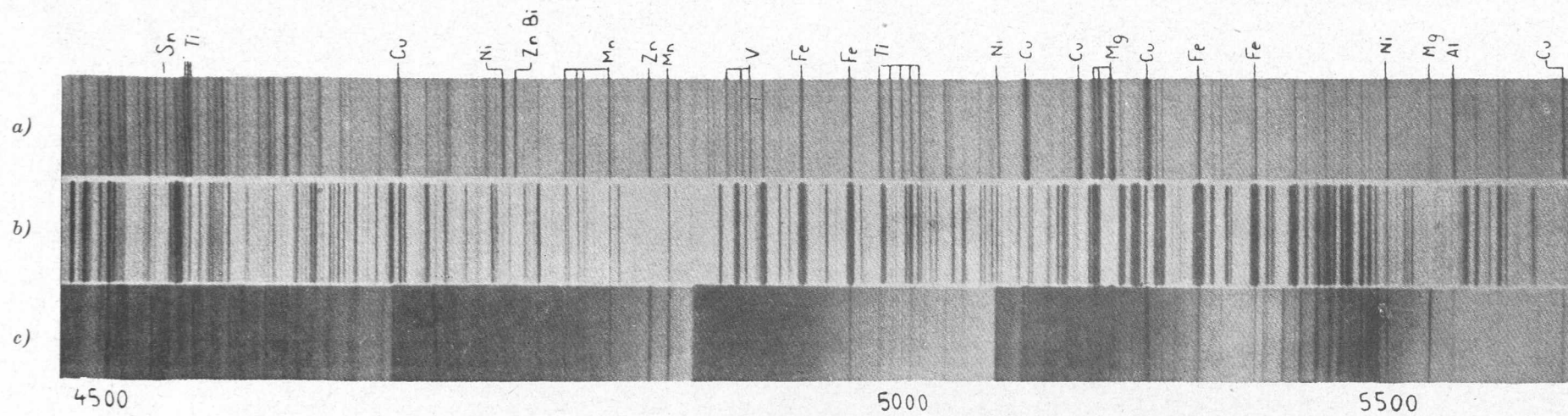
Az emissziós spektroszkópiában használatos védőgázak közül az alumíniumelemzésnél elvileg a  $H_2$ ,  $N_2$ , He és A jöhet számításba, mert a más esetben bevált  $CO_2$  és  $H_2O$  /gőz/ az ivhőmérsékleten bekövetkező bomlásuk miatt oxidáló hatásuak. Goldspiel és Berstein [12] foglalkoztak argon- és heliumatmoszférás alumínium gerjesztéssel a spektrográfós vizsgálat pontosságának növelése érdekében, de a szóbanlévő vizsgálattól eltérő körülmények mellett. A He nagy ára miatt nem jöhet szóba, a  $H_2$  alkalmazása a leirt cellában nagy lángot adna, esetleg robbanáshoz is vezetne és ezért argonnal és nitrogénnel végeztem összehasonlító kísérleteket. Egy szinképlemezre azonos megvilágítási idővel /60 sec/ készítettem felvételeket levegő-, nitrogén- és



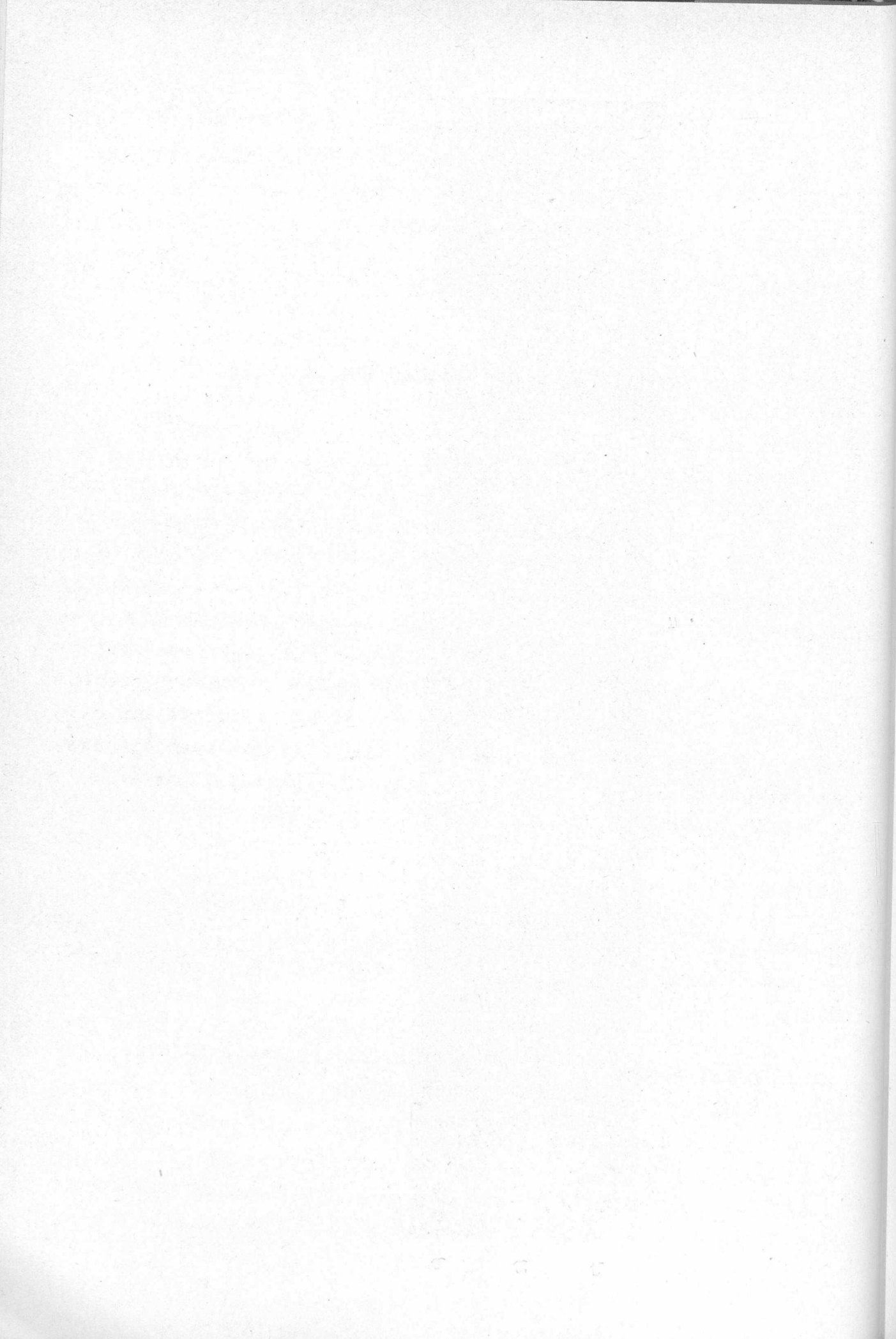
argonatmoszférában és megállapítottam, hogy a két semleges gáz jelenlétében nem mutatkoznak az  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -sávok, melyek levegőben nagyon erősek. A kvarcspektrográfos felvételek lehetővé tették a háromféle atmoszférában működő fényforrások átfogóbb tanulmányozását.

Argonatmoszférában az azonos gerjesztési energiával működő fényforrás szinképe fénysegeyebb mint levegőben, viszont vannak szinképvonalak, melyeknek intenzitása argonban nagyobb. Ezek a felerősödött vonalak nem az elméletileg legérzékenyebb vonalai az illető elemnek és kivétel nélkül magas gerjesztési energiájú atom-illetőleg ionvonalak. Az érzékeny ivvonalak intenzitásának csökkenése nem kedvező és ezért az argon alkalmazása alumíniumötvözetek fémötvözőinek elemzésénél nem előnyös. Egyedül a II Si 6347,01 és a II Si 6371,0 vonalak argonatmoszférás gerjesztése mutatkozik előnyösnek, melyek levegőivben nem gerjednek. A későbbi kísérletek azt mutatták, hogy ezeknek a vonalaknak a gerjesztése alacsonyfeszültségű szikrával nitrogénatmoszférában érzékenyebb. Argonatmoszférában az érzékeny ivvonalak intenzitáscsökkenése egyrészt a magasabb ivhőmérséklettel, másrészt a próba sokkal kisebb párolgásával magyarázható. Argonatmoszférában az elpárolgó alumíniumpróba mennyisége kb. egynegyede a  $\text{N}_2$ -atmoszférában /lásd alább/ elpárolgó tömegnek. Az alumínium elektród felületén nagyon csekély  $\text{Al}_2\text{O}_3$  keletkezett, valószínűen az alkalmazott technikai tisztaságú argon oxigén tartalma miatt.

Nitrogénatmoszférában a próba felületén iveltetés után kevés, laza alumíniumoxid, alumíniumnitrid és szénréteg észlelhető, mely azonban sem az iveltetést, sem a próba párolgását nem akadályozza. A 2. ábra a levegő- és a nitrogénatmoszférában működő fényforrások üvegspektrográffal a fenti gerjesztési körülményekkel készült legfontosabb szinképtartományát mutatja be. A megvilágítási időt a spektroszkópos vizsgálatnál minimálisan szükséges időtartamnak megfelelően 3 percre állítottam be. Levegőben az intenzív  $\text{Al}_2\text{O}_3$  sávok értékes Cu, Cd, Zn, Ni, Bi, V, Fe, Ti, Pb, Mg és Cr vonalakat zavarják. A zavarás mentes szinképvonalak intenzitását figyelemmel kísérve azt tapasztaljuk, hogy a viszonylag illékony ötvözők /Zn, Mg, Mn/ vonalai levegő-



2. ábra a) Al 106 próba ívszínképe (nitrogénatmoszféra).  
 b) Vas ívszínképe (levegőatmoszféra)  
 c) Al 106 próba ívszínképe (levegőatmoszféra)





ben, és a Ti, Fe, V, Cu, Ni, Al vonalai nitrogénben erősebbek. Ennek magyarázata az elemeknek a kétféle atmoszférában történő különböző párolgása lehet. Levegőben az ötvözet főalkotója az Al, gyorsan oxidálódik, az ezzel a folyamattal felszabaduló nagy reakcióhő a könnyebben párolgó ötvözőknek a mély oxidkéregből való teljesebb kidesztillálását, az ivben való feldusulását s ezzel vonalaik intenzitásának növekedését idézi elő. Ugyanakkor a kevésbé párolgó ötvözők gőzének koncentrációja viszonylag lecsökken.

### Kísérletek nitrogénatmoszférában

Miután meggyőződtem arról, hogy a nitrogénatmoszféra teljesíti azokat a reményeket, melyeket az oxigénmentes atmoszférában való gerjesztéshez fűztem, a további feladat a nitrogénatmoszférában legkedvezőbb gerjesztési körülmények megállapítása volt. Ezek a kísérletek kiterjedtek egyrészt a gerjesztés elektromos paramétereinek /áramerősség, gyujtásszám, kapacitás/ meghatározására, másrészt pedig a próba polaritásának és az elenelektrod anyagának az elemzés pontosságára és érzékenységére gyakorolt hatásának megállapítására. Annak érdekében, hogy ez utóbbi kérdésre többé-kevésbé kvantitatív eredményt kapjak, mértem a bizonyos gerjesztési körülmények között elpárolgó próba mennyiségét. Ezen kísérletek méréseinek közéértékét az 1. táblázat mutatja.

A párologtatási kísérletek munkakörülményei:

A párologtatás időtartama: 5 perc

A próba anyaga: AlMgSi /Si 1,5%; Mg 0,6%, Mn 0,6%; Fe 0,5%/

A próba hőmérséklet-emelkedését szakaszos vízűtéssel csökkentettem.

Gerjesztés: áramerősség 10 A /rövidzár/

gyujtásszám az egyenirányu ivnél 50/sec.,

váltóáramu ivnél 100/sec

siettetett gyujtás

1. Táblázat

A próba súlyváltozása mg-ban								
Szén ellenelektród			Vas ellenelektród			Réz ellenelektród		
egyirányu iv		váltó- áramu iv	egyirányu iv		váltó- áramu iv	egyirányu		váltó áramu iv
anód	katód		anód	katód		anód	katód	
-0,8	-4,1	-5,7	-0,6	-0,9	+12,0	-2,8	+0,1	-2,4

Általában az a gerjesztés a legérzékenyebb, mely adott körülmények között a legtöbb próbaanyagot gőziti el. Az érzékenység ezenkívül erősen függ a szinkép háttérsugárzásától is, amely többek között szintén a gerjesztéssel kapcsolatos. Az oxigénmentes atmoszférában a párologó szén ellenelektród gőze füstté kondenzálódik és magas hőmérsékletű lévén folytonos sugárzást bocsát ki. Az ilyen módon keletkező háttérsugárzás a váltóáramu iv-gerjesztésnél is jelentékeny, de különösen erős anódos gerjesztés alkalmával. Ez utóbbi esetben nyert tul alacsony próbafogyás csak látszólagosnak tekinthető, mivel a kráterfelületre tapadó szén a mérést meghamisítja. Katódos gerjesztés esetén háttérmentes szinképet és tiszta kráterfelületet kapunk. Vas ellenelektrod alkalmazásakor erősen csökkent érzékenységi szinképet nyerünk, amely a mérési adatok szerint érthető is. A vas átpárologására nézve jelen körülmények között nem a polaritás mérvadó, hanem az ellenelektród melegedése, amely a kisebb hűlésidőt engedő váltóáramu iv esetén nagyobb. Az aluminiumpróbák rézellenelektródos vizsgálata során a legintenzívebb próbapárologást anódos gerjesztéssel nyertük.

