

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖZPONTI FIZIKAI KUTATÓ INTÉZETÉNEK
KÖZLEMÉNYEI

VOL. 6.

No 4.

JÚLIUS—AUGUSZTUS 1958

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 4. szám

1958. július-augusztus

T A R T A L O M J E G Y Z É K

	Oldal
1. Pál Lénárd, Kiss István és Bata Lajos: A "Dowtherm A" moderátor paramétereinek vizsgálata különböző hőmérsékleteken	207
2. Pál Lénárd: Neutronsokszorozás statisztikus ingadozásai	222
3. Pál Lénárd és Németh Géza: Nagyenergiájú részecskékkel besugárzott szilárd testek rácssérüléseinek statisztikus elmélete	246
4. Hoffmann Tibor: Tulhevitett szilárd test létrehozásának lehetősége reaktorokban	262
5. Hoffmann Tibor és Németh Géza: Reaktorkéményekből származó rádióaktív szennyeződés atmoszférikus diffúziójának számítása	275
6. Bozóky László és Vödrös Dániel: Alumíniumkohókban termelt fémmennyiségek mérése	285
7. Almássy Gyula, Ördögh Mária, Schneer Anna: Adatok az urán, tórium és cirkon analitikájához	292
8. Fodor Miklós, Földes Péter, Molnár Ferenc, Stocker Lajos, Szabó Elek: Magyarországi uránércsek kémiai feldolgozásával kapcsolatos kutatások	305

-.-.-.-

Technikai szerkesztő: Stancsich Györgyné

A "DOWTHERM A" MODERÁTOR PARAMÉTEREINEK VIZSGÁLATA KÜLÖNBÖZŐ HŐMÉRSÉKLETEKEN*

Irta: Pál Lénárd, Kiss István és Bata Lajos

Neutronfizikai és Magkémiai Osztály

Összefoglalás

26,81% difenil és 73,19% difeniloxid elegyéből álló közeg moderátor paramétereit vizsgáltuk meg különböző hőmérsékleten. A diffúziós hossz hőmérséklettől való függésére az $L_D = 4,002 \exp/0,0014 T/$ empirikus összefüggést állapítottuk meg. A lelassulási-hossz értékét 36 C° -on $L_s = 11,24 \pm 0,06$ cm-nek találtuk. Magasabb hőmérsékleten a lelassulási hossz erősen megnőtt, aminek következtében a kísérleti tartályt már nem tekinthettük végtelen kiterjedésűnek és így csak ezen véges méretű tartályra érvényes legvalószínűbb lelassulási távolság hőmérsékletfüggését adhattuk meg.

1. Bevezetés

Néhány évvel ezelőtt merült fel az a gondolat, hogy célszerű megvizsgálni, felhasználhatók-e bizonyos organikus vegyületek reaktorokban lassító és hűtőközegként. Mint ismeretes [1], nagy intenzitással megindultak az organikus lassító és hűtő közegekkel működő reaktorok fejlesztésére irányuló kutatások.

Az organikus vegyületek közül a ciklikus vegyületek egy csoportja /difenil, izopropil-difenil, terfenil stb./ különösen kedvező tulajdonságokkal rendelkezik. Pl. a difenil viszonylag nagy stabilitást mutat mind a nagy energiájú sugárzás, mind a hőmérséklet dekomponáló hatásával szemben; magas hőmérsékleten ($255,6\text{ C}^\circ$)

* Az 1958. évi genfi II. Nemzetközi Atomenergia Konferencián előadott előadás.

forr és gőznyomása még a víz kritikus hőmérsékleténél magasabb hőmérsékleten is alacsony (418 C° -on a difenil gőz nyomása mindössze $1,4\text{ atm}$). Figyelemreméltó, hogy a difenillel érintkező fűtőelemek magas hőmérsékleten alig korrodálódnak, ami messzemenően nem mondható el a vízzel érintkező fűtőelemekről. Mivel a difenilben nincs oxigén, az aktív zónában alig válik rádióaktívá. Ez a körülmény a védelem kérdését nagymértékben egyszerűsíti. Igen kedvezőek a difenil ama fizikai és kémiai tulajdonságai is, amelyek meghatározzák a fémes felületeken kialakuló difenil határreteg jellegét; továbbá kedvező az a körülmény is, hogy a difenilt lassító közegként tartalmazó rendszer sokszorozási tényezőjének negatív a hőmérsékleti együtthatója. Várható, hogy a difenil moderátor-paraméterei is kedvezőbbek lesznek, mint a természetes vizé, hiszen a difenil egy cm^3 -nyi térfogatában kevesebb hidrogén atom van, mint a természetes víz egy cm^3 -ében.

Bár a difenil azokhoz az organikus vegyületekhez tartozik, amelyek elég nagy stabilitást mutatnak mind a besugárzás, mind a magas hőmérséklet dekomponáló hatásával szemben, mégis számolnunk kell azzal, hogy magas hőmérsékleteken besugárzás hatására a difenilben jelentős kémiai változások (polimerizáció, hidrogén fejlődés stb.) mennek végbe. Ezeket a változásokat többen [2] részletesen tanulmányozták. Nem túl kedvező a difenil hőátadási koefficiense, ha a természetes víz hőátadási koefficiensével hasonlítjuk össze, de ha a gázhűtésű rendszerekben alkalmazott széndioxid hőátadási koefficienséhez hasonlítjuk, akkor a difenil feltétlenül előnyösebbnek látszik.

A tiszta difenilnek viszonylag magas az olvadáspontja (70 C°), a difenil és a difeniloxid eutektikus elegye azonban jóval alacsonyabb hőmérsékleten ($12,3\text{ C}^{\circ}$) olvad. A difenil és difeniloxid eutektikus elegye, a Dowtherm A, jól ismert a kémiai iparban, mint hőközvetítő anyag. Az irodalomban sok adatot találunk a Dowtherm A (más néven difil) általános fizikai és kémiai tulajdonságaira, azonban eddig ugyyszólván semmiféle adatot nem közöltek a difilről mint moderátorról. Egyetlen kivétel Blackmann, Lakey és Preston [3] nem rég megjelent közleménye. A szerzők alacsony, feltehetően szobahőmérsékleten, meghatározták a Dowtherm A-ban a hasadási spektrumra vonatkozó lelassulási hosszt. Minden bizonnyal különböző kutató laboratóriumokban ilyen adatok rendel-

kezésre állnak, hiszen, mint ismeretes, az organikus lassító és hűtőközeggel (elsősorban difillel) működő reaktorok fejlesztésére egyes laboratóriumokban nagy erőket koncentráltak.

Méréseink azt a célt szolgálták, hogy a difilt hasznosító reaktorok tervezéséhez szükséges moderátor paramétereket és a paraméterek hőmérséklettől való függését megvizsgáljuk.

2. A vizsgált "Dowtherm A" általános fizikai és kémiai tulajdonságai

Az általunk vizsgált Dowtherm A összetételére a kémiai elemzés a következő adatokat szolgáltatotta:

C	2	87,15 %
H	-	5,97 %
O	-	6,88 %

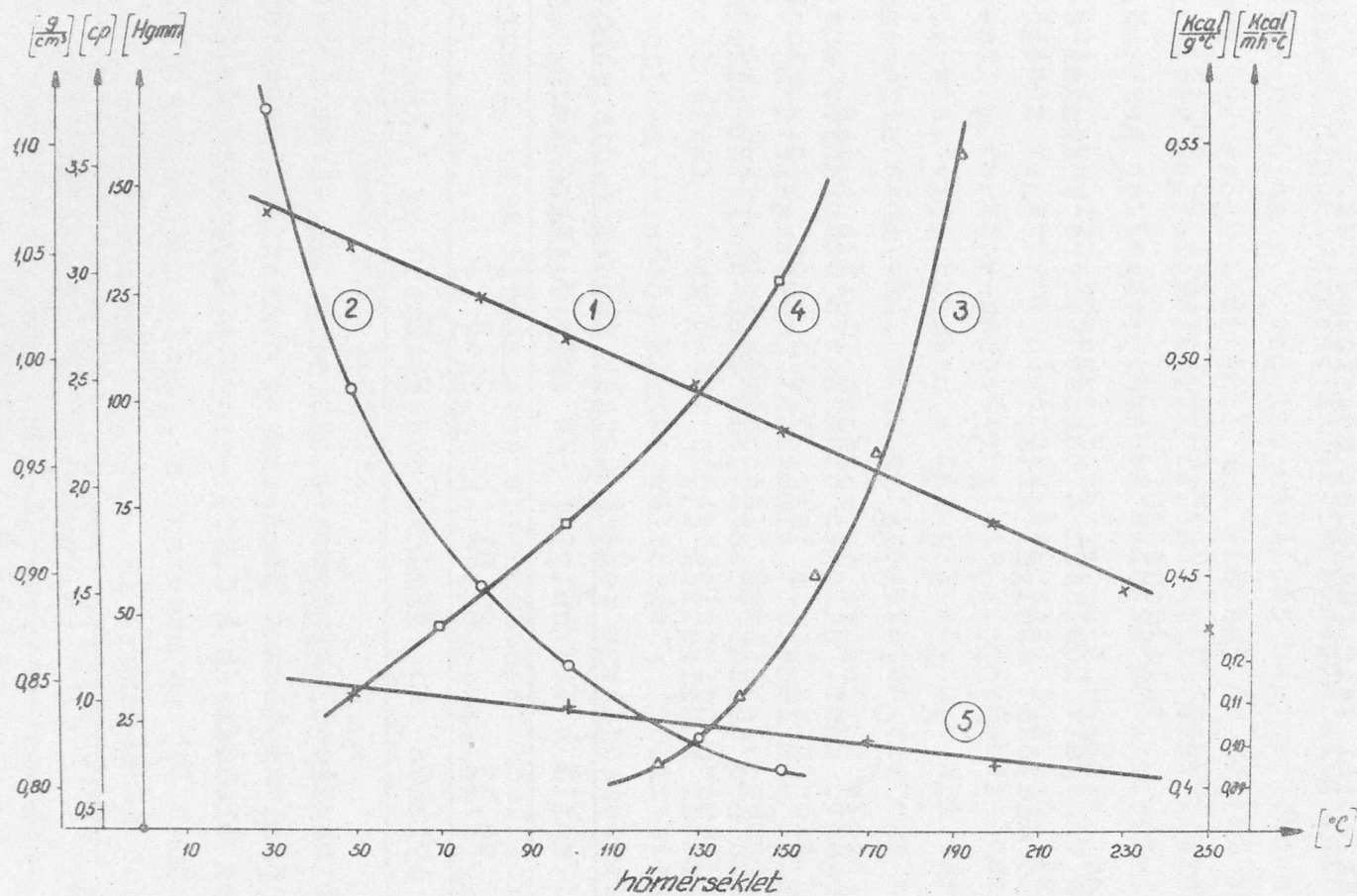
Az elegyben nitrogént, kén, halogén elemeket a szabványos analitikai módszerekkel nem lehetett kimutatni (a vizsgálati minta elégetése után hamu nem maradt vissza). Az elem-analízis alapján a következő táblázatot készítettük el:

Megnevezés	mol %	súly %	súly % (irodalmi)
difenil	28,33	26,81	26,5
difeniloxid	71,67	73,19	73,5

Látható, hogy a vizsgált elegy összetétele alig tér el az irodalomban közölttől (ami egyébként pontosan az eutektikus összetételnek felel meg). Az olvadás és a forráspontra a következő értéket kaptuk:

Az elegy	C° (mért)	C° (irodalmi) [4]
olvadáspontja	13,0	12,3
forráspontja (760 mm)	256,0	258

Az 1.sz.ábrán az általunk vizsgált difenil fajsúlyának, viszkozitásának, gőz tenziójának, fajhőjének és hővezető képes-



1. ábra

A vizsgált difenil sűrűségének ①, viszkozitásának ②, gőznyomásának ③, fajhőjének ④ és hővezetőképességének ⑤ hőmérséklettől való függése.

ségének hőmérséklettől való függését szemléltetjük. Az általunk mért értékek jól egyeznek a rendelkezésre álló irodalmi adatokkal [5].

3. A mérési módszer és mérőberendezés leírása

Méréseinket Po-Be neutronforrással végeztük. A forrás aktivitása a mérés elkezdésekor kb. $3 \cdot 10^7$ n/sec volt. Később mérési adatainkat a forrás aktivitás-csökkenésének megfelelően korrigáltuk.

Neutron-detektorként 25 mm átmérőjű $98,16 \text{ mg/cm}^2$ vastagságú ezüst fóliát használtunk. Az ezüst fólia használatára az a körülmény készített, hogy az indium olvadáspontjánál ($156,4 \text{ C}^\circ$) magasabb hőmérsékleten is kívántunk vizsgálatokat folytatni. Az ezüst-fóliát termikus neutron detektorként használtuk, azaz a kadmium borítás nélküli ezüst fólia aktivitásából mindig levontuk a kadmium borítással ellátott ezüst fólia aktivitását. A fóliához szorosan illeszkedő kadmium-tok vastagsága 500 mg/cm^2 volt.

Mint ismeretes, az Ag^{107} -ből neutronbefogással keletkező Ag^{108} 2,3 perces, míg az Ag^{109} -ből keletkező Ag^{110} 24,2 másodperces, illetve izomerje 270 napos felezési idővel bomlik. A megfelelő termikus neutronokra vonatkozó aktivációs hatáskeresztmetszetekek értékei sorban a következők:

$$\sigma_a (\text{Ag}^{107} \rightarrow \text{Ag}^{108}) = 44 \pm 9 \text{ b,}$$

$$\sigma_a (\text{Ag}^{109} \rightarrow \text{Ag}^{110}) = 110 \pm 20 \text{ b} \quad \text{és}$$

$$\sigma_a (\text{Ag}^{109} \rightarrow \text{Ag}^{110}) = 2,8 \pm 0,5 \text{ b.}$$

Látható, hogy a hosszú felezési idejű Ag^{110} izomer bomlása jelentéktelen járulékot szolgáltat a mért aktivitáshoz. A viszonylag rövid felezési idők szükségessé teszik a fólia gyors és reprodukálható kezelését. Az aktiválási időt 12 percre választottuk és az aktiválás befejezése után pontosan 36 másodperc múlva kezdtük el a 8 percig tartó mérést.

A fólia aktivitását plexivel bélelt ólomtoronyban elhelyezett CN-2B típusú végablakos számlálócsővel mértük. A számlálócső $2,5 \text{ mg/cm}^2$ vastagságú, 40 mm átmérőjű csillám ablakától 30

mm-re helyeztük el a fóliát. Az impulzusok regisztrálására JC-10.000 típusú impulzus számlálót használtunk.

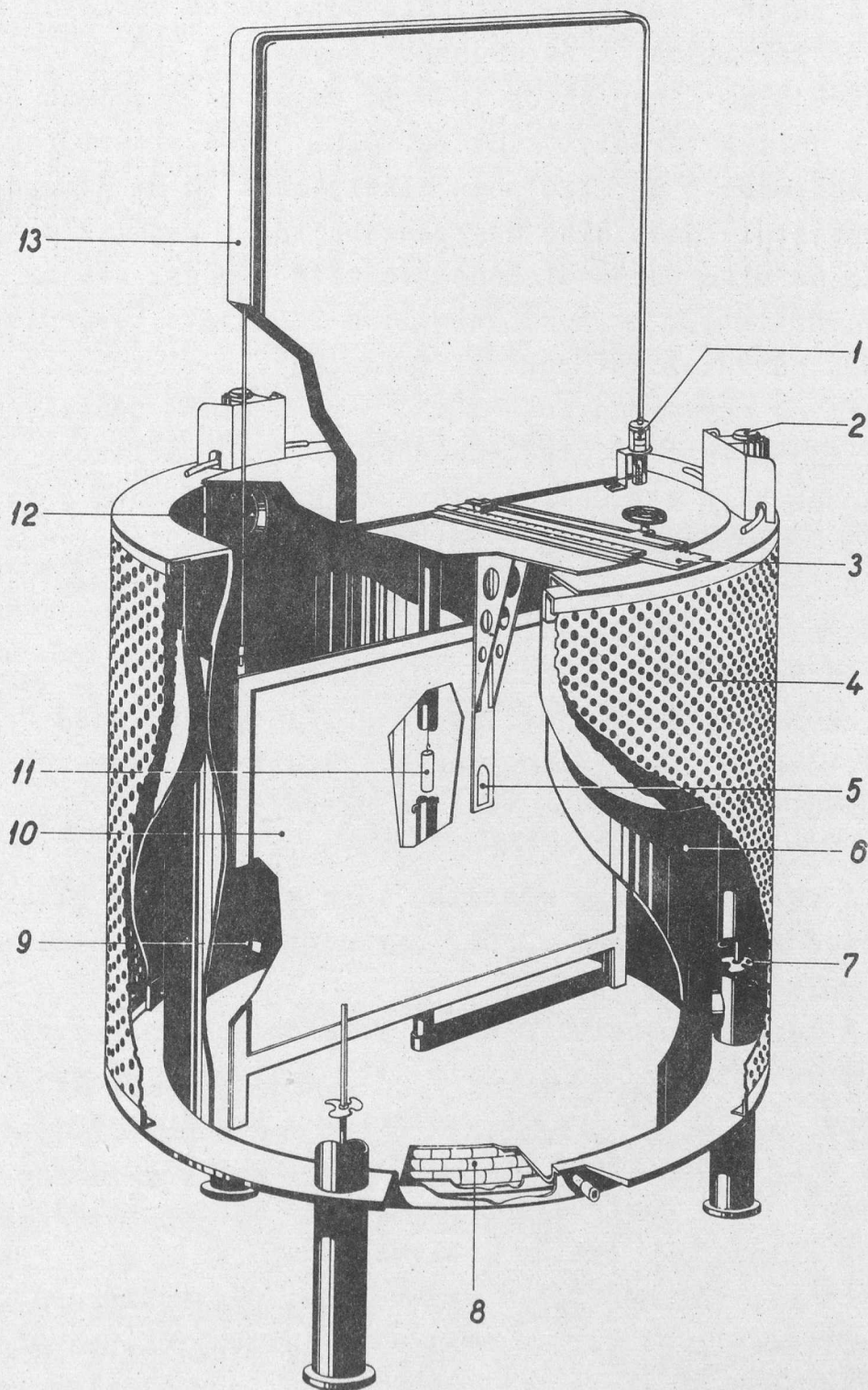
A termikus neutron-detektorként használt ezüst-fólia aktivitásának helyfüggéséből szokásos módon határoztuk meg a migrációs-hossz négyzetét. Jelöljük $A_1(r)$ -rel a pontszerűnek tekinthető neutronforrástól r távolságra elhelyezett, kadmium borítás nélküli ezüst-fólia aktivitását meghatározott ideig tartó aktiválás után. Jelöljük $A_2(r)$ -rel az azonos körülmények között besugárzott, kadmium-tokba helyezett ezüst-fólia aktivitását. Az $A(r) = A_1(r) - A_2(r)$ mennyiség alapján az

$$\langle r_{cd}^2 \rangle = \frac{\int_0^{\infty} A(r) r^4 dr}{\int_0^{\infty} A(r) r^2 dr}$$

összefüggés alapján kiszámíthatjuk a kadmium-levágás energiaszintje alá lelassuló neutronokra a migrációs-hossz négyzetét, ugyanis végtelen kiterjedésűnek tekinthető lassító közegben, gömbszimmetrikus esetben $6 L_M^2 = \langle r_{cd}^2 \rangle$. Az $\langle r_{cd}^2 \rangle$ kifejezésben szereplő integrálokat a kísérleti görbék planimetrálásával határoztuk meg. A neutronforrástól nagy távolságokra, ahol mérési adatok nem álltak rendelkezésünkre, a kísérletileg meghatározott görbe utolsó szakasza alapján extrapolált és mint ismeretes az $A(r) \sim r^{-2} \exp(-r/\lambda)$ aszimptotikus összefüggésnek elegettevő aktivitás értékekkel számoltunk.

A migrációs, a lelassulási és a diffúziós hossz között végtelen kiterjedésűnek tekinthető rendszerben fennáll az $L_M^2 = L_S^2 + L_D^2$ alakú összefüggés. Ha valamilyen célszerűen választott módszerrel meghatározzuk a diffúziós hossz L_D értékét, akkor egyszerűen kiszámíthatjuk a kadmium-levágás energiaszintjéhez tartozó lelassulási hossz négyzetét.

A diffúziós-hossz mérésére Fermi módszerét használtuk, mivel a Po-Be neutronforrás által kibocsátott neutronok difilben mért λ relaxációs-hossza nagyobb a várható diffúziós-hossznál. Ismeretes [6], hogy ebben az esetben a diffúziós-hossz nem határozható meg közvetlenül a termikus neutronok eloszlásából. Helyezzünk el azonban a neutronforrástól meghatározott távolságra kellő vastagságú kadmium-lemezből készült (végtelen nagy kiterjedésűnek tekinthető) sikt. A sikk mögött mért neutronsűrűséget, mint ismeretes, az $n_2(r) = n_1(r) - K \exp(-r/L_D)$ összefüggés adja meg, ahol $n_1(r)$ a kadmium-sikk nélküli neutronsűrűség. Tehát az



2.ábra

A mérőberendezés vázlatos képe. A berendezés mellé irt számok magyarázatát lásd a szövegben.

különbségből végtelen nagyra tekinthető közeg esetében igen egyszerűen határozhatjuk meg a diffúziós-hossz értékét.

A mérések céljaira szolgáló berendezés vázlatos képét a 2. sz. ábrán láthatjuk. A berendezés lényegében 800 liter űrtartalmu, kb. 940 mm átmérőjű és 1000 mm magas hengeralaku ónozott vastartály (6). A tartályt alul és felül egy-egy tartóperem veszi körül, amelyeken 3 db, 120° -ban elhelyezett 90 mm átmérőjű cső halad keresztül. Ezek alsó meghosszabbításai képezik a tartály lábait és az alsó peremnél beheggesztett tárcsák zárják le. A csőlábakba építettük be a csőtengelyre rögzített keverőlapátokat (7), amelyeket a keverőmotorok (2) forgatnak. A cirkuláció ellenáramu és a teljes anyagmennyiséget kb. 5 perc alatt cseréli ki. A cirkuláció útja a tartály alsó részéből az oda csatlakozó csőtoldaton (9) keresztül a csőlábakon át vezet és a folyadék a felső csatornán (12) keresztül ömlik újból vissza a tartályba. Ezzel ellentétesen dolgozik a termoszifon cirkuláció. Együttesen hatásos keverést és nagy hőfokstabilitást eredményeznek.

Az elektromos fűtőtest (8) háromfázisú $\gamma - \Delta$ kapcsolású, amelynek maximális teljesítménye kb. 25 kW. A lapos "Kanthal" huzalból készített, kerámiagyöngybe fűzött fűtőelemeket 3 db 1/3 körcikkből álló vaslemez tartóba helyeztük el és a tartály fenekén rögzítettük.

A fűtőtestet egy második, tőle kb. 5 cm távolságra álló hőszigetelő köpeny veszi körül, ugyanugy mint a tartály falát körülölelő külső köpeny (4).

A tartályon belül U-alaku vezetősínekben mozgatható a kadmium választólemez (10), amely ellensúlyal kiegyensúlyozva a hűtőtorony (13) felső terébe emelhető. A kadmium lemez mögött helyeztük el a neutronforrást befogadó alumínium ötvözetből készült tartókeretet (11), amely elmozditható, de minden helyzetében rögzíthető és állása egy skálán leolvasható.

Az aktiválandó fólia egy vékony, nagyszilárdságú alumínium lemezből készített tartószerkezet (5) kívülről hozzáférhető vájában helyezhető el. A tartókeretet (5) egy oldalfogazású, vastagabb alumínium lemezből készített szánszerkezetre szereltük, amelyet fogaskerék segítségével lehet a neutronforráshoz közelíteni vagy távolítani. A távolságot egy milliméter beosztású mérőszerkezeten olvashatjuk le. A tartályba helyezett vizsgálandó közeg

hőmérsékletének állandóságát ($\pm 0,2 \text{ C}^\circ$) kontakt hőmérő (1) biztosítja. A kontakt hőmérőnek a tartályból kiálló részeit, továbbá a keverőmotorokat vízhűtéssel ellátott köpennyel vettük körül, így lehetőséget biztosítottunk, hogy a berendezést szükség esetén magasabb ($200\text{--}250 \text{ C}^\circ$) hőmérsékleten is üzemeltethessük.

A szabályzó kontakthőmérőt az egyik beáramló nyílás elé helyeztük, minek folytán a kapcsolás érzékenysége megnövekedett, ugyanis a fűtőtest felületéről elszívott meleg folyadék a kontakthőmérővel közvetlenül érintkezett. Biztonsági szempontból egy másik kontakthőmérőt is alkalmaztunk, amely néhány fokkal magasabb hőmérsékleten kapcsolt, mint a szabályzó hőmérő. Az első meghibásodása esetén a biztonsági kapcsoló a berendezést árammentesíti és egy jelzőberendezést szólaltat meg.

A tartályt a torony (13) tömitett és lecsavarozott pereme zárja le hermetikusan.

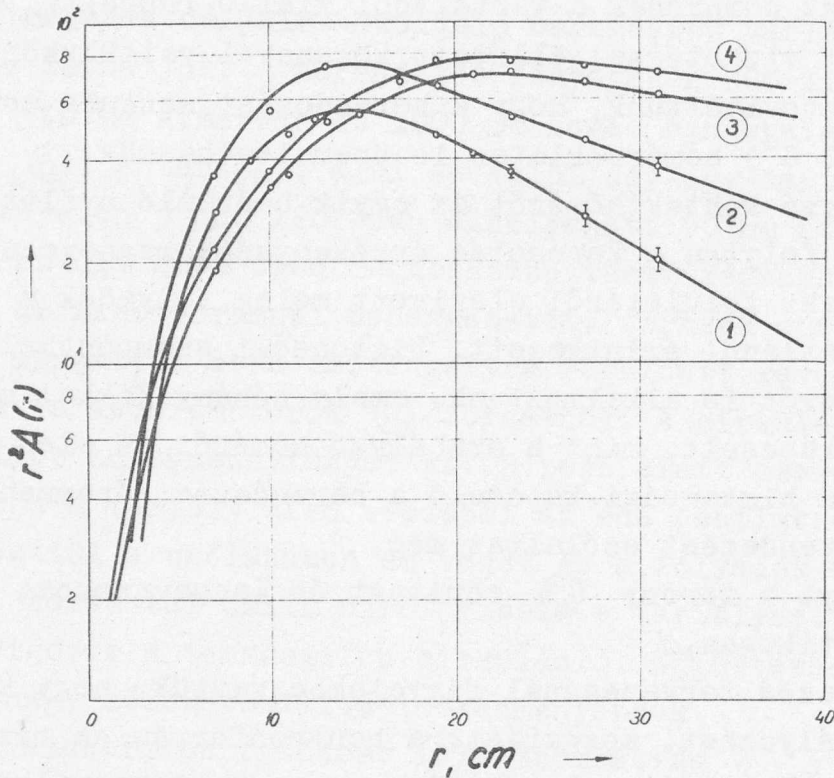
A berendezés tervezésénél figyelembe vettük, hogy minden szükséges szabályozást, mozgatást, a neutronforrás és mérőfólia behelyezést és kiemelését a lezárt torony megbontása nélkül végezhessünk el.

Magasabb hőmérsékleten való üzemeltetés esetén a hűtőtorony hidegebb nagy felületű belső falaira lecsapódó anyag a tartályba újra visszafolyhat.

4. Mérési eredmények

A végtelen kiterjedésűnek tekinthető közegre jellemző migrációs hossz meghatározása az $\langle r_{Cd}^2 \rangle$ birtokában egyszerű feladatnak látszik. Azonban az általunk vizsgált közeg méretei mellett nem tekinthetjük minden esetben érvényesnek az $\langle r_{Cd}^2 \rangle = 6 L_M^2$ összefüggést.

A 3.sz. ábrán láthatjuk az $r^2 A(r)$ menetét 36.0 , 92.0 , 146.0 és 192.0 C° -on. Difilben a Po-Be neutronforrás neutronjaira vonatkozó lelassulási-hossz már szobahőmérsékleten is elég nagy, amit az $r^2 A(r)$ görbe maximumának helyzete is jelez. Ez a maximum a hőmérséklet növekedésével egyre jobban a nagyobb r értékek felé tolódik el. A görbékből kitűnik, hogy az $\langle r_{Cd}^2 \rangle$ átlag kiszámításának csakis 36 C° -on van némi értelme, hiszen magasabb hőmér-



3. ábra

Az $r^2 A/r$ távolságtól való függése különböző / $36,0\text{ C}^\circ$ - (1), $92,0\text{ C}^\circ$ - (2), $146,0\text{ C}^\circ$ - (3) és $192,0\text{ C}^\circ$ - (4) / hőmérsékleten.

sékleten a közeg messzemenően nem tekinthető végtelen kiterjedésűnek. Ennek következtében az $\langle r_{Cd}^2 \rangle$ átlag kifejezésében szereplő integrálok extrapolációval meghatározott járuléka az integrál értékének jelentős hányadát adják. A 36 C° -on végrehajtott méréseknél az $\int_0^\infty r^2 A(r) dr$ integrál extrapolációs járuléka az integrál értékének $8,2\%$ -a, míg az $\int_0^\infty r^4 A(r) dr$ integrálé $65,6\%$. Az extrapolációs járulékok azonban minden bizonnyal kisebbek a végtelen kiterjedésűnek tekinthető közegben, ugyanarra a térrészre vonatkozó, mérések alapján meghatározható járulékoknál. Ennek az az oka, hogy a kifolyás miatt a határfelülethez közel a neutronsűrűség lecsökken. Egy adott méretű közegből természetesen annál több neutron jut ki, minél nagyobb a lelassulási-hossz értéke. 36 C° -on a vizsgált rendszer végesméretűségéből származó hiba - Blackmann, Lakey és Preston [3] becsléseit felhasználva -

1,5 %-nál nem nagyobb. 36 C^o-on a következő értékeket kaphatjuk:[☒]

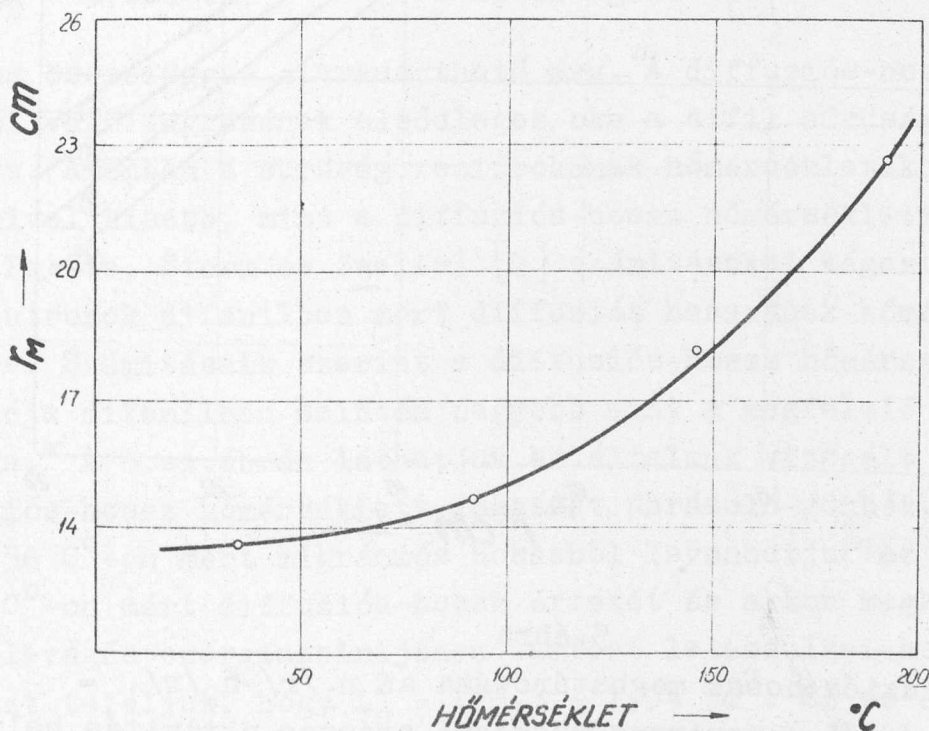
$$\lambda = 15,8 \pm 0,05 \text{ cm}, \quad \langle r_{\text{Cd}}^2 \rangle = 864 \pm 12 \text{ cm}^2, \quad L_M^2 = 144 \pm 1,34 \text{ cm}^2$$

Ezek az értékek nagyobbak, mint a Blackmann, Lakey és Preston [3] által mért

$$\lambda = 7,4 \pm 0,3 \text{ cm}, \quad \langle r_t^2 \rangle = 396 \pm 19 \text{ cm}^2, \quad L_M^2 = 66 \pm 3,5 \text{ cm}^2$$

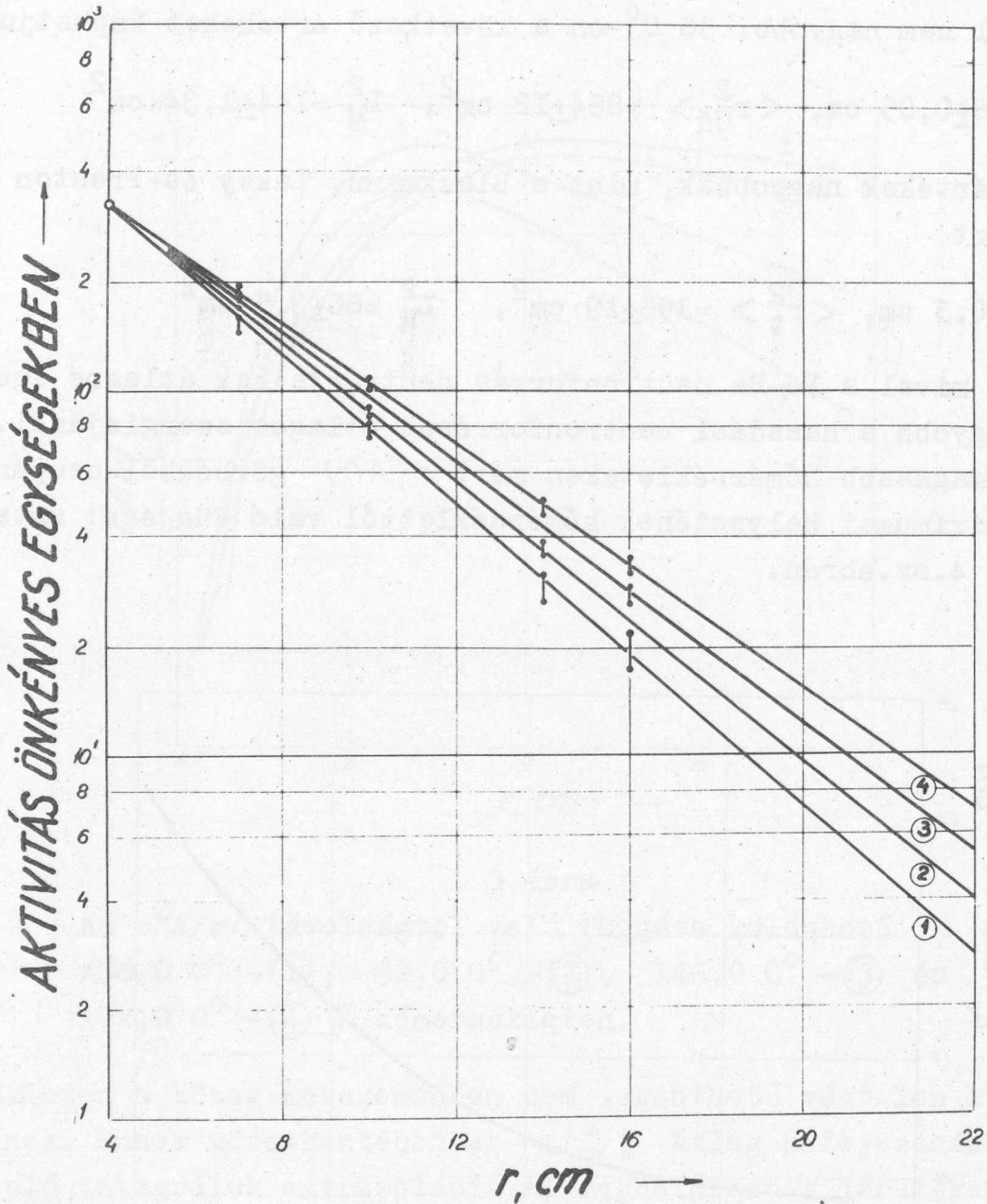
értékek, mivel a Po-Be neutronforrás neutronjainak átlagos energiája nagyobb a hasadási neutronforrások átlagos energiájánál.