A párologtatási kísérletek eredményeképpen leszögezhető, hogy a kívánt érzékenység az aluminium szénellenelektródos, katódos gerjesztésével várható.

E r e d m é n y e k

Az elvégzett kísérletek alapján kialakult új vizsgálati eljárás jellemzése az alábbiakban foglalható össze.

Érzékenység. A 2. táblázat mutatja az alábbiakban összefoglalt munkakörülményekkel végzett elemzések érzékenységét. Az elért kimutatási határkoncentrációk, valamint az irodalmi adatok összevetése révén megállapítható, hogy legtöbb esetben fél, illetve

egy nagyságrenddel érzékenyebb a nitrogén atmoszférás gerjesztés a levegőatmoszférában elért legjobb eredményekhez képest. Kistömegű próba esetén, amikor annak felülete megolvadt, 99.99%-os tisztaságu aluminium szennyezői is /Mg,Mn/ kimutathatók voltak. Természetesen ez utóbbi tapasztalat csak minőségi vizsgálat szempontjából jelentős.

2. táblázat

Az aluminiumötvözetek spektroszkópos vizsgálatának érzékenysége nitrogénatmoszférában

Ötvöző	A legérzékenyebb szinképvonalak hullámhossza [Å]	Kimutatási határ %
Fe	4383,55 4957,31	0,01
Mn	4823,52	0,006
Mg	5183,19	0,005
Cu	5105,55	0,01
Cr	5206,04 5208,44	0,005
Zn	4810,53	0,02
Ti	4981,73	0,001
V	4379,24	0,006
Ni	5476,91	0,1
Si	6347,01	0,2

Pontosság. Ahhoz, hogy a mennyiségi vizsgálat pontosságára nézve számszerű adatokat lehessen megadni, még további kísérletek szükségesek. A pontosság tetemes növekedését csupán azzal a vizuális megfigyeléssel kívánom alátámasztani, hogy a szinképvonalak intenzitása öt perces megfigyelési idő alatt messzemenően egyenletesebb nitrogénatmoszférás gerjesztésnél.

Az alkalmazott egyirányú iv gyújtásszáma 50/sec., de az emberi szem tehetetlensége folytán még folytonosnak érzékeljük a szinképvonalakat. A gyújtásszám további csökkentése azonban már zavarólag hat.



Nitrogén-atmoszférás vizsgálat munkaelőírása:

Alsó elektród: katód

síkfelületű próba súlya min. 100 g

Felső elektród: anód

enyhén kupozott 6 mm  $\varnothing$  szinképtiszta  
szén

Ivköz: 2 mm

Nitrogénatmoszféra 5 lit.  $N_2$ /perc

Gerjesztés: gyújtásszám 50/sec.

siettetett gyújtás

a./ egyirányu iv 15 A/ rövidzár/

b./ alacsony feszültségű szikra /a Si kimutatá-  
sánál/50  $\mu$ F; 12A /rövidzár/

Következtetések

A leírt kísérletekben nitrogénatmoszféra alkalmazása alu-  
miniumötvözetek spektroszkópos vizsgálatánál nagyon előnyösnek  
bizonyult. Az eddigi eredmények kvalitatív és félkvantitatív  
természetűek, de ezek arra engednek következtetni, hogy a nit-  
rogén védőgáz a kvantitatív spektrográfós elemzéseknél is te-  
temes haladást biztosít.

A levegő-, az argon- és a nitrogénatmoszférák hatását ösz-  
szefoglalva megállapítható, hogy az alkalmazott gáz igen erős  
hatással van a próba párolgásra és az iv hőmérsékletére egy-  
részt fizikai, másrészt kémiai tulajdonságai révén. A különbö-  
ző gázatmoszférák esetén várható vonalintenzitásváltozások ál-  
talanosan nem tárgyalhatók, mert az adott körülményeknek meg-  
felelően a gázatmoszférának hol az egyik, hol pedig a másik tu-  
lajdonsága lesz a döntő tényező.

I r o d a l o m

- [1] Tlapa Ch.J. and Raisig R.: Appl. Spectroscopy  
6/1952/32-57
- [2] Mielenz K.D. : Metall/1953/256-60
- [3] Peterson M.J. and Jaffe H.W.: U.S.Bur.Mines Bull.  
524/1953/20
- [4] J.Kuba, M.Dvorak: Ryckle rozboru kovu stiloskopen  
ustav pro technico a Monomickó informace  
/Praha/1955/.

- [5] Averbukh M.M. and Erina I.I.: Zavodskaja Lab.  
15/1949/1341-4.
- [6] Ivanov L.M., Malinyina V.I., Poljakova V.v.:  
Zavodskaja Lab. 16/1950/453-7
- [7] Tyas R.H.,: Metallurgia 53/1956/285-288
- [8] Török T. és Barabás J.: Magyar Technika, 4/79/1951/
- [9] Bardócz Á.,: Magy. Tud. Akad. Müsz. Oszt. Közl.  
12, /1954/261-8
- [10] Bardócz Á.: Spectrochim. Acta 7, /1955/ 238-41
- [11] Török T. és Szikora G.: Magy. Tud. Akad. Közl. XIV. köt.  
2-4 sz. /1955/
- [12] S. Goldspiel and F. Bernstein: Appl. Spectr. 6. No 4.  
/1952/

Érkezett 1958 február 24.

# A Th, Zr és Nb ANIONCSERÉS ELVÁLASZTÁSA SZULFÁTOS

## KÖZEGBŐL

Irta: Molnár Ferenc és Tóth György

Magkémiai Osztály

### Összefoglalás:

Vizsgáltuk a Th, Zr és Nb anioncserés adszorpciójának mértékét szulfátos oldatokból. Vizsgálatainkhoz egy magyar gyártmányu, kvaterner-amin típusu gyantát alkalmaztunk. /Mykion PA/

Megállapítottuk azt, hogy a Th, Zr és Nb megoszlási hányadosai közötti különbségek megengedik az ezen elemek szulfátos oldatokból történő ioncserés elkülönítését.

A megoszlásokra vonatkozó vizsgálataink alapján végrehajtottuk a Th, Zr és Nb anioncserés elválasztását.

### Bevezetés

A Th, Zr és Nb anioncserés sajátosságaival K.A. Krauss és G.E. Moore [1] [2] [3] [4] [5], valamint E.H. Huffmann és R.C. Lilly [6] [7] foglalkoztak. Vizsgálataikat kloridos ill. nitrátos közegben végezték.

Mivel az említett elemek szulfátos közegben is hajlamosak negatív töltésű anion-komplexek képzésére, reményét láttuk annak, hogy analitikai elválasztásuk szulfátos közegből is sikerrel jár.

### Sztatikus kísérletek

Meghatároztuk a Th, Zr és Nb megoszlási hányadosait néhány különböző koncentrációju szulfát oldat esetén, melyek mindegyike 0,01 M-nyi mennyiségben szabad savat tartalmazott.

Vizsgálatainkhoz a Mykion PA, egy erősen bázikus, kvaterner-amin típusu gyantát használtuk fel. A gyanta szemcsemérete a sztatikus kísérleteknél - 45 + 70 mesh, az oszlop-kísérleteknél - 70 + 140 ill. -140 +230 mesh volt.



A Th, Zr és Nb analiziseit rádioaktív izotópjaik, a Th-234 /UX<sub>1</sub> /, Zr-95 és Nb-95 felhasználásával végeztük.

Az UX<sub>1</sub> preparátumot 100 g uranilnitrátból készítettük. Az UX<sub>1</sub>-et az urán nagy tömegétől Crookes [8] ferrihidroxidos módszerével választottuk el, majd a ferrihidroxidtól és az urán nyomaitól egy anioncserés módszerrel tisztítottuk meg [9]. A nyert UX<sub>1</sub> hordozómentes volt.

A Zr-95 és Nb-95 hasadási termék keverékből készült. A Nb-95-nek a Zr-95-től történő ismételt elválasztását, valamint a Zr-95-nek a Nb-95-től történő esetenkénti megtisztítását a Nb-95-nek preformált mangándioxidon való adszorpciójával végeztük. [10] A Zr-95 preparátum kevés inaktív hordozót tartalmazott, a Nb-95 hordozómentes volt.

A megoszlási hányadosok mérését a szokásos sztatikus módszerrel végeztük. Tájékoztató jellegű vizsgálatok alapján a gyanta- és oldat-fázis mennyiségeit úgy választottuk meg, hogy kb. 50 %-os adszorpció forduljon elő. Az egyensúly beállása után a két fázist szétválasztottuk és mértük a folyadék-fázis aktivitását. A Th és Nb esetében a gyanta-fázis aktivitását is meghatároztuk, a gyantának HNO<sub>3</sub> -HClO<sub>4</sub> keverékkel történő elroncsolása után.

Mivel a Nb-95 a Zr-95 leányeleme, a Zr-95 preparátumot használat előtt mindig gondosan meg kellett tisztítani a Nb-95-től. A Nb-95 felszaporodásának káros hatását úgy igyekeztünk csökkenteni, hogy a Zr esetében csak négy órás rázást alkalmaztunk. Ez az az idő, amely alatt az adszorpció egyensúly gyakorlatilag beáll. Ilyen feltételek mellett /a Zr-95 megtisztításának időpontjától számított öt óra alatt/ a Nb-95 felaktiválódása 0,4 %-ban történik meg. Azonban, mivel a Nb-95 a vizsgálat körülményei mellett mindig jobban adszorbeálódik a Zr-95-nél, valamint nagyrészen a gyanta-fázisban képződik, a kísérlet időtartama alatt képződő Nb-95 nagyrésze a gyanta-fázisban koncentrálódik. Ezért tekintettünk el a Zr esetében a gyanta-fázis rádióaktivitásának mérésétől.

A Th, Zr és Nb megoszlási hányadosait mint a szulfát-koncentráció függvényét az I. táblázat mutatja. Láthatóan a három anyag megoszlási hányadosai

I. táblázat

A Th, Zr és Nb megoszlási hányadosai

Th		Zr		Nb	
2- M <sub>SO<sub>4</sub></sub>	D	2- M <sub>SO<sub>4</sub></sub>	D	2- M <sub>SO<sub>4</sub></sub>	D
0,01	148	0,01	2750	0,05	3457
0,02	112	0,02	2800	0,075	3327
0,05	97	0,05	2640	0,10	3321
0,075	80	0,075	2600	0,20	2983
0,10	80	0,10	2505	0	
0,20	52	0,20	1949		
0,30	41	0,30	1641		
0,50	28	0,50	1369		

nagymértékű különbségeket mutatnak. Azonban a Zr és Nb esetében a szulfát koncentráció növelésével csak igen lassan csökken a megoszlási hányados számértéke. Ez a tény megnehezíti a Zr és Nb 0,01 M savasságu szulfátoldatokkal történő elucióját.

A Zr és Nb adszorbeálhatósága várhatóan csökken az oldat pH-jának csökkenésével, ezért méréseket végeztünk a Zr és Nb kénsavas oldatokból történő adszorpciójára vonatkozóan is. Ezen mérések adatait a II. táblázatban foglaltuk össze.

II. táblázat

A Zr és Nb megoszlási hányadosai kénsav-oldatokból.

Zr		Nb	
M <sub>H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub></sub>	D	M <sub>H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub></sub>	d
0,01	2106	0,01	3610
0,05	1554	0,05	2910
0,10	530	0,10	1562
0,20	186	0,20	601
0,50	18		

Oszlop-elválasztások

A sztatikus kísérletek eredményei alapján oszlop-elválasztásokat végeztünk. A Th-nak a Zr és a Nb-tól való elválasztása egy 7,6 cm hosszú és 0,8 cm átmérőjű gyanta-ágyon történt. A Th-Zr-Nb-keveréket 0,1-0,2 ml 0,1 M Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> - 0,03 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> oldatban vittük az oszlopra. Az eluciót ugyanilyen összetételű oldat-

tal végeztük. Az elució sebessége  $0,22 \text{ ml/cm}^2$ . perc volt.

Az elució során a Th hamarosan megjelent az effluensben és kb. 120 ml oldat-térfogattal kvantitativ eluálódott. Ugyanakkor a Zr és Nb észrevehető mértékű eluciót nem mutattak.

A Zr-nak a Nb-tól való elválasztását két módszerrel hajtottuk végre. Az egyik módszer szerint a Th eltávolítása után az eluciót 2 M HCl-el folytattuk. A Zr éles maximumot mutatva jelent meg az effluensben. A Zr eluciója után az eluens sósav-töménységét 4 M-ra változtattuk a Nb-nak az oszlopról való eltávolítása céljából.

A másik módszer szerint a Th-Zr-Nb-keveréket egy 18 cm hosszú és 0,8 cm átmérőjű gyanta-ágyra vittük fel. A Th-nak a már említett módon történő eluciója után az eluenst 0,2 M  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -re változtattuk meg. A kénsavval történő elució során előbb a Zr, majd a Nb jelent meg az effluensben.

Az említett két módszer közül az első valamivel gyorsabb, ezért analitikai célú elválasztásokra alkalmasabb lehet.



I r o d a l o m

- [1] K.A. Kraus és G.E. Moore, J. Am. Chem. Soc.  
71, 3263/1949/.
- [2] K.A. Kraus és G.E. Moore, J. Am. Chem. Soc.  
71, 3854/1949/.
- [3] K.A. Kraus és G.E. Moore, J. Am. Chem. Soc.  
73, 9/1951/.
- [4] K.A. Kraus és G.E. Moore, J. Am. Chem. Soc.  
73, 2900/1951/.
- [5] K.A. Kraus és G.E. Moore, J. Am. Chem. Soc.  
78, 2692/1956/.
- [6] E.H. Huffman és R.C. Lilly, J. Am. Chem. Soc.  
71, 4147/1949/.
- [7] E.H. Huffman és R.C. Lilly, J. Am. Chem. Soc.  
73, 2902/1951./
- [8] W. Crookes, PRS Lond. A66, 409/1900/.
- [9] Molnár Ferenc, Nem közölt munka.
- [10] H. Gest és L.E. Glendenin, Radiochemical Studies:  
The Fission Products. National  
Nuclear Energy Series, Book 1,  
Paper 14.

Érkezett 1958 április 15.

# HIDROGÉN-DEUTÉRIUM KICSERÉLŐDÉSÉNEK VIZSGÁLATA HETEROGÉN FÁZISBAN, IONCSERÉLŐKÖN. KATIONCSERÉLŐK. I.

Irta: Fodorné Csányi Piroska  
Atomfizikai Osztály

## Összefoglalás

A hidrogén-deutérium kicserélődését vizsgáltuk kationcsere-  
relőkön /Amberlite IR-120 és Amberlite IRC-50/ deutériumoxid  
oldatban, a kationcsereelő csoport minősége, a hőmérséklet és a  
 $p_H$  függvényében.

A szulfonsavas gyanta kicserélődési sebessége és a deutérium  
móltörtje a gyantán nagyobb, mint a karboxilos gyantánál, bár a  
karboxilos gyanta nagyobb kapacitású.

20 C°-on nincs mérhető kicserélődés a deutériumoxid és a  
kationcsereelők között, a hőmérséklet emelkedésével Amberlite  
IR-120-nál nő, Amberlite IRC-50-nél kb. 75 C°-ig nő, azután pe-  
dig a gyanta károsodása miatt csökken a kicserélt deutérium  
mennyisége. Mindkét gyantánál a hőmérséklet emelkedésével nő a  
kicserélődési sebesség.

A deutériumoxidos oldat  $p_H$ -ját sósav és kénsav hozzáadásával  
változtatva Amberlite IR-120-nál a  $p_H$  csökkenésével nő a végső  
kicserélt mennyiség, a sósav, illetve a kénsav és a deutérium-  
oxid közötti kicserélődési reakciók miatt. Amberlite IRC-50-nél  
a  $p_H$  csökkenésével csökken a kicserélődési kapacitás, mert ilyen  
körülmények között a karboxil csoportok disszociációja kisebb.  
Mindkét gyantánál azonban a kicserélődési sebesség nagyobb sa-  
vas oldatban, mint semlegesben.

A karboxilos gyantánál a szétválasztási tényező minden eset-  
ben kisebb egynél, a gyanta karboxil csoportja és az adherált  
viz között kialakuló hidrogénhidak miatt. A jelenség hasonló az  
ecetsav deutériumoxid cseréhez.

A szulfonsavas gyantánál egynél nagyobb szétválasztási tényezőt is találtunk, mert az  $\text{RSO}_3\text{H}$  csoportok egy része  $\text{RSO}_3^-\cdot\text{OH}_3^+$  ionkomplexumot alkot, ennek az ionkomplexumnak a kialakulása azonban gátolt folyamat, és a hőmérséklet emelkedése elősegíti.

Az izotópkicserélődési reakciók olyan kémiai folyamatok, melyekben egy elem atomja két, vagy több kémiai formája között kicserélődik. Az izotópkicserélődés azt mutatja, hogy az izotópok kémiaailag azonosak, az ilyen folyamatoknál  $\Delta H = 0$ . A kicserélődési rendszerben egyensúlykor az entrópia nagyobb, mint a kezdeti rendszerben. A rendszer szabadenergia / F / csökkenése az entrópia változásából számítva:

$$\Delta F = - T \cdot \Delta S$$

Homogén rendszerben számos kicserélődési reakció ismeretes a hidrogén és deutérium között. Így pl. kicserélődés játszódik le a kénsav, ecetsav, szukcinsav karboxilos, a nátriumhidroxid, nádcukor, etanol, fenol és hidroginon hidroxilos hidrogénje és a deutériumoxid között. [1]. Ezek a kísérletek azt mutatják, hogy azon hidrogének cserélhetők ki deutériummal, melyek ionos kötésben vannak, vagy azzá tudnak alakulni /keto forma esetén/. A kovalens kötésben lévő hidrogének cseréje igen lassu, vagy egyáltalán nem történik meg.

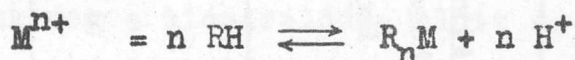
A hidrogén-deutérium kicserélődési reakció érdekes esete a heterogén fázisban történő csere, mert így a kicserélődés értékes felvilágosításokat adhat a heterogén rendszerről.

A hidrogén-deutérium cserét ioncserélő gyantákon arra akaruk felhasználni, hogy egyrészt az ioncserélés mechanizmusát vizsgáljuk meg, másrészt előtanulmányokat végezzünk az ioncserélőkkel katalizált reakciók vizsgálatához, amihez a kicserélődési reakciók ismerete feltétlenül szükséges.

Az ioncserélő gyanták olyan szintetikus polimerek, melyek keresztkötésekkel összetartott hálózati rétegekből állnak, és aktiv /fenolos, szulfonsavas, vagy karboxilos/ csoportokat tartalmaznak. A réteges szerkezet áthatolhatóvá teszi őket vizes oldatok számára, a keresztkötések pedig a mechanikai szilárdságot és az oldhatatlanságot biztosítják. Vizes oldattal érintkezve a gyanta vizet vesz fel és így az oldat kationjai be tudnak



diffundálni a pórusokba, és az aktív csoportok savas hidrogénjei kicserélődhetnek más kationokkal. A kicserélődési reakciót a következő egyenlet szemlélteti:



$M^{n+}$  jelenti a kationt az oldatban és R a gyanta oldhatatlan anion részét. A kicserélődési reakció lassan éri el az egyensúlyt, mert az ionok diffúziója a sav-csoportokhoz és azoktól el, lassu. A gyanta aktivitása a különböző ionokkal szemben nő az ion töltésének és csökken a hidratált ion sugarának növekedésével [2]. Csökkenő aktivitás szerint:  $Th^{4+} > La^{3+} > Ba^{2+} > Cs^+$ , illetve:  $Cs^+ > Rb^+ > K^+ > Na^+ > H^+ > Li^+$ .

### Kísérletek

A kationcserélők savas hidrogénjének kicserélődését vizsgáltuk deutériummal, deutériumoxid oldatban. A kationcserélő gyanták közül a következő típusokat vizsgáltuk: Amberlite Ir-120 és Amberlite IRC-50. A gyanták jellemző adatait az I. táblázat tartalmazza [3].

A kicserélődési reakciókat statikus körülmények között hagytuk végbemenni, azonos gyanta/deutériumoxid sulyarány mellett. A gyantákat őröltük és szitasorozaton szétválasztottuk. Ezután 1%-os kénsavval aktiváltuk két órán keresztül, az esetleg jelenlévő kationok eltávolítására. Szulfátmentesre való mosás után légszárásra szárítottuk. Minden gyantát csak egyszer használtunk fel. A frakciókból minden esetben 2 grammot mértünk be, 50 gramm deutériumoxidos oldattal, /a gyantamennyiség száraz sulyra vonatkozik/ a kivánt ideig ráztuk, majd a gyantát leszűrtük. A gyanták kicserélési kapacitását a hőmérséklet,  $p_H$ ,  $D_2$  koncentráció és a gyanta szemnagysága függvényében vizsgáltuk. A különböző vizsgálatokhoz standardnak a  $71,5^\circ C$ -on,  $p_H=6,0$  mellett,  $0,6-0,45$  mm szemnagyságnál, a  $11,392$  mól %-os oldatban lejátszódó kicserélődést választottuk. /A 6-os  $p_H$  a desztillált vízben oldott széndioxidtól származik/.

### A kicserélődési sebesség és egyensúly mérése

A gyantát a deutériumoxidos oldatban ráztuk és az összetett az idő függvényében analizáltuk. A mérésre két ut lehetséges:

I. táblázat

A gyanták jellemző adatai

Név	Összetétel	A gyár által megadott kapacitás meq/g	Kísérleti kapacitás meq/g				A legmagasabb alkalmazható hőmérséklet <sup>x</sup>	Alkalmazhatósági terület PH-ban
			<sup>m</sup> <sub>H</sub>	<sup>m</sup> <sub>Ht</sub>				
Amberlite IR-120	szulfonsavas polisztirol	4,9 - 5,0	20 C° 4,2	71,5° 4,2	80° 4,2	90° 4,2	121 C°	0 - 14
Amberlite IRC-50	karboxilos poliakrilsav	10,0	10,0	10,0	9,2	8,1	121 C°	7 - 14

<sup>x</sup> A hőmérséklet a gyanta nátrium formájára vonatkozik

a./ direkt módszer, melynél az adott időben a gyanta és az oldat deutérium tartalmát mérjük.

b./ indirekt módszer, amikor az oldat deutérium koncentrációját határozzuk meg a kicserélődés előtt és a kicserélődés után. A két koncentráció különbsége adja meg a gyantán lévő deutérium mennyiségét. Tekintettel arra, hogy kísérleteinkben a direkt módszer igen nehézkes lett volna, /a gyantát elégetve a keletkező vizet kell analizálni/ a gyanta deutérium tartalmát az oldatbeli deutérium-koncentráció változásának méréseivel követtük.

### A deutérium-tartalom meghatározása

A deutérium-tartalom meghatározása uszós sűrűségméréssel történt 25 C°-on, 0,005 C° pontossággal [4]. Nagyobb deutérium koncentráció esetén mindig olyan nehéz uszót választottunk, mely 25 C°-on a kiindulási deutériumoxidban lebegett. A sűrűség átszámítását D<sub>2</sub> mól %-ra és D<sub>2</sub>O s %-ra a következő képletek segítségével végeztük: [5]

$$D_2 \text{ mól } \% = \frac{927,35 \cdot \Delta d}{1 - 0,0329 \cdot \Delta d} \quad D_2O \text{ s } \% = \frac{1027,91 \cdot \Delta d}{\Delta d + 0,997058}$$

$\Delta d$  a minta és a standard víz közötti sűrűségkülönbség /standard a Duna vize/. Igen kis sűrűségkülönbségek esetén a nevezők eltérése 1-től elhanyagolható.

Az oldatot mérésre úgy készítettük elő, hogy a gyantából esetleg kioldódó szerves anyagok elroncsolására lugos KMnO<sub>4</sub>-tal forraltuk, majd kétszer ledesztilláltuk. A KMnO<sub>4</sub>-os roncsolás és a roncsolás nélküli kétszeri desztilláció azonos eredményeket adott [4].

Sósavas és kénsavas oldat esetén, mivel a savak és a deutériumoxid között is kicserélődés lép fel szükséges, hogy a sósav és a kénsav hidrogénjei is belekerüljenek a mérendő oldatba. Ezért az oldatokat szárított magnéziumkarbonáttal reagáltattuk és szárazra desztilláltuk. A törzsoldat deutérium tartalmát is hasonló módon határoztuk meg. Minden adat három párhuzamos kísérlet átlaga.



### A gyanta kapacitásának meghatározása

A gyanták kapacitását úgy határoztuk meg, hogy a kívánt hőfokon  $n/10$  NaOH fölösleget adtunk hozzá, a gyantát leszűrtük és  $n/10$  sósavval visszatitráltuk a z NaOH fölösleget. /A gyanta kapacitása a súlyegységre vonatkoztatott aktív helyek száma, meq/g-ban kifejezve.

### A kicserélődési kapacitás függése a gyanta aktív csoportjainak minőségétől

Standard körülmények között a két kationcserélő kicserélési kapacitását összehasonlítva, /II. táblázat, 1 ábra/ az Amberlite IRC-50 kicserélődési kapacitása nagyobb, mint az Amberlite IR-120-é. Egységnyi kapacitásra átszámítva a gyantán megkötött deutérium mennyiségét  $/m_D/$ , a fenti sorrend megváltozik és a nagyobb kapacitású Amberlite IRC-50-en a deutérium móltörtje  $/X_D/$  kisebb, mint az Amberlite IR-120-on. Ennek az az oka, hogy míg a szulfonsavas gyanták teljesen disszociált belső oldatot képeznek, a karboxilos gyantánál a neutralizációs görbe szerint a disszociáció csak kis mértékű, a gyenge savakhoz hasonlóan. [6]. A gyenge savak affinitása ezért a  $H^+$  ionhoz nagyobb, mint a többi kationhoz.