A magasabb hőmérsékleteken mért $r^2 A(r)$ görbékből csupán a görbék maximumai helyzetének hőmérséklettől való függését mutatjuk be a 4.sz.ábrán.



4. ábra
A legvalószínűbb lelassulási hossz hőmérséklettől való függése.

[☒] λ értékét a legkisebb négyzetek módszerével, hibáját pedig az un.reciprok-matrix módszerrel határoztuk meg. Az L_M^2 viszonylag kis hibáját az magyarázza, hogy értékét hat független mérés adataiból határoztuk meg.



5. ábra

A diffúziós hossz meghatározása az $n_1/r / -n_2/r / = \exp [-r/L_D]$ neutronsűrűséggel arányos aktivitás helytől való függése alapján, különböző $36,0 \text{ C}^\circ$ - ①, $92,0 \text{ C}^\circ$ - ②, $146,0 \text{ C}^\circ$ - ③ és $192,0 \text{ C}^\circ$ - ④ / hőmérsékleten.

A diffúziós hossz mérésére sokkal kedvezőbbek voltak a geometriai viszonyok. A diffúziós-hossz viszonylag kis értéke mellett közegünket végtelen kiterjedésűnek tekinthetjük. Az alábbi táblázat mutatja a diffúziós-hossz legkisebb négyzetek módszerével meg-

határozott értékét néhány hőmérsékleten, a reciprok-matrix módszerrel számított hiba megadásával:

T	36,0	92,0	146,0	192,0
L_D	$4,214 \pm 0,006$	$4,541 \pm 0,002$	$4,934 \pm 0,005$	$5,245 \pm 0,004$

mig az 5.sz. ábra az $n_1(r) - n_2(r) = K \cdot \exp(-r/L_D)$ neutron-sűrűségkülönbséggel arányos aktivitás értékek hely-függését mutatja. Könnyen megmutatható, hogy a termikus neutronok Dowtherm A-ban mért diffúziós-hosszának hőmérséklettől való függésére az

$$L_D = L_D^0 \exp(\gamma T)$$

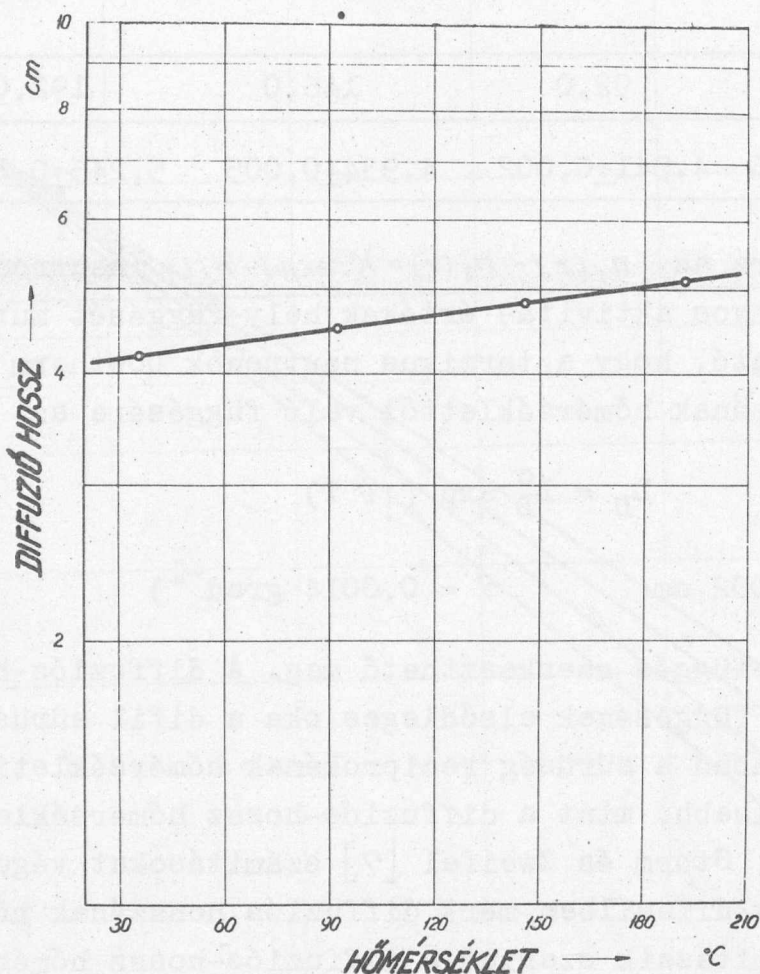
$$(L_D^0 = 4,002 \text{ cm}, \quad \gamma = 0,0014 \text{ grad}^{-1})$$

empirikus összefüggés szerkeszthető meg. A diffúziós-hossz hőmérséklettől való függésének elsődleges oka a difil-sűrűségének megváltozása. Azonban a sűrűség reciprokának hőmérsékletkoefficiense valamivel kisebb, mint a diffúziós-hossz hőmérsékleti együtthatója. Petrie, Storm és Zweifel [7] számításokat végeztek a termikus neutronok difenilben mért diffúziós-hosszának hőmérsékleti függésére. Számításaik szerint a diffúziós-hossz hőmérsékleti együtthatója difenilben szintén nagyobb mint a megfelelő sűrűség reciproka.* A 6.sz. ábrán láthatjuk az általunk vizsgált difilben a diffúziós-hossz hőmérsékleti függését ábrázoló görbét.

A 36 C°-on mért migrációs hosszából levonhatjuk az ugyan-csak 36 C°-on mért diffúziós-hossz értékét és akkor megkapjuk a kadmium-levágás energiaszintjéhez tartozó lelassulási-hossz négyzetét. Azt találjuk, hogy $L_g^2 = 126,3 \pm 1,34 \text{ cm}^2$. Ez az érték ismét nagyobb mint a Blackmann, Lakey és Preston által meghatározott lelassulási-hossz négyzete.

Megjegyezzük, hogy az aktiválendő fólia, valamint a kadmium-tok véges vastagságából származó perturbációt megfelelő korrekciókkal figyelembe vettük.

* A difenilben mért diffúziós-hossz hőmérséklettől való függését a fentiekhez hasonló formulával írhatjuk le, csupán $L_D = 4,143 \text{ cm}$ és $\gamma = 0,0021 \text{ grad}^{-1}$!



6. ábra

Termikus neutronok Dowtherm A-ban mért diffúziós hosszának hőmérséklettől való függése $L_D = 4,002 \exp(0,0014 T)$.

I r o d a l o m

- [1] A. Polak, Atomkernenergie, 2. 390. (1957)
- [2] G. A. Freund, Nucleonics, 14. 62. (1956)
E. L. Colichman and R. F. Fish, Nucleonics, 15. 72. (1957)
- [3] T. E. Blackmann, J. R. A. Lakey and G. Preston, The Measurement of the Moderating Properties of Dowtherm A, A. E. R. E. R/R. 2345 (1957)

- [4] С.З. Каган и А.В. Чечеткин, Высокотемпературные теплоносители и их применение в промышленности, Москва-Ленинград, (1957)
- [5] L.W.Fromm and K.Anderson, Nuclear Sci. and Eng., 2.160.(1957)
- [6] A.Ádám and G.Kósály, KFKI Közlemények, 6. No. 1. (1958)
- [7] C.D.Petrie, M.L.Storm and P.F.Zweifel, Nuclear Sci. and Eng., 2. 728. (1957)

KFKI Közlemények, 6.évf. 4.szám, 1958.

NEUTRONSOKSZOROZÁS STATISZTIKUS INGADOZÁSAI[‡]

Írta: Pál Lénárd

Neutronfizikai Osztály

Összefoglaló

A neutronsokszorozás statisztikus ingadozásai egyrészt a hasadási folyamatban keletkező neutronok számának, másrészt a láncfolyamat hosszának statisztikus ingadozásaival kapcsolatosak. Igen általános feltevés mellett sikerült meghatározni a neutronok statisztikus viselkedését leíró eloszlásfüggvény generátorfüggvényét.

Meghatároztuk különböző reaktivitású sokszorozó rendszerekre a késő neutronok hatásának figyelembevételével a szórásnégyzet időfüggését.

Szubkritikus rendszerek neutronsokszorozásának kísérleti vizsgálatához kiszámítottuk a rendszerben célszerűen elhelyezett neutrondetektor által bizonyos idő alatt regisztrált neutronok számának relatív szórását pulzált neutronforrás használata esetében. A számításoknál feltételeztük, hogy egy-egy neutronimpulzusban a neutronok száma Poisson-eloszlást követ és hogy a neutronimpulzus szélessége elhanyagolható a detektálási időhöz képest.

A mérési adatokból ezen elméleti megfontolások alapján meghatározhatjuk az egy hasadási aktusban keletkező neutronok (prompt és késő) számának szórását.

I.

A neutronsokszorozás statisztikus ingadozásai egyrészt a hasadási folyamatban keletkező neutronok számának, másrészt a láncfolyamat hosszának fluktuációjával kapcsolatosak. Hoffmann^[1] számításai szerint reaktorok neutronintenzitásának fluktuációjára vonatkozó mérésekből könnyen meghatározható az egy hasadási aktus-

[‡] Az 1958. évi genfi II. Nemzetközi Atomenergia Konferencián elfogadott előadás.

ban keletkező neutronok számának szórásnégyzete. Ilyen mérésekről számolnak be Feynmann, Hoffmann és Serber [2]. A következőkben Hoffmann [1] módszerénél általánosabb eljárással származtatjuk a neutronsokszorozás statisztikus ingadozásait megadó összefüggéseket és rámutatunk azokra a korrekciókra, amelyek a Hoffmann által közölt kísérleti eredmények helyes felhasználásához szükségesek.

Mindenekelőtt bizonyos egyszerűsítő feltevésekkel élünk, hogy számításaink könnyebben áttekinthetők legyenek. Tételezzük fel, hogy a sokszorozó közeg végtelen kiterjedésűnek tekinthető és benne a különböző atommagok térbeli eloszlása egyenletes. Tegyük fel azt is, hogy a neutronok energiája keletkezésük és abszorpciójuk pillanatában ugyanaz. Ez utóbbi feltevés azt jelenti, hogy a lelassulás folyamatától eltekintünk.

Jelölje egy adott sokszorozó közegre vonatkozóan $\tau_f = \alpha_f^{-1}$ a neutronok átlagos hasadási élettartamát. Legyen $\tau_a = \alpha_a^{-1}$ a neutronok átlagos abszorpciós, míg $\tau_o = \alpha_o^{-1}$ az átlagos teljes élettartama. Nyilván $\alpha_o = \alpha_a + \alpha_f$.

Jelöljük $H_m(t)$ -vel annak valószínűségét, hogy t időpontban a sokszorozó közegben pontosan m neutron található, azon feltevés mellett, hogy $t=0$ időpontban egyetlen-egy neutron volt a közegben. Másszóval

$$H_m(t) = P\left\{ \zeta(t) = m / \zeta(0) = 1 \right\} \quad (1.1)$$

ahol $\zeta(t)$ a neutronok száma t időpontban.

A $t=0$ időpontban a sokszorozó közegbe injektált neutron t időpontig vagy semmiféle reakciót nem vált ki, vagy ha kivált, akkor az első végbemenő reakció vagy abszorpció, vagy maghasadás. (A szórás lehetőségét nem vesszük figyelembe.) A $H_m(t)$ eloszlásfüggvényt a folyamat ezen három lehetséges és egymást kizáró elindulási módja alapján építhetjük fel. Nevezetesen felírhatjuk, hogy $H_m(t) = H_m^o(t) + H_m^a(t) + H_m^f(t)$, ahol $H_m^o(t)$ annak a valószínűsége, hogy a $t=0$ időpontban a rendszerbe injektált neutron t idő alatt semmiféle reakciót nem vált ki és t időpontban a rendszerben található neutronok száma éppen m , azon feltevés mellett, hogy a sokszorozó közegben $t=0$ időpontban csupán egyetlen (az injektált) neutron volt található. A $H_m^a(t)$ és $H_m^f(t)$ pedig annak a valószínűségei, hogy a $(0, t)$ időközben bekövetkező első reakció

abszorpció, illetve maghasadás és t időpontban a rendszerben található neutronok száma m , ismét azon feltevés mellett, hogy $t=0$ időpontban csak az injektált neutron tartózkodott a rendszerben. Könnyen belátható, hogy $H_m^o(t) = e^{-\alpha_o t} \delta_{1m}$ és $H_m^a(t) = \frac{\alpha_a}{\alpha_o} (1 - e^{-\alpha_o t}) \delta_{om}$ ahol $\delta_{m,m'}$, a Kronecker-féle szimbólum.

A $H_m^f(t)$ meghatározása valamivel körülményesebb. Tételezzük fel, hogy a $t=0$ időpontban a sokszorozó rendszerbe injektált neutron a $(0, t)$ időszakaszban ($t' \leq t$) semmiféle reakciót nem vált ki, majd a $(t', t' + dt')$ időintervallumban hasadást okoz, aminek eredményeképpen k_o prompt-neutron és l csoportban k_1, k_2, \dots, k_l hasadási termék keletkezik. (Természetesen kettőnél több hasadási termék egy hasadásnál a legritkább esetben keletkezik. A keletkezett hasadási termékeket l csoportba sorolhatjuk aszerint, hogy mekkora időkieséssel emittálnak neutronokat.) Jelöljük $p(k_o, k_1, \dots, k_l)$ -lel annak valószínűségét, hogy egy hasadási aktusban k_o prompt-neutron és l csoportban k_1, k_2, \dots, k_l hasadási termék keletkezik. Az i -ik csoportba tartozó hasadási termékek λ_i bomlási állandóval i -tipusu késő-neutronokat emittálnak.

A $(t', t' + dt')$ időközben keletkező prompt-neutronok és a később kibocsátott késő-neutronok a hátramaradó $t-t'$ idő alatt biztosítják, hogy t időpontban éppen m neutron legyen a sokszorozó rendszerben. Legyen $K_{m_o}(t-t', k_o)$ annak a valószínűsége, hogy a $(t', t' + dt')$ időközben bekövetkező hasadásnál keletkezett k_o prompt-neutron által létrehozott neutronok száma t időpontban pontosan m_o . $K_{m_i}(t-t', k_i)$ pedig legyen annak a valószínűsége, hogy a $(t', t' + dt')$ időszakaszban bekövetkezett hasadásnál keletkezett k_i i -tipusu hasadási termék által emittált késő-neutronok annyi további neutront hoznak létre, hogy számuk t időpontban éppen m_i . Így felírhatjuk, hogy

$$H_m^f(t) = \alpha_f \int_0^t e^{-\alpha_o t'} \left\{ \sum_{k_o, k_1, \dots, k_l} p(k_o, k_1, \dots, k_l) \sum_{m_o + \dots + m_l = m} \prod_{i=0}^l K_{m_i}(t-t', k_i) \right\} dt' \quad (1.2)$$

Az is könnyen belátható, hogy

$$K_{m_o}(t-t', k_o) = \sum_{n_1 + \dots + n_{k_o} = m_o} \prod_{j=1}^{k_o} H_{n_j}(t-t') \quad (1.3)$$

A $K_{m_i}(t-t', k_i)$ meghatározásához tegyük fel, hogy a k_i hasadási termék közül $t-t'$ idő alatt csak k_i' emittál neutronot, míg $k_i - k_i'$ nem bomlik el. Ha $L_{m_i}(t-t', k_i')$ -vel jelöljük annak a valószínűségét, hogy $t-t'$ idő alatt pontosan k_i hasadási termék bomlik el (ami azzal ekvivalens, hogy k_i' i -tipusu késő-neutron keletkezik) és hogy a bomlás eredményeként keletkező késő-neutronok által létrehozott neutronok száma t időpontban m_i , akkor felírhatjuk, hogy

$$K_{m_i}(t-t', k_i) = \sum_{k_i'=0}^{k_i} \binom{k_i}{k_i'} \exp\{-\lambda_i(t-t')(k_i - k_i')\} L_{m_i}(t-t', k_i'). \quad (1.4)$$

Egyszerű megfontolásokkal belátható, hogy

$$L_{m_i}(t-t', k_i') = \lambda_i^{k_i'} \sum_{n_1 + \dots + n_{k_i'} = m_i} \prod_{j=1}^{k_i'} \int_0^{t-t'} e^{-\lambda_i t''} H_{n_j}(t-t'') dt''. \quad (1.5)$$

Vezessük most be az

$$f(t, x) = \sum_{m=0}^{\infty} e^{mx} H_m(t) \quad (1.6)$$

generátorfüggvényt. Rövid számolás után megmutatható, hogy $f(t, x)$

az

$$f(t, x) = e^{-\alpha_0 t + x} + \frac{\alpha_a}{\alpha_0} (1 - e^{-\alpha_0 t}) + \alpha_f \int_0^t e^{-\alpha_0 t'} \pi \left\{ \vec{\varphi}(t-t', x) \right\} dt'. \quad (1.7)$$

egyenletnek tesz eleget, ahol

$$\pi \left\{ \vec{\varphi}(t-t', x) \right\} = \sum_{k_0, k_1, \dots, k_l} p(k_0, k_1, \dots, k_l) \left[\varphi_0(t-t', x) \right]^{k_0} \dots \left[\varphi_l(t-t', x) \right]^{k_l} \quad (1.8)$$

és

$$\varphi_0(t-t', x) = f(t-t', x), \quad (1.9)$$

míg

$$\varphi_i(t-t', x) = e^{-\lambda_i(t-t')} + \lambda_i \int_0^{t-t'} e^{-\lambda_i t''} f(t-t'-t'', x) dt''. \quad (1.10)$$

$$(i = 1, 2, \dots, l)$$

Megjegyzendő, hogy az (1.7) alatti egyenlet korábban levezetett (3) általános egyenletünkből közvetlenül is származtatható. Az (1.7)-ből t szerinti differenciálással a

$$\frac{\partial f(t, x)}{\partial t} = \alpha_a + \alpha_f \pi \left\{ \vec{\varphi}(t, x) \right\} - \alpha_0 f(t, x) \quad (1.11)$$

egyenlet állítható elő. Az utóbbi egyenletet gyakrabban használjuk a momentumok származtatására.

Vezessük még be a következő jelöléseket:

$$\nu = \sum_{k_0, \dots, k_l} (k_0 + \dots + k_i + \dots + k_l) p(k_0, \dots, k_i, \dots, k_l) \quad (1.12)$$

és

$$\mu = \sum_{k_0, \dots, k_l} (k_0^2 + \dots + k_i^2 + \dots + k_l^2) p(k_0, \dots, k_i, \dots, k_l), \quad (1.13)$$

$$\nu = \sum_{i=0}^l \nu_i, \quad \mu = \sum_{i=0}^l \mu_i. \quad (1.13')$$

ν nyilván az egy hasadási aktusban keletkező neutronok számának átlagát, míg μ a négyzetátlagát jelenti. A neutronok átlagos számát t időpontban az

$$m_1(t) = \left[\frac{\partial f(t, x)}{\partial x} \right]_{x=0} \quad (1.14)$$

összefüggés alapján származtatott

$$\frac{dm_1(t)}{dt} = -\alpha m_1(t) + \alpha_f \sum_{i=1}^l \nu_i \lambda_i \int_0^t e^{-\lambda_i t'} m_1(t-t') dt' \quad (1.15)$$

egyenletből, az $m_1(0)=1$ kezdőfeltétellel határozhatjuk meg, ahol

$$\alpha = \alpha_a + (1 - \nu_0) \alpha_f. \quad (1.16)$$

A neutronok számának négyzetátlagát pedig az

$$m_2(t) = \left[\frac{\partial^2 f(t, x)}{\partial x^2} \right]_{x=0} \quad (1.17)$$

összefüggésből nyert

$$\begin{aligned} \frac{dm_2(t)}{dt} = & -\alpha m_2(t) + \alpha_f \sum_{i=1}^l \nu_i \lambda_i \int_0^t e^{-\lambda_i t'} m_2(t-t') dt' + \\ & + \alpha_f \left[\sum_{i=0}^l (\mu_i - \nu_i) a_i^2(t) + 2 \sum_{i \neq i'}^l \nu_i \nu_{i'} a_i(t) a_{i'}(t) \right] \end{aligned} \quad (1.18)$$

egyenlet alapján, az $m_2(0)=1$ kezdőfeltétel figyelembevételével számíthatjuk ki. Az (1.18)-ban egyszerűségi okokból a következő jelöléseket vezettük be:

$$a_0(t) = m_1(t), \quad a_i(t) = \lambda_i \int_0^t e^{-\lambda_i t'} m_1(t-t') dt'. \quad (1.18')$$

$$(i = 1, 2, \dots, l)$$

Az (1.15)-ből könnyen felírhatjuk $m_1(t)$

$$\phi(z) = \left[z + \alpha - \alpha_f \sum_{i=1}^l \frac{\nu_i \lambda_i}{z + \lambda_i} \right]^{-1} \quad (1.19)$$

Laplace-transzformáltját. Mivel $m_1(t)$ argumentumának monoton függvénye, legalábbis $t > t_k$ értékekre, ahol $t_k \neq 0$

$\lim_{z \rightarrow 0} z \phi(z) = \lim_{t \rightarrow \infty} m_1(t)$. Könnyen megmutatható az (1.19) alapján, hogy

$$\alpha_a = (\nu - 1) \alpha_f \quad (1.20)$$

a szükséges és elégséges feltétele annak, hogy $\lim_{t \rightarrow \infty} m_1(t)$ zérustól különböző, véges érték legyen. Egyszerűen belátható, hogy

$$\lim_{t \rightarrow \infty} m_1(t) = \begin{cases} 0, & \text{ha } \alpha_a > (\nu - 1) \alpha_f \\ \left[1 + \alpha_f \sum_{i=1}^l \frac{\nu_i}{\lambda_i} \right]^{-1}, & \text{ha } \alpha_a = (\nu - 1) \alpha_f \\ \infty, & \text{ha } \alpha_a < (\nu - 1) \alpha_f \end{cases} \quad (1.21)$$

A továbbiakban az (1.15) egyenlet néhány egyszerű változáttal még foglalkozunk.

Az (1.18) egyenlettel kapcsolatban általánosságban egy megjegyzést kívánunk tenni. Jelöljük $r(t)$ -vel az egyenlet jobb oldalán álló $\alpha_f \left[\sum_{i=0}^l (\mu_i - \nu_i) a_i^2(t) + 2 \sum_{i \neq i'}^l \nu_i \nu_{i'} a_i(t) a_{i'}(t) \right]$ kifejezést. Könnyen belátható, hogy $m_2(t)$ az $m_1(t)$ és $r(t)$ függvények konvolúciójából könnyen képezhető, azaz

$$m_2(t) = m_1(t) + \int_0^t m_1(t-t') r(t') dt' = m_1(t) + m_1(t) * r(t) \quad (1.22)$$

A neutronok számának szórásnégyzetét egyszerűen a

$$d^2(t) = m_1(t) \left[1 - m_1(t) \right] + m_1(t) * r(t) \quad (1.23)$$

összefüggés alapján számíthatjuk.

Az eddigiek során azt az esetet vizsgáltuk meg, hogyan alakul ki egy láncfolyamat végtelen kiterjedésűnek tekinthető sokszorozó közegben, ha abba egyetlen-egy neutronot injektálunk. A következőkben arra a kérdésre kívánunk választ adni, hogyan határozható meg a neutronok átlagos száma és szórásnégyzete valamely sokszorozó közegben, ha abba bizonyos valószínűségi törvény szerint emittáló neutronforrást helyezünk. Legyen $P_k(t)$ annak valószínű-

sége, hogy a neutronforrás a $(0, t)$ időközben éppen k neutront emittál. A legtöbb neutronforrás esetében teljesül az a kikötés, hogy

$$P_k(t) = e^{-s(t)} \frac{[s(t)]^k}{k!}, \quad (1.24)$$

ahol

$$s(t) = \int_0^t s_0(t') dt' \quad (1.25)$$

$s_0(t)$ a neutronforrás átlagos aktivitása t időpontban. ($s_0(t)dt$ a $(t, t+dt)$ időközben emittált neutronok átlagos számát adja meg.) Határozzuk meg most annak a valószínűségét, hogy t időpontban a sokszorozó közegben éppen m neutron legyen, azon feltevés mellett, hogy a neutronforrás $t=0$ időpontban került a sokszorozó közegbe. Jelöljük a $0 \leq t_1 \leq t_2 \leq \dots \leq t_k \leq t$ időpontok az egyes neutronok kibocsátásának időpontját. Ha $\xi(t-t_i)$ -vel jelöljük azon neutronok számát, amelyeket a t_i időpontban kibocsátott neutron a $t > t_i$ időpontig létrehozott, akkor feladatunk egyszerűen a

$$\xi_k(t) = \sum_{i=1}^k \xi(t-t_i) \quad (1.26)$$

független valószínűségi változók összegével kapcsolatos

$P[\xi_k(t) = m] = R_m^k(t)$ eloszlásfüggvény meghatározására vezethető vissza, mivel az általunk keresett eloszlásfüggvény az

$$R_m(t) = \sum_{k=0}^{\infty} R_m^k(t) \quad (1.27)$$

összefüggés alapján származtatható.

Könnyű belátni, hogy annak a valószínűsége, hogy a $(0, t)$ időintervallumban kibocsátott neutron éppen a $(t', t'+dt')$ időközben jelenjen meg $s_0(t') dt' / s(t)$. Így annak a valószínűsége, hogy a $(0, t)$ intervallumban kibocsátott neutron által létrehozott neutronok száma t időpontban éppen m , nem más, mint

$$A_m(t) = \frac{1}{s(t)} \int_0^t H_m(t-t') s_0(t') dt'. \quad (1.28)$$

Ezekután világos, hogy

$$R_m(t) = e^{-s(t)} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{[s(t)]^k}{k!} \sum_{m_1 + \dots + m_k = m} \prod_{i=1}^k A_{m_i}(t) \quad (1.29)$$

Vezessük be az

$$F(t, x) = \sum_{m=0}^{\infty} e^{mx} R_m(t) \quad (1.30)$$

generátorfüggvényt. Az (1.29)-ből azt kapjuk, hogy

$$F(t, x) = \exp \left\{ -s(t) + \int_0^t f(t-t', x) s_0(t') dt' \right\}, \quad (1.31)$$

ahol $f(t, x)$ nem más, mint (1.6).

Az $F(t, x)$ függvényből az

$$M_1(t) = \left[\frac{\partial F(t, x)}{\partial x} \right]_{x=0} = \int_0^t s_0(t') m_1(t-t') dt' \quad (1.32)$$

összefüggés alapján könnyen kiszámíthatjuk a neutronok számának átlagát t időpontban. Hasonlóan járhatunk el a neutronok számának négyzetátlaga meghatározásánál is. Ugyanis

$$M_2(t) = \left[\frac{\partial^2 F(t, x)}{\partial x^2} \right]_{x=0} = M_1^2(t) + \int_0^t s_0(t') m_2(t-t') dt'. \quad (1.33)$$

A szórásnégyzetre pedig egyszerűen a

$$D^2(t) = \int_0^t m_2(t-t') s_0(t') dt' \quad (1.34)$$

összefüggés adódik. Az $M_1(t)$, $M_2(t)$ és $D^2(t)$ mennyiségek az $m_1(t)$ és $m_2(t)$ birtokában könnyen kiszámíthatók.

II.

Foglalkozzunk most azzal a kérdéssel, hogyan határozhatjuk meg a hasadás folyamán keletkező neutronok számának szórásnégyzetét neutronforrással ellátott sokszorozó közegbe helyezett neutrondetektor által bizonyos idő alatt regisztrált neutronok számának ingadozásából. Mindenekelőtt tételezzük fel, hogy olyan neutrondetektor rendszerrel dolgozunk, amelyre vonatkozóan a sokszorozó közeg bármely pontjából elinduló neutron regisztrálásának valószínűsége ugyanakkora. Ez a feltevés megegyezik Hoffmann [1], [2] számításaiban alkalmazott feltevással. Legyen εdt annak a valószínűsége, hogy a $(t, t + dt)$ intervallumban valamely kiszemelt neutron regisztrálódik. Jelöljük $W_n(t_0, t)$ -vel annak a valószínűségét, hogy a $(t_0, t_0 + t)$ időközben a detektorrendszer éppen n neutront regisztrál azon feltevés mellett, hogy a neutronforrást t_0 idővel a regisztrálás elkezdése előtt helyeztük el a sokszorozó közegben. Ha ismét feltételezzük, hogy a neutronforrás az (1.24) eloszlás szerint emittál, akkor könnyű megmutatni, hogy a

$$G(t_0, t, x) = \sum_{n=0}^{\infty} W_n(t_0, t) e^{nx} \quad (2.1)$$

generátorfüggvényt a

$$G(t_0, t, x) = \exp \left\{ -s(t_0 + t) + \int_0^{t_0} g(t_0 - t'_0, t, x) s_0(t'_0) dt'_0 + \int_0^t g(t - t', x) s_0(t' + t_0) dt' \right\} \quad (2.2)$$

összefüggés szolgáltatja, ahol

$$g(t_0, t, x) = \sum_{n=0}^{\infty} w_n(t_0, t) e^{nx}, \quad (2.3)$$

míg

$$g(t, x) = \sum_{n=0}^{\infty} w_n(t) e^{nx}. \quad (2.4)$$

A (2.3) és (2.4) alatti generátorfüggvények megalkotásánál felhasznált $w_n(t_0, t)$ és $w_n(t)$ eloszlásfüggvények jelentését a következőképpen adhatjuk meg: $w_n(t_0, t)$ annak a valószínűsége, hogy a $(t_0, t_0 + t)$ időközben a detektorrendszer éppen n neutront regisztrál, azon feltevés mellett, hogy a regisztrálás elkezdése előtt t_0 idővel a sokszorozó rendszerben mindössze egyetlen neutron volt; $w_n(t)$ viszont annak a valószínűsége, hogy t idő alatt detektorrendszerünk éppen n neutront regisztrál, azon feltevés mellett, hogy a regisztrálás elkezdésekor a sokszorozó közegben mindössze egy neutron volt található. Nyilván $w_n(t_0 = 0, t) = w_n(t)$.