A kicserélődési sebességet összehasonlítva, a szulfonsavas gyanta kicserélődési sebessége nagyobb, mint a karboxilos gyantáé. Míg Amberlite IR-120 már három óra alatt eléri a végső értéket, az Amberlite IRC-50 csak négy óra után.

### A kicserélődési kapacitás függése a hőmérséklettől

Az ioncserélés végső értékeire a hőmérséklet befolyása általában kicsi, kivételt a neutralizációs reakciók képeznek. A hőmérséklet hatása az oldatok disszociációjában és a cserélő duzzadási állapotában bekövetkező változástól függ. E két hatás következtében a hőmérséklet emelésével nő a kicserélt ion mennyisége. Ha a hőmérséklet növekedésével a gyantáról aktív csoportok hasadnak le, a hőmérséklet emelése ellenkező hatású a kicserélődésre.

A kicserélődési sebességre a hőmérséklet hatása akkor lényeges, ha a diffúzió a sebességmeghatározó lépés.

20 C<sup>o</sup>-on nincs mérhető kicserélődés a kationcserélők és a deutériumoxid között. A hőmérséklet emelésével azonban nő a

II. táblázat

A kicserélő kapacitás függése a gyanta minőségétől

Kiindulási koncentráció  $11,392 \pm 0,0005$  mól %  $D_2$  /  $X_0$  /      2 g gyanta + 50 g oldat.      0,6-0,45 mm      71,5 °C       $P_H = 6,0$

A = Amberlite IR-120      B = Amberlite IRC-50

Rázási idő	Az oldat deutérium-tartalom csökkenése mól % $\pm 0,0005$ / $\Delta X$ /		A gyanta deutérium tartalma / $m_D$ / meq/g		$X_D = \frac{m_D}{m_H}$		$X_D' = \frac{m_D}{3m_H}$		$\alpha$		$\alpha'$
	A	B	A	B	A	B	A	A	B	A	
1 óra	0,0074	0,0103	0,2029	0,2825	0,04830	0,02825	0,01610				
2 óra	0,0140	0,0201	0,3840	0,5513	0,09142	0,05513	0,03047				
3 óra	0,0166	0,0219	0,4553	0,6007	0,1084	0,06007	0,03613				
4 óra	0,0165	0,0233	0,4525	0,6391	0,1077	0,06391	0,03590				
6 óra	0,0167	0,0237	0,4580	0,6500	0,1090	0,06500	0,03633	0,9532	0,5421	0,2937	

deutériumoxid disszociációja és meggyorsul a  $D_3O^+$  ionok diffúziója a gyanta belsejében, emiatt nagyobb kicserélődési sebesség és végső érték várható a hőmérséklet emelésével.

Amberlite IR-120-nál a  $90\text{ C}^\circ$ -on mért kicserélődési kapacitás valóban nagyobb, mint  $71,5\text{ C}^\circ$ -on, azonban az Amberlite IRC-50-nél a helyzet fordított. Mindkét gyantánál magasabb hőmérsékleten a kicserélődési sebesség nagyobb. /III. táblázat. 2. ábra/

Az Amberlite IRC-50-nél mutatkozó eltérés oka az, hogy a karboxilos gyanta a hőmérsékletre érzékenyebb, és a hőmérséklet emelésével bizonyos hőfokon túl, az aktív helyek száma csökken. Irodalmi adatok szerint mind az Amberlite IR-120, mind az Amberlite IRC-50  $121\text{ C}^\circ$ -ig használható, azonban ezek az adatok a gyanta nátrium formájára vonatkoznak /I. táblázat/.

Az aktív helyek számának csökkenését titrálással is ellenőriztük úgy, hogy  $20, 71,5, 80$  és  $90\text{ C}^\circ$ -on meghatároztuk a gyanták kapacitását. Amberlite IR-120-nál a négy hőmérsékleten mért kapacitás megegyezett a  $20\text{ C}^\circ$ -on mérttel, de  $80$  és  $90\text{ C}^\circ$ -on már kisebb kapacitás mutatkozott. /I. táblázat/.

Ha kísérleti hőmérsékleten mért kisebb kapacitással számítjuk ki a deutérium móltörtjét a gyantán  $X_{Dt}$ , a  $80$  és  $90\text{ C}^\circ$ -on nyert értékek valóban nagyobbak a  $71,5\text{ C}^\circ$ -on kapott értékeknél.

A kicserélődés végső értékeit ábrázolva a hőmérséklet függvényében, /3. ábra/ Amberlite IR-120-nál a végső mennyiség nő a hőmérséklettel, Amberlite IRC-50-nél a végső értékeknek  $75\text{ C}^\circ$  körül maximuma van.

A végső móltörteket ábrázolva a hőmérséklet függvényében, Amberlite IRC-50-nél  $X_D$ -nek  $75\text{ C}^\circ$  körül szintén maximuma van, míg  $X_{Dt}$  a hőmérséklet növekedésével nő.

#### A kicserélődési kapacitás függése az oldat $p_H$ -jától.

A hidrogénion koncentráció változása az oldatban, a kationcserélőkre általában kétféle hatással van: a  $p_H$  változásával megváltozik a gyanták duzzadása és az aktív csoportok disszociációja. Irodalmi adatok szerint szulfonsavas gyanták kapacitása általában független az oldat  $p_H$ -jától. A kationcserélők magasabb  $p_H$ -nál jobban duzzadnak, miáltal a belső felület a részecskék számára jobban hozzáférhető lesz. A duzzadás  $p_H$  függése miatt néhány esetben a szulfonsavas gyanta kapacitása is kis



III. táblázat

A kicserélő kapacitás függése a hőmérséklettől

Kiindulási koncentráció  $11,392 \pm 0,0005$  mol %  $D_2 / X_0 /$  2 g gyanta + 50 g oldat

$p_H = 6,0$

0,6–0,45 mm szemmagyság

a./ Amberlite IR-120

Részési idő	Az oldat deutérium-tartalom csökkenése $\Delta X /$ mol % $\pm 0,0005$			A gyanta deutérium tartalma $m_D /$ meq/g			$X_D = \frac{m_D}{m_H}$			$X_{D'} = \frac{m_D}{3 m_H}$			$\alpha$			$\alpha'$	
	20 C°	71,5 C°	90 C°	20 C°	71,5 C°	90 C°	20 C°	71,5 C°	90 C°	20 C°	71,5 C°	90 C°	20 C°	71,5 C°	90 C°	71,5 C°	90 C°
30 perc	—	—	0,0120	—	—	0,3291	—	—	0,0783	—	—	0,0261					
1 óra	0	0,0074	0,0166	0	0,2029	0,4553	0	0,04830	0,1084	0	0,01610	0,03613					
2 óra	0	0,0140	0,0208	0	0,3840	0,5705	0	0,09142	0,1358	0	0,03047	0,04526					
3 óra	0	0,0166	0,0215	0	0,4553	0,5897	0	0,1084	0,1409	0	0,03613	0,04680					
4 óra	0	0,0165	0,0210	0	0,4525	0,5760	0	0,1077	0,1371	0	0,03590	0,04570					
6 óra	0	0,0167	0,0213	0	0,4580	0,5842	0	0,1090	0,1390	0	0,03633	0,04633	0	0,9532	1,2589	0,2937	0,3789
		60 C°	80 C°		60 C°	80 C°		60 C°	80 C°		60 C°	80 C°		60 C°	80 C°	60 C°	80 C°
6 óra		0,0138	0,0194		0,2572	0,5321		0,06123	0,1266		0,02041	0,04240		0,5075	1,1293	0,1621	0,3450

III. táblázat

b./ Amberlite IRC-50

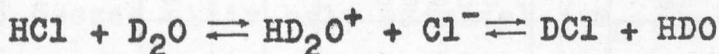
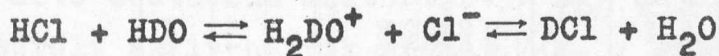
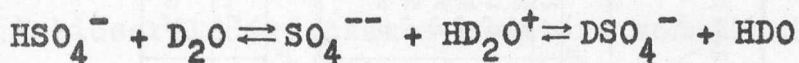
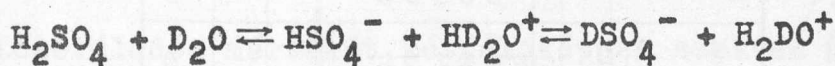
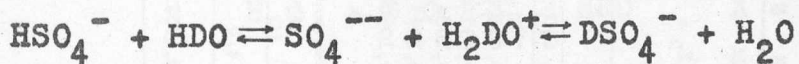
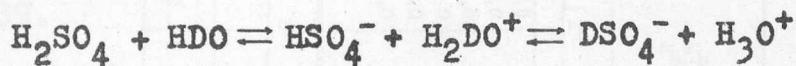
Rázási idő	Az oldat deutérium-tartalom csökkenése / $\Delta X$ / mól % $\pm 0,0005$			A gyanta deutérium tartalma / $m_D$ / meq/g			$X_D = \frac{m_D}{m_H}$			$X_{Dt} = \frac{m_D}{m_{Ht}}$		$\alpha$			$\alpha_t$
	20 c°	71,5 c°	90 c°	20 c°	71,5 c°	90 c°	20 c°	71,5 c°	90 c°	71,5 c°	90 c°	20 c°	71,5 c°	90 c°	90 c°
1 óra	0	0,0103	0,0121	0	0,2825	0,3342	0	0,02825	0,03342	0,02825	0,04127				
2 óra	0	0,0201	0,0173	0	0,5513	0,4745	0	0,05513	0,04745	0,05513	0,05858				
3 óra	0	0,0219	0,0195	0	0,6007	0,5348	0	0,06007	0,05348	0,06007	0,06602				
4 óra	0	0,0233	0,0202	0	0,6391	0,5540	0	0,06391	0,05540	0,06391	0,06839				
6 óra	0	0,0237	0,0202	0	0,6500	0,5540	0	0,06500	0,05540	0,06500	0,06839	0	0,5421	0,4570	0,5721
		60 c°	80 c°		60 c°	80 c°		60 c°	80 c°	60 c°	80 c°		60 c°	80 c°	80 c°
6 óra		0,0145	0,0227		0,3977	0,6226		0,03977	0,06226	0,03977	0,6767		0,3227	0,5178	0,5661

mértékben változhat az oldat  $p_H$ -jával [7].

Karboxilos gyantánál a kapacitás nő a  $p_H$  növekedésével, ugyanis a gyanta jobban duzzad, és a belső oldatban a disszociált karboxil csoportok számát is az oldat  $p_H$ -ja határozza meg. /6/.

A belső oldatban mutatkozó disszociáció eltérés a két gyanta sűrűségének különbözőségéből adódik. Ugyanis az ioncserélők sűrűségét cukorinverzióval meghatározva, a szulfonsavas gyanta látszólagos sűrűsége a sósav és a monoklórecetsav között van, közel a monoklórecetsavéhoz. A karbonsavas gyanták sűrűségét a hangyasav és az ecetsav között találták. A sűrűség vizsgálatok is azt bizonyítják, a neutralizációs görbék tanulmányozásával együtt, hogy a szulfonsavas gyanták erős savként, a karboxilos gyanták pedig gyenge savként viselkednek.

A deutérium-hidrogén cserénél a  $p_H$  fenti hatása mellett az oldatban jelenlevő sósavnak, ill. kénsavnak a fentiekén kívül más szerepe is lehet. A deutériumoxid és a két sav között ugyanis kicserélődés játszódik le: [8]



Az ionizáció és a kicserélődés következtében a deutériumoxid részben belekerül a sósavba és a kénsavba, illetve az önmagában alig disszociáló deutériumoxid helyett  $K_{D_2O} = 0,33 \cdot 10^{-14}$  / deutériumtartalmu ionok vannak az oldatban. A nagyobb deutériumion koncentráció miatt a végső értékeket gyorsabban kapjuk meg, és a kicserélődési kapacitás is megváltozhat, ha a deuteriosavak hatása nagyobb, mint a hidrogénionkoncentráció belső disszociációt csökkentő hatása.



IV. táblázat

A kicserélődési kapacitás függése az oldat  $p_H$ -jától. /HCl/.