Az (1.7) egyenlet megalkotásánál közölt gondolatmenet felhasználásával megmutatható, hogy

$$\frac{\partial g(t_0, t, x)}{\partial t_0} = \alpha_a + \varepsilon + \alpha_f \pi[\vec{\psi}(t_0, t, x)] - \alpha_0 r_0 g(t_0, t, x), \quad (2.5)$$

és

$$\frac{\partial g(t, x)}{\partial t} = \alpha_a + \varepsilon e^x + \alpha_f \pi[\vec{\psi}(t, x)] - \alpha_0 r_0 g(t, x), \quad (2.6)$$

ahol $\pi(\vec{\psi})$ a $p(k_0, \dots, k_l)$ eloszlásfüggvény generátorfüggvénye. A $\vec{\psi} = [\psi_0, \psi_1, \dots, \psi_2]$ vektor komponenseit meghatározó összefüggések ugyanazok, mint az (1.9) és (1.10) alatt, csak az $f(t, x)$ függvény helyébe a megfelelő $g(t_0, t, x)$, illetve $g(t, x)$ függvényt kell írunk. Az $r_0 = 1 + \varepsilon/\alpha_0$ korrekciós tényező a detektorrendszer abszorpcióját veszi figyelembe. Természetesen $g(t_0 = 0, t, x) = g(t, x)$

A(2.5) alatti kifejezésből a

$$\left[\frac{\partial g(t_0, t, x)}{\partial x} \right]_{x=0} = n_1(t_0, t) \quad (2,7)$$

összefüggés alapján könnyen származtathatjuk a $(t_0, t_0 + t)$ időközben regisztrált neutronok átlagos számát megadó egyenletet azon feltétel mellett, hogy a regisztrálás elkezdése előtt t_0 idővel a sokszorozó közegben mindössze egy neutron volt található. A neutronok számának négyzetátlagát pedig a

$$\left[\frac{\partial^2 g(t_0, t, x)}{\partial x^2} \right]_{x=0} = n_2(t_0, t) \quad (2,8)$$

összefüggés alapján származtatható egyenletből határozhatjuk meg. (Ismét rámutatunk arra a körülményre, hogy $n_1(t_0=0, t) = n_1(t)$ és $n_2(t_0=0, t) = n_2(t)$ ahol $n_1(t)$ és $n_2(t)$ a $g(t, x)$ generátorfüggvényből származtatható momentumok.)

A (2.2) alatti kifejezésből hasonlóan mint az (1.31)-ből származtatható az

$$N_1(t_0, t) = \int_0^{t_0} S_0(t'_0) n_1(t_0 - t'_0, t) dt'_0 + \int_0^t S_0(t_0 + t') n_1(t - t') dt' \quad (2,9)$$

és az

$$N_2(t_0, t) = N_1^2(t_0, t) + \int_0^{t_0} S_0(t'_0) n_2(t_0 - t'_0, t) dt'_0 + \int_0^t S_0(t_0 + t') n_2(t - t') dt' \quad (2,10)$$

momentum. $N_1(t_0, t)$ a $(t_0, t_0 + t)$ időközben regisztrált neutronok számának átlagát, míg $N_2(t_0, t)$ pedig négyzetátlagát adja meg, figyelembevéve, hogy a regisztrálás elkezdése előtt t_0 idővel (1.24) szerint emittáló neutronforrás került a sokszorozó rendszerbe. A teljesség kedvéért írjuk még fel a

$$D_C^2(t_0, t) = \int_0^{t_0} S_0(t'_0) n_2(t_0 - t'_0, t) dt'_0 + \int_0^t S_0(t_0 + t') n_2(t - t') dt' \quad (2,11)$$

szórásnégyzetet is. Származtassuk mindenekeelőtt a (2.7) alapján az $n_1(t_0, t)$ -t meghatározó egyenletet. Rövid számítás után azt találjuk, hogy

$$\frac{\partial n_1(t_0, t)}{\partial t_0} = -\alpha r n_1(t_0, t) + \alpha_f \sum_{i=1}^l \nu_i \lambda_i \int_0^{t_0 - \lambda_i t'_0} e^{-\lambda_i t'_0} n_1(t_0 - t'_0, t) dt'_0 \quad (2,12)$$

A (2.12) egyenlet $n_1(0, t) = n_1(t)$ kezdőfeltételét a

$$\frac{dn_1(t)}{dt} = \varepsilon - \alpha r n_1(t) + \alpha_f \sum_{i=1}^l \nu_i \lambda_i \int_0^t e^{-\lambda_i t'} n_1(t - t') dt' \quad (2,13)$$

egyenlet határozza meg. Az r korrekciós faktor most $1 + \varepsilon/\alpha$.

A (2.12) alatti egyenlet pontosan olyan alakú, mint az (1.15) alatti. Így

$$n_1(t_0, t) = m_1^*(t_0) n_1(t) \quad (2.14)$$

ahol $m_1^*(t)$ az (1.15) alatti egyenlet megoldásából úgy adódik, hogy α helyébe mindenütt αr -t és t helyébe t_0 -át írunk, míg $n_1(t)$ a (2.13)-nak $n_1(0) = 0$ kezdőfeltétel melletti megoldása.

A második momentumra a

$$\frac{\partial n_2(t_0, t)}{\partial t_0} = -\alpha r n_2(t_0, t) + \alpha_f \sum_{i=1}^l \nu_i \lambda_i \int_0^{t_0} e^{-\lambda_i t'_0} n_2(t_0 - t'_0, t) dt'_0 + h(t_0, t) \quad (2.15)$$

egyenlet adódik, ahol

$$h(t_0, t) = \alpha_f n_1^2(t) \left[\sum_{i=0}^l (\mu_i - \nu_i) a_i^{2*}(t_0) + 2 \sum_{i \neq i'}^l \nu_i \nu_{i'} a_i^*(t_0) a_{i'}^*(t_0) \right]. \quad (2.16)$$

A (2.16)-ban szereplő $a_i^*(t_0)$ mennyiségek az (1.18') alatti $a_i(t)$ mennyiségből egyszerűen úgy származtathatók, hogy $m_1(t)$ helyébe mindenütt $m_1^*(t_0)$ -át írunk. A (2.15) egyenlet $n_2(0, t) = n_2(t)$ kezdőfeltételét a

$$\frac{d n_2(t)}{dt} = \varepsilon - \alpha r n_2(t) + \alpha_f \sum_{i=1}^l \nu_i \lambda_i \int_0^t e^{-\lambda_i t'} n_2(t - t') dt' + h(t) \quad (2.17)$$

egyenletből határozhatjuk meg, figyelembevéve, hogy $n_2(0) = 0$. A (2.17)-ben szereplő $h(t)$ a következőképpen fejezhető ki:

$$h(t) = \alpha_f \left[\sum_{i=0}^l (\mu_i - \nu_i) b_i^2(t) + 2 \sum_{i \neq i'}^l \nu_i \nu_{i'} b_i(t) b_{i'}(t) \right], \quad (2.18)$$

ahol $b_0(t) = n_1(t)$ és $b_i(t) = \lambda_i \int_0^t e^{-\lambda_i t'} n_1(t - t') dt'$ ($i = 1, 2, \dots, l$). Rövid számolás után belátható, hogy

$$n_2(t_0, t) = m_1^*(t_0) \left[n_2(t) - n_1^2(t) \right] + n_1^2(t) m_2^*(t_0), \quad (2.19)$$

ahol

$$m_2^*(t_0) = m_1^*(t_0) + m_1^*(t_0) * r^*(t_0)$$

és

$$n_2(t) = n_1(t) + m_1^*(t_0) * h(t). \quad (2.20)$$

A * szimbólum itt is a konvolúció-alkotást jelzi. Az $r^*(t_0)$ ugyan-
 úgy származtatható az $r(t)$ -ből, mint $m_1^*(t)$ az $m_1(t)$ -ből.

A (2.14) és (2.19) összefüggések alapján könnyen kiszámíthatjuk a minket érdeklő $N_1(t_0, t)$, $N(t_0)$ és $D_c^2(t_0, t)$ mennyiségeket. Különösen fontos számunkra a $D_c^2(t_0, t)/N_1(t_0, t)$ hányados, ugyanis Hoffmann, Serber és Feynmann mérései éppen ennek a hányadosnak a meghatározását teszik lehetővé. Rövid számolás után azt találjuk, hogy

$$\frac{D_c^2(t_0, t)}{N_1(t_0, t)} = 1 + \frac{n_1^2(t) \int_0^{t_0} m_1^*(t'_0) * r^*(t'_0) dt'_0 + m_1^*(t) * h(t) \int_0^{t_0} m_1^*(t'_0) dt'_0 + \int_0^t m_1^*(t') * h(t') dt'}{n_1(t) \int_0^{t_0} m_1^*(t'_0) dt'_0 + \int_0^t n_1(t') dt'} \quad (2.21)$$

Ez a kifejezés általánosabb a Hoffmann [1] által levezetetténél. Lehetővé teszi a késő neutronok hatásának pontos figyelembevételét, amire a Hoffmann által közölt ad hoc eljárás nem ad módot.

III.

Az előzőkben elmondottakat illusztráljuk néhány példával.

a/

Először foglalkozzunk a legegyszerűbb esettel; tekintsünk el a késő neutronok hatásától.

1. Az (1.15) és (1.18) alatti egyenletekből az (1.14)-re és (1.23)-ra igen egyszerű kifejezések adódnak. Irjuk fel a szórásnégyzet és a neutronok átlagos számának hányadosát. Azt találjuk, hogy

$$\frac{d^2(t)}{m_1(t)} = \left(1 + \frac{\mu_0 - \nu_0}{\alpha \tau_f} \right) \left(1 - e^{-\alpha t} \right) \quad (3.1)$$

Egyszerűen belátható, hogy az (1.16) alatt definiált paramétert a prompt-neutronokra vonatkozó ρ_0 reaktivitással, illetve ugyan csak a prompt-neutronokra vonatkozó κ_0 sokszorozási tényezővel az $\alpha = \frac{1 - \kappa_0}{\tau_0} = \frac{\rho_0}{l_0}$ összefüggés kapcsolja össze, ahol $l_0 = \frac{\tau_0}{\kappa_0} = \frac{\tau_0}{\nu_0}$ a prompt-neutronok effektív átlagos élettartama.

A neutronok számának szórásnégyzete kritikus esetben ($\alpha = 0$), amint ez a sokszorozással járó folyamatok elméletéből ismeretes a

$$d_k^2(t) = \frac{\mu_0 - \nu_0}{\tau_f} t \quad (3.1')$$

törvény szerint az idővel lineárisan nő.

2. Ha a sokszorozó közegbe neutronforrást helyezünk, amely az (1.24) szerint emittál, akkor a neutronok számának átlagát és szórását t időpontban az (1.32) és (1.34) összefüggések alapján számíthatjuk. Célszerű a szórásnégyzet és a neutronok átlagos számának hányadosát kiszámítani, mivel ez a mennyiség független a neutronforrás intenzitásától. Ha $s(t) = ct$, azt találjuk, hogy

$$\frac{D^2(t)}{M_1(t)} = 1 + \frac{1}{2} \frac{\mu_0 - \nu_0}{\alpha \tau_f} \left(1 - e^{-\alpha t}\right) \quad (3.2)$$

Kritikus rendszerben $\alpha = 0$:

$$\frac{D_k^2(t)}{M_1^k(t)} = 1 + \frac{1}{2} \frac{\mu_0 - \nu_0}{\tau_f} t \quad (3.2')$$

3. A (2.21) alatti összefüggésből a késő neutronok hatásának figyelembevétele nélkül megkapjuk a Hoffmann által bevezetett összefüggést, ha feltesszük, hogy $s(t) = ct$ és $t_0 \rightarrow \infty$. Tehát ebben az esetben

$$\frac{D_c^2(\infty, t)}{N_1(\infty, t)} = 1 + \frac{\epsilon_0(\mu_0 - \nu_0)}{(\alpha r \tau_f)^2} \left(1 - \frac{1 - e^{-\alpha r t}}{\alpha r t}\right), \quad (3.3)$$

ahol a teljes azonosság kedvéért a detektorrendszer hatásfokát, ugyanugy mint Hoffmann, az időegység alatt bekövetkező hasadások átlagos számával fejeztük ki, azaz az $\epsilon = \epsilon_0 \alpha_f$ írásmódot használtuk.

b/

Vegyük most figyelembe a késő neutronokat. A számítások egyszerűsítése érdekében csupán egyetlen (átlagolt) késő csoport hatásával törődünk. Jelöljük β_i -vel a ν_i/ν hányadost. Az átlagolt késő csoport bomlási állandójául a

$$\lambda = \frac{\sum_{i=1}^l \beta_i \lambda_i}{\beta}, \quad \beta = \sum_{i=1}^l \beta_i \quad (3.4)$$

mennyiséget választjuk. Jelölje végül $\nu_d = \sum_{i=1}^l \nu_i = \beta \nu$ a késő neutronok átlagos számát. Számítsuk ki most az a/ alatti 1., 2. és 3. esetre érvényes megfelelő mennyiségeket.

1. Az (1.15)-ből ebben az esetben a jólismert

$$m_1(t) = \frac{\lambda - \omega_1}{\omega_2 - \omega_1} e^{-\omega_1 t} - \frac{\lambda - \omega_2}{\omega_2 - \omega_1} e^{-\omega_2 t}, \quad (3.5)$$

összefüggést származtathatjuk, ahol

$$\omega_{1,2} = \frac{1}{2} \left[\alpha + \lambda \mp \sqrt{(\alpha + \lambda)^2 - 4 \lambda \omega} \right], \quad (3.6)$$

és

$$\omega = \alpha_a - (v-1) \alpha_f = \alpha - v_d \alpha_f. \quad (3.7)$$

Felírhatjuk még, hogy $\omega = \rho/l$ és $\alpha = \frac{\beta - \rho}{l}$, ahol ρ a reaktivitás és $l = \frac{\tau_f(1-\beta)}{v_0} = \frac{\tau_f \beta}{v_d}$ a neutronok effektív átlagos élet-tartama az adott rendszerben.

Az (1.23)-ból az (1.15) alatti egyenlet megoldását, valamint az $r(t)$ -re származtatott kifejezést felhasználva, a neutronok számának szórásnégyzetére a következő kifejezést kapjuk:

$$d^2(t) = d_1 e^{-\omega_1 t} + d_2 e^{-\omega_2 t} + d_3 e^{-(\omega_1 + \omega_2)t} + d_4 e^{-2\omega_1 t} + d_5 e^{-2\omega_2 t}, \quad (3.8)$$

ahol

$$\begin{aligned} d_1 = \frac{\lambda - \omega_1}{\omega_2 - \omega_1} \left(1 + \frac{r_1}{\omega_1} + \frac{r_2}{\omega_2} + \frac{r_2}{2\omega_2 - \omega_1} \right), \quad d_2 = -\frac{\lambda - \omega_2}{\omega_2 - \omega_1} \left(1 + \frac{r_1}{2\omega_1 - \omega_2} + \right. \\ \left. + \frac{r_2}{\omega_1} - \frac{r_3}{\omega_2} \right), \quad d_3 = 2 \frac{(\lambda - \omega_1)(\lambda - \omega_2)}{(\omega_2 - \omega_1)^2} + \left(\frac{\lambda}{\omega_1 \omega_2} - \frac{1}{\omega_1} - \frac{1}{\omega_2} \right) r_2, \\ d_4 = -\left(\frac{\lambda - \omega_1}{\omega_2 - \omega_1} \right)^2 + \frac{\lambda - 2\omega_1}{\omega_1(2\omega_1 - \omega_2)} r_1, \quad d_5 = -\left(\frac{\lambda - \omega_2}{\omega_2 - \omega_1} \right)^2 + \frac{\lambda - 2\omega_2}{\omega_2(2\omega_2 - \omega_1)} r_3, \end{aligned} \quad (3.9)$$

mig

$$\begin{aligned} r_1 = \alpha_f \left(\frac{\omega_1}{\omega_2 - \omega_1} \right)^2 \left(\frac{\lambda}{\omega_1^2} \Omega_0 - 2 \frac{\lambda}{\omega_1} \Omega_1 - \Omega_2 \right) \\ r_2 = -2 \alpha_f \frac{\omega_1 \omega_2}{(\omega_2 - \omega_1)^2} \left(\frac{\lambda^2}{\omega_1 \omega_2} \Omega_0 - \lambda \left(\frac{1}{\omega_1} + \frac{1}{\omega_2} \right) \Omega_1 + \Omega_2 \right) \\ r_3 = \alpha_f \left(\frac{\omega_2}{\omega_2 - \omega_1} \right)^2 \left(\frac{\lambda^2}{\omega_2^2} \Omega_0 - 2 \frac{\lambda}{\omega_2} \Omega_1 + \Omega_2 \right) \end{aligned} \quad (3.10)$$

A (3.10) alatti kifejezésekben az $\Omega_0 = \mu - v + 2 v_0 v_d$, $\Omega_1 = \mu_0 - v_0 + v_0 v_d$ és $\Omega_2 = \mu_0 - v_0$ jelöléseket vezettük be. Irjuk fel a szórásnégyzetet az $\omega = 0$ kritikus állapotra is. Rövid számolás után azt kapjuk, hogy

$$d_k^2(t) = d_k^0 + d_k^1 e^{-(\lambda+\beta/l)t} + d_k^2 e^{-2(\lambda+\beta/l)t}, \quad (3.11)$$

ahol

$$d_k^0 = \Delta + \Delta^2 \left(\frac{\Omega_2}{2\lambda\tau_f} - 1 \right) + \Delta^3 \frac{\Omega_0 + \Omega_1}{\lambda\tau_f} - \frac{5}{2} \Delta^4 \frac{\Omega_0}{\lambda\tau_f} + \Delta^3 \Omega_0 t / \tau_f,$$

$$d_k^1 = 1 + \Delta \left(\frac{\Omega_2}{\lambda\tau_f} - 3 \right) + 2\Delta^2 \left(1 - \frac{\Omega_1 + \frac{1}{2}\Omega_2}{\lambda\tau_f} \right) + 2\Delta^4 \frac{\Omega_0}{\lambda\tau_f} + \quad (3.12)$$

$$+ 2\Delta(1-\Delta)(\Omega_1 - \Delta\Omega_0)t/\tau_f,$$

$$d_k^2 = -1 + \Delta \left(1 - \frac{\Omega_2}{2\lambda\tau_f} \right) + \Delta^2 \left(\frac{4\Omega_1 + \Omega_2}{2\lambda\tau_f} - 1 \right) - \Delta^3 \frac{\Omega_0 + \Omega_1}{\lambda\tau_f} +$$

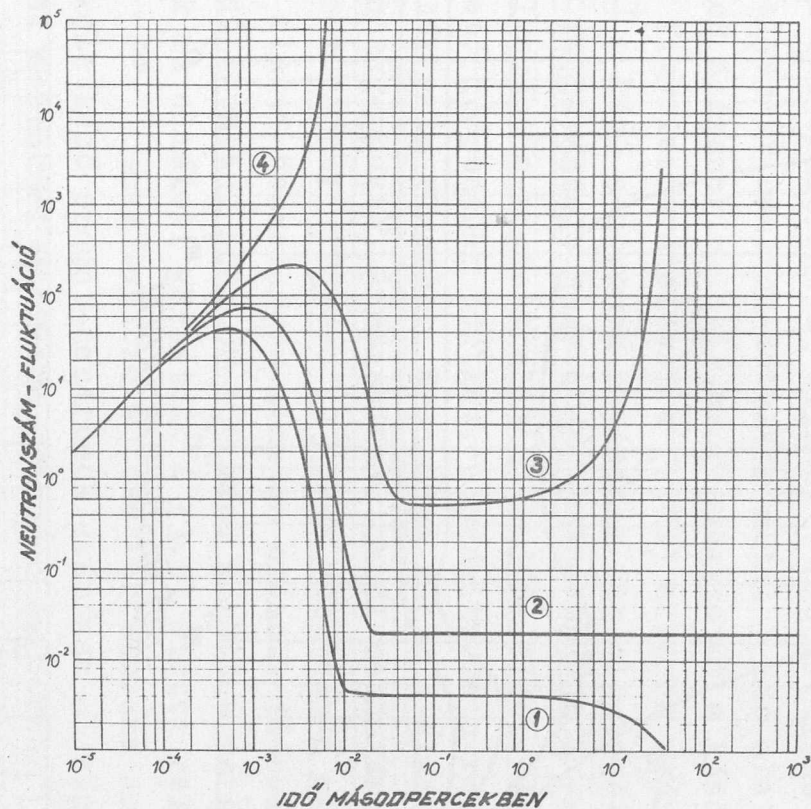
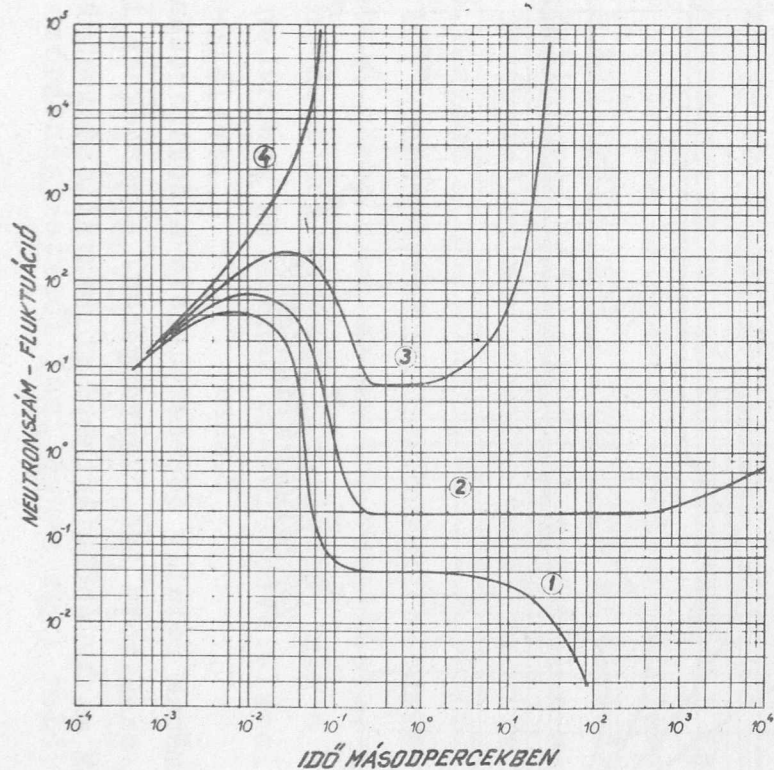
$$+ \frac{1}{2} \Delta^4 \frac{\Omega_0}{\lambda\tau_f}$$

A (3.12)-ben szereplő $\Delta = \frac{1}{1 + \beta/\lambda l}$

Az 1.sz. (a és b) ábrán láthatjuk különböző reaktivitások esetében a szórásnégyzet időtől való függését, a prompt-kritikus esetre vonatkozó görbétől eltekintve a neutronok átlagos élettartamától függően ($l = 10^{-5}$ sec a/ ábra és $l = 10^{-4}$ sec b/ ábra) néhány milliszekundumnyi, illetve néhány századszekundumnyi idő után a kezdetben erősen növekedő szórásnégyzet hirtelen csökkenő tendenciát mutat, majd bizonyos időn át a késő neutronok hatásának megjelenéséig állandó marad s végül aszerint, hogy $\rho > 0$ vagy $\rho < 0$ növekedni, illetve csökkenni kezd. A $\rho = 0$ és $l = 10^{-5}$ sec esetben a szórásnégyzet csaknem lineárisan nő az idővel, ha már $t > 10^3$ sec. Ha $l = 10^{-4}$ sec, a lineáris növekedés csak $t > 10^4$ sec időértékeknél válik jelentőssé. Prompt-kritikus esetben a szórásnégyzet rendkívül gyorsan bekövetkező monoton növekedést mutat.

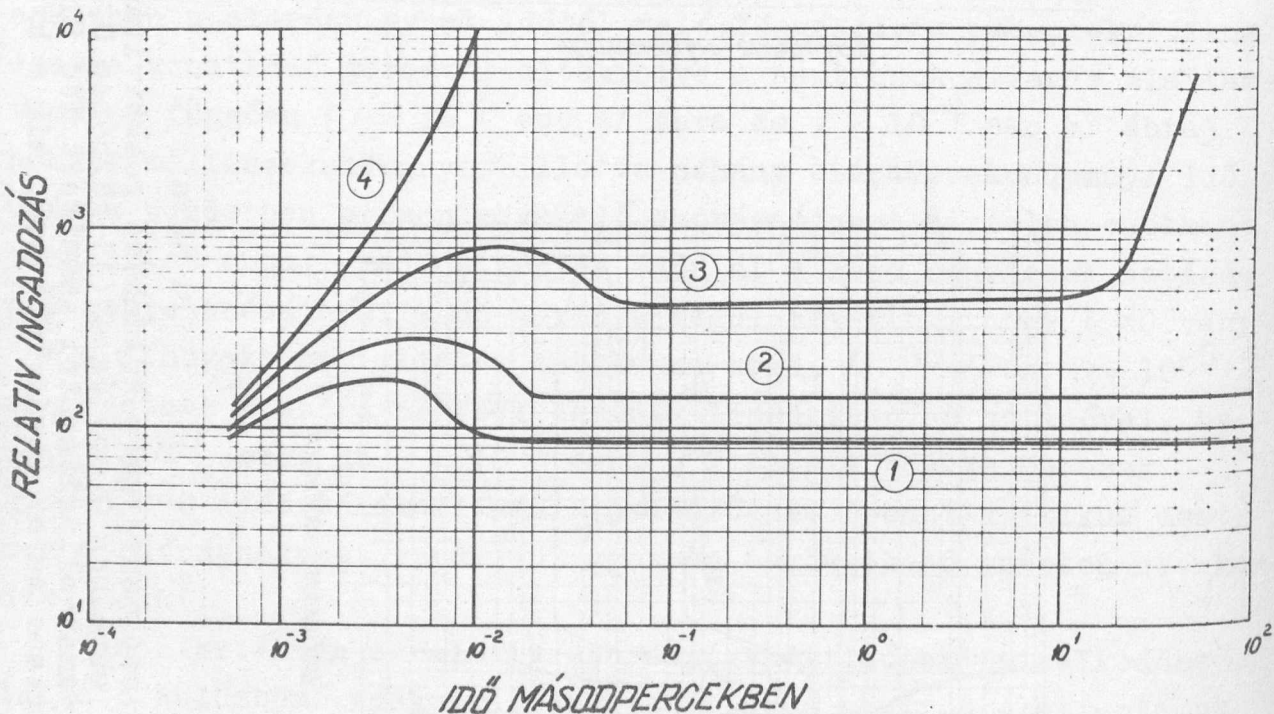
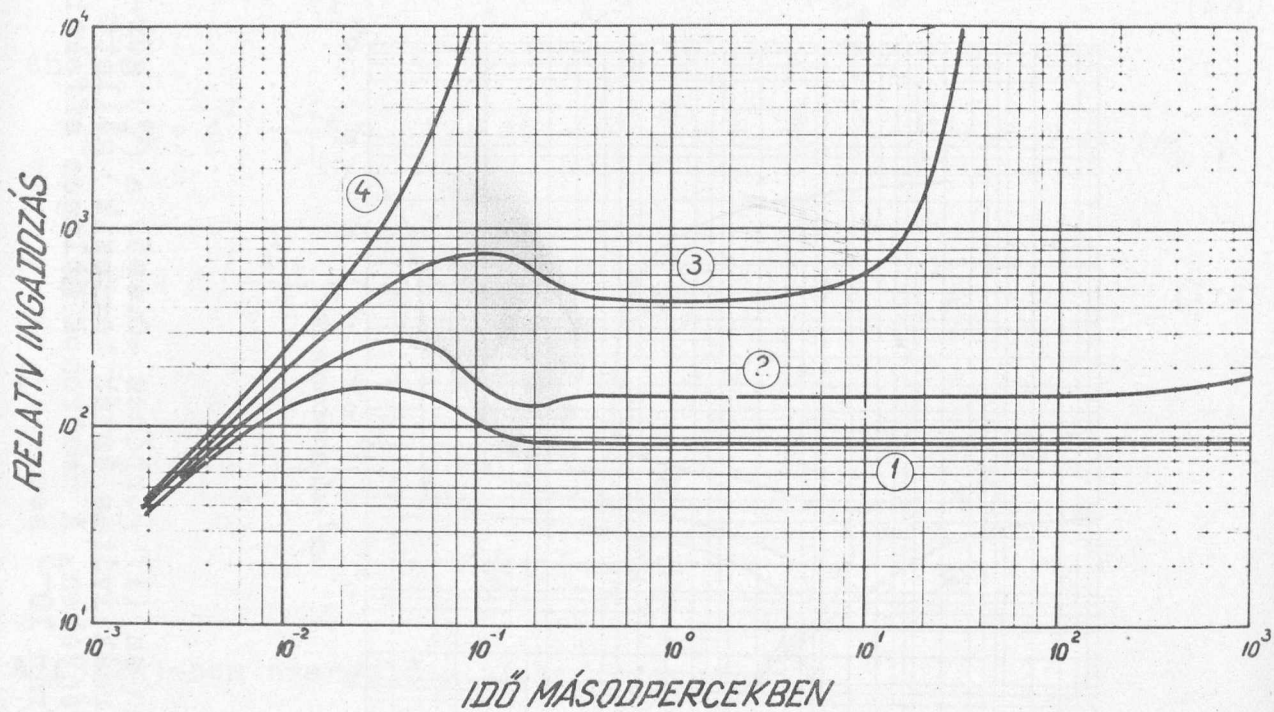
A 2.sz. ábrán a relativ szórásnégyzet időbeli viselkedése látható különböző reaktivitások és átlagos neutron élettartamok mellett.

2. Könnyedén meghatározhatjuk az (1.32) és (1.34) összefüggések alapján a neutronforrással ellátott sokszorozó közegekre vonatkozó relativ-szórásnégyzet időtől való függését a késő neutronok szerepének figyelembevételével is. Tekintettel azonban arra, hogy a (3.2)-höz képest ujszerű eredményt nem várhatunk, a számi-



1. ábra

Neutronok számának szórásnégyzete különböző reaktivitások (az (1) görbéhez $-0,005$, a (2) görbéhez zérus, a (3) görbéhez $0,005$ és a (4) görbéhez $0,01$ reaktivitás érték tartozik) mellett a sokszorozási folyamat elindításától számított idő függvényében. A neutronok átlagos effektív élettartama az a/ ábrán 10^{-4} sec, míg a b/ ábrán 10^{-5} sec.



2. ábra

Neutronok számának relatív szórásnégyzete a sokszorozási folyamat elindulásától számított idő függvényében. A görvekhez tartozó fizikai állandók az 1. ábrán látható görbék állandóival egyeznek meg.