Kiindulási koncentráció  $11,392 \pm 0,0005$  mól %  $D_2 \cdot /X_0/$ . 2 g gyanta + 50 g oldat. 71,5 C°. 0,6-0,45 mm szemmagyság  
a./ Amberlite IR-120

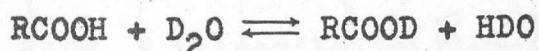
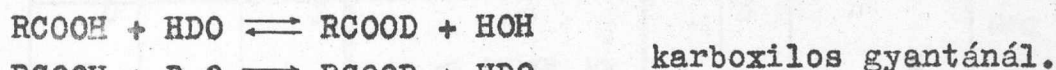
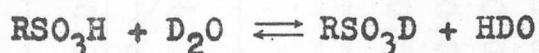
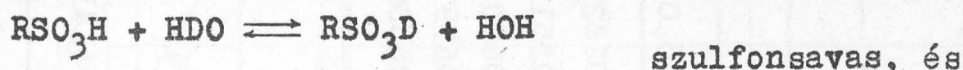
Rázási idő	Az oldat deutérium-tartalom csökkenése mól % $\pm 0,0005 / \Delta X/$		A gyanta deutérium tartalma / $m_D /$ meq/g		$X_D = \frac{m_D}{m_H}$		$X'_D = \frac{m_D}{3 m_H}$		$\alpha$		$\alpha'$	
	$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$	
	6,0	2,2	6,0	2,2	6,0	2,2	6,0	2,2	6,0	2,2	6,0	2,2
30 perc	---	0,0109	---	0,2989	---	0,07116	---	0,02372				
1 óra	0,0074	0,0166	0,2029	0,4553	0,04830	0,1084	0,01610	0,03613				
2 óra	0,0140	0,0208	0,3840	0,5705	0,09142	0,1358	0,03047	0,04526				
3 óra	0,0166	0,0216	0,4553	0,5924	0,1084	0,1404	0,03613	0,04680				
4 óra	0,0165	0,0212	0,4525	0,5815	0,1077	0,1384	0,03590	0,04613				
6 óra	0,0167	0,0219	0,4580	0,6007	0,1090	0,1430	0,03633	0,04766	0,9532	1,3010	0,2937	0,3903
	$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$	
	4,0	1,0	4,0	1,0	4,0	1,0	4,0	1,0	4,0	1,0	4,0	1,0
6 óra	0,0204	0,0223	0,5596	0,6116	0,1332	0,1456	0,04440	0,04853	1,1971	1,3291	0,3621	0,3978

Sósavas és kénsavas deutériumoxidos oldat esetén a szulfonsavas gyantánál valóban nagyobb kapacitást és gyorsabb végső állapotot kaptunk. A karboxilos gyantánál azonban a  $p_H$  csökkenésével csökken a kapacitás, bár a végső állapot itt is gyorsabban áll be./ IV. táblázat, 4,6 ábra/.

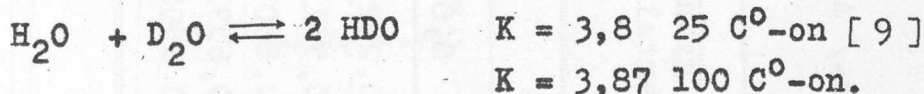
Az Amberlite IR-120-nál a végső koncentráció a  $p_H$  csökkenésével nő, és  $p_H = 2,0$ -nél telítésbe megy át. A kénsavas csere végső értékei nagyobbak a sósavasénál. /5.a és 7.a ábra/.

### Értékelés

A kationcserélők és a deutériumoxid között a következő kicserélődések játszódnak le:



A  $H_2O$  és  $D_2O$  között fennálló egyensúly miatt a 11,392 mól %-os oldatban a deutérium tartalmu molekulákból a HDO hányadosa 0,939.

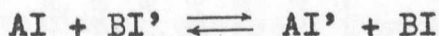


A kicserélődés mértékét kétféleképpen szokták megadni:

a./ A kicserélődést csak a gyantára vonatkoztatják és a gyantán lévő deutérium móltörtjét /  $X_D$  / adják meg. Móltört alatt a kicserélt aktiv helyek számát /  $m_D$  / értjük, osztva a gyantán lévő összes aktiv hely számával /  $m_H$  /, I. táblázat/.  $m_D$ -t és  $m_H$ -t meq/g-ben adtuk meg [10]

b./ A kicserélődést a szétválasztási tényezővel jellemzik /  $\alpha$  /, mely egyensúlyban a gyantán lévő deutérium/hidrogén arány, osztva az oldatban jelenlévő deutérium/hidrogén arányával [11].

Ha

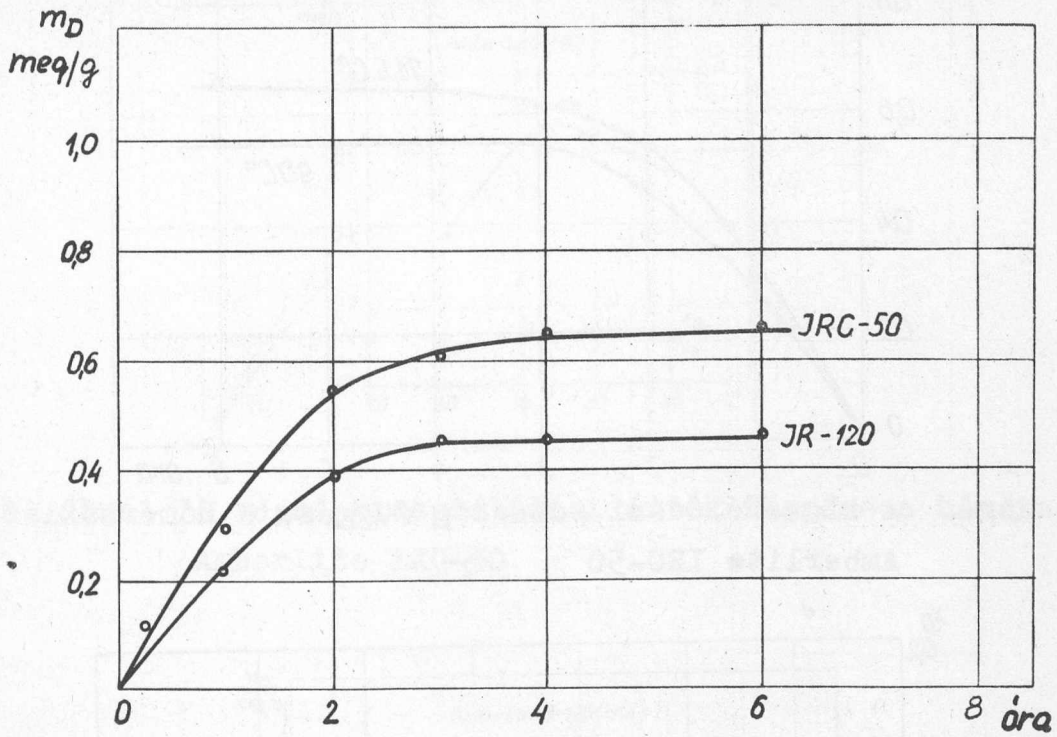


csere játszódik le, a szétválasztási tényező

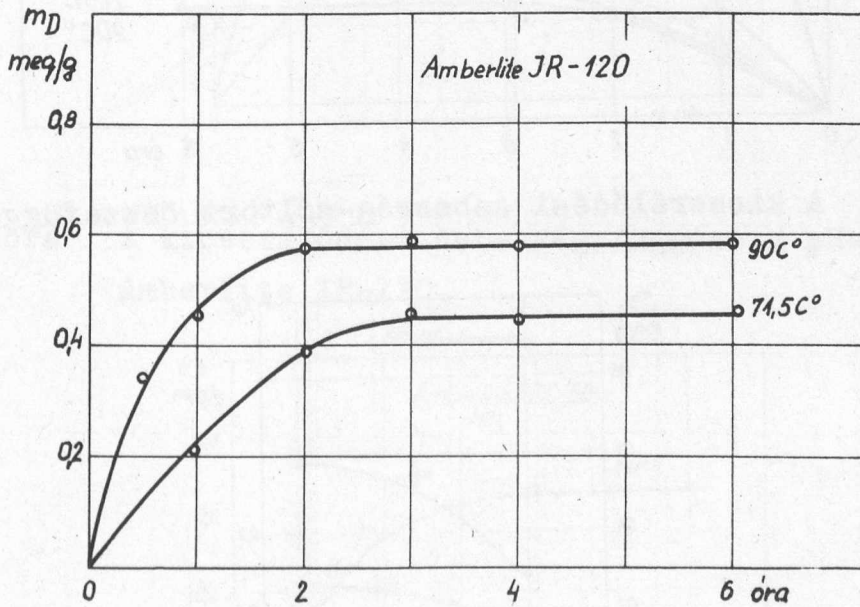
IV. táblázat  
b./ Amberlite IRC-50

Rázási idő	Az oldat deutérium tartalom csökkenése mól % $\pm 0,0005 / \Delta X /$		A gyanta deutérium tartalma / $m_D /$ meq/g		$X_D = \frac{m_D}{m_H}$		$\alpha$	
	$P_H$		$P_H$		$P_H$		$P_H$	
	6,0	2,2	6,0	2,2	6,0	2,2	6,0	2,2
1 óra	0,0103	0,00741	0,2825	0,2032	0,02825	0,02032		
2 óra	0,0201	0,0103	0,5513	0,2835	0,05513	0,02825		
3 óra	0,0219	0,0120	0,6007	0,3291	0,06007	0,03291		
4 óra	0,0233	0,0114	0,6391	0,3127	0,06391	0,03127		
6 óra	0,0237	0,0120	0,6500	0,3291	0,06500	0,03291	0,5421	0,2649
	$P_H$		$P_H$		$P_H$		$P_H$	
	4,0	5,0	4,0	5,0	4,0	5,0	4,0	5,0
6 óra	0,0151	0,0179	0,4141	0,4909	0,04141	0,04909	0,3366	0,4023

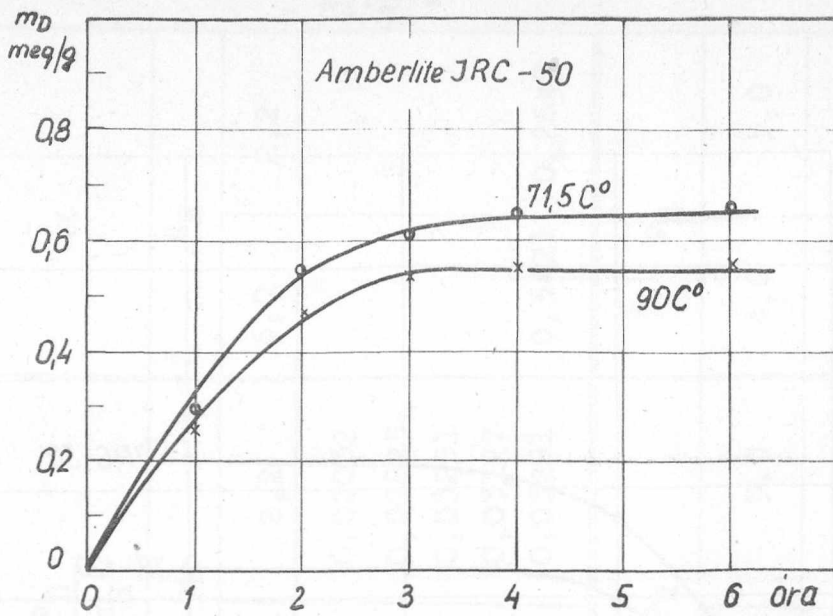




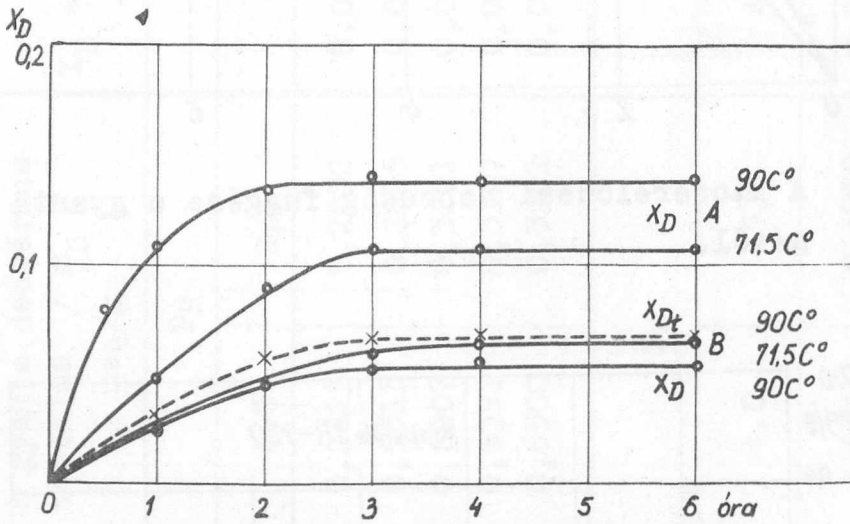
1. ábra A kicserélődési sebesség függése a gyanta minőségétől.



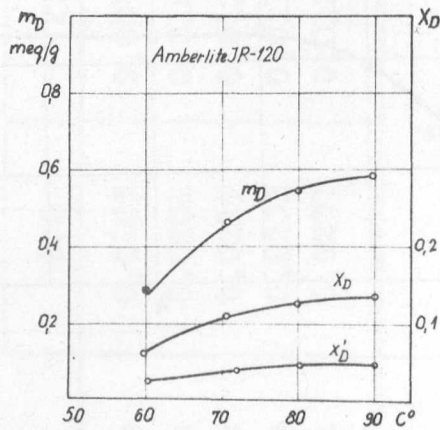
2.a ábra. A kicserélődési sebesség függése a hőmérséklettől Amberlite IR-120



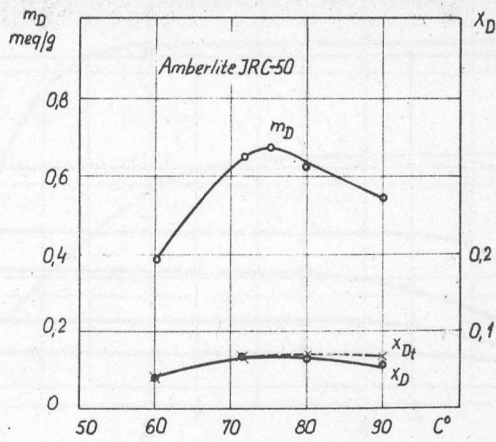
2.b. ábra. A kicserélődési sebesség függése a hőmérséklettől  
Amberlite IRC-50



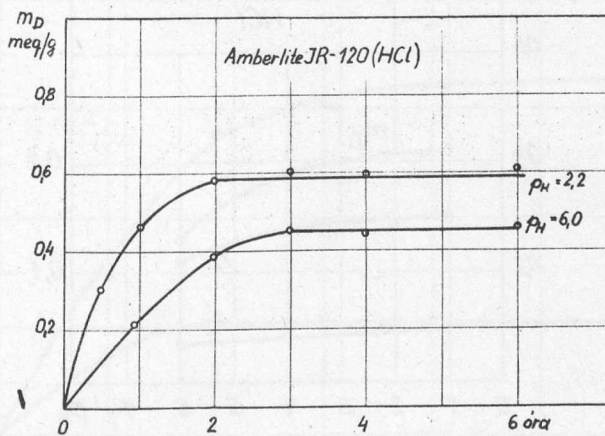
2.c. ábra A kicserélődési sebesség-móltört összefüggése



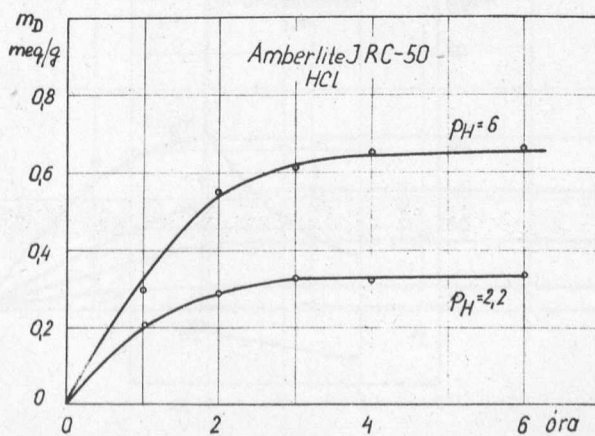
3.a. ábra A végső kicserélődési érték függése a hőmérséklettől  
Amberlite IR-120



3.b. ábra A végső kicserélődési érték függése a hőmérséklettől Amberlite IRC-50

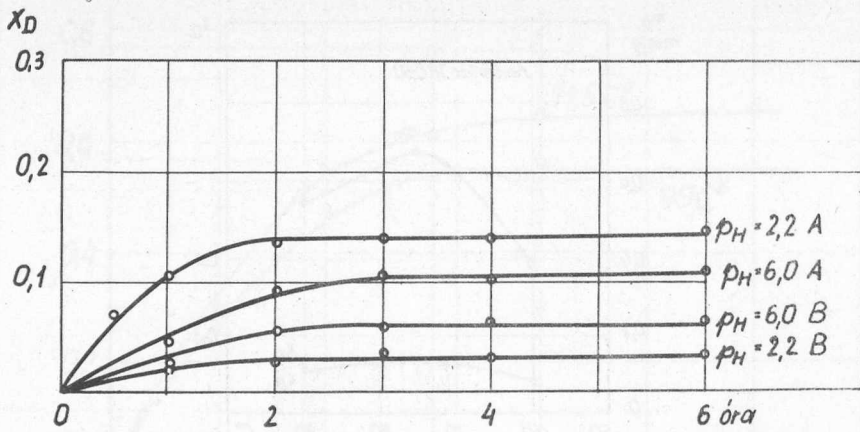


4.a ábra A kicserélődési sebesség függése a pH-tól./HCl/ Amberlite IR-120.

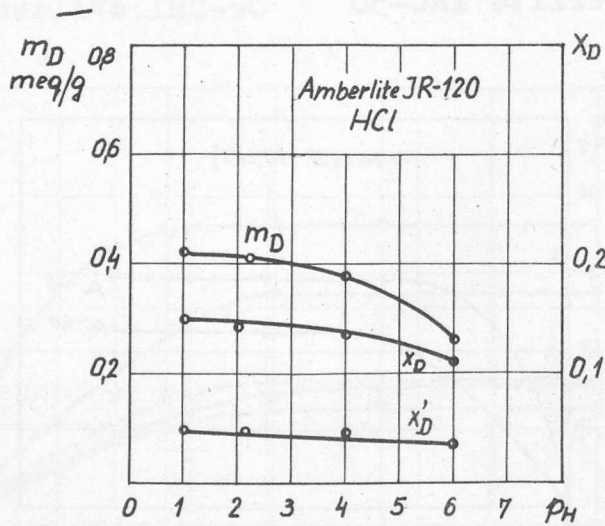


4.b. ábra Amberlite IRC-50.

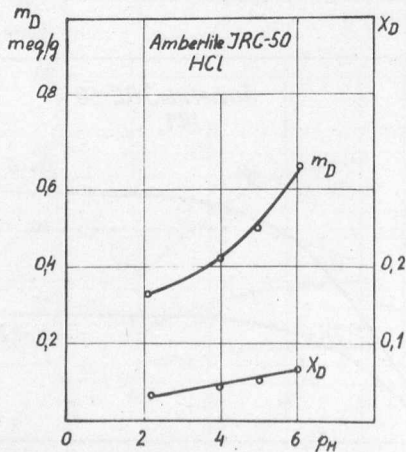




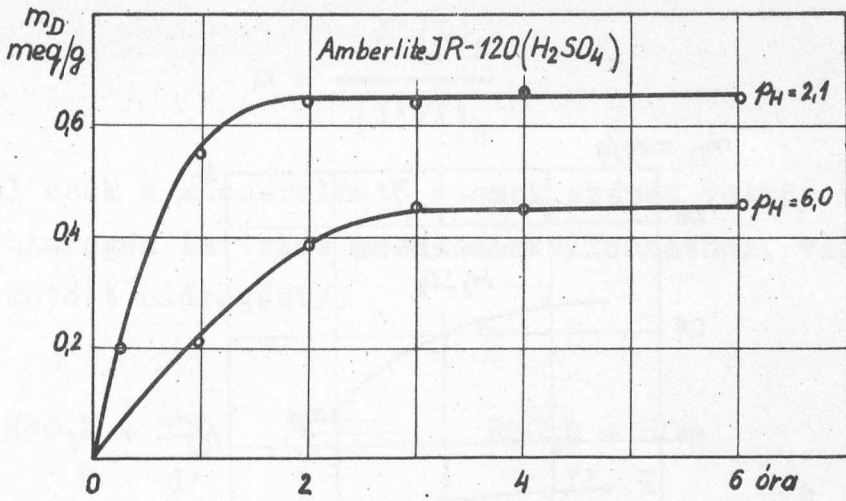
4.c ábra A kicserélődési sebesség - móltört összefüggés



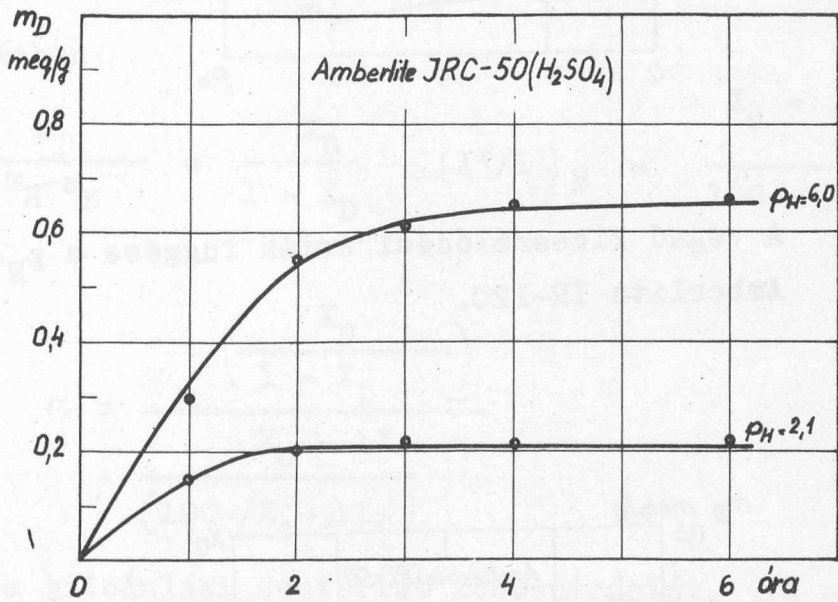
5.a ábra A végső kicserélődési érték függése a  $p_H$ -tól./HCl/ Amberlite IR-120



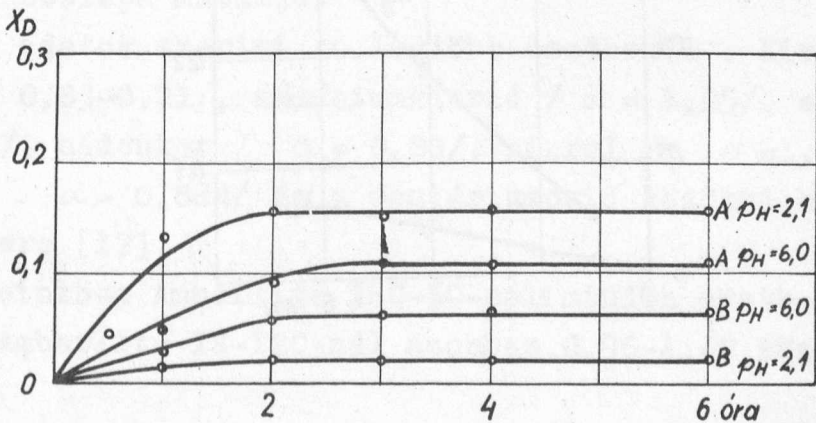
5.b ábra Amberlite IRC-50.



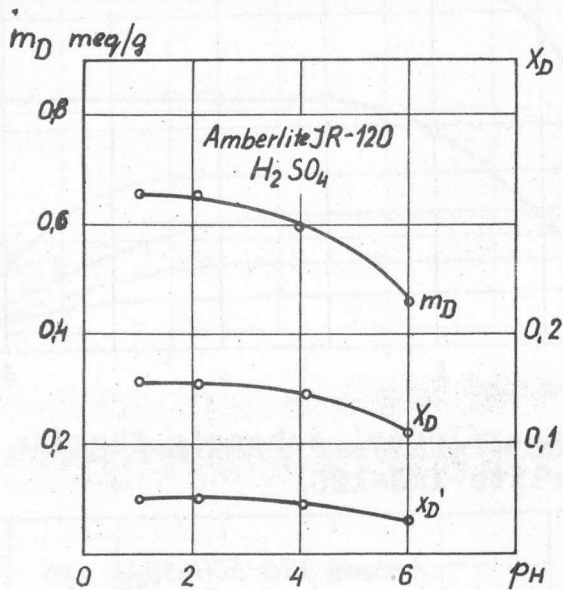
6.a ábra A kicserélődési sebesség függése a p<sub>H</sub>-tól /H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/ Amberlite IRC-120.



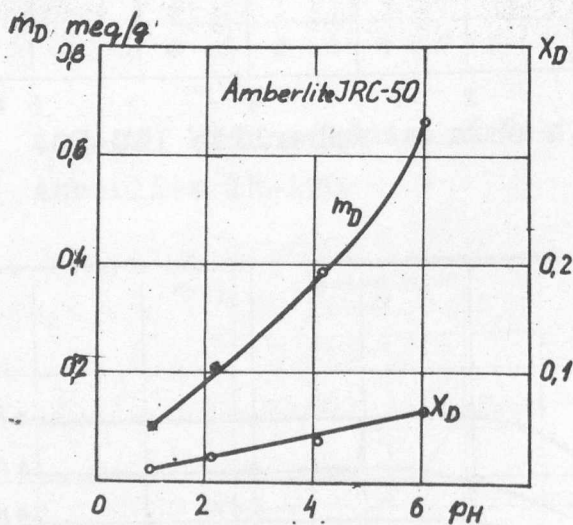
6.b ábra Amberlite IRC-50.



6.c ábra A kicserélődési sebesség -móltört összefüggés.



7.a ábra A végső kicserélődési érték függése a  $p_H$ -től  $/H_2SO_4/$ .  
Amberlite IR-120.