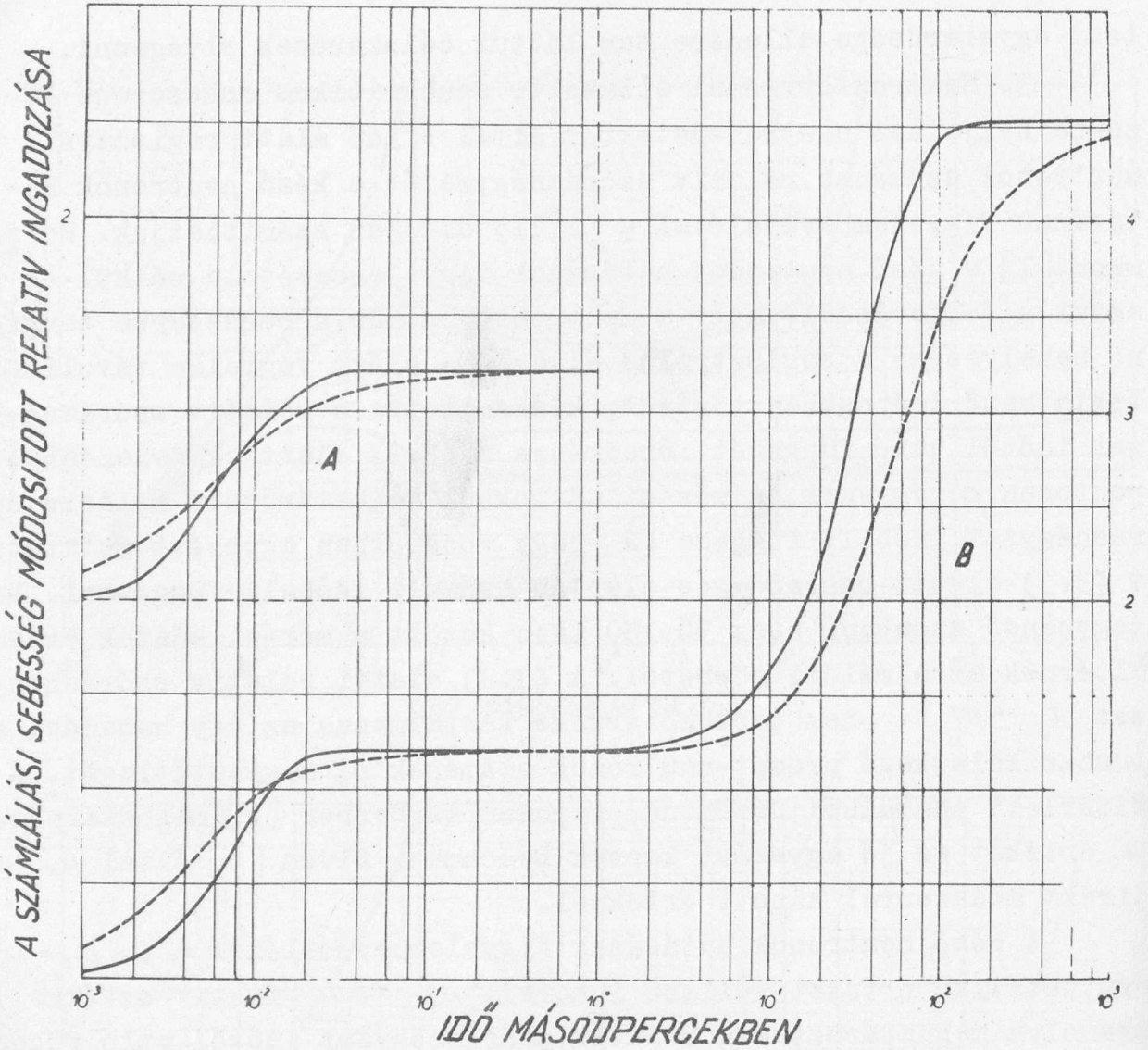
meg.

tást egyszerűsége ellenére sem láttuk célszerűnek elvégezni.

3. Neutronforrással ellátott, szubkritikus sokszorozó közegbe helyezett neutron-detektor által t idő alatt regisztrált neutronok számának relativ szórásnégyzetét a késő neutronok hatásának figyelembevételével a (2.21) alapján számíthatjuk. Hoffmann [1] a késő neutronok hatásának figyelembevétele nélkül és azzal a feltevással, hogy a neutronforrásnak a rendszerbe történő behelyezése a regisztrálás elkezdése előtt végtelen távolinak tekinthető időpontban történt, kiszámította a relativ szórásnégyzet időtől való függését. Eredménye a (3.3) alatti kifejezéssel pontosan megegyezik. A mérési adatokból meghatározott relativ szórásnégyzet időbeli függése [2] nagy vonásokban egyezést mutatott a (3.3) alatti összefüggés alapján számolt időbeli függéssel. Megjegyzendő azonban, hogy 50-150 msec között a mérési adatok erősen eltérnek az elméleti görbétől. A (3.3) alatti relativ szórásnégyzet $t \rightarrow \infty$ -hez tartozó értéke tartalmazza az egy hasadási akтусban keletkező prompt-neutronok számának μ_0 négyzetátlagát. A kísérleti adatokból Hoffmann, Feynman és Serber [2] meghatározták μ_0 értékét és jó egyezést kaptak Leachman, Diven [4] által μ_0 -ra direkt módszerrel kapott értéknél.

A késő neutronok hatásának figyelembevételéhez a $\mu = \mu_0 + \mu_d$ négyzetátlag értékét kellene ismerni. $\mu_d \sim 0,1$ fiktív értékkel számolva meghatároztuk a relativ szórásnégyzet időtől való függését a késő neutronok hatásának figyelembevételével. (Ismét feltettük, hogy a neutronforrást a regisztrálás elkezdése előtt végtelen távolinak tekinthető időpontban helyeztük el a sokszorozó rendszerben.) A 3.sz. ábrán látható a módosított[‡] relativ szórásnégyzet időtől való függése a $\rho = -0,0084$ és $l = 5,36 \cdot 10^{-5}$, valamint $\zeta_f = 1,33 \cdot 10^{-4}$ paraméterekkel jellemzett rendszerre vonatkozóan. A szaggatott A görbe arra az esetre vonatkozik, amikor a késő neutronok hatását nem vesszük figyelembe, míg a szaggatott B görbe a késő neutronok hatásának figyelembevételével számított időfüggést szemlélteti.

[‡] A módosítás azt jelenti, hogy mind az A, mind a B ábrán a (2.21) alatti relativ szórásnégyzetből csak a Poisson-eloszlás relativ szórásnégyzetétől (ami éppen egy) való eltérést tüntettük fel.

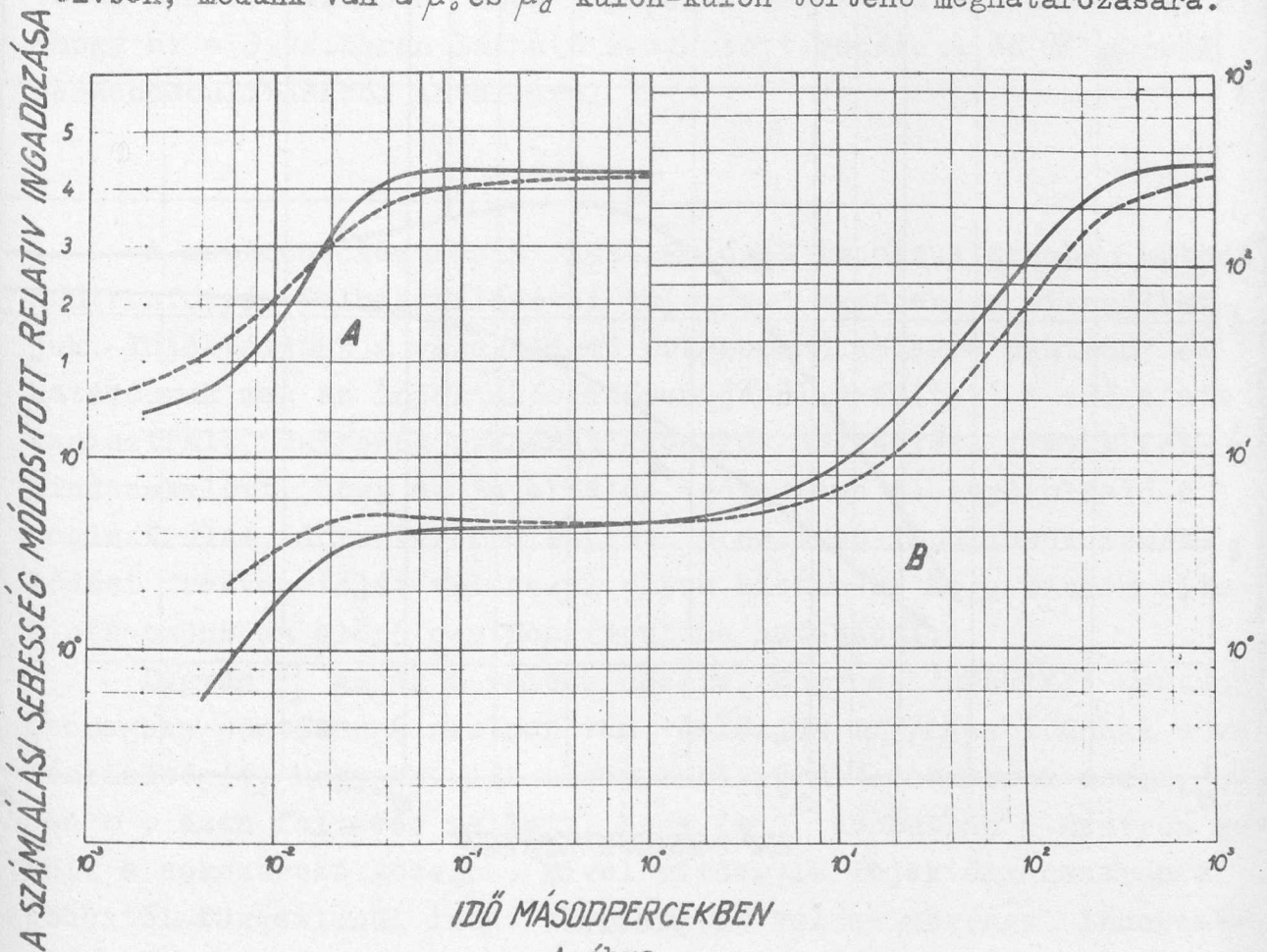


3. ábra

Neutronforrással ellátott szubkritikus sokszorozó közegbe helyezett neutrondetektor által regisztrált neutronok számának módosított relatív szórásnégyzete, a regisztrálás idő függvényében. A kihuzott görbék impulzus üzemen, míg a szaggatott görbék stacionárius üzemen működő neutronforrással ellátott sokszorozó közegre vonatkoznak. A *B* görbéket a késő neutronok hatásának figyelembevételével, míg az *A* görbéket csak a prompt neutronok figyelembevételével számítottuk. A számításoknál a szubkritikus sokszorozó közeg reaktivitását $-0,0084$ -nek, a neutronok átlagos effektív élettartamát $5,36 \cdot 10^{-5}$ sec-nak, az átlagos hasadási élettartamot $1,33 \cdot 10^{-4}$ sec-nak, a detektor hatásfokát $3,51 \cdot 10^{-4}$ sec-nak választottuk.

A szaggatott *B* görbe első szakasza pontosan megegyezik a szaggatott *A* görbével. A szaggatott *B* görbe első lapos szakaszához tartozó ordináta érték nagy pontossággal megegyezik a szaggatott *A* görbe $t \rightarrow \infty$ -hez tartozó (de gyakorlatilag már kisebb

τ értékekre is kellő pontossággal kiadódó) ordináta értékével. Figyelemreméltó az a körülmény, hogy a szaggatott B görbe $\tau \rightarrow \infty$ -hez tartozó ordináta értékéből a $\mu = \mu_0 + \mu_d$ állandót meghatározhatjuk. A szaggatott B görbét meghatározó kísérleti adatokból tehát egyszerre két jellemző adatot (az első és a második lapos szakaszhoz tartozó ordináta értéket) nyerhetünk és így legalább is elvben, módunk van a μ_0 és μ_d külön-külön történő meghatározására.

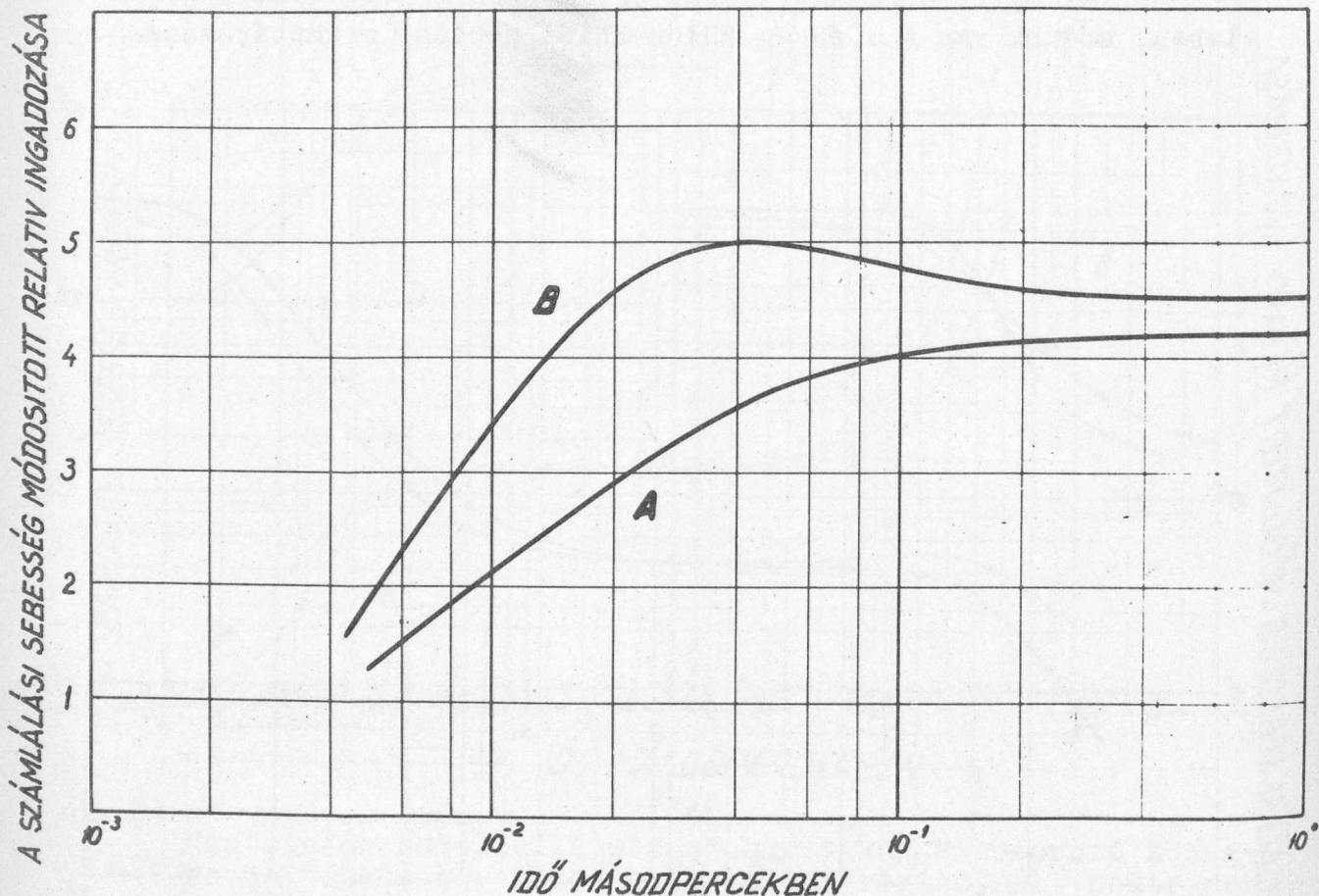


4. ábra

Ugyanaz mint a 3.számú, csak a sokszorozó közeg reaktivitása $-0,00096$, a neutron átlagos effektív élettartama $5,40 \cdot 10^{-4}$ sec, átlagos hasadási élettartama pedig $1,35 \cdot 10^{-4}$ sec.

A 4.sz.ábrán a $-0,00096$ reaktivitású és $l = 5,42 \cdot 10^{-4}$ valamint $\tau_f = 1,35 \cdot 10^{-4}$ paraméterekkel jellemzett sokszorozó rendszerre vonatkozó módosított relatív szórásnégyzet időtől való függését láthatjuk. A Hoffmann, Feynman és Serber [2] által vizsgált

sokszorozó rendszer paraméter értékei alig különböznek az előbbi értékektől. Figyelemreméltó, hogy a kritikus állapothoz közelebb lévő sokszorozó rendszerekben a késő-neutronok hatásának figyelembevételével számított módosított relativ szórásnégyzet az első lapos szakasza előtt kis lokális maximummal rendelkezik. A köny-



5. ábra

A 4. ábrán látható A és B szaggatott vonalú görbék első szakasza.

nyebb összehasonlíthatóság kedvéért az 5.sz. ábrán feltüntettük a késő-neutronok figyelembevételével, illetve figyelembevétele nélkül számított görbék első szakaszát. Ha Hoffmann, Feynman és Serber nagy statisztikus hibával rendelkező mérési adatait [2] az 5.sz. ábra görbéivel összehasonlítjuk, láthatjuk, hogy a késő neutronok hatását figyelembevevő B görbe menete nagyobb hasonlóságot mutat a kísérleti adatokból szerkeszthető görbével, mint a késő neutronok hatását ignoráló A görbe.

A 4.sz. ábra szaggatott vonalú A és B görbéinek összehasonlítása viszont arról győz meg bennünket, hogy a kritikushoz közeli állapotban lévő rendszerekre (mint amilyen a Hoffmann, Feynman és Serber által tanulmányozott rendszer is volt) meglehetősen pontatlan az a kijelentés, hogy 300 msec körül a módosított relatív szórásnégyzet felveszi a prompt neutronokra vonatkozó módosított relatív szórásnégyzet aszimptotikus értékét. Kis reaktivitások mellett azonban ennek a kijelentésnek van jogosultsága, mint ahogy ez a 3.sz. ábrán látható szaggatott vonalú A és B görbék összehasonlításából is kiderül.

c/

A neutron sokszorozás fluktuációját impulzus üzemben működő neutronforrás felhasználásával különösen egyszerűen vizsgálhatjuk. Injektáljunk a vizsgálandó sokszorozó közegbe neutronot és határozzuk meg az injektálás időpontjától számított t idő alatt regisztrált neutronok számának eloszlásfüggvényét. Tegyük fel mindenekelőtt, hogy az injektálás időtartama elhanyagolható a regisztrálás időtartamához képest. A neutron-impulzusok ismétlődési frekvenciáját válasszuk olyan kicsinek, hogy mindig eltekinthessünk az előző neutron-impulzus hatásától.

Legyen P_k annak a valószínűsége, hogy az injektált neutron csomagban pontosan k neutron van. Jelöljük $w_n^k(t)$ -vel annak a valószínűségét, hogy a t idő alatt regisztrált neutronok száma éppen n , azon feltevés mellett, hogy $t=0$ időpontban k neutron került a sokszorozó közegbe. Mivel mindegyik injektált neutron a többitől függetlenül indít el bizonyos valószínűséggel láncreakciót, felírhatjuk, hogy

$$w_n^k(t) = \sum_{n_1 + \dots + n_k = n} \prod_{i=1}^k w_{n_i}^1(t), \quad (3.13)$$

ahol $w_{n_i}^1(t)$ a korábban már definiált eloszlásfüggvényt jelenti. A minket érdeklő eloszlásfüggvényt a

$$V_n(t) = \sum_{k=0}^{\infty} P_k w_n^k(t) \quad (3.14)$$

összefüggés határozza meg. Vezessük be a $\Gamma(t, x) = \sum_{n=0}^{\infty} V_n(t) e^{nx}$ generátorfüggvényt. Azt kapjuk, hogy

$$\Gamma(t, x) = \gamma [g(t, x)], \quad (3.15)$$

ahol

$$\gamma(x) = \sum_{k=0}^{\infty} P_k x^k,$$

míg $g(t, x)$ a $w_n(t)$ eloszlásfüggvény generátorfüggvénye. Jelöljük a P_k eloszlásfüggvény első és második momentumát S_1 -gyel, illetve S_2 -vel. A neutroncsomag injektálásától számított t idő alatt regisztrált neutronok átlagos számát az

$$\mathcal{N}_1(t) = S_1 n_1(t), \quad (3.15')$$

míg relatív szórásnégyzetét a

$$\frac{\mathcal{D}_c^2(t)}{\mathcal{N}_1(t)} = \frac{S_2 - S_1^2}{S_1} \cdot n_1(t) + \frac{n_2(t) - n_1^2(t)}{n_1(t)} \quad (3.16)$$

kifejezés adja meg. Ha $S_2 - S_1^2 = S_1$ azaz ha P_k Poisson-eloszlást mutat, akkor az $n_2(t) = n_1(t) + m_1^*(t) * h(t)$ összefüggés figyelembevételével a

$$\frac{\mathcal{D}_c^2(t)}{\mathcal{N}_1(t)} = 1 + \frac{m_1^*(t) * h(t)}{n_1(t)} \quad (3.17)$$

kifejezéshez jutunk.

1. A késő neutronok hatásától tekintsünk el. Rövid számolás arra vezet, hogy

$$\frac{\mathcal{D}_c^2(t)}{\mathcal{N}_1(t)} = 1 + \frac{\epsilon_0(\mu_0 - \nu_0)}{(\tau_f \alpha r)^2} \left[1 + e^{-\alpha r t} \left(1 - \frac{2\alpha r t}{1 - e^{-\alpha r t}} \right) \right]. \quad (3.18)$$

Látható, hogy

$$\frac{\mathcal{D}_c^2(\infty)}{\mathcal{N}_1(\infty)} = 1 + \frac{\epsilon_0(\mu_0 - \nu_0)}{(\tau_f \alpha r)^2}.$$

2. Ha a késő neutronok hatását is figyelembe akarjuk venni, akkor a (3.16) alatti kifejezésből bonyolult összefüggés származtatható. A szubkritikus sokszorozó rendszerre vonatkozóan ugyanolyan paraméter értékekkel számolva mint az előbb, a 3. és 4.sz. ábrán látható kihuzott görbékhez jutunk. A kihuzott A görbe a (3.16) alatti módosított relatív szórásnégyzet időtől való függését mutatja, míg a kihuzott B görbe a késő neutronok figyelembevételével számított összefüggés időbeli képét szemlélteti. A kihuzott és szaggatott görbék összehasonlításából láthatjuk, hogy pulzált neutronforrással történt mérésnél kedvezőbbek a viszonyok, mivel a lapos görbeszakaszok élesebb fordulattal jelentkeznek.

Befejezésül két megjegyzést kívánunk tenni. Az egyik megjegyzésünk az, hogy a (2.1) és a (3.15) alatti generátorfüggvényekből a magasabbrendű momentumok (harmadik, negyedik stb.) is származtathatók. Így a kísérleti adatokból képzett magasabbrendű momentumokból meghatározhatjuk az egy hasadási aktusban keletkező neutronok számának magasabbrendű momentumait is. A másik megjegyzésünk a kísérleti adatok statisztikus hibájának becslésével kapcsolatos. Mivel az egy hasadási aktusban keletkező neutronok számának valószínűségi eloszlásfüggvényét ismeretlennek tekintjük, a matematikai statisztika nyelvén szólva ugynevezett nem-paraméteres problémával állunk szemben. A mérési adatokból számolt momentumoknak a valódi momentumoktól való eltérésére, pontosabban az adott eltérés valószínűségére mégis tehetünk bizonyos kijelentéseket. Ezekkel a kérdésekkel a kísérleti eredmények ismertetésénél részletesebben foglalkozunk.

I r o d a l o m

- [1] de Hoffmann, F., The Science and Engineering of Nuclear Power, Vol. II., Addison Wesley Press, Cambridge, Mass. (1949)
- [2] Feynmann, R.P., de Hoffmann F. and Serber, R., J.Nucl.Energy, 3. 64. (1956)
- [3] Pál, L.I., Nuovo Cimento Suppl., 7. 25. (1958)
- [4] Diven, B.C. et.al., Phys. Rev., 101. 1012. (1956)
Leachaman, R.B., Phys. Rev., 101. 1005. (1956)

NAGYENERGIÁJU RÉSZECSKÉKKEL BESUGÁRZOTT SZILÁRD TESTEK RÁCSSÉRÜLÉSEINEK STATISZTIKUS ELMÉLETE

Irta: Pál Lénárd és Németh Géza*

Neutronfizikai Osztály

Összefoglalás

Exakt valószínűségszámítási módszerekkel meghatároztuk nagyenergiájú részecskékkel besugárzott szilárd testben keletkező rácssérülések számának eloszlásfüggvényét. Az eloszlásfüggvény generátorfüggvényéből leszarmasztattuk a rácssérülések számának átlagát és szórását meghatározó egyenleteket. Ezeket az egyenleteket megoldottuk azon feltevés mellett, hogy a primer bombázó részecskék neutronok és hogy a kiszakított atomok, valamint a rácspontokban rezgő atomok közötti ütközéseket ideális szilárdságu golyók között lejátszódó ütközéseknek tekinthetjük. Azt találtuk, hogy a rácshibák számának szórása hasadási neutronokkal történő besugárzás esetén nagyobb, mint a Poisson-eloszlás szórása. Ha a besugárzásnak alávetett minta vastagsága a neutronok átlagos szabad úthosszához képest kicsiny, akkor a relatív szórásra a

$$\frac{D(t)}{N_1(t)} \sim \sqrt{\left(\frac{2,1667}{Q_s b} + \frac{D_r^2(t)}{S_1(t)}\right) \frac{1}{S_1(t)}} + O\left(\frac{E_d}{E_f}\right)$$

összefüggés adódik, ahol Q_s a besugárzás hatásának alávetett anyag makroszkópikus szórási hatáskeresztmetszete, b az anyagminta vastagsága, $S_1(t)$ a t ideig tartó besugárzás alatt a minta egységnyi felületén áthaladt neutronok átlagos száma, míg D_r^2 a szórási négyzete, E_d a kiszakítási energia eV-okban és $E_f = 0,5 \cdot 10^6$ eV. $N_1(t)$ pedig a minta egységnyi felületén át, t ideig tartó besugárzás hatására kiszakított atomok átlagos számát jelenti.

1. Bevezetés

Nagyenergiájú részecskékkel /pl. gyors neutronokkal/ besugárzott szilárd testben a kristályrács egyes atomjai kiszakadnak egyensúlyi helyzetükből és hosszabb vagy rövidebb ut megtétele

* Az 1958. évi genfi II. Nemzetközi Atomenergia Konferencián előadott előadás.

után - amelynek során esetleg újabb atomokat szakítanak ki - a kristályrács valamelyik "nem törvényes" helyén mint beékelt atomok helyezkednek el. A kristályrácsban ilyen módon lyukak és beékelt atomok keletkeznek. A kiszakított atomok mozgásuk során részben ionizáció, részben rugalmatlan (rácsrezgések gerjesztése), részben pedig rugalmas ütközések révén veszítik el energiájukat. A kristályrácsnak ilyen módon átadott energia nagyobbik része fordítódik rácsrezgések gerjesztésére és csak kisebbik része atomok kiszakítására.

A besugárzás hatására előálló rácssérülés kvantitatív jellemzésére kívánatos volna kellő gondossággal kiszámítani a kiszakított atomok számának átlagát és lehetőség szerint a szórását is. Bár a sérült rácshelyek átlagos számának kísérleti meghatározására megbízható módszerek nem állnak rendelkezésre, mégis biztonnával állithatjuk, hogy az eddigi elméleti becslések és kísérleti eredmények között jelentős eltérés van. Az elméleti megfontolásokból a kiszakított atomok számának átlagára öt-hatszorosa adódik annak az értéknek, ami a kísérleti adatok alapján valószínűnek látszik. Feltehető, hogy ennek az eltérésnek valódi okát a kiszakítás elemi folyamatai között kell keresnünk, mégis szükségesnek látszik általános elméleti módszer kidolgozása az összetett folyamat valószínűségyszámítási tárgyalására.

Az eddig ismeretes számítási módszerek [1], [2], [3] nem adnak lehetőséget a besugárzás hatására előálló rácssérülések valószínűségyszámítási tárgyalására. A következőket (legalábbis egy adott modellre vonatkozóan) számítási módszerre márcsak azért is szükség van, hogy megbecsülhessük az azonos körülmények között besugárzott vizsgálati mintákban a kiszakított atomok számának szórását és így elválaszthassuk a folyamat valószínűségi jellegéből adódó ingadozásokat a tényleges fizikai változásoktól.

Az általunk kidolgozott módszer [4] segítségével a kiszakított atomok számának eloszlásfüggvényét határozhatjuk meg, illetve az eloszlásfüggvény generátorfüggvényéből az eloszlást jellemző félinvariánsokat (átlagérték, szórás stb.) számíthatjuk ki. Módszerünk figyelembeveszi a kiszakítás elemi aktusának valószínűségi jellegét is és így az a törekvés, ami A.E.Fein [5] számításában e jelleg figyelembevételére irányul, az általunk kö-

vetett meggondolásokban következetesen érvényesül.

A továbbiakban felépítjük a rácssérülések következetes valószínűségszámítási elméletét és rámutatunk a korábbi módszerekhez való kapcsolatára.

2. Az alapegyenletek levezetése

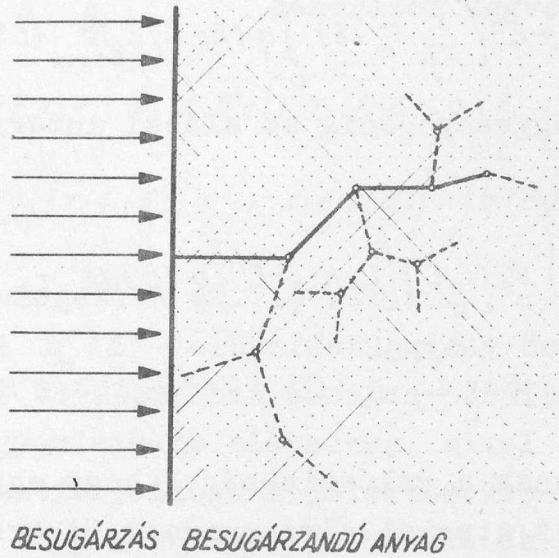
Jelöljük V_{E_0} -al egy E_0 energiájú bombázó részecske által közvetve, vagy közvetlenül kiszakított atomok tényleges számát. Határozzuk meg annak a valószínűségét, hogy $V_{E_0} = n$, azaz határozzuk meg a

$$\mathcal{P}(V_{E_0} = n) = P_n(E_0) \quad (2.1)$$

eloszlásfüggvényt. A $P_n(E_0)$ eloszlásfüggvény meghatározásához induljunk ki a következő feltevésekből. Tekintsük a besugárzás hatásának alávetett anyagot a tér egyik felében végtelen kiterjedésűnek. A tér üres felét és a besugárzandó anyagot határolja az (x, y) végtelen sík (lásd az 1. ábrán). A tárgyalás egyszerűsítése érdekében tegyük fel, hogy a bombázó részecskék által kiszakított atomok közül egyesek, vagy maguk a bombázó részecskék, nem juthatnak ki a besugárzandó anyagból az üres térbe. Természetesen véges méretű testekre is érvényesek meggondolásaink, mivel a kiszakított atomok kicsiny közepes szabad uthossza miatt meglehetősen kis térfogatra koncentrálódik az általuk kiváltott hatás. A rácshiábák térbeli eloszlására természetesen nem vonhatunk le következtetéseket. A $P_n(E_0)$ eloszlásfüggvény csupán arra ad felvilágosítást, mekkora valószínűséggel hoz létre egy E_0 energiájú bombázó részecske n kiszakított atomot a besugárzás hatásának alávetett minta egész térfogatában.

Számításaink során nem vesszük figyelembe a kiszakított atomok diffúzió útján történő beépülését szabad rácshelyekre (rekombináció), csupán a kiszakító atomnak az általa kiszakított atom helyére történő esetleges befogását vesszük számításba. Így várható, hogy a kiszakított atomok átlagos számának általunk meghatározott értéke nagyobb lesz a valódinál. Egyszerűség kedvéért tételezzük fel azt is, hogy a besugárzandó anyag csupán egyfajta atomot tartalmaz.

Jelöljük $\omega_p(E_0, E) dE$ -vel annak a valószínűségét, hogy a bombázó részecske E_0 energiája egyetlen ütközés révén az $(E, E+dE)$ intervallumba eső értékre csökken. Egyelőre semmiféle kikötést nem



1. ábra

teszünk arra vonatkozóan, hogy ez az energiacsökkenés milyen módon következik be. A bombázó részecske által eltalált atom $E_0 - E$ energiát nyer az ütközés során. Ez az energia fordítható pl. ionizációra, rácsrezgések gerjesztésére, de kedvező esetben előidézheti a kérdéses atomnak a kristályrácsból való kiszakadását is.

Jelöljük $K(E_0 - E)$ -vel annak a valószínűségét, hogy a kiszakadás tényleg bekövetkezik, ha egy atom a bombázó részecskétől $E_0 - E$ energiát nyer. Legyen továbbá $q(E_0 - E, E') dE'$ annak a valószínűsége, hogy a kiszakított atom kinetikus energiája az $(E', E' + dE')$ intervallumba esik, azon feltevés mellett, hogy a kiszakítás előtt $E_0 - E$ energiát nyert ütköző partnerétől. Az E' energiájú kiszakított atom természetesen további atomokat szakíthat ki. Legyen $\rho_{E'}$ azon kiszakított atomok száma, amelyeket a bombázó részecske által közvetlenül kiszakított atom mozgása során utódaival együtt létrehoz. Jelöljük $p_m(E')$ -vel annak a valószínűségét, hogy $\rho_{E'} = m$, azaz legyen

$$\mathcal{P}(\rho_{E'} = m) = p_m(E') \quad (2,2)$$

Könnyen belátható, hogy a $P_n(E_0)$ eloszlásfüggvény az elő-

zókben bevezetett valószínűségek segítségével a következőképpen építhető fel:

$$P_n(E_0) = \int_0^{E_0} \omega_p(E_0, E) [1 - K(E_0 - E)] P_n(E) dE + \\ + \int_0^E \omega_p(E_0, E) K(E_0 - E) \left\{ \sum_{m=0}^n P_m(E) \int_0^{E_0 - E} q(E_0 - E, E') p_{n-m}(E'') dE'' \right\} dE \quad (2.3)$$

A $P_m(E)$ eloszlásfüggvény pedig az alábbi integrálegyenlet megoldásaként adódik:[‡]

$$P_m(E) = \int_0^E \omega_s(E, E') [1 - K(E - E')] P_m(E') dE' + \\ + \int_0^E \omega_s(E - E') K(E - E') \left\{ \sum_{m'=0}^m P_{m'}(E') \int_0^{E - E'} q(E - E', E'') P_m(E'') dE'' \right\} dE', \quad (2.4)$$

ahol $\omega_s(E, E') dE'$ annak a valószínűsége, hogy egy kiszakított atom energiája egy másik atommal elszenvedett ütközés során az $(E', E' + dE')$ intervallumba eső értékre csökken, azon feltevés mellett, hogy az ütközés előtt energiája E volt. Mivel nem kívánunk foglalkozni a kiszakított atomok térbeli eloszlásával, nem vesszük figyelembe a kiszakítás anizotrópiáját.

A (2.3) és a (2.4) alatti egyenleteket a

$$G(E_0, x) = \sum_{n=0}^{\infty} e^{nx} P_n(E_0), \quad g(E, x) = \sum_{m=0}^{\infty} e^{mx} P_m(E) \quad (2.5)$$

generátorfüggvények bevezetésével a következőképpen írhatjuk fel:

$$G(E_0, x) = \int_0^{E_0} \omega_p(E_0, E) G(E, x) \left\{ 1 - K(E_0 - E) + K(E_0 - E) \int_0^{E_0 - E} q(E_0 - E, E') g(E', x) dE' \right\} dE \quad (2.6)$$

és

$$g(E, x) = \int_0^E \omega_s(E, E') g(E', x) \left\{ 1 - K(E - E') + K(E - E') \int_0^{E - E'} q(E - E', E'') g(E'', x) dE'' \right\} dE'. \quad (2.7)$$

A kiszakított atomok számát csökkenti az a lehetőség, hogy a kiszakítást végző atomok bizonyos valószínűséggel befogódhatnak az általuk kiszakított atomok helyére. Ezért a (2.4) illetve (2.7) alatti egyenletek nem tekinthetők egészen pontos egyenleteknek.

[‡] $P_m(E) = \delta_{im}^s$, ha E kisebb annál a legkisebb határenergianál, amelynél csak nagyobb energiamennyiség átadásakor következhet be kiszakadás.

Jelöljük $l(E')$ -vel annak a valószínűségét, hogy a kiszakítást végző atom, amelynek energiája a kiszakítás után E' , a szabaddá vált rácshelyen befogódik. Legyen $p_m^o(E)$ annak a valószínűsége, hogy egy E energiájú atom mozgása során a befogás lehetőségének figyelembevételével m kiszakítást hoz létre. Egyszerűen belátható, hogy a $g_o(E, x) = \sum_{m=0}^{\infty} e^{mx} p_m^o(E)$ generátorfüggvény a

$$g_o(E, x) = \int_0^E \omega_s(E, E') [1 - K(E - E')] g_o(E', x) dE' + \int_0^E \omega_s(E, E') K(E - E') \left\{ [1 - l(E')] g_o(E', x) + l(E') \right\} \int_0^{E-E'} q(E - E', E'') g_o(E'', x) dE'' dE' \quad (2.7')$$

egyenletnek tesz eleget. A (2.7')-ből a ω_s , K , q és l függvények ismeretében a $p_m^o(E)$ eloszlásfüggvény összes fontos jellemzője kiszámítható. Továbbiakban azonban számításainkat a (2.6) és (2.7) alatti egyenletekre alapozzuk, mivel az $l(E')$ függvényre csak erősen kvalitatív jellegű kijelentéseket tehetünk.

Tegyük fel, hogy a besugárzás hatásának alávétett minta minden felület-darabját azonos intenzitású és energia-spektrumu sugárzás éri. Jelöljük $R(t, E_1, \dots, E_k) dE_1 \dots dE_k$ -vel annak a valószínűségét, hogy t ideig tartó besugárzás alatt a szilárd anyag egységnyi felületén k az $(E_1, E_1 + dE_1), \dots, (E_k, E_k + dE_k)$ intervallumokba eső bombázó részecske hatol át. Ha most $L_n(t)$ -vel jelöljük annak a valószínűségét, hogy egységnyi felületen át t ideig tartó besugárzás hatására n kiszakított atom keletkezzék, akkor felírhatjuk, hogy

$$L_n(t) = \sum_{k=0}^{\infty} \int_0^{\infty} \dots \int_0^{\infty} R(t, E_1, \dots, E_k) \sum_{n_1 + \dots + n_k = n} P_{n_1}(E_1) \dots P_{n_k}(E_k) dE_1 \dots dE_k. \quad (2.8)$$

Az általánosság különösebb megsértése nélkül feltehetjük, hogy

$$R(t, E_1, \dots, E_k) = R_k(t) \prod_{i=1}^k h(E_i). \quad (2.8')$$

Vezessük be a $H(t, x) = \sum_{k=0}^{\infty} e^{kx} R_k(t)$ és az $F(t, x) = \sum_{n=0}^{\infty} e^{nx} L_n(t)$ generátorfüggvényeket. Segítségükkel az

$$F(t, x) = H \left\{ t, \ln \int_0^{\infty} h(E_o) G(E_o, x) dE_o \right\} \quad (2.9)$$

összefüggéshez jutunk, amiből könnyen származtathatjuk a minket érdeklő összes mennyiséget.

3. A kiszakított atomok átlagos számának és szórásának meghatározása

a/ A (2.9)-ből a kiszakított atomok átlagos számát a

$$\left[\frac{\partial F(t, x)}{\partial x} \right]_{x=0} = N_1(t) \quad (3.1)$$

Vezessük be a következő jelöléseket

$$\left[\frac{\partial H(t, x)}{\partial x} \right]_{x=0} = S_1(t), \quad \left[\frac{\partial G(E_0, x)}{\partial x} \right]_{x=0} = M_1(E_0) \quad (3.1')$$

Az $S_1(t)$ mennyiség megadja a t ideig tartó besugárzás alatt a szilárd test egységnyi felületén áthaladt bombázó részecskék átlagos számát, míg $M_1(E_0)$ egy E_0 energiájú bombázó részecske által létrehozott rácshibák számának átlagát jelöli. Végül is az egységnyi felületen át történő, t ideig tartó besugárzás alatt kiszakított atomok számát az

$$N_1(t) = S_1(t) \int_0^{\infty} h(E_0) M_1(E_0) dE_0 \quad (3.2)$$

kifejezés segítségével határozhatjuk meg, ahol $M_1(E_0)$ az

$$M_1(E_0) = \int_0^{E_0} w_p(E_0, E) \left\{ M_1(E) + K(E_0 - E) \int_0^{E_0 - E} q(E_0 - E, E') m_1(E') dE' \right\} dE \quad (3.3)$$

egyenletből számítható. A (3.3) alatti egyenletben szereplő $m_1(E)$ függvényt a (2.7) generátorfüggvényből az $m_1(E) = \left[\frac{\partial g(E, x)}{\partial x} \right]_{x=0}$ szabály szerint származtathatjuk. Meghatározására az alábbi egyenlet szolgál:

$$m_1(E) = \int_0^E w_s(E, E') \left\{ m_1(E') + K(E - E') \int_0^{E - E'} q(E - E', E'') m_1(E'') dE'' \right\} dE'. \quad (3.4)$$

b/ A (2.9) egyenletből minden nehézség nélkül meghatározhatjuk a kiszakított atomok számának szórását, amit az eloszlásfüggvény ismerete nélkül közvetlenül körülményes volna kiszámítani. Jelöljük $D^2(t)$ -vel az egységnyi felületen át történő, t ideig tartó besugárzás alatt kiszakított atomok számának szórásnégyzetét.

$D^2(t)$ nyilván a következő összefüggés alapján adható meg:

$$D^2(t) = \left[\frac{\partial^2 \ln F(t, x)}{\partial x^2} \right]_{x=0} \quad (3.5)$$

Vezessük be a következő jelöléseket:

$$M_2(E_0) = \left[\frac{\partial^2 G(E_0, x)}{\partial x^2} \right]_{x=0}, \quad S_2(t) = \left[\frac{\partial^2 H(t, x)}{\partial x^2} \right]_{x=0}, \quad (3.6)$$

továbbá

$$D_d^2 = \int_0^\infty h(E_0) M_2(E_0) dE_0 - \left\{ \int_0^\infty h(E_0) M_1(E_0) dE_0 \right\}^2 \quad (3.7)$$

és

$$D_r^2 = S_2(t) - S_1^2(t). \quad (3.7')$$

A (3.5)-ből azt kapjuk, hogy

$$D^2(t) = S_1(t) D_d^2 + D_r^2 \left\{ \int_0^\infty h(E_0) M_1(E_0) dE_0 \right\}^2. \quad (3.8)$$

A (3.8) meghatározásához ki kell számítani az $M_1(E_0)$, $M_2(E_0)$ momentumokat és ismerni kell a $h(E_0)$, $S_1(t)$, $S_2(t)$ függvényeket. Könnyen belátható, hogy $M_2(E_0)$ az

$$M_2(E_0) = \int_0^{E_0} w_p(E_0, E) \left\{ M_2(E) + K(E_0 - E) \int_0^{E_0 - E} q(E_0 - E, E') m_2(E') dE' \right\} dE + \\ + 2 \int_0^{E_0} w_p(E_0, E) K(E_0 - E) M_1(E) \int_0^{E_0 - E} q(E_0 - E, E') m_1(E') dE' dE \quad (3.9)$$

egyenletnek tesz eleget. $m_2(E)$ -re a (2.7)-ből a következő egyenlet adódik:

$$m_2(E) = \int_0^E w_s(E, E') \left\{ m_2(E') + K(E - E') \int_0^{E - E'} q(E - E', E'') m_2(E'') dE'' \right\} dE' + \\ + 2 \int_0^E w_s(E, E') K(E - E') m_1(E') \int_0^{E - E'} q(E - E', E'') m_1(E'') dE'' dE'. \quad (3.10)$$

A tulajdonképpeni feladat a (3.3) és a (3.4), valamint a (3.9) és a (3.10) alatti egyenletek megoldása. Ehhez mindenekelőtt ismernünk kell a w_s , w_p és q sűrűségfüggvényeket, valamint a K kiszakítási valószínűséget. Ezeknek a függvényeknek a meghatározása a kvantumelmélet feladata. Sajnos a folyamat bonyolultsága miatt ezen a téren számottevő eredmény nincsen. Amint látni fogjuk, bizonyos egyszerű esetekben meghatározhatjuk ezeket a függvényeket és a számításokat elvégezhetjük.

4. A neutronokkal besugárzott szilárd testekben keletkező rácshibák számának átlaga és szórása

Ha a primer bombázó részecskék neutronok, akkor (legalábbis nem túl nagy energiák mellett)

$$w_p(E_0, E) = \begin{cases} (1 - \alpha)^{-1} E_0^{-1} & , \text{ ha } E_0 \geq E \geq \alpha E_0 \\ 0 & , \text{ ha } \alpha E_0 > E \end{cases} \quad (4.1)$$

ahol

$$\alpha = \left(\frac{M_2 - M_1}{M_2 + M_1} \right)^2 \quad (4.2)$$

A (4.2) alatti kifejezésben M_2 a nyugvónak tekintett atom és M_1 pedig a bombázó neutron tömege. A neutronok által kiszakított atomok újabb atomokat szakíthatnak ki.

Ismeretes, hogy ionizált atomok közötti ütközéseket bizonyos energiaérték alatt az atomok elektronhéjának árnyékoló hatása miatt ideális szilárdságu golyók ütközéseként kezelhetjük. A továbbiakban feltesszük, hogy a primer bombázó részecskék által kiszakított atomok közötti ütközéseket ilyen típusu ütközéseknek tekinthetjük. Az azonos atomok ütközésekor lejátszódó energiaátadásra ekkor a következő összefüggés érvényes:

$$w_s(E, E') = E^{-1} \quad (E \geq E' \geq 0). \quad (4.3)$$

Az egyszerűség kedvéért tételezzük fel, hogy az ütközések mindig kiszakításra vezetnek, ha az ütközés előtt mozdulatlanak tekinthető atomnak átadott energia felülmulja az E_d kiszakítási határ-energiát. Ebben az esetben könnyen belátható, hogy

$$K(E) = \begin{cases} 1, & \text{ha } E \geq E_d \\ 0, & \text{ha } E < E_d \end{cases} \quad (4.4)$$

és

$$q(E, E') = \delta(E - E' - E_d). \quad (4.5)$$

a/ Számítsuk ki most az

$$N_1(t) = S_1(t) \int_0^\infty h(E_0) M_1(E_0) dE_0 \quad (4.6)$$

átlagértéket a felsorolt feltételek figyelembevételével. Mindenekelőtt írjuk fel az $M_1(E_0)$ függvényt meghatározó egyenletet. A (4.1), (4.3), (4.4) és a (4.5) alapján a (3.3) és (3.4) alatti egyenletek kisebb átalakítás után a következő alakba írhatók:

$$(1-\alpha) E_0 M_1(E_0) = \int_{\alpha E_0}^{E_0} M_1(E) dE + \int_0^{(1-\alpha)E_0 - E_d} m_1(E) dE \quad (4.7)$$

$$M_1(E_0) = 0, \text{ ha } 0 \leq E_0 \leq \frac{E_d}{1-\alpha}$$

és

$$E m_1(E) = \int_0^E m_1(E') dE' + \int_0^{E-E_d} m_1(E') dE'. \quad (4.8)$$

$$m_1(E) = 1, \text{ ha } 0 \leq E \leq E_d$$

A (4.8) pontosan megegyezik a Seitz és Harrison [1], valamint Snyder és Neufeld [2] által levezetett egyenlettel. A (4.7) viszont eltér Snyder és Neufeld cikkében szereplő (6.2) alatti egyenlettől. Ha azonban feltesszük, hogy a bombázó neutron a besugárzás hatásának alávetett anyagban csak egyetlen ütközést szenved, akkor a (4.7) alatti egyenlet egyszerűbbé válik. Az így módosított egyenlet már pontosan megegyezik Snyder és Neufeld idézett egyenletével. E feltevés alapján azonban módosítani kell a (4.6) alatti egyenletet, mivel a mintán áthaladó neutronok nagy valószínűséggel csak egyetlen egyszer ütköznek. (A minta végtelen vastagságának tekinthető a kiszakított atomok átlagos szabad ut-hosszához képest, de igen vékony a bombázó neutronok átlagos szabad uthosszához viszonyítva.) Jelöljük $Q_S(E_0)$ -al az E_0 energiájú neutronok makroszkópikus szórási hatáskeresztmetszetét a besugárzás hatásának kitett, b vastagságú anyagban. A (4.6) helyett a következő kifejezés irandó:

$$N_1(t) = S_1(t) \int_0^\infty h(E_0) M_1(E_0) dE_0, \quad (4.8')$$

ahol $M_1(E_0)$ az

$$M_1(E_0) = \frac{Q_S(E_0) b}{(1-\alpha) E_0} \int_0^{(1-\alpha)E_0 - E_d} m_1(E) dE \quad (4.8'')$$

egyenlet megoldása.

b/ A szórásnégyzetre bevezetett (3.8) alatti kifejezés különösen egyszerű alaku, ha feltételezzük, hogy $S_2(t) - S_1^2(t) = S_1(t)$.

Ekkor

$$D^2(t) = S_1(t) \int_0^{\infty} h(E_0) M_2(E_0) dE_0, \quad (4.9)$$

illetve a relatív szórásnégyzet

$$\frac{D^2(t)}{N_1(t)} = \frac{\int_0^{\infty} h(E_0) M_2(E_0) dE}{\int_0^{\infty} h(E_0) M_1(E_0) dE_0} \quad (4.10)$$

A tulajdonképpeni feladat $M_2(E_0)$ meghatározása. Írjuk át a (3.9) és a (3.10) egyenleteket a (4.1), (4.3), (4.4) és a (4.5) összefüggések figyelembevételével. Rövid számítás után azt kapjuk, hogy

$$(1-\alpha) E_0 M_2(E_0) = \int_{\alpha E_0}^{E_0} M_2(E) dE + \int_0^{(1-\alpha)E_0 - E_d} m_2(E) dE + 2 \int_0^{(1-\alpha)E_0 - E_d} m_1(E) M_1(E_0 - E_d - E) dE, \quad (4.11)$$

$$M_2(E_0) = 0, \quad \text{ha} \quad 0 \leq E_0 \leq \frac{E_d}{1-\alpha}$$

és

$$E m_2(E) = \int_0^E m_2(E') dE' + \int_0^{E-E_d} m_2(E') dE' + 2 \int_0^{E-E_d} m_1(E-E_d-E') m_1(E') dE', \quad (4.12)$$

$$m_2(E) = 1, \quad \text{ha} \quad 0 \leq E \leq E_d.$$

Ha ismét feltesszük, hogy a b vastagságú anyagban a bombázó neutronok mindössze egyetlen ütközést szenvednek, akkor a (4.11) az

$$M_2(E_0) = \frac{Q_5(E_0) b}{(1-\alpha) E_0} \int_0^{(1-\alpha) E_0 - E_d} m_2(E) dE \quad (4.12')$$

egyenlettel helyettesíthető. A szórásnégyzetet pedig a (4.9) helyett a

$$D^2(t) = S_1(t) \int_0^{\infty} h(E_0) M_2(E_0) dE_0 \quad (4.13)$$

formula segítségével számíthatjuk. (Általánosságban a (3.8)-ból a megfelelő kifejezést úgy kapjuk meg, hogy $M_1(E_0)$ -t és $M_2(E_0)$ -t $\mathcal{M}_1(E_0)$ -lal és $\mathcal{M}_2(E_0)$ -lal helyettesítjük.)

c/ A (4.6) és (4.10) alatti kifejezések hasznosításához ki kell számítanunk a $g(E, x)$ generátorfüggvény első, illetve második momentumát. Célszerűnek látszik ezért megvizsgálni a (4.1), (4.3), (4.4) és (4.5) feltételek figyelembevételével származtatható

$$E g(E, x) = \int_0^E g(E', x) dE' - \int_0^{E-E_d} g(E', x) [1 - g(E - E_d - E')] dE' \quad (4.14)$$

egyenletet és megkeresni megoldását. Legyen

$$U(z, x) = \int_0^{\infty} e^{-zE} g(E, x) dE. \quad (4.15)$$

Rövid számolás után azt találjuk, hogy

$$U(z, x) = z^{-1} \left\{ 1 - (1 - e^{-x}) e^{E_1(z E_d)} \right\}^{-1}, \quad (4.16)$$

ahol $E_1(z E_d) = \int_{z E_d}^{\infty} e^{-y} / y dy$

Ebből minden nehézség nélkül megkaphatjuk a $p_m(E)$ eloszlásfüggvényt[Ⓝ] is, azonban számunkra fontosabb az $m_1(E)$ és $m_2(E)$ momentumok meghatározása. Vezessük be a következő jelöléseket:

$$\mu_1(z) = \int_0^{\infty} e^{-zE} m_1(E) dE \quad \text{és} \quad \mu_2(z) = \int_0^{\infty} e^{-zE} m_2(E) dE \quad (4.16')$$

A (4.16) alatti kifejezésből a

$$\mu_1(z) = \left[\frac{\partial U(z, x)}{\partial x} \right]_{x=0} \quad \text{és} \quad \mu_2(z) = \left[\frac{\partial^2 U(z, x)}{\partial x^2} \right]_{x=0}$$

összefüggések alapján felírhatjuk, hogy

$$\mu_1(z) = \frac{1}{z} \exp \left\{ E_1(z E_d) \right\} \quad (4.17)$$

és

$$\mu_2(z) = 2z \mu_1^2(z) - \mu_1(z). \quad (4.18)$$

A (4.17) és (4.18) felhasználásával előállíthatjuk $m_1(E)$ és $m_2(E)$ aszimptotikus kifejezését $E \gg E_d$ értékekre. Egyszerű meggondolásokkal az

$$m_1(E) = e^{-c} \left(\frac{E}{E_d} + 1 \right) + \dots \quad (4.19)$$

és

$$m_2(E) \sim e^{-2c} \frac{E^2}{E_d^2} + e^{-c} (4e^{-c} - 1) \frac{E}{E_d} + e^{-c} (3e^{-c} - 1) + \dots \quad (4.20)$$

[Ⓝ] Ha $E \gg E_d$, akkor aránylag egyszerű eljárással a $p_m(E) \sim (1 - e^{-c})^{m-1} e^{-c - E/E_d} L_{m-1} \left(\frac{1}{1 - e^{-c}} \frac{E}{E_d} \right)$ összefüggéshez jutunk, ahol $c = 0,577$ és $L_{m-1}(y)$ a Laguerre polinom.

asszimptotikus kifejezéseket kapjuk. A (4.19) és (4.20) formulában szereplő C állandó az un. Euler-féle állandó ($C = 0,577$). A $d^2(E) = m_2(E) - m_1^2(E)$ szórásnégyzetre azt találjuk, hogy

$$d^2(E) \sim (2e^{-C} - 1)e^{-C} \left(\frac{E}{E_d} + 1 \right) + \dots \quad (4.20')$$

Leibfried [6] nem pontosan erre az eredményre jutott, mivel nem veszi következetesen figyelembe egyenletei összeállításánál az E_d kiszakítási határenergia szerepét. Leibfried formulája és a (4.20') közötti különbség a főtagban is jelentkezik, bár értéke nem jelentős. Leibfriednél a főtag $0,15 m_1(E)$, míg a (4.20') szerint $0,123 m_1(E)$.

Az $m_1(E)$ és $m_2(E)$ birtokában a (4.7) és (4.11) felhasználásával kiszámíthatjuk az $M_1(E_0)$ és $M_2(E_0)$ momentumokat.

A (4.7) alatti egyenletből $E_0/E_d = e^{u_0}$ és $M_1(E_d e^{u_0}) = F(u_0)$ helyettesítéssel a $V(z) = \int_0^\infty e^{-u_0 z} F(u_0) du_0$ Laplace-transzformáltra a

$$V(z) = V_0(z) V_1(z) \quad (4.21)$$

összefüggés származtatható, ahol

$$V_0(z) = \frac{(1-\alpha)^{z+1}}{(1-\alpha)(z+1) - 1 + \alpha^{z+1}} \quad (4.22)$$

és

$$V_1(z) = \frac{1}{\Gamma(z+1)} \int_0^\infty u^{z-1} e^{-u + E_1(u)} du \quad (4.23)$$

Ahhoz, hogy $F(u_0)$ nagy u_0 értékekhez tartozó alakját meghatározhassuk, ismernünk kell a $V(z)$ függvény mindazon polusait, amelyek valós része nem negatív. A $V(z)$ egyik tényezője, a $V_0(z)$, a neutronok lassításának elméletéből jól ismert. A $V_1(z)$ nem negatív valós részű pólusait Németh Géza határozta meg. A $V_0(z)$ -re és a $V_1(z)$ -re vonatkozó ismereteink birtokában a

$$V(z) = \frac{e^{-C}}{z-1} - \frac{1-e^{-C}}{\xi z} + V_2(z) \quad (4.23')$$

előállításához jutunk, ahol $V_2(z)$ a $Re z > -1$ tartományban holomorf függvény. A (4.23')-ből $M_1(E_0)$ -ra a következő asszimptotikus formulát kapjuk:

$$M_1(E_0) \sim e^{-C} \frac{E_0}{E_d} - \frac{1-e^{-C}}{\xi} + \dots \quad (4.24)$$

A (4.11)-ből a (4.7)-re alkalmazott eljárás megismétlésével $M_2(E_0)$ -ra a következő asszimptotikus formulát származtathatjuk:

$$M_2(E_0) \sim e^{-2c} \left(\frac{E_0}{E_d} \right)^2 + \left[2 \left(e^{-c} - \frac{1-e^{-c}}{\xi} \right) - 1 \right] e^{-c} \frac{E_0}{E_d} + \dots \quad (4.25)$$

A szórásnégyzet főtagja pedig

$$D^2(E_0) \sim (2 e^{-c} - 1) e^{-c} \frac{E_0}{E_d} + \dots \quad (4.26)$$

alakban írható fel. Láthatjuk, hogy a primer bombázó neutron ütközéseinek számításbavétele a rácshibák számának relativ szórásnégyzetét (legalábbis annak nagy E_0 értékekhez tartozó főtagját) nem befolyásolja.

Ha a besugárzásnak alávetett minta a bombázó neutronok átlagos szabad úthosszához képest vékonynak tekinthető, akkor nagyon valószínű, hogy minden egyes neutron csupán egyszer ütközik a mintán való áthaladása közben. Ekkor a (4.8'') és a (4.12') egyenletek alapján számíthatjuk ki az $M_1(E_0)$ és $M_2(E_0)$ momentumokat. Rövid számolás után a következő eredményt kapjuk:

$$M_1(E_0) \sim Q_s b \left[\frac{1-\alpha}{2} e^{-c} \frac{E_0}{E_d} + \dots \right] \quad (4.27)$$

$$M_2(E_0) \sim Q_s b \left[\frac{(1-\alpha)^2}{3} e^{-2c} \frac{E_0^2}{E_d^2} + \frac{1-\alpha}{2} (2 e^{-c} - 1) e^{-c} \frac{E_0}{E_d} + \dots \right] \quad (4.28)$$

A szórásnégyzetre a

$$D^2(E_0) \sim Q_s b (1-\alpha)^2 e^{-2c} \frac{E_0^2}{E_d^2} \left(\frac{1}{3} - \frac{Q_s b}{4} \right) + \frac{Q_s b}{2} (1-\alpha) (2 e^{-c} - 1) e^{-c} \frac{E_0}{E_d} + \dots \quad (4.29)$$

formula adódik. Figyelemreméltó, hogy ebben az esetben a relativ szórásnégyzet igen jelentős lehet, hiszen

$$\frac{D^2(E_0)}{M_1(E_0)} \sim 2(1-\alpha) e^{-c} \frac{E_0}{E_d} \left(\frac{1}{3} - \frac{Q_s b}{4} \right) + 2 e^{-c} - 1 + \dots \quad (4.30)$$

Végezetük tegyük fel, hogy a bombázó neutronok energiaspektruma a hasadási neutronok energiaspektrumával egyezik meg, azaz legyen

$$h(E_0) = \frac{1}{E_f \sqrt{2\pi e}} e^{-E_0/2 E_f} \operatorname{sh} \sqrt{\frac{E_0}{E_f}}, \quad (4.31)$$

$$E_f = 0,5 \cdot 10^6 \text{ eV} .$$

A (3.8) alapján a (4.31) felhasználásával végtelen kiterjedésűnek tekinthető mintában a rácssérülések számának relativ szórására a következő kifejezést kapjuk:

$$\frac{D(t)}{N_1(t)} \sim \sqrt{\left(0,625 + \frac{D_r^2(t)}{S_1(t)}\right) \frac{1}{S_1(t)}} + O\left(\frac{E_d}{E_f}\right), \quad (4.32)$$

ahol $O\left(\frac{E_d}{E_f}\right)$ az $\frac{E_d}{E_f}$ hányados zérusnál magasabb hatványait tartalmazó kifejezés.

Ha a besugárzásnak alávetett mintát a bombázó neutronok átlagos szabad úthosszához képest vékonynak tekintjük, akkor a (3.8) alatti kifejezésben M_1 és M_2 helyett \mathcal{M}_1 és \mathcal{M}_2 értékeivel kell számolnunk.

Tegyük fel, hogy Q_5 nem függ E_0 -tól. Ebben az esetben a (4.27) és (4.28) alapján azt kapjuk, hogy

$$\frac{D(t)}{N_1(t)} \sim \sqrt{\left(\frac{2,1667}{Q_5 b} + \frac{D_r^2(t)}{S_1(t)} - 1\right) \frac{1}{S_1(t)}} + O\left(\frac{E_d}{E_f}\right), \quad (4.33)$$

ahol $O\left(\frac{E_d}{E_f}\right)$ jelentése mint a (4.32)-ben.

A (4.32) és a (4.33) alatti formulák azt mutatják, hogy a rácshibák számának relativ szórása az $S_1(t)$ növekedésével sokkal lassabban csökken, mint a Poisson-eloszlás relativ szórása.

Fein [5] megkísérelte az elméleti becslések és a kísérleti adatok közötti eltérést csökkenteni. Feltette, hogy az E_d kiszakítási határenergia nem állandó, hanem valamilyen valószínűségi törvény szerint bizonyos határok között változhat.

Jelöljük Fein után $f(E_d) dE_d$ -vel annak a valószínűségét, hogy a kiszakítási energia E_d és $E_d + dE_d$ közötti értéket vegyen fel. Fein [5] megmutatta, hogy a kísérleti adatokkal való egyezés érdekében az $f(E_d)$ sűrűségfüggvény maximumához olyan nagy E_d értéket kellene rendelni, ami felette valószínűtlen.

Véleményünk szerint a jobb egyezés érdekében az általunk levezetett (2.6) és (2.7) alatti egyenletekben szereplő q és K függvények mikrofizikai elméletére kellene a legfőbb figyelmet irányítani és a kísérleti adatok összehasonlításánál pedig óvatossággal kellene eljárni.

I r o d a l o m

- [1] Seitz, F. and Harrison, W.A., Phys. Rev., 98. 1530. (1955)
Seitz, F. and Koehler, J.S., Solid State Physics, (Academic Press Inc., New York, 1956) Vol. 2. pp. 381. ff
- [2] Snyder, W.S. and Neufeld, J., Phys. Rev., 97. 1636. (1955)
- [3] Snyder, W.S. and Neufeld, J., Phys. Rev., 103. 862. (1956)
- [4] Pál, L., Energia és Atomtechnika, 10. 255. (1957)
- [5] Fein, A.E., Phys. Rev., 109. 1076. (1958)
- [6] Leibfried, G., Nukleonik, 1. 57. (1958)

KFKI Közlemények 6.évf. 4.szám, 1958.

TULHEVITETT SZILÁRD TEST LÉTREHOZÁSÁNAK LEHETŐSÉGE REAKTOROKBAN*

Irta: Hoffmann Tibor

Elektromágneses Hullámok Osztálya

Összefoglalás

Egy szilárd test energia-entrópia görbéjének "metastabilis" részét nem valósíthatjuk meg semmiféle közönséges termodinamikai módszerrel. Ha azonban lyukakat elegendő gyorsasággal tudunk létrehozni az olvadáspontnál valamivel alacsonyabb hőmérsékleten, remélhető, hogy egy, az olvadásra jellemző kritikus lyukkonzentrációnál magasabb lyukkonzentrációt érhetünk el anélkül, hogy a test megolvadna. Az eljárásnak tehát a következőnek kell lennie: 1. Be kell sugározni a vizsgálandó testet megfelelő nagy neutronfluxussal, hogy a megfelelő lyukkonzentrációt elérjük, mialatt a testet az olvadáspontja alatti hőmérsékleten tartjuk. 2. Miután elértük a kritikus lyukkonzentráció értékét, a hőmérsékletet hirtelen az olvadáspont fölé kell emelni.

A szerző feltevése az, hogy az így kezelt szilárd test ezen a magasabb hőmérsékleten is stabilis, anélkül, hogy megolvadna. Az a tartomány, amelyben a test így viselkedne, meglehetősen szélesnek tűnik. A tartomány alsó határát az olvadáspont adja, ahol a szilárd test visszanyeri rendes tulajdonságait; a felső egy olyan tartományban van, ahol várhatóan a szilárd test meglepő tulajdonságokat fog mutatni, pl. negatív fajhőt, stb.

Remélhető, hogy ha egy ilyen eljárást kézben tudunk tartani, akkor egy reaktort pl. oly módon lehet üzemeltetni, hogy egy megfelelő "edzési" idő után a reaktor szilárd alkatrészei sokkal magasabb hőmérsékleten használhatók, mint besugárzás nélkül, vagy pedig, hogy a reaktort oly módon hűtjük, hogy a hűtéssel egyidőben a hűtőszervezeti anyagok is lehülnek.

Szerző egy elméleti számításban megmutatta [1], hogy az olvadás mechanizmusa szoros kapcsolatban áll egyrészt a szilárd test szubkrisztallitjainak méreteivel, másrészt a lyukak sűrűségével.

* Az 1958. évi genfi II. Nemzetközi Atomenergia Konferencián elfogadott előadás.

A számításokból kitűnik, hogyha az alkáli és nemes fémek esetén a szubkrisztallitok méretei kisebbek, mint kb. 5-800 atom, akkor a szilárd test nem szenvedhet hirtelen fázisátalakulást, azaz ekkor az olvadás egy széles hőmérsékleti intervallumban folyamatosan következik be. Ez a helyzet pl. az üvegeknél, amelyeknek nincs jól definiált olvadáspontjuk, csak egy olvadási tartományuk és amelyek úgy látszik tényleg sokkal kisebb szubkrisztallitokkal rendelkeznek, mint a rendes fémek.

Azon fémek, melyek az előbb említetttnél nagyobb szubkrisztallit méretekkel rendelkeznek, szokásos olvadási tulajdonságokat mutatnak. Ezeket a tulajdonságokat a következőkben diszkussáljuk.