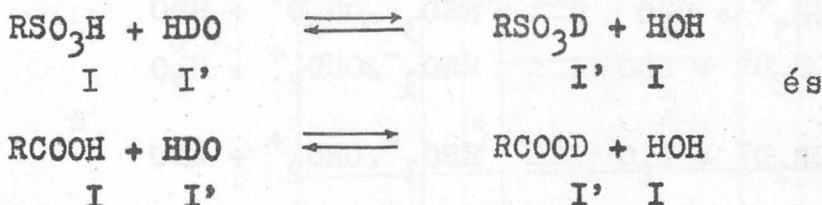
7.b ábra Amberlite IR-50.



$$\alpha = \frac{(I'/I)_A}{(I'/I)_B}$$

I értékénél csak a kicserélhető atomok számát vettük figyelembe. /A gyanta hidrogén tartalma közül a szulfonsavhoz, vagy a karbonsavhoz kötött hidrogént/.

Az



kicserélődésben:

$$(I'/I)_A = \frac{m_D}{m_H - m_D} = \frac{x_D}{1 - x_D} \quad (I'/I)_B = \frac{x_0 - \Delta x}{100 - /x_0 - \Delta x/}$$

$$\alpha = \frac{\left( \frac{x_D}{1 - x_D} \right)}{\frac{x_0 - \Delta x}{(100 - /x_0 - \Delta x/ )}}$$

$x_0$  jelenti a kiindulási deutérium koncentrációt,  $\Delta x$  az oldat deutérium tartalom csökkenését mól %-ban.  $\alpha$  értékét a táblázatok utolsó oszlopa mutatja.

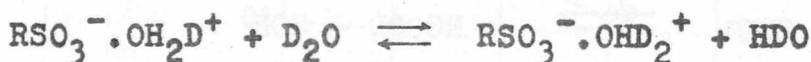
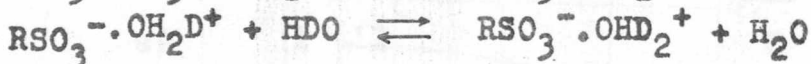
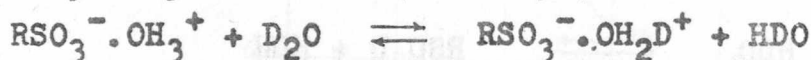
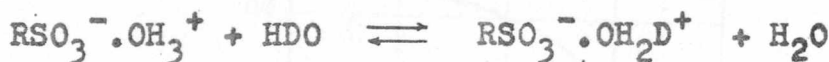
Irodalmi adatok szerint  $\alpha$  legtöbb esetben 1. Kivétel az aceton /  $\alpha = 0,83-0,71/$ , ammóniumklorid /  $\alpha = 1,25/$ , ecetsav /  $\alpha = 0,45/$ , nádcukor /  $\alpha = 0,83/$ , pirrol /  $\alpha = 1,25/$ , hidrokinon /  $\alpha = 0,884/$  és a deutériumoxid közötti hidrogén - deutérium csere [12].

Kísérleteinkben Amberlite IRC-50-nél minden esetben  $\alpha$  kisebb 1-nél, Amberlite IR-120-nál azonban 0,96-1,42 között változik.

Az 1-nél kisebb szétválasztási tényező arra mutat, hogy a hidrogén-deutérium csere kinetikailag gátolt folyamat. Ezt bizonyítja a kicserélődés hőmérséklettől való függése is. Hasonló jelenséget találtak naftalin és DBr cserénél is [13], melynél

$\alpha$  szintén függ a hőmérséklettől, 0 C°-on 0,32; 20 C°-on 0,33; 50 C°-on 0,38 és 70 C°-on 0,71.

Hogy a szulfonsavas gyantánál  $\alpha > 1$  is van, nyilván azzal függhet össze, hogy a teljes belső disszociáció miatt a csere-reakciók tulajdonképpen a következők:



Az egyenletek szerint világos, hogy a szulfonsavas gyantán 3  $m_H$  hely van. A szulfonsavas gyanta  $X_D$  értékei hárommal osztva  $/X_D'$  és  $\alpha$ -t így kiszámítva  $/\alpha'$ , minden esetben egynél kisebb értékeket kapunk.

Az egyensúly el nem érésének valószínű oka az, hogy az  $\text{RSO}_3^-. \text{OH}_3^+$  ion komplexum kialakulása a gátolt folyamat. Az ion cserélő gyanták ugyanis különböző formában megkötött vizet tartalmaznak /alkati, hidrát vagy duzzadási víz/. A gyanta vízfelvétele változik a megkötött ion minőségével is, mert egyes ionok hidrátvíz burkukat is magukkal viszik.

A szulfonsavas gyanták nagy mértékben, a karboxidos gyanták csekély mértékben duzzadnak.

A gyanta légszárásra való szárításakor az adszorbeált víz egy része eltávozik. A gyanta szárítása részben irreverzibilis folyamat, mert csökken a duzzadási képesség, esetleg aktív csoportok hasadnak le, szemcsefelület kisebbedés történik, mely jelenségek kapacitáscsökkenést okoznak.

A gyanta kapillárisaiban a szárítás után visszamaradó víz/kb. 20%/ számítás szerint elég lenne arra, hogy minden  $\text{RSO}_3\text{H}$  csoportból  $\text{RSO}_3^-. \text{OH}_3^+$  ionkomplexumot hozzon létre, de valószínűleg nem elég arra, hogy a kapillárisokat is kitöltse vízzel és a gyanta duzzadt állapotban legyen. Ezért valójában a  $\text{RSO}_3\text{H}$  csoportoknak csak egy része van eredetileg  $\text{RSO}_3^-. \text{OH}_3^+$  alakban.

V. táblázat

A kicserélési kapacitás függése az oldat  $p_H$ -jától.  $/H_2SO_4/$ .

Kiindulási koncentráció  $11,392 \pm 0,0005$  mól %  $D_2$  /  $X_0$  /.

2 g gyanta + 50 g oldat.

71,5 C°.

0,6-0,45 mm szemmagyság

a./ Amberlite IR-120.

Részéside	Az oldat deutérium-tartalom csökkenése mól % $\pm 0,005 / \Delta X /$		A gyanta deutérium tartalma / $m_D /$ meq/g		$X_D = \frac{m_D}{m_H}$		$X_D' = \frac{m_D}{3 m_H}$		$\alpha$		$\alpha'$	
	$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$	
	6,0	2,1	6,0	2,1	6,0	2,1	6,0	2,1	6,0	2,1	6,0	2,1
30 perc	---	0,00721	---	0,1977	---	0,04707	---	0,01569				
1 óra	0,0074	0,0198	0,2029	0,5431	0,04830	0,1293	0,01610	0,04311				
2 óra	0,0140	0,0234	0,3840	0,6418	0,09142	0,1528	0,03047	0,05093				
3 óra	0,0166	0,0230	0,4553	0,6308	0,1084	0,1509	0,03613	0,05030				
4 óra	0,0165	0,0237	0,4525	0,6500	0,1077	0,1547	0,03590	0,05176				
6 óra	0,0167	0,0233	0,4580	0,6391	0,1090	0,1521	0,03633	0,05070	0,9532	1,3985	0,2937	0,4165
	$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$		$p_H$	
	4,1	1,0	4,1	1,0	4,1	1,0	4,1	1,0	4,1	1,0	4,1	1,0
6 óra	0,0216	0,0237	0,5924	0,6500	0,1410	0,1547	0,04700	0,5156	1,2800	1,4274	0,3845	0,4240



V. táblázat  
b./ Amberlite IRC-50

Rázási idő	Az oldat deutérium-tartalom csökkenése / $\Delta X$ / móli % $\pm 0,0005$		A gyanta deutérium tartalma / $m_D$ / meq/g		$X_D = \frac{m_D}{m_H}$		$\alpha$	
	$P_H$		$P_H$		$P_H$		$P_H$	
	6,0	2,1	6,0	2,1	6,0	2,1	6,0	2,1
1 óra	0,0103	0,00540	0,2825	0,1481	0,02825	0,01481		
2 óra	0,0201	0,00757	0,5513	0,2076	0,05513	0,02076		
3 óra	0,0219	0,00793	0,6007	0,2175	0,06007	0,02175		
4 óra	0,0233	0,00757	0,6391	0,2076	0,06391	0,02076		
6 óra	0,0237	0,00793	0,6500	0,2175	0,06500	0,02175	0,5421	0,1731
	$P_H$		$P_H$		$P_H$		$P_H$	
	4,1	1,0	4,1	1,0	4,1	1,0	4,1	1,0
6 óra	0,0138	0,00360	0,3785	0,09874	0,03785	0,009874	0,3065	0,0776

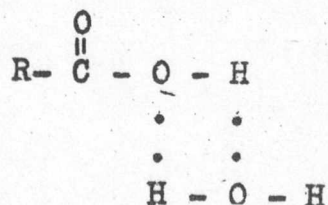
A  $D_2O$  oldat hozzáadásakor a gyantán megkezdődik a még hiányzó  $RSO_3^-.OH_3^+$  csoportok kialakulása és ezt a folyamatot a hőmérséklet emelése elősegíti.

Az aktív csoportok egy részénél a fenti jelenségen kívül még sztérikus gátlás is van, amely miatt a kapacitás kisebb, mint a kész gyanta analizise által megadott érték.

A szulfonsavas cserélőkön lejátszódó hidrogén-deutérium csere és a hidratált polivolframátokon lejátszódó izotopcsere között bizonyos analogiát lehet találni. Ugyanis Szpicin és Bereszkinia [14] 2,3 mól százalékos  $D_2O$  oldatban a  $Na_{10}W_{12}O_{41} \cdot 27,43 H_2O$  és a  $D_2O$  között lejátszódó cserét vizsgálta.  $20\text{ }^\circ\text{C}$ -on gyors csere történt és 12 óra alatt a kicserélődés teljes.  $100\text{ }^\circ\text{C}$ -on a csere sebessége nagyobb. Ha azonban részben dehidratálják a sót, pl.  $Na_{10}W_{12}O_{41} \cdot 9,4 H_2O$ -t állítanak elő szobahőmérsékleten nem történik csere, de  $100\text{ }^\circ\text{C}$ -on a csere sebessége nagyobb.

A karboxilos gyantáknál más a helyzet. A kis mértékben disszociáló  $COOH$  csoportok miatt itt nem tud kialakulni a  $COO^-.OH_3^+$  szerkezet, tehát itt egynél nagyobb  $\alpha$  nem is várható. A karboxilos gyanták ellentétben a szulfonsavas gyantákkal, kis mértékben duzzadnak.

Az egynél kisebb szétválasztási tényező magyarázata feltehetően az, hogy a karboxilos gyanta az adherát víz segítségével hidrogénhidakat alakít ki, az ecetsav vizes oldatához hasonlóan:



A két jelenség hasonlatosságát mutatja az az érdekes eredmény is, hogy az ecetsav  $D_2O$  közötti cserénél  $\alpha = 0,45$ . Irodalmi adatok szerint mindazoknál a hidrogén-deutérium cseréknél, ahol gyengén savas csoportok vesznek részt a cserében, /fenol, ecet-

sav stb./ $\alpha$  mindig lényegesen kisebb egynél.

A következő kísérleteinkben a hidrogén-deutérium kicserélődést fogjuk megvizsgálni az ioncserélő gyanta szemnagysága és az oldat deutérium tartalmának függvényében.

E helyen is köszönetet mondok Simonyi Károly egyetemi tanárnak, aki munkámat mindvégig figyelemmel kísérte és tanácsaival támogatta. Köszönettel tartozom még Trencsényi Dezsőné technikai munkatársamnak a kísérleti munka elvégzésében nyújtott segítségéért.

Külön köszönettel tartozom Schay Géza akadémikusnak, aspiránsvezetőmnek, aki hasznos észrevételeivel munkámat állandóan segítette.



I r o d a l o m

- [1] US Atomic Energy Com. NBS-4611 80 oldal /1956/.
- " " " " NBS-4674 25 " /1956/.
- " " " " NBS-4712 18 " /1956/.
  
- [2] Samuelson O.: Ion Exchangers in Analytical Chemistry, John Wiley Sons, New York /1952/. 35 old.
  
- [3] Nachod F.C.- J. Schubert: Ion Exchange Technology, Academic Press Inc. Publishers, New York /1956/. 24 oldal
  
- [4] Czike Kálmán-F.Csányi Pirooska: Magyar Kémiai Folyóirat, 61. 385 /1955/.
  
- [5] Kirshenbaum I.: Physical Properties and Analysis of Heavy Water Mc Graw-Hill Book Company, Inc New-York /1951/. 14 oldal
  
- [6] Griessbach R.: Austauschadsorption in Theorie und Praxis, Akademie Verlag Berlin /1957/. 278 o.
  
- [7] Griessbach R.: 233 oldal
  
- [8] Serserer Zs.M., A.I. Brodzkij: Acta Physicochim.URSS, 2,603 /1935/.
  
- [9] Libby W.F.: J.Chem.Phys. 11,101 /1943/.
  
- [10] Erdey-Gruz Tibor-Schay Géza: Elméleti Fizikai Kémia. II. 394 oldal
  
- [11] Augood D.R.: Nature 178, 754 /1956/.
  
- [12] Brodzkij A.I.: I.Phys.Chem.USSR 9,755 /1937/.
  