Ezen számításokkal kapcsolatban lényeges az, hogy - habár a számítások nagyon durvák - jó eredményeket kapunk akkor is, ha csak a következő három paramétert vesszük figyelembe:

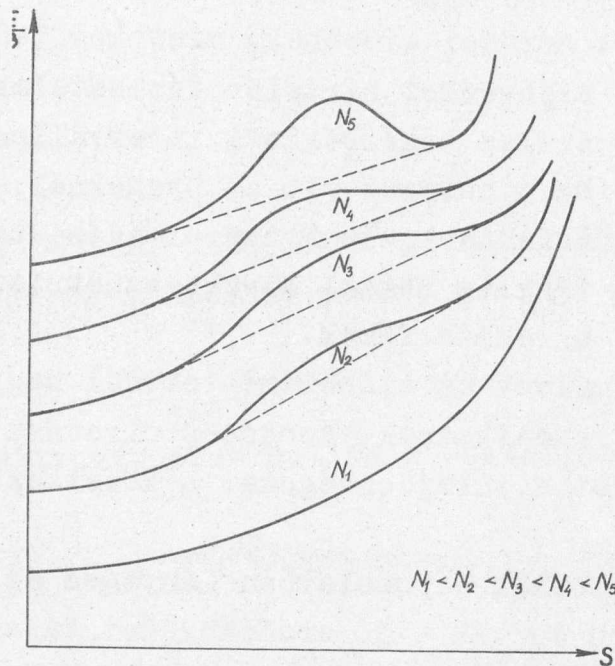
a lyuk-koncentrációt, a szubkrisztallit méretet és végül a kristály kötési energiájának szemi-empirikus paraméterét. Mind az energiát, mind pedig a rendszer entrópiáját meg lehet határozni analitikusan ezen három paraméter függvényeként, ha az entrópiában csak a konfigurációs entrópiát vesszük tekintetbe.

Minthogy a kötési energia csak egy szorzó faktorként van tekintetbe véve (β a két szomszédos atom közti kötési integrál), a rendszer energiája osztva a kötési integrállal csak a lyuk-koncentrációnak és a szubkrisztallit méretnek lesz a függvénye. Ezen függvény alakját azonban a szilárd test kristálystrukturája határozza meg.

A rendszer entrópiáját az adott közelítésben az atomok és a lyukak konfigurációs entrópiája jellemzi. Ez a konfigurációs entrópiá némileg függ a szubkrisztallit méretektől is, azonban ez a függés olyan gyenge, hogy első közelítésben úgy tekinthetjük, hogy a rendszer entrópiája csak a lyuk-koncentrációtól függ.

Ha most az energiát és az entrópiát meghatározó egyenletekből kiküszöböljük a lyuk-koncentrációt /az energia egység $1/\beta$ -val, a kötési integrál reciprokéval arányos/ és szemügyre vesszük az energia-entrópiá görbét, különböző típusú görbéket látnunk. A görbesereg paramétere a szubkrisztallit méret.

Az 1. ábrán néhány ilyen energia-entrópiá görbe látható. Az ábrából látszik, hogyha a szubkrisztallit méretekkel egyszerűen



1. ábra

összefüggő N szám kicsi, akkor a görbék mindvégig pozitív görbülettel rendelkeznek, egyáltalán nincs inflexiójuk. Ha N valamivel nagyobb, akkor a görbének két inflexiós pontja van és a görbület pozitív a görbe elején és végén, viszont negatív a közepén. A görbe azzal az igen figyelemre méltó tulajdonsággal rendelkezik, hogy két pontjának közös érintője van.

Mint ahogy $\frac{\partial E}{\partial S} = T$, azaz a termikus egyensúlyban uralkodó abszolút hőmérséklet, a közös érintő létezése azt jelenti, hogy van egy olyan hőmérséklet, amelyhez termikus egyensúlyban két különböző állapot tartozik. A két állapot közül az egyik alacsonyabb, a másik magasabb entrópiával rendelkezik. Az így definiált két állapot a szilárd és a folyékony fázist jelenti. Az azonos iránytangenssel rendelkező két állapot létezése azt jelenti, hogy ezen a hőmérsékleten, az olvadási hőmérsékleten, a szilárd és folyékony fázis egyensúlyban van, míg alacsonyabb hőmérsékleteken (az alsó érintési ponttól balra) csak a szilárd, magasabb hőmérsékleteken (a felső érintési ponttól jobbra) csak a folyékony állapot stabil.

Az abszolút zérus pontnál (a görbék baloldali végződésénél) az érintő vízszintes. A hőmérsékletet növelve, az érintő egyre meredekebb lesz. Elérkezve a közös érintő alsó érintési pontjához (olvadási hőmérséklet), az entrópia hirtelen változása vezet a kö-

zös érintő felső érintési pontjához és a folyamat ettől a ponttól kezdve a görbe jobb oldalán nagyobb hőmérsékleteken folytatódik. Ha a hőmérsékletet a folyékony állapotban csökkenteni kezdjük, a rendszer az ellenkező irányba változva visszakerül az előző állapotba és a megfagyás ugyanazon hőmérsékleten következik be, mint az olvadás.

Bizonyos különbség van azonban a két folyamat között. Növekvő hőmérséklet esetén az olvadásponton alternatív lehetőségek vannak. Egyrészt ugrás történhet a folyékony halmazállapotba az érintőn, másrészt megmaradhatunk a görbén és a szilárd fázist az olvadáspont fölé hevithetjük. A termodinamika második főtételenek megfelelően a rendszer növelni kívánja entrópiáját. Ezért csak az első lehetőség valósul meg, miután ebben az esetben az entrópia nyereség sokkal nagyobb, mint a másodikban.

A hőmérsékletnek az olvadáspontnál magasabbról való csökkentése esetén az olvadáspont elérésekor megint több lehetőség áll elő. A rendszer megmaradhat a görbén, vagy a közös érintőn lejuthat a szilárd állapotba. Az előbbi folyamat felel meg a folyadék túlhűtésének. Ebben az esetben mindkét lehetőség bekövetkezhet, ugyanis azt, hogy melyik lehetőség vezet nagyobb entrópia növekedésre, csak a rendszert körülvevő környezet - beleértve az egész hűtőrendszert - részletes vizsgálata alapján lehet megítélni. A termodinamika második főtétele szerint az entrópia csökkenés a legkevésbé valószínű a valóságban létrejövő folyamatok között. Ez azt jelenti, hogyha nem vesszük figyelembe a folyadék környezetét, a túlhűtés lesz a normális folyamat és a fagyás a kivételes. Azonban a folyadék lehűtése mindig a hűtőfolyadék melegedésével kapcsolatos és ezért a hűtő folyadék entrópiája növekszik. A folyadék és a hűtőfolyadék entrópia-változásának összege mindig pozitív lesz. Lehetséges azonban különbség a folyamat megvalósulásának alternatív módjai között, vagy azért, mert a folyamat lefolyása az időben különböző, vagy mert a rendszer még valamilyen additív mozgást is végez, melynek viszonylag kicsi, de mégis döntő jelentőségű befolyása lehet a rendszer entrópiájára.

A túlhűtött folyadék izotermikus rázása pl. egy teljesen homogén folyadéknál az entrópia csökkenését eredményezi, minthogy a rázás folyamán létrejövő sűrűség fluktuációk kisebb entrópia értékhez tartoznak, mint a nyugalomban lévő folyadék teljesen homo-

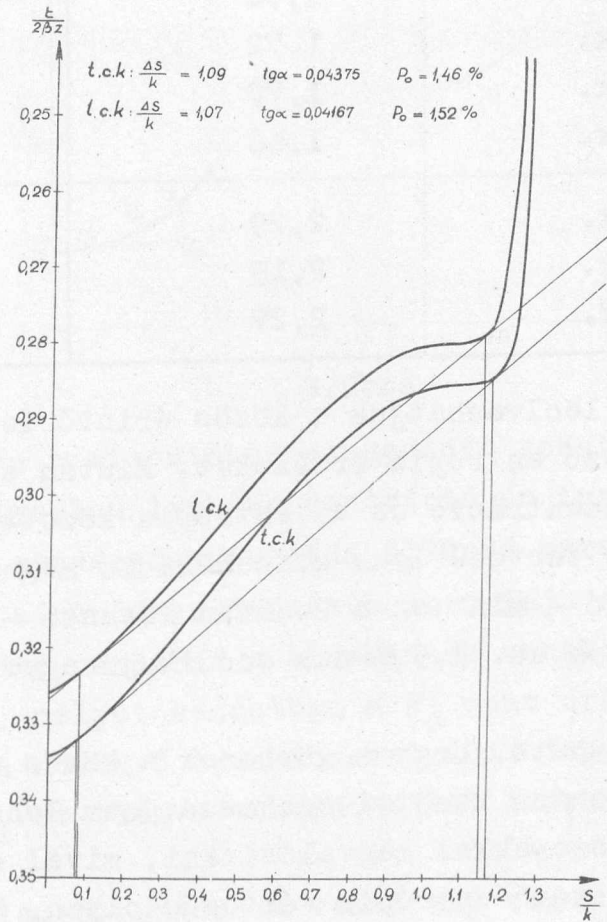
gén sűrűség eloszlása. Az entrópiának ez a csökkenése egyes esetekben azt eredményezi, hogy a rendszer (folyadék és hűtőfolyadék) teljes entrópiája nem növekszik kellőképpen ahhoz, hogy megtartsa az egyensúlyt a túlhűtés folyamán és ebben az esetben a rendszer megfagyása nagyobb entrópia változást ígér, habár magának a folyadéknak entrópiája fagyáskor csökken. Ez az a jól ismert eset, mikor egy túlhűtött folyadék rázáskor, vagy keveréskor hirtelen megfagy.

Elvileg a túlhűtés folyamata a teljes rendszer entrópia-egyensúlyával szabályozható. Ha azonban az ember a szilárd fázis túlmelegítésének kérdését tekinti, látja, hogy ott a helyzet egészen más. Ebben az esetben a szilárd test entrópiája minden esetben növekszik. Ez a növekedés az olvadás esetében erős, a túlhevítés esetében kevésbé erős. Közben a melegebb anyag lehül és így az entrópiája csökken. Az entrópiának ez a csökkenése a túlhevítés esetében kisebb, mint az olvadás esetében, de a különbség sohasem lesz olyan nagy, mint a szilárd test olvadása és túlhevítése közti entrópia különbség. Így a túlhevítés alternatíváját nem lehet megvalósítani a szokásos termodinamikai folyamatokat használva [2].

Az előző megfontolásoknak megfelelően a szilárd fázis túlhevítése lehetetlen, a szokásos termodinamikai utakon.

Az 1. ábrán láthatjuk, hogy N_1 , N_2 , N_3 számokhoz tartozó görbék érintője mindvégig pozitív, az N_4 -hez tartozó görbének vízszintes érintője van az inflexió felső pontjában. Ez a görbe az N_5 számhoz tartozó görbével együtt relatív minimummal rendelkezik az entrópia relative nagy értékeinél. Ebből levonhatjuk azt a következtetést, hogy ha az N_1 , N_2 , N_3 görbéket vesszük figyelembe, a lehűtés csak egy olyan határig végezhető el, amelyet a görbe felső inflexió pontjához húzott érintő határoz meg. Az N_4 és N_5 görbék elvileg megengednék az abszolút zérus pontra való túlhűtést. Minthogy a kísérleti adatok azt mutatják, hogy a fémeket kedvező feltételek mellett igen alacsony hőmérsékletre lehűthetjük, feltesszük, hogy elvileg az abszolút zérus pontig túlhűthetőek, azaz a szubkrisztallitok méreteinek nagyobboknak kell lennie, mint N_4 . Az N_5 görbe elég magas lyuk-koncentrációhoz tartozó

entrópia értéknél relatív minimumot mutat. Ez azt jelentené, hogy elég nagy lyuk-koncentráció esetén lehetőség van metastabil állapot létrehozására az abszolút zérus pontnál, ami teljes ellentétben van azzal a jól ismert ténnyel, hogy a lyuk-koncentráció zérusig csökken, amint az abszolút hőmérséklet zérushoz tart. Ilyen metastabil állapot létrejöttének kizárása azt jelenti, hogy pontosan az N_4 paraméterrel rendelkező görbe valósul meg [3].



2. ábra

A 2. ábrán felvettük az energia-entrópia görbét lap-centrál és tér-centrál köbös kristályszerkezet esetében. Az abszcissza az $1/k$ egységekben mért egy atomra eső entrópia, ahol k a Boltzmann-állandó, az ordináta az egy atomra eső energia $1/(2\beta z)$ egységekben mérve, ahol β a két szomszédos atom közötti kötési integrál és z a kristálystruktúra koordinációs száma.

Érdeemes megjegyezni, hogy ezen elméletnek megfelelően az olvadásnál létrejövő entrópia változás csak a kristályszerkezettől függ. Ezt az I. táblázatban foglalt kísérleti eredmények jól alátámasztják.

I. Táblázat

Az olvadási entrópia alkáli és nemes fémeknél cal/molgrad-ban mérve.

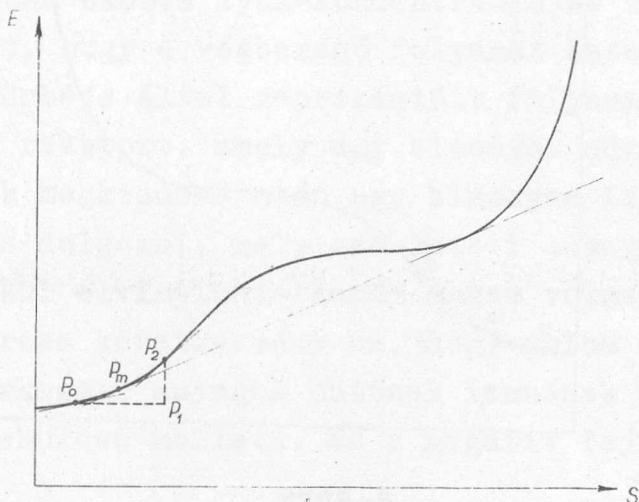
Anyag	Kristály struktúra	ΔS mért	ΔS számolt
Li	t.c.k.	2,43	2,165
Na	t.c.k.	1,70	2,165
K	t.c.k.	1,72	2,165
Rb	t.c.k.	1,70	2,165
Cs	t.c.k.	1,66	2,165
Cu	l.c.k.	2,29	2,125
Ag	l.c.k.	2,19	2,125
Au	l.c.k.	2,27	2,125

A 2.ábrából leolvashatjuk a közös érintő legalsó érintkezési pontjához tartozó entrópia-értékeket. Miután egyértelmű kapcsolat van a lyuk-koncentráció és az entrópia között, a szilárd anyag olvadási pontjához tartozó lyuk-koncentráció meghatározható. Ez a lyuk-koncentráció - mint ez a 2.ábrán látható - mindkét kristálystruktúra esetén kb. 1,5 %-nak adódik jó egyezésben más hecselésekkel.

A 2.ábrán látható, hogy a görbének a közös érintővel rendelkező érintési pontok közötti szakaszát nem lehet a szokásos termodinamikai módszerekkel megvalósítani, mivel a melegítés valamennyi módjához tartozó entrópia változás olyan, hogy olvadás következik be tulhevítés helyett.

Ezen termodinamikai eljárás helyett elképzelhető olyan módszer, melynek segítségével meg lehet valósítani egy, a görbe egyébként hozzáférhetetlen szakaszán fekvő állapotot is. Minthogy az olvadás folyamata szoros kapcsolatban van a szilárd test lyuk-koncentrációjával (lévén, hogy ez az entrópia egyik nemlineáris mértéke) közelfekvő, hogy az ember nem-termodinamikai uton hozzon létre nagy lyuk-koncentrációt, ilyen módon elkerülve az egyensúlyi energia-entrópia görbe azon részeit, melyek a hirtelen olvadás folyamatáért felelősek. Nyilvánvaló, hogy ezt nem lehet csu-

pán egyensúlyi folyamatok révén megcsinálni. Csak azt követeljük, hogy a kezdeti és a végállapot egyensúlyi állapot legyen. A fenti megfontolásokat szem előtt tartva, megtervezhetünk egy folyamatot, melyet a 3.ábrán a pontozott vonal reprezentál.



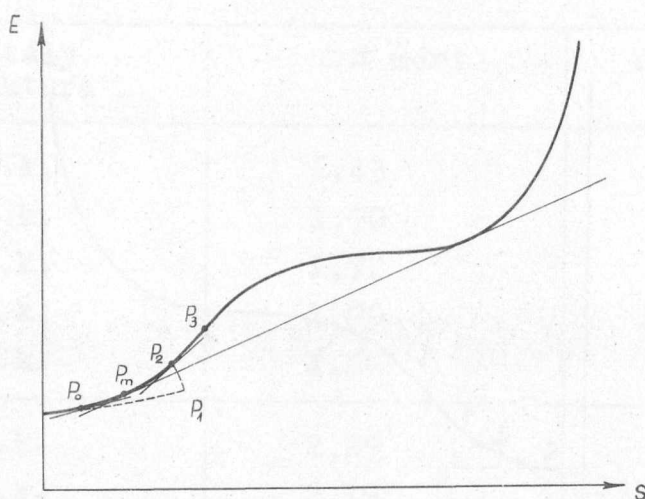
3. ábra

A 3.ábrán a vízszintes szaggatott vonal egy olyan folyamatot jelez, melynél a lyuk-koncentráció és így az entrópia növekszenek, míg a rendszer energiája állandó marad. Minthogy a lyukak nagyobb száma a rendszer magasabb energiájú állapotához tartozik, csak akkor tud a rendszer a vízszintes vonalon végighaladni, ha a hőmérséklet, melyet kezdetben a P_0 pont érintője határozott meg, csökken a növekvő lyuk-koncentráció függvényében. Ez azt jelenti, hogy P_1 -et elérve a hőmérséklet kisebb, mint amekkora P_0 -nál volt.

A függőleges pontozott vonal egy olyan folyamatot jelez, melynél a lyuk-koncentráció, és így az entrópia is konstans, míg a hőmérséklet egészen a P_2 pont érintője által megadott értékig nő.

Kísérletileg a 4.ábrán látható pontozott vonal által reprezentált folyamat sokkal megvalósíthatóbb. Ezen az ábrán a P_0 és P_1 közti pontozott vonal egy olyan folyamatot jelez, melynek folyamán a lyuk-koncentráció folytonosan növekszik, míg a hőmérséklet mindvégig a P_0 pont iránytangense által meghatározott konstans értéken marad. Minthogy a lyukszám növekedésében a rendszer energianyeresége jár együtt, a görbe felfelé görbül, azonban mind-

végig az egyensulyi görbe alatt marad. A P_1 pont nagyobb lyuk-koncentrációhoz tartozik, mint a P_2 pont, azonban P_1 -ben ugyanakkora a hőmérséklet, mint P_0 -ban termikus egyensuly esetén.



4. ábra

P_1 -től P_2 -ig a hőmérséklet lehető leggyorsabb növekedése következik be. A hőmérséklet ezen gyors növekedése elkerülhetetlenül együtt jár a már létrejött lyukak bizonyos mértékű megsemmisülésével, azonban ha a hőmérséklet elég gyorsan növekszik ahhoz, hogy a P_2 pont P_m -men túl legyen (P_2 az a pont, ahol az energia és az entrópia eléri az egyensulyi görbét), akkor a végső szilárd állapot lyuk-koncentrációja és hőmérséklete nagyobb lesz, mint az olvadt állapoté.

Ha egyszer az egyensulyi görbét már elértük, akkor a görbe "tiltott" részével szomszédos $P_m P_3$ szakaszok már a szokásos termodinamikai módszerekkel elérhetőek. Ezen tulhevitett szilárd állapot hőmérsékletét az olvadásponttól egészen addig a hőmérsékletig növelhetjük, melyet a görbe alsó inflexiós pontjának iránytangense jelöl ki. Csökkenő hőmérséklettel elérhetjük az olvadáspontot felülről is, azonban miután már elértük, az anyag visszanyeri rendes tulajdonságait és ha ismét növeljük a hőmérsékletet, már rendes olvadási folyamat megy végbe.

A P_3 -tól jobbra eső szakasz tárgyalása során is található néhány figyelemreméltó szempont, - itt P_3 a legalsó inflexiós pont. Várható, hogy ezen a szakaszon a szilárd anyagnak negatív fajhője lesz, azaz hőmérséklete csökken, ha hőtartalmát növeljük.

Nincs okunk kételkedni abban, hogy a görbe ezen szakasza elérhető, ha a P_3 szakaszra már rájutottunk.

Érvelésünk utolsó két pontja néhány erősen utópisztikus gondolatra ad alkalmat.

Először, ha oly módon tudnánk szabályozni a reaktor szerkezeti anyagok sugárzás okozta lyuk-koncentrációját és ugyanezen anyagok hőmérsékletét, hogy a végbemenő folyamat hasonló legyen a 4. ábra pontozott görbéje által reprezentált folyamathoz, elképzelhetünk egy olyan reaktort, amely egy bizonyos edzési idő után (azaz működésének megkezdése után egy bizonyos idővel) olyan hőmérsékleten képes dolgozni, mely szerkezeti anyagai számára a fent vázolt edzés nélkül elviselhetetlenül magas volna.

A másik furcsa következmény az, hogy volna egy olyan szakasz, ahol a szerkezeti anyagok hűtőnek lennének használhatóak, a hűtők egyidejű lehülése mellett. Ez a negatív fajhő tartományában lenne így.

Most megpróbáljuk leírni azokat a paramétereket, melyeket a tulhevitett szilárd anyagok fent említett előállításánál használunk. Tekintsük a szilárd anyagot a reaktor egy olyan helyén, ahol a reaktor teljes fluxusa $n \cdot \sigma$ annak az átlagos hatáskeresztmetszete, hogy a reaktor egy neutronja egy lyukat hoz létre a próbatestben. σ a reaktorra képezett átlag, nem anyagi állandó, hiszen az átlagolás módja a reaktor szerkezetétől függ. σ egyszerűen számolható bizonyos feltevések alapján. (Lásd pl. F. Seitz és J. S. Koehler [4].) A próbatestben egységnyi idő alatt létrehozott lyuk-koncentráció a következő

$$\rho_0 = n \sigma. \quad (1)$$

Ugyanakkor végbemegy a lyukaknak egy állandó megsemmisülése is, melynek oka a diffúzió és az interstitialis atomokkal való rekombináció. Ezen effektus következményeképpen bizonyos fluxussal és bizonyos besugárzási idővel p_1 lyuk-koncentrációt nyerünk. p_1 a reaktor fluxusával és közelítően a besugárzási idővel arányos.

Ha t idő múlva megszüntetjük a besugárzást és utána a $T(t)$ hőmérséklet-idő függvénynek megfelelően gyorsan melegítjük az anyagot, a p lyuk-koncentráció változási sebessége a következő lesz:

$$\frac{dp}{dt} = -p \left(\nu_i e^{-\frac{\epsilon_i}{kT(t)}} + \nu_v e^{-\frac{\epsilon_v}{kT(t)}} \right) \quad (2)$$

Itt $p(0) = p_1$ és t a besugárzás megszüntetésétől számított időt jelenti. ϵ_i és ϵ_v az interstitialis atomok diffúziójának és a lyukaknak az aktivációs energiáját jelentik. ν_i és ν_v a megfelelő frekvencia együtthatók [4].

Ennek az egyenletnek az integrálása adja az eredő lyuk-koncentrációt:

$$p = p_1 \exp \left[-\nu_i \int_0^t e^{-\frac{\epsilon_i}{kT(\tau)}} d\tau - \nu_v \int_0^t e^{-\frac{\epsilon_v}{kT(\tau)}} d\tau \right]. \quad (3)$$

A $T(t)$ függvénynek, amely a besugárzás utáni melegítés idő-programját adja meg, a következő követelményeknek kell eleget tenni: $t = 0$ -nál a hőmérséklet legyen egyenlő a P_1 pontban uralkodó T_1 egyensúlyi hőmérséklettel, amelyet ezen pont iránytangense szolgáltat. A hevítés végén, mondjuk a t_e pillanatban a hőmérséklet legyen egyenlő a P_2 pontban uralkodó T_2 egyensúlyi hőmérséklettel, melyet ezen pont iránytangense határoz meg.

Igy tehát

$$T(0) = T_1 < T_m < T(t_e) = T_2. \quad (4)$$

Egy másik - nemcsak a $T(t)$ függvényre, hanem az egész folyamatra vonatkozó - követelmény az, hogy a folyamat végén a (3) által megadott p érték legyen egyenlő a diagram P_2 pontjának megfelelő p értékkel.

A $T(t)$ -re vonatkozó legegyszerűbb feltevés, melynek segítségével a számításokat végig lehet vinni az, hogy a hőmérséklet növekedés a következő hiperbolikus alakú kifejezés szerint történik:

$$T = \frac{T_1}{1 - \left(1 - \frac{T_1}{T_2}\right) \frac{t}{t_e}}. \quad (5)$$

Az (5)-öt használva (3)-ban, végeredményben az adódik, hogy $t = t_e$ pillanathán

$$p = p_1 \exp \left[-\frac{k t_e T_1 T_2}{T_2 - T_1} \left(\nu_i \frac{e^{-\frac{\epsilon_i}{kT_2}} - e^{-\frac{\epsilon_i}{kT_1}}}{\epsilon_i} + \nu_v \frac{e^{-\frac{\epsilon_v}{kT_2}} - e^{-\frac{\epsilon_v}{kT_1}}}{\epsilon_v} \right) \right].$$

Vörösréz esetében Walt és Barschall [5] mérései alapján Seitz és Koehler [4] vizsgálataira támaszkodva azt nyerjük, hogy ha a besugárzást egy héten keresztül végezzük egy $7,42 \cdot 10^{11}$ neutron/cm²/sec

gyors neutronfluxussal rendelkező reaktorról, a lyuk-koncentráció $7,26 \cdot 10^{-5}$ lesz. Ha egy $5 \cdot 10^{14}$ neutron /cm²/sec gyors neutronfluxusu reaktort használunk, akkor ez az érték

$$p_1 = 4,9 \cdot 10^{-2}$$

-re emelkedik. Ha $T_1 = 300^\circ\text{K}$, $T_2 = 1500^\circ\text{K}$, $\xi_v = 1,7 \text{ eV}$, $\xi_i = 0,7 \text{ eV}$, $\nu_i = \nu_v = 10^9 \text{ sec}^{-1}$, akkor

$$p = 4,9 \cdot 10^{-2} \cdot e^{-1,65 \cdot 10^5 t_e}.$$

p-nek valamivel nagyobbak kell lennie, mint az olvadásnál fellépő egyensúlyi lyuk-koncentrációnak. Itt p-t kb. $1,7 \cdot 10^{-2}$ -nek vesszük. Ebben az esetben a szükséges t_e érték a következő:

$$t_e = 2,8 \cdot 10^{-6} \text{ sec.}$$

Ez azt jelenti, hogy a próbatest hőmérsékletét ilyen rövid idő alatt szobahőmérsékletéről kb. 1200 C° -ra kell felemelni. A jelenlegi technikai színvonal mellett ez igen nehéz probléma.

A fent megadott számítás csak egy kiválasztott példa. Remélhető, hogy más anyagok esetében, különösen olyan anyagok esetében, melyeknek alacsonyabb az olvadáspontja, a vázolt folyamat megvalósítható a kísérleti lehetőségek jelenlegi állapota mellett is.

Lábjegyzetek és irodalom:

- 1./ Lásd pl.: O.G. SUTTON, Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 73, 257 /1947/
- 2./ Ha a szennyeződés különböző radioaktív anyagok keveréke, akkor ki kell számítani a parciális koncentrációkat és meg kell szorozni ezeket a megfelelő felezési időkkel.
- 3./ Ha a reaktor nem állandó nivón üzemel, hanem valamilyen más program szerint, akkor az integrálás előtt meg kell szorozni formuláinkat egy, a reaktor időbeli üzemeltetési programja által meghatározott súlyfüggvénnyel.
- 4./ N.G. STEWART, H.G. GALE és R.N. CROOKS, A;E;R;E; MP/R.1452. KFKI Közlemények 6. évf. 4. szám, 1958

- [1] Hoffmann Tibor: Egyvegyértékű fémek olvadásának elmélete. Tézisek. Budapest (1956); Szilárd anyagok fizikája és kémiája, Fortschritte der Physik, megjelenés alatt.
- [2] Figyelemmel kell lenni arra a lehetőségre is, hogy a melegebb anyag egy éppen megfagyóban lévő folyadék is lehet, amely átadja a szilárd testnek azt a latens hőt, ami a fagyási, vagy tuhütési folyamatok során felszabadul. Ebben az esetben a parallel tuhévitési-tuhütési folyamatok sokkal bonyolultabbak. Ezeket itt nem vizsgáljuk.
- [3] J.Friedel hívta fel a figyelmemet a következő körülményre. Nem feltétlenül szükséges ez N_5 -höz hasonló görbét kizárni a tárgyalásból. Nevezetesen metastabil állapotot az abszolút zéró hőmérsékleten nem lehet elérni a szokásos úton. A közös érintő ugyanis annyira megrövidíti a görbe két külső részét, hogy a metastabil állapotnak nem lesz reális jelentése. Ebben az esetben nem következtethetünk arra, hogy van egy maximális szubkristallit méret. A jelen munkában levont következtetések nagyságrendben érvényesek maradnak.
- [4] F.Seitz és J.S.Koehler, Solid State Physics, Vol.2. Academic Press Inc., New York, 1956, 408-411 és 415-420 old.
- [5] M.Walt és H.H.Barschall, Phys. Rev. 93, 1062 (1954)

REAKTORKÉMÉNYEKBŐL SZÁRMAZÓ RÁDIÓAKTIV SZENNYEZŐDÉS ATMOSZFERIKUS DIFFUZIÓJÁNAK SZÁMITÁSA^{*}

Irta: Hoffmann Tibor és Németh Géza

Elektromágneses Hullámok Osztálya és Neutronfizikai Osztály

Összefoglalás

A szerzők elméletileg levezettek egy képletet a szennyeződés atmoszferikus diffuziójára a megfelelő helyes határfeltételek és a felezési idő figyelembevételével a közönséges diffúziós probléma tárgyalási módján. A nem adszorbeáló esetben a talajon felgyülemlett szennyeződést maga a koncentráció értéke adja meg azon a helyen, az adszorbeáló esetben az egységnyi felületre eső szennyeződést a szennyeződésnek a felszín felé irányuló áramlásának időintegrálja adja meg a felezési idő figyelembevételével.

A szél hatása úgy vehető figyelembe, hogy a koordinátarendszert, melyben a vizsgálat folyik, a szél irányában a szél sebességével mozgónak tekintjük.

Az elméleti összefüggéseket a Harwell-i BEPO reaktoron végzett mérési eredményekkel illusztrálták.

Reaktorok tervezésénél fontos és felelősségteljes feladat annak biztosítása, hogy a reaktor és környéke mentesítve legyen a rádióaktív szennyeződéstől.

Az ezen feladat megoldására irányuló kutatások egyik része ventillációs reaktorkémények tervezésére irányul. Eddig az összes ezen kérdéssel kapcsolatos elméleti munkák közvetve vagy közvetlenül Sutton [1] számításaira támaszkodtak. Sutton eredeti feltevései azonban nem teljesen helytállóak abban az esetben, mikor nem túl nagy felezési idővel rendelkező rádióaktív szennyezés jön ki a kéményből. Ezen kívül a Sutton-féle formula túl sok ha-

^{*} Az 1958. évi genfi II. Nemzetközi Atomenergia Konferencián elfogadott előadás.

tározatlan paramétert tartalmaz ahhoz, hogy reaktorok tervezésére fel lehessen használni.

Sutton alapvető feltevése az, hogy az atmoszférában a szennyező részecskék diffúziója a kéménytől való távolságtól függ. Ezen feltevést használva a szennyeződési koncentrációra a következő formula adódott:

$$\nu(x, y, z) = \frac{Q}{\pi c_y c_z u x^{2-n}} \exp \left[-\frac{1}{x^{2-n}} \left(\frac{y^2}{c_y^2} + \frac{(z-L)^2}{c_z^2} \right) \right] \quad (1)$$

Itt $\nu(x, y, z)$ a szennyeződési koncentráció az (x, y, z) Descartes-féle koordinátákkal rendelkező helyen. A z tengely felfelé, az x tengely pedig a szél irányába mutat. A kémény a koordinátarendszer középpontjában van elhelyezve. L a kémény magassága, Q a kémény által a levegőbe kilökött szennyeződés, u a szélsebesség. A c_y, c_z, n mennyiségek meteorológiai faktorokkal és a diffúziós együtthatóval függenek össze. (A diffúziós együttható ezeknél a számításoknál nem állandó.)

A Sutton-féle formula által szolgáltatott koncentráció-eloszlás nem minden esetben elfogadható. Pl. (1) szerint a föld felszínénél ($z=0$) létrejövő koncentráció eloszlás maximumot mutat a következő x értéknél:

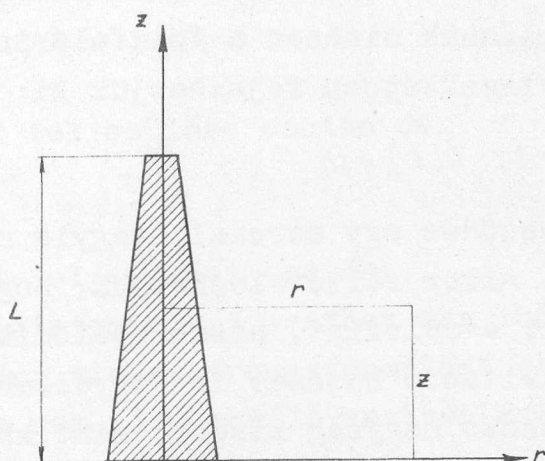
$$x = \left(\frac{L}{c_z} \right)^{\frac{2}{2-n}} \quad (2)$$

Világos, hogy a maximum helyének erősen függenie kell a szélsebességtől. Ezzel szemben (2) szerint a maximum helye nem függ a szélsebességtől. Az ellentmondás akkor sem szűnik meg, ha a szennyeződést rádióaktívnek tekintve, annak felezési idejét is figyelembe vesszük.

Az alábbiakban megpróbáltunk egy Suttonénál egyszerűbb alapon nyugvó, de általánosabb feltételezésekkel megalapozott számítást végrehajtani. Az eredmények csak két paramétert tartalmaznak, melyek egy kéménynél végzett méréssorozat alapján egyszer s mindenkorra meghatározhatóak.

Feltesszük, hogy a földfelület sík a kémény környezetében. Ez a feltevés természetesen nem helytálló a kémény közvetlen környezetében, hiszen ott épületek vannak. Azonban, ha a kémény legalább 1,5-2-szer magasabb, mint a környező épületek, akkor ez a feltevés nem okoz lényeges hibát.

A problémát szélmentes esetben hengersizmetrikusnak tekinthetjük (lásd az 1.ábrát). Jelentse r a kémény tövétől mért távolságot és z a föld felszínétől mért távolságot. A kémény ma-



1.ábra

gassága legyen L . A szennyeződési koncentrációt az (r, z) helyen $\nu(r, z, t)$, ahol t az az idő, amely a szennyeződés kibocsátása óta eltelt.

Ha a 0 pillanatban a kémény N_0 szennyeződést lökött ki az atmoszférába, akkor a koncentrációt a közönséges diffúzió-egyenlet adja

$$\frac{\partial \nu}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 \nu}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 \nu}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \nu}{\partial r} \right), \quad (3)$$

ahol D a szennyeződésnek az atmoszférába való diffúzió állandója. A kezdeti feltétel az, hogy

$$\nu(r, z, 0) = n_0 \delta(z-L) \frac{\delta(r)}{r}, \quad (4)$$

ahol δ a Dirac-delta.

Ezen diffúziós probléma határfeltételei a következők. A kémény által okozott koncentráció végtelen magasságban, illetve a kéménytől végtelen távol 0, azaz minden időben igaz az, hogy:

$$\nu(r, \infty, t) = 0 \quad (5)$$

és

$$\nu(\infty, z, t) = 0. \quad (6)$$

A föld felületén érvényes határfeltétellel kissé részletesebben kell foglalkozni. Ha a szennyeződés egy gáz, amely nem adszorbeálódik a felületen, akkor az a határfeltétel, hogy minden olyan gázcsepecske, amelyik a felszínre ér, onnan visszaverődik, vagyis az áramlásnak nincsen a földfelszínre merőleges komponense. Ezt a következőképpen fejezhetjük ki:

$$\frac{\partial v}{\partial z}(r, 0, t) = 0. \quad (7)$$

Ha viszont a szennyeződés egy aerosol, vagyis nagyobb részecskéket tartalmazó por, akkor feltételezhetjük, hogy minden olyan részecske, amely eléri a felszínre, adszorbeálódik rajta. Aerosolokat tárgyalva a gravitáció hatását is figyelembe kellene vennünk, de minthogy a részecske nagyság kisebb, mint kb. 10μ , a gravitációnak nincs lényeges hatása és elegendő egyedül a diffúziót tekintetbe venni. Ebben az esetben a koncentráció közvetlenül a talaj fölött 0, mivel minden részecske, amelyik ebbe a részbe kerül, végtelen gyorsan a talajra adszorbeálódik, tehát kikerül az atmoszférából. Ez annyit jelent, hogy adszorbeálódó aerosolok esetén a határfeltétel a következő:

$$v(r, 0, t) = 0. \quad (8)$$

Meg kell jegyeznünk, hogy a valóságban valószínűleg az említett két eset közötti átmenetekről van szó és így a helyes határfeltétel (7) és (8) lineáris szuperpozíciójaként adódik.

A (3) egyenletet könnyen megoldhatjuk Hankel és Laplace transzformáció egymás utáni alkalmazásával. Vegyük $v(r, z, t)$ Hankel transzformáltját a következő alakban:

$$V(\omega, z, t) = \int_0^{\infty} J_0(r\omega) r v(r, z, t) dr, \quad (9)$$

ahol $J_0(x)$ a nulladrendű Bessel-függvény, majd $V(\omega, z, t)$ Laplace-transzformáltját a következő alakban:

$$W(\omega, z, p) = \int_0^{\infty} e^{-pt} V(\omega, z, t) dt. \quad (10)$$

Ekkor a (3) differenciál egyenlet a következőképpen transzformálható:

$$\frac{\partial^2 W}{\partial z^2} - \left(\omega^2 + \frac{p}{D}\right) W = -\frac{n_0}{D} \delta(z-L). \quad (11)$$

Az ehhez tartozó határfeltételek:

$$W(\omega, \infty, p) = 0 \quad (12)$$

és

$$\frac{\partial W}{\partial z}(\omega, 0, p) = 0 \quad (13)$$

a (7) határfeltétel teljesülése esetén és

$$W(\omega, 0, p) = 0 \quad (14)$$

a (8) határfeltétel teljesülése esetén.

A (11) egyenletet mindkét esetben meg tudjuk analitikusan oldani és az eredmény vissza-transzformálása sem okoz nehézséget.

Az eredmény a nem adszorbeáló esetben a (7) határfeltételt használva az, hogy

$$v(r, z, t) = \frac{n_0}{4\sqrt{\pi} D^{3/2} t^{3/2}} \left[e^{-\frac{r^2 + (L-z)^2}{4Dt}} + e^{-\frac{r^2 + (L+z)^2}{4Dt}} \right] \quad (15)$$

míg (8)-at használva az, hogy

$$v(r, z, t) = \frac{n_0}{4\sqrt{\pi} D^{3/2} t^{3/2}} \left[e^{-\frac{r^2 + (L-z)^2}{4Dt}} - e^{-\frac{r^2 + (L+z)^2}{4Dt}} \right] \quad (16)$$

Ha most a rádióaktív szennyeződés felezési idejét is figyelembe akarjuk venni, meg kell szoroznunk a (15) és (1) formulákat $e^{-\frac{t}{\tau}}$ val, ahol τ a szennyeződés felezési ideje [2].

A szél hatását legegyszerűbben úgy venetjük figyelembe, hogy oly módon transzformáljuk koordináta-rendszerünket, hogy ha a szél sebessége u , akkor a kémény u sebességgel a szél sebességével ellentétes irányba mozogjon, azaz ha csak vízszintes irányba fújó szelet tételezünk fel, akkor r helyébe mindenütt $(r-ut)$ -t kell írni.

A kéményből kijövő levegő mindig magasabb hőmérsékleten van, mint a környező atmoszféra. Ez a szennyeződésnek - a kémény közelében gyorsabb, a kéménytől távolabb lassabb - felfelé áramlását okozza. A legegyszerűbben ezt úgy vehetjük tekintetbe, ha egy effektív felfelé irányuló szelet veszünk fel az egész térbe. Ezt a szelet számításainkban a vízszintes szélhez hasonlóan vehetjük figyelembe, azaz z -t mindenütt $(z-vt)$ -vel kell helyettesíteni, ahol v az előbb definiált effektív függőleges szélsébség.

Az eddigiekben a tárgyalás arra az esetre korlátozódott, mikor a szennyeződés lökészerűen a 0 pillanatban jön ki a kémény-

ből. Az eredményeket a reaktor hibás működése, üzemzavara esetén használhatjuk. Ennél fontosabb eset az, mikor a reaktor folyamatosan működik és így a kémény a rádióaktív szennyeződés folyamatos forrása. Ha feltesszük, hogy a reaktor állandó nivón dolgozik a 0 pillanattól kezdve, akkor ahhoz, hogy megkapjuk a t pillanatban uralkodó szennyeződést, integrálni kell a fentebb megadott koncentrációt (megszorozva a tárgyalt faktorokkal) az idő szerint 0-tól t -ig [3]. Mivel az integrandus mindig pozitív, ezen integrál maximuma $t = \infty$ -ben van. Bennünket csak a maximum érdekel.

Az eredmény a nem adszorbeálódó esetben (azaz a /7/ határfeltételt használva):

$$N(r, z, u) = \frac{n_0}{2D} e^{\frac{ru}{2D}} \left[\frac{\exp\left(\frac{v(z-L)}{2D} - \sqrt{\frac{u^2}{4D^2} + \frac{1}{D\tau}} \sqrt{r^2 + (z-L)^2}\right)}{\sqrt{r^2 + (z-L)^2}} + \frac{\exp\left(\frac{v(z+L)}{2D} - \sqrt{\frac{u^2}{4D^2} + \frac{1}{D\tau}} \sqrt{r^2 + (z+L)^2}\right)}{\sqrt{r^2 + (z+L)^2}} \right] \quad (17)$$

ahol $N(r, z, u)$ az aktív szennyeződés az (r, z) pontban, u szélesség esetén, hosszú idővel a reaktor működésének megkezdése után. Az adszorbeálódó esetben (/8/ határfeltétel)

$$N(r, z, u) = \frac{n_0}{2D} e^{\frac{ru}{2D}} \left[\frac{\exp\left(\frac{v(z-L)}{2D} - \sqrt{\frac{u^2}{4D^2} + \frac{1}{D\tau}} \sqrt{r^2 + (z-L)^2}\right)}{\sqrt{r^2 + (z-L)^2}} - \frac{\exp\left(\frac{v(z+L)}{2D} - \sqrt{\frac{u^2}{4D^2} + \frac{1}{D\tau}} \sqrt{r^2 + (z+L)^2}\right)}{\sqrt{r^2 + (z+L)^2}} \right] \quad (18)$$

A határfelületi koncentráció a nem adszorbeáló esetben:

$$N(r, 0, u) = \frac{n_0}{D\sqrt{r^2 + L^2}} \exp\left[\frac{ru}{2D} - \sqrt{\frac{u^2}{4D^2} + \frac{1}{D\tau}} \sqrt{r^2 + L^2}\right] ch \frac{vL}{2D} \quad (19)$$

Adszorbeáló esetben tekintetbe kell venni a föld felületi szennyeződését. Ezt úgy számíthatjuk ki, hogy integráljuk az aktív szennyeződés áramsűrűségének a felületre merőleges komponensét. E szerint

$$N(r, u) = D \int_0^\infty e^{-\frac{t}{\tau}} \int_0^t \frac{\partial n(r, 0, s)}{\partial z} ds dt, \quad (20)$$

ahol $N(r,u)$ a felületi szennyeződés r távolsága a kéménytől u vízszintes szélesség mellett és

$$\frac{\partial n(r, 0, t)}{\partial z}$$

a határfelületnél létrejövő koncentráció-gradiens a (8) határfeltétel teljesülése esetén. A fenti gradiensben tekintetbe véve az (1) egyenlet után tett kiegészítő megjegyzések, kivéve az, amelyik a felezési időre vonatkozik.

(19) maximuma az r változóban a kéménytől

$$r = \frac{uL^2}{4D} \quad (21)$$

távolságban van.

Látható, hogy (19) maximuma az u változóban

$$u_0 = \frac{2r}{L} \sqrt{\frac{D}{\tau}} \quad (22)$$

nél van és a maximum értéke

$$N(r, 0, u_0) = \frac{n_0}{D\sqrt{r^2 + L^2}} e^{-\frac{L}{\sqrt{D\tau}}} \cdot ch \frac{vL}{2D} \quad (23)$$

Ennek legnagyobb értéke viszont $r = 0$ -nál van.

$$N(0, 0, u_0) = \frac{n_0}{DL} e^{-\frac{L}{\sqrt{D\tau}}} \cdot ch \frac{vL}{2D} \quad (24)$$

Ezt a formulát használhatjuk a reaktor kémény szükséges magasságának megállapítására abban az esetben, mikor ismerjük a reaktor teljesítményét (a kijövő szennyezésre jellemző n_0 mennyiség arányos a teljesítménnyel), a megengedett maximális koncentrációt (N), a szennyeződés felezési idejét (τ), a diffúzió állandót (D) és az effektív függőleges szélességet (v).

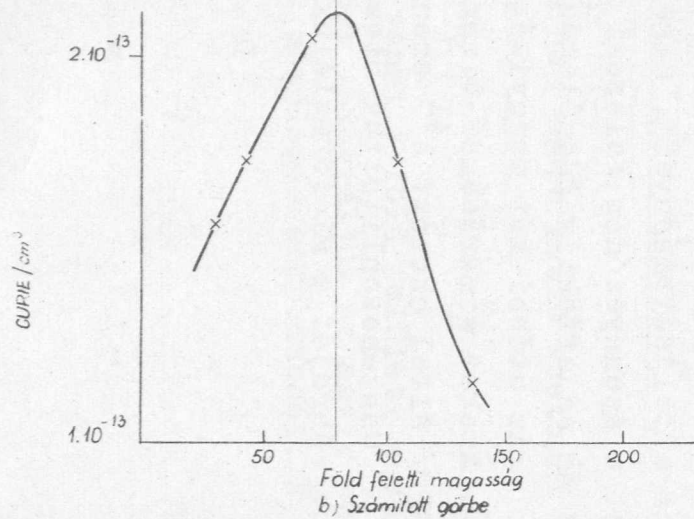
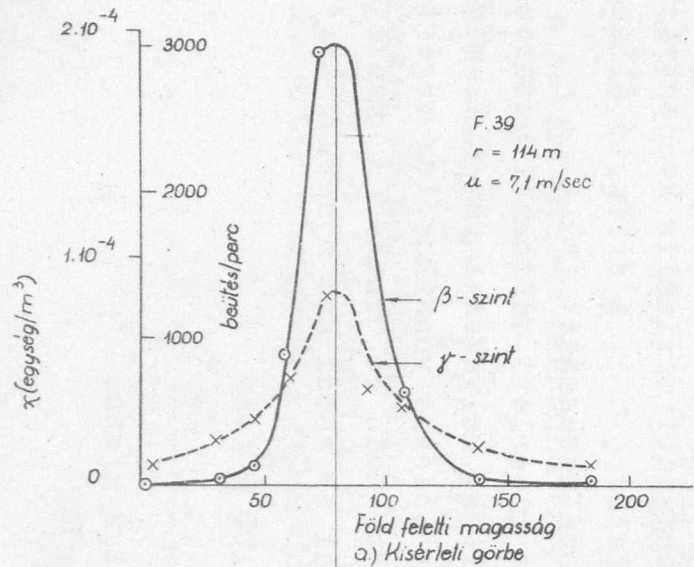
Az utóbbi két mennyiséget kísérleti adatokból határozhatjuk meg. Azokat a méréseket vizsgáltuk, melyeket a harwelli máglya /BEPO/ által okozott A^{41} szennyeződésre vonatkozólag végeztek.

Összehasonlítottuk Stewart, Gale és Crooks^{4/} munkájának 11.a/ ábráját a mi formuláinkkal és ebből azt nyertük, hogy

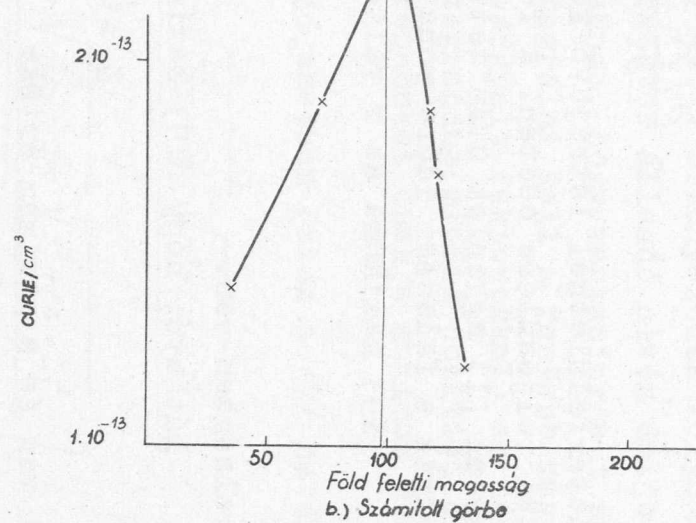
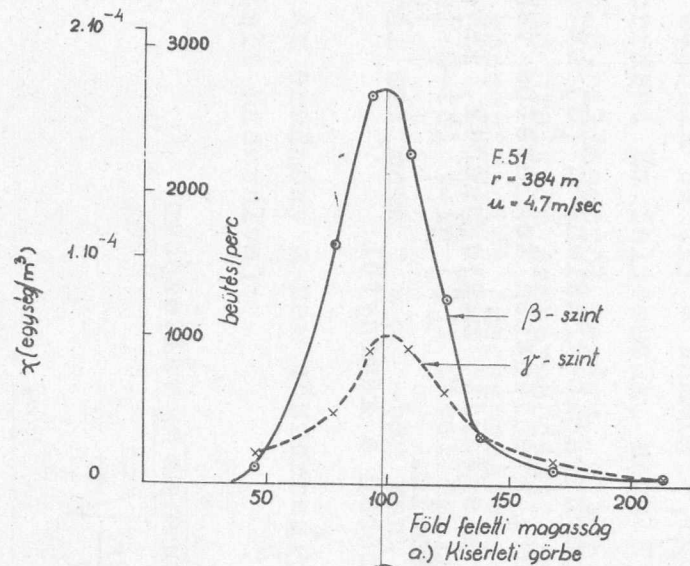
$$D = 100 \text{ m}^2/\text{sec}$$

és

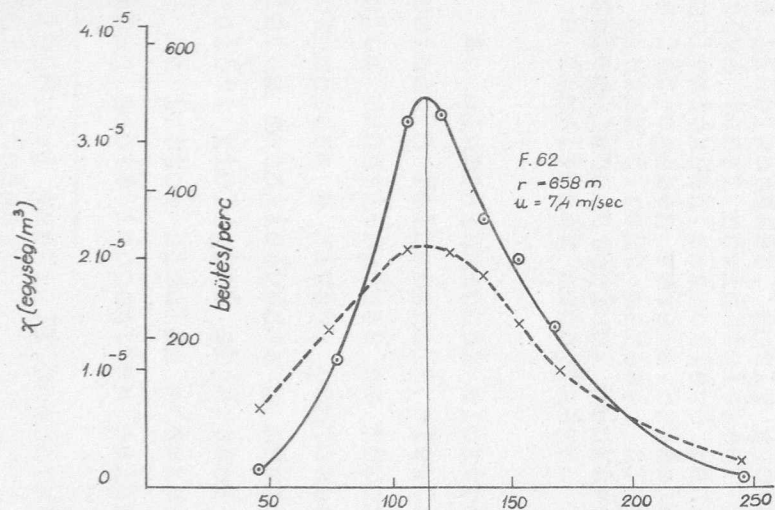
$$v = 1,2 \text{ m/sec.}$$



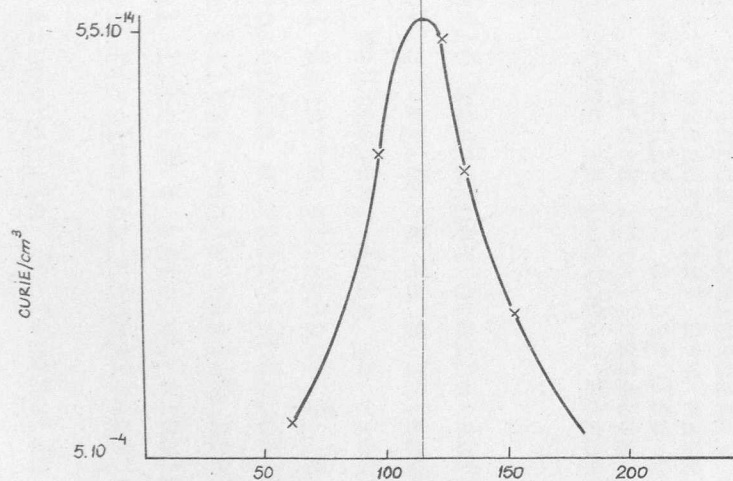
2. ábra



3. ábra

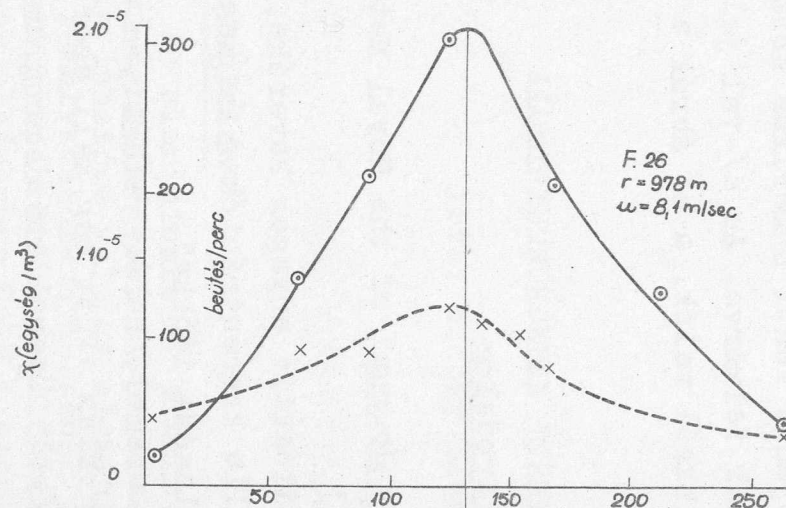


Föld feletti magasság
a) Kísérleti görbe

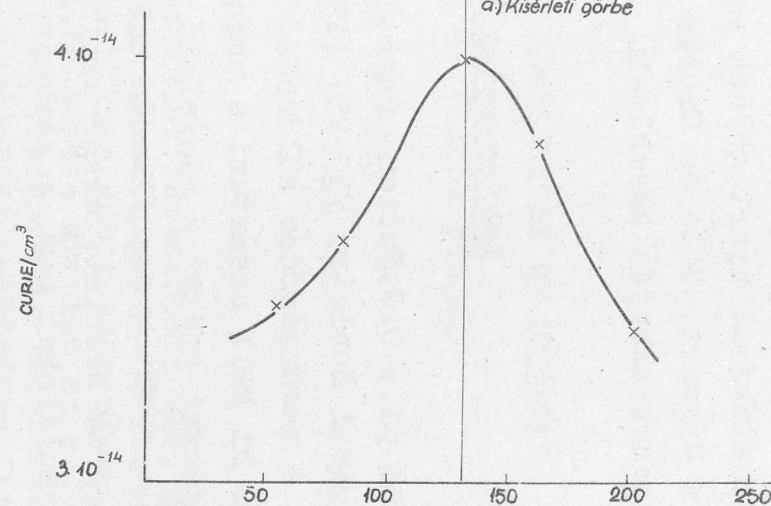


b) Számított görbe

4. ábra



Föld feletti magasság
a) Kísérleti görbe



b) Számított görbe

5. ábra

A 2-5. ábrákon egyrészt az említett cikk 3-as ábrájáról vett görbék, másrészt a mi formuláink alapján a fenti numerikus értékek felhasználásával nyert görbék vannak felmérve. Az a/-val jelzett ábrák a Stewart, Gale és Crooks cikkből valók, a b/ ábrák a mi eredményeink alapján készültek.

Lábjegyzetek és irodalom

- [1] Lásd pl.: O.G.Sutton, Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 73, 257 (1947)
- [2] Ha a szennyeződés különböző rádióaktív anyagok keveréke, akkor ki kell számítani a parciális koncentrációkat és meg kell szorozni ezeket a megfelelő felezési időekkel.
- [3] Ha a reaktor nem állandó nivón üzemel, hanem valamilyen más program szerint, akkor az integrálás előtt meg kell szorozni formuláinkat egy, a reaktor időbeli üzemeltetési programja által meghatározott súlyfüggvénnyel.
- [4] N.G.Stewart, H.G.Gale és R.N.Crooks, A.E.R.E. MP/R.1452.

ALUMINIUMKOHÓKBAN TERMELT FÉMMENNYISÉGEK MÉRÉSE[✱]

Irta: Bozóky László és Vödrös Dániel

Radiológiai Osztály

Összefoglalás

Az alumíniumkohók áramhatásfokának méréséhez a radioizotópok új lehetőségeket nyújtottak. Az izotóp higulás módszerével ugyanis lehetővé vált az alumíniumkohókban adott időpontban jelenlévő fémolvadék mennyiségének pontos mérése szemben az ezelőtt végzett csupán durva becslésekkel. Az irodalomban ismertetett eljárások elsősorban Co^{60} izotóp alkalmazásáról, illetve a vele végrehajtott mérési módszerek leírásáról számolnak be.

A Co^{60} hosszú felezési ideje következtében a mérés során az alumínium olvadék szükségszerűen hosszabb időre radioaktív válik, ami a megengedhető maximális dózisszinteknek ismételt leszállítása következtében egyre nagyobb sullyal esik latba.

A fentiek figyelembevételével célul tűztük ki egy olyan eljárást kidolgozását, amely gyors végrehajthatósága következtében lehetővé teszi rövid felezési idejű izotópok alkalmazását és így a fémolvadékokban számottéví radioaktív szennyezést nem okoz. Az eljárás lényegében véve a betáplálásra kerülő és a higulás után vett minták direkt mérésén alapszik, aminek következtében minimális meleg-laboratóriumi munkával gyorsan és pontosan meghatározható a fémolvadék mennyisége.

Az alumíniumkohók elektrolizáló kádjainak áramhatásfokszámitásaihoz a felhasznált elektromos energiának és a kitermelt alumínium mennyiségének az ismerete szükséges. Amíg az elektromos adatok mérése a kívánt pontossággal könnyen elvégezhető, a kívánt alumínium mennyiségének a meghatározására a radioizotópok alkalmazása előtt kielégítő eljárások nem álltak rendelkezésünkre.

Az izotóp higulás módszerével lehetővé vált az alumíniumkohókban adott időpontban jelenlévő fémolvadék mennyiségének pon-

[✱] Az 1958. évi genfi II. Nemzetközi Atomenergia Konferencián elfogadott előadás.

tos mérése. Az irodalomban ismertetett eljárások [1],[2] elsősorban Co^{60} izotop alkalmazásáról, illetve a vele végrehajtott mérési módszerek leírásáról számolnak be. A Co^{60} hosszú felezési ideje (5,3 év) miatt a mérés következtében az alumínium olvadék szükségszerűen hosszabb időre radioaktív válik, ami a megengedhető maximális dózisszinteknek ismételt leszállítása következtében egyre nagyobb sullyal esik latba.

A fentiek figyelembevételével célul tűztük ki egy olyan eljárást kidolgozását, amely gyors végrehajthatósága következtében lehetővé teszi rövid felezési idejű izotopok alkalmazását és így a fémolvadék radioaktív szennyezésének az elkerülését.

Az izotop higulós módszer lényegében véve abban áll, hogy az olvadékba bevitt ismert súlyú és fajlagos aktivitású radioizotop bizonyos idő után az olvadékban egyenletesen elkeveredik és így a fajlagos aktivitás a tömeg növekedéssel fordított arányban csökken.

A mérések a következőképpen hajthatók végre:

B. Az elektrolizáló kádban lévő ismeretlen mennyiségű olvadéktól alumíniumhoz ismert tömegű és fajlagos aktivitású alumínium ötvözetet adagolunk és a homogenizálódás bekövetkezése után az olvadékból vett minta fajlagos aktivitásának a méréséből a fém mennyiségét (m) a következő összefüggés alapján határozzuk meg:

$$m = m_0 \frac{s_0}{s}$$

ahol m_0 a kádba bevitt minta tömege, s_0 annak fajlagos aktivitása és s a kádból vett minta fajlagos aktivitása.

Ha a mintavétel után T idő alatt összesen M tömegű alumíniumot csapolunk ki a kádból és a T időtartam végén újabb ismert fajlagos aktivitású és tömegű radioaktív előötvetet betáplálásával - figyelembevétel az első betáplálásból eredő esetleges maradék aktivitást is - ismét meghatározzuk az elektrolizáló kádban lévő fém mennyiségét, m' -t, akkor a T idő alatt kivált alumíniummennyiséget nyilván

$$M_T = m' - m + M$$

egyenlet fogja szolgáltatni.

A. Két csapolás között végezzük el a mérést egyetlen aktív minta betáplálásával. A T időszak elején és végén vett minták fajlagos aktivitásában mutatkozó különbséget nyilván a közben ki-

vált aluminium mennyiség révén bekövetkező higulásnak kell tulajdonítanunk.

Ha a fajlagos aktivitást a T időszak elején s_1 -el, a végén s_2 -vel jelöljük, akkor a T idő alatt kivált mennyiség M_T .

$$M_T = m_0 \frac{S_0}{S_2} - m_0 \frac{S_0}{S_1} = m_0 S_0 \left(\frac{1}{S_2} - \frac{1}{S_1} \right)$$

A fentiek alapján történő mérési módszer kidolgozásához kísérleteinket a következő szakaszokra bontottuk:

1. A felhasználandó radioizotop megválasztása és az adagolandó mennyiség kiszámítása.
2. A radioizotop előötvetbe való bevitele.
3. A minták aktivitásának mérése.
4. A minták betáplálása a kádba, mintavétel.

1. Az izotop fajtájának és mennyiségének megválasztása

A gyakorlati felhasználás követelményeinek eleget tevő izotop fajta kiválasztásánál a következő szempontokat kell mérlegelnünk:

a/ Az izotop az aluminiummal jól ötvözhető elem olyan izotopja legyen, amely olcsón és könnyen beszerezhető.

b/ Az izotop az alacsony toxicitású, kevésbé veszélyes izotopok csoportjába tartozzék.

c/ A bomlási félideje egyrészt elegendő hosszú legyen a mérések elvégzéséhez, másrészt rövid legyen annak biztosítására, hogy az aluminiumból készített termékek aktivitása a fogyasztókhoz kerülésük idejére már gyakorlatilag teljesen lecsengjen.

d/ Méréstechnikai okokból célszerű, ha a kérdéses izotop béta-, gamma sugárzó, de gamma energiája minél kisebb.

A fenti szempontoknak megfelelően vizsgálatainkat Fe^{59} , Cu^{64} és Au^{198} izotopokkal végeztük el. Ezek közül az Au^{198} -at találtuk a legalkalmasabbnak, különös tekintettel a másik kettőnél kedvezőbb bomlási félidejére (2,69 nap), ami a c/ pont alatti egészségvédelmi követelmények maradéktalan kielégítését teszi lehetővé.

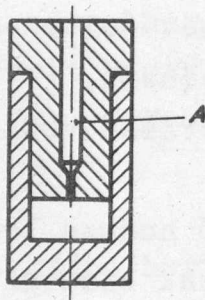
A betáplálandó izotop minimális aktivitását egyrészt az elektrolizáló kádban lévő olvadt aluminium mennyisége, tehát a hi-

gulás mértéke, másrészt az alkalmazott mérés technika szabják meg. Az általunk is használt GM csöves méréseknél a szokásos 3000 kg körüli olvadt alumíniummennyiségek méréséhez, pl. Co^{60} -ból 1-2 mC aktivitású izotop mennyiség betáplálására van szükség.

Az Au^{198} alkalmazása lehetővé tette 10-szer nagyobb aktivitások betáplálását, aminek eredményeképpen a mintákat rövidebb idő alatt nagyobb pontossággal tudtuk kimérni és ugyanakkor elértük az alumíniumtermékek aktivitásának teljes kiküszöbölését (c/ pont).

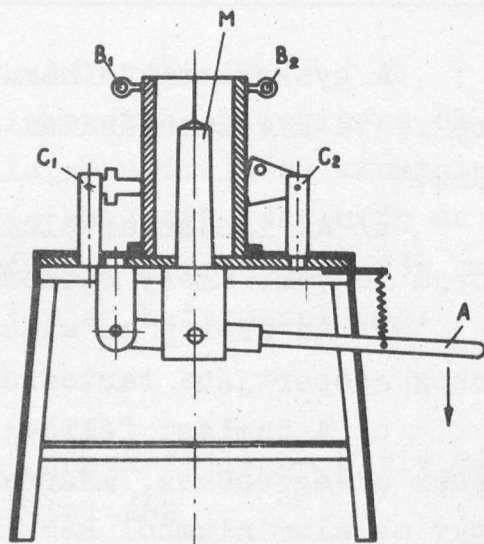
2. A radioizotopok előtvözetbe való bevitele

A nagy fajlagos aktivitású szilárd halmazállapotú radioizotopokat az 1.sz. ábrán látható alumíniumtokba zártuk. Az izotopot tartalmazó hengert egy fogó segítségével laboratóriumi olvasztótégelyben megolvasztott higfolyós alumíniumolvadék közepébe vittük



1. ábra

Az izotop oldatok bepárlására és ötvözetbe vitelére szolgáló alumínium tok. **A** a betápláláskor felmelegedő levegő eltávozására szolgáló furat.