- [13] Varsavszkij Y.A.M.: Zsur.Fiz.Him. 30,1646 /1956/.
  
- [14] Szpicin V.I., Yua.F.Berezkina: Dokladi Akad.Nauk. SSSR. 108,1088 /1956/.

Érkezett 1958 január 28.

## $10^{-6}$ SEC FELBONTÓKÉPESSÉGŰ DEKADIKUS IMPULZUSOSZTÓ

Irta: Bakos József

Kozmikus Sugárzási Osztály

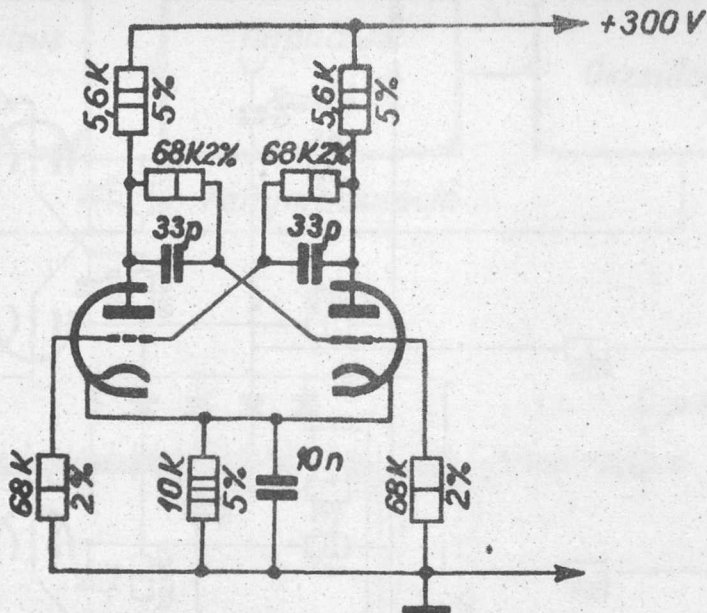
### Összefoglalás

Hazai alkatrészekkel megépített kapcsolást ismertettünk és kitérünk a berendezés ellenőrzési módszerének leírására.

Elektronsokszorozóval végzett mérésekben felmerül az igény, hogy nagy beütésszám/sec-ot számoljunk le. A beütésszám/sec felső határát elvileg az elektronsokszorozó saját impulzushossza szabja meg  $/10^{-9}$  sec/, ugyanakkor azonban a gyakorlatban a hozzátalazó erősítő sávzélessége, illetve az impulzusosztó felbontóképessége általában jóval kisebb annál, hogy ki lehetne használni az elektronsokszorozó által lehetővé tett nagy számolási sebességet. Egyre inkább az tehát a fejlődés iránya, hogy nagy sávzélességű erősítőt és nagy felbontóképességű impulzusosztót fejlesszenek ki.

A külföldi iparilag gyártott műszerekbe általánosan  $10^{-6}$  sec felbontóképességű leosztókat építenek be. Ez a határ - holott gyorsabb, speciális kapcsolások is ismeretesek [1] - onnan adódik, hogy ezen érték a csövek és kapcsolási elemeinek megfelelő megválasztásával klasszikus kapcsolatban elérhető. A most ismertető kapcsolás is ezen típusba tartozik. A szerző legjobb ismerete szerint hazánkban még ilyen felbontású osztó nem készült.

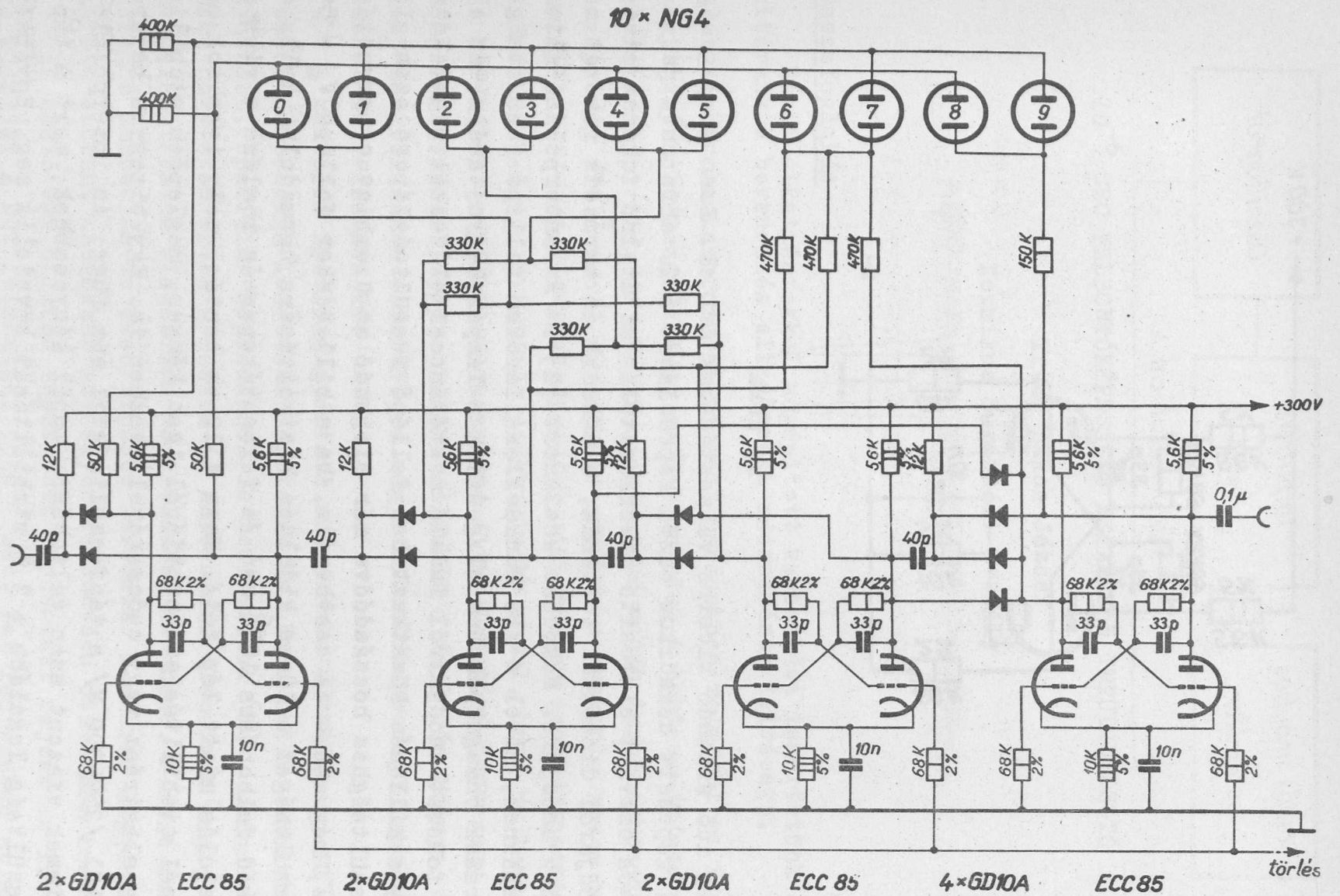
Az osztó egy billenő egységének kapcsolási rajzát az 1. ábra mutatja. A kör felbontása  $5 \cdot 10^{-7}$  sec. Ezt lényegében az anód-

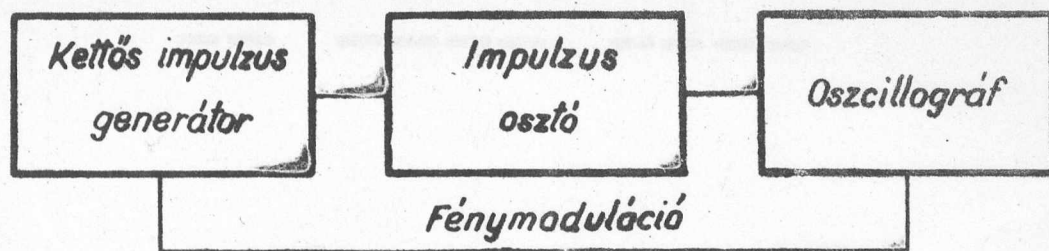


1. ábra

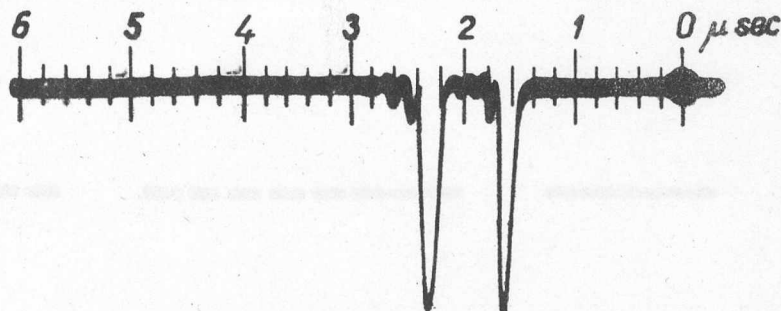
köri idő állandó kicsire választásával éri el. Ezen alapegység-  
 ből képezett dekadikus osztó kapcsolását a 2. ábra mutatja. A  
 10-es osztást biztosító visszacsatolás az utolsó fokozat első  
 anódjáról diódákkal történik, a második és harmadik fokozat má-  
 sodik anódjára. Működése közismert [2]. Az interpoláló glimm-  
 lámpáknak, mivel a kis munkaellenállásokon fellépő feszültség-  
 ugrások önmagukban nem elegendők a lámpák begyújtására, az el-  
 ső fokozat anódjairól induló osztólánccal előfeszültséget adtunk.  
 Így a billenés következtében fellépő feszültséglépcső ezen elő-  
 feszültséghez hozzáadódva már elegendő az üzembiztos begyújtás-  
 hoz, még abban az esetben is, ha a billenéskor fellépő  $V_a = 56V$   
 feszültséget a 10-es kijelzés biztosítására harmadolni kell. A  
 dekád felbontása  $10^{-6}$  sec /a felbontóképesség romlása a vissza-  
 csatolás miatt lép fel/. Maga a 10-es osztás, mely igen sok osztó-  
 nál stabilitás szempontjából igen kényes, meglepően stabilis  
 még alkatrész vagy csőcserével szemben is. Egy bizonyos határon  
 belül /250-300 V/ a tápfeszültségtől sem függ. Az interpoláló  
 glimmek viszont ezen változásra annál kényesebbek, mert a táp-  
 feszültség legalább  $\pm 3\%$  stabilitását követelik meg. Egyébként  
 a glimmek tekinthetők legkényesebb alkatrészeinek, mivel működés  
 közben szívesen változtatják adataikat, amin csak a csere segít,  
 míg ugyanakkor az osztó szabályosan működik.







3. ábra



4. ábra

Az osztót  $5 \cdot 10^{-7}$  sec-nél rövidebb kb. 20-30 V-os kb. néhány száz  $10^{-8}$  sec emelkedési idejű impulzussal kell meghajtani. A kimenet a termelésre kényes, de egy következő dekád meghajtásához, feltéve, hogy az összekötő kábel nem túl hosszú, közbelső erősítő fokozat beiktatása felesleges.

Az osztó levizsgálását a 3. ábra által adott elrendezésben végeztük. A kettős impulzusgenerátor szinkronjele vezérli az oszcillográf fénymodulációját. Az impulzusgenerátorból ki-jövő impulzuspárok közti távolság minimálisan  $0,5 \mu\text{sec}$ -ig; a jelszélesség maximálisan  $0,7 \mu\text{sec}$ -ig volt változtatható. A leosztót meghajtó kettős impulzus alakját a 4. ábra mutatja. Az impulzuspárok ismétlési frekvenciája kb. 10 Kc. Az oszcillográfon az utolsó fokozat jellegzetes billenési görbéje látható /5. ábra/. Az időjelek helyén van a vezérlő impulzuspár. Ha az osztó a két egymás után következő impulzust külön-külön érzékeli, az 5. ábra a görbéjét kapjuk, ha a két impulzust egybeolvasztva egybe veszi, akkor az 5. ábra b görbéjét láthatjuk. Az egyik állapotból a másikba való átmenet meglehetősen éles -  $0,1 \mu\text{sec}$ -on belül van. Ezen görbék alapján vizsgáltuk az osztó fent megadott üzemi és stabilitás tulajdonságait.

-----

-----

*a*

-----

-----

*b*

5. ábra

I r o d a l o m

- [1] Mody, N.F.Howell, W.D.Battel, W.J., and Talpin R.H.  
Rev.Sci.Instr. 22, 439, /1951/  
Schoenwetter H.K. Rev. Sci.Instr.24, 515, /1953/
- [2] Millman & Taub : Pulse and Digital Circuits P.327-329.

Érkezett 1958 április 22.





A kiadásért felelős: a Központi Fizikai Kutató Intézet igazgatója

Megrendelve: 1958. V. 23. Póldányszám: 450

Készült Rotaprint eljárással az MSZ 5601-54 Á és MSZ 5602-55 Á szabványok  
szerint 12.75 (Á/5) ív terjedelemben ábrával

**FELSŐOKTATÁSI JEGYZETELLÁTÓ VÁLLALAT**

Felelős: Heitter Imre  
8-2239