2. ábra

Az előtvözetek valamint minták készítésére szolgáló kokilla. **A** kiemelő kar, **M** belső konuszos mag, **B₁** és **B₂** külső hengerpalástok, **C₁** támasztópecek, **C₂** szorító-támasztás.

be. Az egyenletes elkeveredés biztosítására az olvadékot néhány óráig 800-900 C^o-on tartottuk és rendszeresen kevertük, majd a 2. sz. ábrán látható kokillába öntöttük.

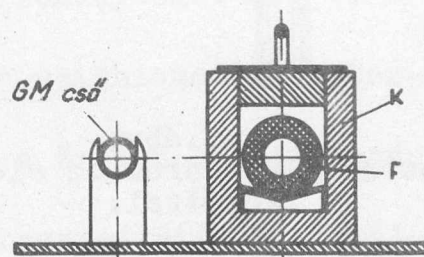
A kokillát úgy terveztük meg, hogy az a GM csőre ráhuzható, 1 cm falvastagságú csöveket szolgáltatson. A kokillánk üzemi fel-

tételek mellett sorozatos mintavételre alkalmas, amennyiben az olvadék megmerevedése után a kissé konuszos mag (M) az A kar segítségével a még forró alumíniumhengerből könnyen kihuzható, a két fél-henger idom (B_1, B_2) kiemelhető és néhány másodperces vízbe-merítéssel lehűtve ismét visszahelyezhető az alaptárcsára. A minták egyetlen forgácsoló művelettel teljesen azonos alakra hozhatók. A betáplálásra kerülő mintákat mérés előtt autoradiogrammos módszerrel homogenitásra ellenőriztük.

3. A minták aktivitásának mérése

A betáplálásra kerülő és a kádból vett minták fajlagos aktivitásának meghatározására mindkét esetben a fenti kokillával azonos hengereket készítettünk. A kádból vett minták fajlagos aktivitása bizonyos minimális izotop tartalom felett a mintának GM csőre húzása útján könnyen meghatározható. A 4-5 nagyságrenddel radioizotopot tartalmazó betáplálendő minták aktivitása hasonló módon a magas percenkénti impulzusszám miatt nem mérhető. Ezért egy áttétel beiktatása vált szükségesé. E célra egy olyan mérőállást készítettünk, amelynél a nagy aktivitású minták mérésénél a GM cső és a mérendő minta közé 2-3 nagyságrendű intenzitáscsökkenést biztosító ólomabszorbens kerül. A mintatartót körülvevő ólomabszorbensek biztosítják a környezeten szóródó gamma-sugárzás zavaró hatásának a kiiktatását (3. ábra).

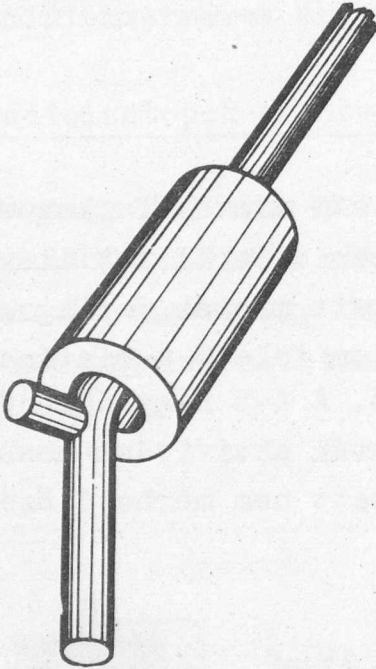
Egy alkalmasan megválasztott közepes aktivitású hengerrel mind a GM csőre húzott, mind az abszorbens mögötti helyzetnek megfelelő impulzusszámot lemértük és ezekből a két helyzetnek megfelelő áttételi számot meghatároztuk. Az áttétel közbeiktatásával vég-eredményben valamennyi mintát teljesen azonos geometriai viszonyok között mértük és így semmiféle korrekció alkalmazására, ill. abszolút értékek meghatározására nem volt szükség.



3. ábra
Mérőállás. A kis aktivitású minták mérése a GM csőre ráhuzva, az 5 nagyságrenddel nagyobb aktivitású előötvetetek (F) mérése a K kutban történik.

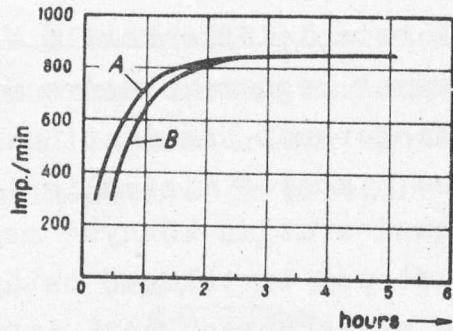
4. Betáplálás és mintavétel

A bemért minták betáplálását úgy végeztük, hogy a betáplálható hengert a 4.sz.ábrán látható vasrudra huzzuk és azzal az elektrolizáló kád kriolit rétegén vágott résen keresztül a fémfürdőbe nyomtuk. A radioizotop elkeveredésének ellenőrzésére a kád



4. ábra

A betápláló vasrud az előt-
vözettel.



5. ábra

A a betáplálás helyén B ettől
 $\frac{2}{2}$ m távolságban vett minták
aktivitásának változása az
idő függvényében.

négy pontján időnként mintákat vettünk. Egy kádba két helyen, át-
lós irányban tápláltuk be az előt-
vözetet. Az elkeveredés lefolyá-
sát az 5.sz. ábra szemlélteti. A mintavételhez egy olyan öntökana-
lat készítettünk, amelynek ürtartalma éppen megfelelt a kokilla
ürtartalmának. Így gyors öntéseket tudtunk végezni anélkül, hogy
tulfolyások akadályozták volna a kokilla szétszedését.

Kiértékelés. Az elektrolizáló kádban kapott mérési eredmé-
nyeink ellenőrzésére üstkísérleteket végeztünk, azaz a csapolások
alkalmával üstökbe szivott és mérlegben lemért fémolvadék-mennyi-
ségét összehasonlítás céljából a fenti izotop metodikánkkal is
meghatároztuk. Az üstkísérletek azt mutatták, hogy 1 %-on belüli
pontossággal meg lehet határozni az alumínium olvadék mennyiségét.

ADATOK AZ URÁN, TÓRIUM ÉS CIRKON ANALITIKÁJÁHOZ^{*}

Irta: Almássy Gyula, Ördögh Mária, Schneer Anna^{**}

Magkémiai Osztály

Összefoglalás

I. Részleteiben megvizsgáltuk az urán tributilfoszfátos extrakciójának fiziko-kémiai körülményeit és megállapítottuk az extrakció optimális körülményeit. Az oldatban az urán meghatározását fotometriás módszerrel végeztük morinnal, ill. α - α' - dipiridillel.

II. 1/ Felülvizsgáltuk a tórium kromatográfiáját és megállapítottuk, hogy 100 ml 8 n salétromsav és 100 ml éter összerázásakor keletkező szerves fázis a legjobb oldószer a Th cellulózoszlopon történő elválasztásához.

2/ Kis mennyiségű tórium kolorimetriás meghatározására az ismert toronos módszert módosítottuk, érzékenységét kb. 70 % - kal megnöveltük.

III. 1/ A szelektíven leválasztott és sztöhiometrikus összetételű cirkóniumtetramandelát

a/ tömény kénsavas oldatában a Zr-hoz kötött mandulasav kromatometrián ($E_{Zr} = 1/136$),

b/ Na_2CO_3 -os oldatában permanganometrián titrálható ($E_{Zr} = 1/17,76$)².

2/ Az élénk sárgaszínű, UV fényben zölden fluoreszkáló cirkon-morin komplex alkalmas 0,1-30 μg /ml cirkon fotometriás meghatározására. A mérések 420-470 $m\mu$ között végezhetők.

A Magyarországon előforduló nukleáris nyersanyagok felkutatása, és az épülő kísérleti atomreaktorral végzendő vizsgálatok előkészítése az urán, tórium és cirkon analitikájának beható tanulmányozását, pontos módszerek beállítását és a három fém anali-

^{*} Az 1958. évi genfi II. Nemzetközi Atomenergia Konferencián elfogadott előadás.

^{**} ELTE Általános és Szervetlen Kémiai Intézete

Irodalmi adatokból ismeretes [1], [2], [3], hogy aktiv anyag sem az anódmasszára sem az anódra, vagy az anód gázba nem kerül, tehát az üstkísérletek az elektrolizáló kádban lejátszódó folyamatokhoz ebből a szempontból hasonlatosak.

Az elektrolizáló kád elektrolitját aktivitásra ellenőriztük és abban aktiv anyagot nem találtunk.

A fentiek alapján mérési módszerünk üzemi mérésekre alkalmas, eredményei a szükségletet kellő pontossággal kielégítik. Az alkalmazott rövid felezési idejű izotopok, különösen az Au¹⁹⁸ biztosítják az egészségügyi szempontok legmesszebbmenő kielégítését, amennyiben egyrészt a meghatározást végző dolgozók méréseink szerint az egyszerű és gyorsan elvégezhető műveletek során a maximumisan megengedhető dózisszintnek csupán töredékét kapják, másrészt az aluminium termékek aktivitása egy hónap leforgása alatt teljesen lecseng.

I r o d a l o m

- [1] Beleckij-Masovec: Az elektrolizáló kádban lévő aluminium mennyiségének meghatározása radioizotópokkal. Cvetnűje Metallü, 1955. 5.
- [2] Rempelj-Popov: Az áramhatásfok meghatározása az ipari elektrolizáló kádkban. Cvetnűje Metallü, 1956. 3.
- [3] G.H.Guest: Radioisotopes Industrial Applications. Pitman and Sons Ltd. Toronto 1951.
- [4] Bradford: Radioisotopes in Industry, Reinhold, N.Y. 1952.

tikájának fejlesztését kívánta meg. Munkánk során olyan módszereket igyekeztünk körülményeinknek megfelelően alkalmazni, illetve kidolgozni, melyek a három fém igen kis koncentrációjának mérésére is alkalmasak, továbbá gyorsaságuk folytán széria elemzések elvégzését is lehetővé teszik. A három fém analitikájának fejlesztése terén elért eredményeinket az alábbiakban részletezzük.

Az urán tributilfoszfátos extrakcióval egybekötött meghatározása

Ismeretes, hogy a magasabbrendű alifás alkoholok foszfor-savval képezett észterei igen alkalmasak az urán extrakciós dúsítására [1-9]. Különösen elterjedt a di- és tributilfoszfát (DBP és TBP), melyeket az urán analitikájában egyre inkább kezdenek alkalmazni. A dibutilfoszfátos extrakciót több szerző is ajánlja vizek urántartalmának kivonására [9-11] és ugyanezek a szerzők az extraktum elfüstölése után az uránt fluorimetrián határozzák meg. A meghatározást a vizsgálati vízben jelenlévő nagyobb mennyiségű kísérő ionok zavarják, mert ezek a fémionok részben szintén extrahálódnak dibutilfoszfáttal. Sokkal specifikusabb az urán tributilfoszfátos extrakciója, mely nagyobb mennyiségű kísérő fém jelenlétében is alkalmas az urán szeparálására. Célunk volt az extrakciót úgy végezni, hogy az urán kivonása vizes oldatból egyszeri kirázással kvantitatív legyen [12].

Mint hogy az urán tributilfoszfátos extrakció alkalmával, mint molekula vegyület kerül az organikus fázisba, a vizes fázisból való kiszorításához megfelelően nagy nitrát koncentrációra van szükség. Az optimális nitrát koncentrációt nem salétromsavval, hanem ammóniumnitráttal igyekeztünk elérni, mint hogy a salétromsav szintén molekula vegyületet képez TBP-al és mint ilyen az organikus fázisba kerül és a meghatározás további menetét zavarja.

Hogyha a vizes fázisban az uránt kiszorító körülményeket megszüntetjük, a nitrát ion koncentrációt csökkentjük, az urán ismét a vizes fázisba kerül. Elvileg tehát az urán vizes reextrakcióval kivonható az organikus fázisból. Vizsgálataink azonban azt mutatták, hogy a reextrakcióhoz igen nagy vízmennyiség szükséges és így a vizes oldat uránra nézve erősen felhigul. Éppen ezért a

reextrakciót nem deszt.vizzel, hanem hig ammóniumkarbonát oldattal végeztük. Kísérleteink során a következő munkamenet bizonyult legalkalmasabbnak. A vizsgálati oldatot, mely nitráton kívül más aniont nem tartalmaz, vízfürdőn szárazra pároljuk és a száraz maradékot 0,18 ml tömény salétromsavval és deszt.vizzel 100 ml-es rázóötölcserbe mossuk. Az oldat térfogatát minden esetben deszt.vizzel 17 ml-re kiegészítjük. Ezután a rázóötölcserbe 12 g ammóniumnitrátot mérünk. Ekkor az oldat térfogata 25 ml-re megnő. A rázóötölcser tartalmát 25 ml benzines TBP-al (24 tf TBP + 76 tf benzin) három percen át rázogatjuk és a fázisok szétválása után a vizes fázist leengedjük. Ezután az uránt 25 ml 0,2 m ammóniumkarbonáttal reextraháljuk, majd az ammóniumkarbonát oldatot bepárló csészébe engedjük. A reextrakciót 5 ml ammóniumkarbonáttal megismételjük. Ezután a bepárló csésze tartalmát vízfürdőn szárazra pároljuk. A kapott száraz anyagban az urán meghatározására a következő két módszert dolgoztuk ki:

1. Az urán meghatározása alkoholos oldatban morinnal

A meghatározás elve: Az uranil ion gyengén savas, alkoholos oldatban morinnal sárgásbarna-szinű komplexet képez. Az uránnal együtt nyomokban extrahálódó fémionok a meghatározást zavarják. Ezt a zavaró hatást komplexon III adagolásával küszöböltük ki. Megállapítottuk a meghatározás szempontjából optimális sav, alkohol, morin és komplexon III koncentrációt. Figyelembe vettük továbbá azt, hogy a tributilfoszfátos extrakciónál kapott vizes oldat ammóniumkarbonát tartalma bepárlás folyamán nagyrészt elbomlik, tehát a száraz maradék lényegében reextrahálódó ammóniumnitrátot tartalmaz. Az ammóniumnitrát mennyiségétől függően megváltoztatja az oldat fényelnyelését. Ezt a zavaró momentumot úgy küszöböltük ki, hogy a száraz maradék mennyiségéhez képest nagy mennyiségű ammóniumnitrátot adagoltunk a kolorimetriás méréshez előkészített oldathoz.

Kísérleteink alapján a meghatározást a következőképpen végezzük:

A tributilfoszfátos extrakciónál kapott száraz maradékot 15 ml alkohollal 25 ml-es mérőlombikba mossuk. A bepárló csészét végül

is 1 ml deszt.vizzel utána öblítjük. A mérőlombikba a következő reagensteket mérjük:

2 ml 0,1 n sósav, 0,5 ml 1,5 %-os komplexon III, 3 ml 50 %-os ammóniumnitrát, 1 ml 0,33 %-os alkoholos morin oldat. Ezután a mérőlombikot deszt.vizzel a jelig töltjük és az oldat extinkcióját Pulfrich fotométerrel 430 m μ -nál 5 cm-es küvettában mérjük. A fényelnyelés követi a Lambert-Beer törvényt.

2. Az urán meghatározása aktivált reakció segítségével [13]

A meghatározás elve: Az U/IV/-et a ferri ion csak erősen savas oldatban oxidálja U/VI/-á. Gyengén savas oldatban is megtörténik azonban a reakció, ha a ferri ion oxidációs potenciálját megnöveljük azáltal, hogy a reakcióban keletkezett Fe/II/-t valamilyen komplexképzővel, pl. α, α' -dipiridillel megkötjük. A keletkezett ferro-dipiridil vörös színű komplex fotometriásan mérhető és így érzékeny urán meghatározási módszer áll rendelkezésünkre. Az U/VI/ redukcióját kénsavas oldatban bizmutreduktorral végeztük. Megállapítottuk a redukció szempontjából optimális kénsav koncentrációt és az oxidáció, valamint a komplexképződés szempontjából optimális p_H-t.

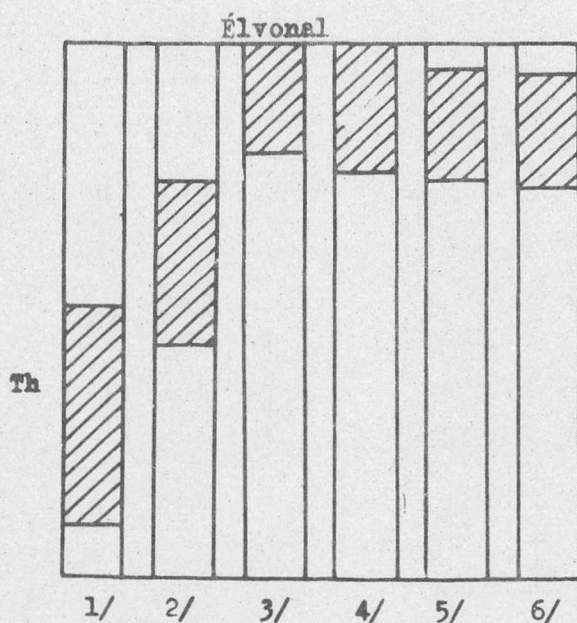
A meghatározást a következőképpen végeztük: A tributilfoszfátos extrakciónál kapott száraz maradékot 2 ml alkohollal, 3 ml vízzel és 2 ml 1:1 hígítású kénsavval oldottuk és a kapott oldatot összekeverés után bizmutreduktorra öntöttük. A redukált oldatot 25 ml-es mérőlombikban fogtuk fel. Megvártuk, míg az oldat a reduktoron annyira lecsorog, hogy mindössze néhány mm folyadék réteg marad a bizmut oszlop felett. Ekkor a bepárlócsészét kétszer 3 ml vízzel utána mostuk, mindig megvárva a folyadék lecsorgását. Ezután a reduktort vízzel addig mostuk, míg a 25 ml-es mérőlombik megtelt. A mérőlombikot összeráztuk és 2,5 ml-t kivettünk belőle egy másik mérőlombikba. Ezután a lombikba 0,5 ml Fe/III/ oldatot (250 μ g Fe/ml) és egy csepp 0,05 %-os alkoholos brómfenolkék indikátort adtunk, majd a p_H-t nátriumacetáttal 4,7-re állítottuk be. A mérőlombikba 0,5 ml 0,5 %-os vizes α, α' -dipiridilt mértünk és a lombikot deszt.vizzel a jelig töltöttük. Az oldat extinkcióját Pulfrich fotométerrel, 5 cm-es küvettában 500 m μ -nál mértük.

A tórium kromatográfiás elválasztása [14]

Kember [15] a tórium cellulóze oszlopon történő elválasztására éter-salétromsav oldószer elegyet ajánl. Ezt az oldószert mindenekelőtt papirkromatográfiás célokra próbáltuk alkalmazni, azt tapasztaltuk azonban, hogy a tórium az említett oldószerral csaknem az alapvonalától az élvonalig terjedő hosszú sávot képez. A tórium foltját - alizarinos indikálás után - közelebbről is megvizsgáltuk és úgy találtuk, hogy jól észrevehető szakadozottságot mutat, vagyis a sávban koncentráció maximumok és koncentráció minimumok láthatók. Régebbi munkánkban [16] rámutattunk arra, hogy a folt ilyen szakadozottsága, szétválása a vándoroltatáshoz felhasznált vizmentes oldószernek tulajdonítható és a folt szakadozottságát a különböző koncentrációjú zónák különböző sebességével magyaráztuk. Ez a sebességkülönbség ugyanis Freundlich típusu izoterma esetén oly nagy lehet, hogy a folt szakadozottságot mutat, sőt némely esetben több foltra válik szét [16].

A Kember által javasolt oldószert éppen az említett oknál fogva, papirkromatográfiás célokra nem tudtuk alkalmazni. A folt tömörsége azonban nagy mértékben megnőtt, ha az oldószer sav- és víztartalmát egyidejűleg megnöveltük. Az ilyen oldószerek készítése a víz éterben való korlátozott oldékonysága miatt egyszerű összekeverés útján nem sikerült. Kerülő utat alkalmaztunk tehát és a következőképpen jártunk el. 100 ml 4 n salétromsavat 100 ml éterrel rázogattunk, amikor is két fázist kaptunk, melyek közül a felhasznált organikus fázis a megoszlási egyensulynak megfelelő salétromsavat és vizet tartalmazott. Ezt a műveletet 100 ml 6-8-10-12 és 14 n salétromsavval is megismételtük és így növekvő salétromsav- és víztartalmu oldószerekhez jutottunk, melyeket egyenként felhasználtunk a tórium papirkromatográfiás vándoroltatásához. Eredményeinket az 1. ábra tartalmazza.

Az ábra alapján a víztartalom növekedtével a tórium foltja valóban tömörül. A víztartalom növekedtével a savtartalom is nő, ami szintén tömöríti a foltot, sőt a tórium R_f értékét is megnöveli olyannyira, hogy a tórium foltja a 3. oldószernél már az oldószerszéllel együtt halad. A 3. oldószernél 30 fémion R_f értéket vizsgáltuk meg és azt tapasztaltuk, hogy a legtöbb fémion az alapvonal közelében marad.



Oldószeres összetétele:

1/100 ml	4n HNO ₃	+ 100 ml éter,	éteres fázis	használható
2/100 "	6 n "	+ 100 "	"	"
3/100 "	8 n "	+ 100 "	"	"
4/100 "	10 n "	+ 100 "	"	"
5/100 "	12 n "	+ 100 "	"	"
6/100 "	14 n "	+ 100 "	"	"

1. ábra

A Kember által javasolt oldószerrel a tórium cellulóze oszlopon történő elválasztására is alkalmazni igyekeztünk, ahol az oszlopfolyamatot UX₁-el nyomjeleztük [17]. Ezek a vizsgálatok azt eredményezték, hogy a tórium utolsó részletei igen nehezen eluálhatók az oszlopból. Az oldószer sav- és vizes tartalmának növelésével azonban az elucióhoz szükséges oldószer térfogat lényegesen csökkenthető, vagyis itt is ugyanazokat az oldószeres alkalmaztuk, mint a papirkromatográfiás vizsgálatoknál. Eredményeinket az 1. táblázat tartalmazza.

Az 1. táblázat alapján megállapítható, hogy az oldószer vizes és savtartalmának növelésével az elucióhoz szükséges oldószer térfogat csökken és a 3. oldószerrel kb. 200 mg ThO₂ kioldása 100 ml oldószerrel már kvantitatív. Így tehát az új oldószerrel nem csak papirkromatográfiás célokra, hanem tóriumtartalmu ércminták kvantitatív meghatározására is alkalmazni tudtuk.

1. táblázat

Felfogott oldószer térf. ml	1	2	3	4
	oldószerek ThO ₂ tart. (g ThO ₂)			
30	0,0693	0,1320	0,1504	0,1132
30	0,0606	0,0734	0,0707	0,0845
40	0,0438	0,0196	0,0073	0,0199
50	0,0300	0,0020	∅	0,0042
50	0,0063	∅	∅	0,0006

Összesen: 0,2100 0,2270 0,2284 0,2224

Az oszlopra vitt anyagmennyiség: 0,2288 g ThO₂

Az oldószerek összetétele és száma megegyezik az 1. ábrán feltüntetett oldószerekével.

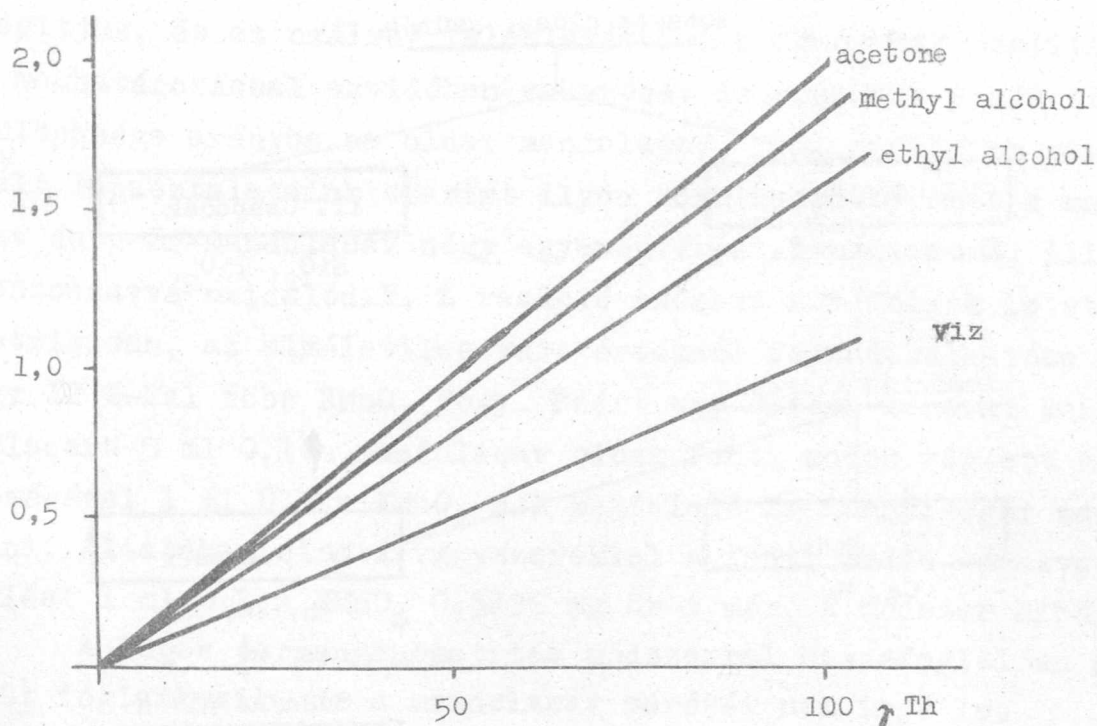
A tórium kolorimetriás meghatározása a toronos módszer fejlesztése útján [18]

Kismennyiségű tórium meghatározására az irodalomban ismerttetett toronos módszert [19,20] alkalmaztuk. A ferri ion zavaró hatása miatt azonban nem kaptunk egyértelmű eredményeket. A ferri vas redukcióját a szerzők hidroxilaminnal végzik és a redukció teljessé tételét CuCl₂-vel katalizálják [21]. Mi a redukciót aszkorbinsavval végeztük és így nagy mennyiségű ferri vas zavaró hatását is ki tudtuk küszöbölni.

Megvizsgáltuk néhány organikus oldószer (metilalkohol, etilalkohol, acetone) hatását a tórium toronos komplexeinek fényelnyelésére, és azt tapasztaltuk, hogy ezek az extinkciót növelik. Az organikus oldószerek extinkció növelő hatását a 2. ábra tartalmazza. Megfelelő mennyiségű acetone adagolásával pl. a módszer érzékenységét is csaknem kétszeresére sikerült megnövelni.

Megvizsgáltuk a tóriumérc feltárásának, oldásának optimális körülményeit és UX₁ nyomjelző alkalmazásával megállapítottuk, hogy a tórium a kívánt frakcióba kerül-e. Ennek alapján optimális

munkamenetet állapítottunk meg a tóriumérc feltárására és oldására (3. ábra).

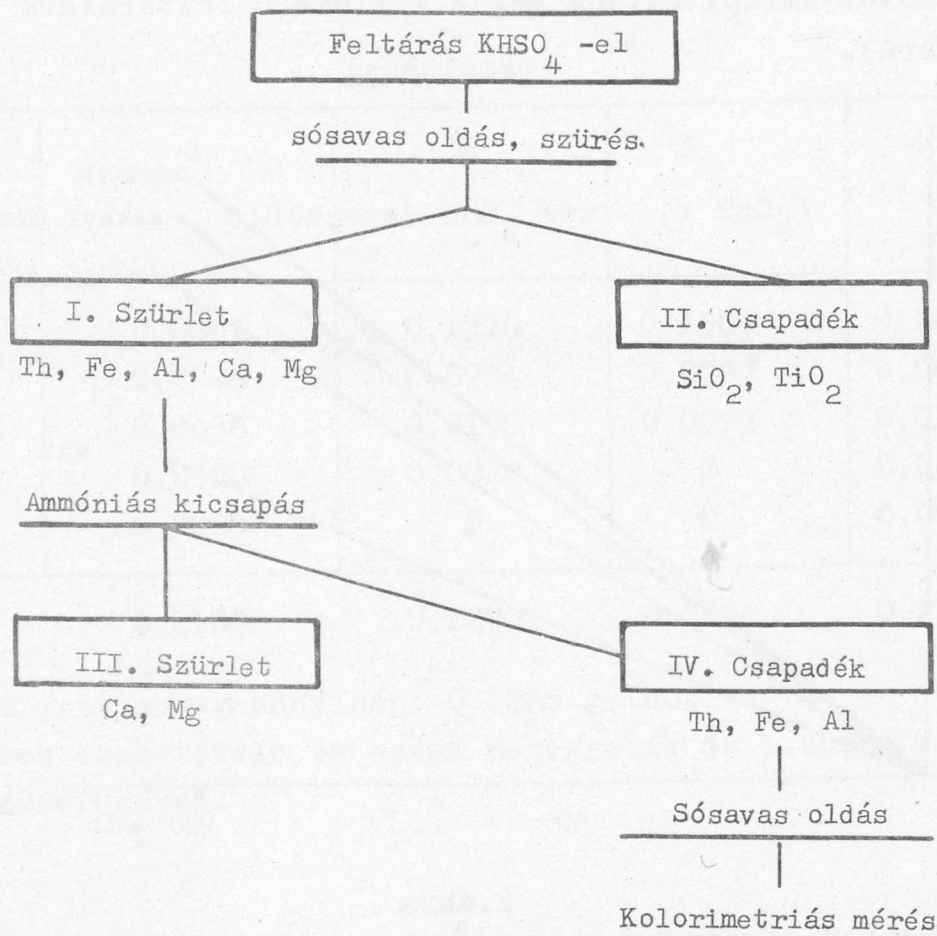


2. ábra

Az ábrán csillaggal jelöltük meg azokat a frakciókat, melyeknek aktivitását mértük. A méréseket csillám végablakos GM számlálócsővel végeztük és a mérésekhez annyi oldatot pároltunk be, hogy a szárazanyag önabszorpciója elhanyagolható volt. A II. és III. frakciók méréseink alapján inaktívnak mutatkoztak, míg az I. és IV. frakciókban 2 % hibán belül visszakaptuk a feltáráshoz bemért összes UX_1 aktivitását. A 2. ábrán feltüntetett analízismenet tehát a tórium meghatározása szempontjából kvantitatív eredményt szolgáltat.

Cirkonium térfogatos meghatározása

Ismeretes, hogy erősen savanyú közegből mandulasavval a cirkonium szelektíven és stöchiometrikus összetétellel leválasztható [22, 23, 24, 25]. A Zr meghatározása a szárított csapadék közvetlen, vagy ZrO_2 -vé való izzítását követő súlyszerinti mérésével történhet. Egyes szerzők a lecsapást csak a Zr elkülönítésére alkalmazták, meghatározása a szerves komponens elroncsolása



3. ábra

után térfogatos, vagy kolorimetriás módszerrel történt [26,27].

Célunk olyan Zr-meghatározás kidolgozása volt, melyben a mandulasavval (vagy halogénszármazékaival) történő lecsapásnak nemcsak szelektivitását használjuk ki, hanem a csapadék stöchiometrikus összetételét is. A kapott csapadékot oldottuk és oxidimetriás módszerekkel a Zr-hoz kötött mandulasavat mértük.

A meghatározás céljára lugos permanganometriás és a tömény kénsavas kromatometriás módszer bizonyult legalkalmasabbnak [28].

a/ Permanganometriás módszer

5-20 mg Zr-t tartalmazó oldatból leválasztott, szűrt, mosott és 120 C°-on szárított mandulasavas cirkonium csapadékot 20 ml meleg 25-30 %-os Na₂CO₃ oldattal 800 ml-es Erlenmeyer lombikba oldjuk a G4-es pórusú üvegszűrőről, 10 ml 23 súly%-os NaOH-t, 20,0 ml kb. 0,5 n KMnO₄ oldatot adunk hozzá. 10 perc múlva kb.

300 ml vízzel higitjuk, 25 ml 1+1 sulyarányban higitott kénsavat, majd 20,0 ml kb. 0,5 n oxálsav oldatot adunk hozzá, 60 C^o-ra melegítjük, és az oxálsav feleslegét 0,1 n KMnO₄-tal megtitráljuk. A meghatározással egyidőben vakpróbát is végzünk. A két titrálás különbsége arányos az oldat mandulasav, ill. cirkónium tartalmával. Tapasztalataink szerint ilyen körülmények között a mandulasav és p-Br-mandulasav négy egyenértékkel benzooesavvá, ill. p-Br-benzooesavvá oxidálódik. A reakció azonban nem folyik le stöchiometrikusan, az elméletileg várt értéknél reprodukálhatóan mintegy 12 %-kal több KMnO₄ fogy. Ezért egy mérési sorozat kezdetén célszerű 5 ml 0,1 n mandulasav oldat fenti módon végzett meghatározásával 1 ml 0,1 n KMnO₄-nak megfelelő Zr mennyiségét megállapítani. Általában tiszta vegyszerekkel a fenti módon végezve a titrálást 1 ml 0,1 n KMnO₄ 0,5136 mg Zr-t mér. A módszer hibája ± 1%.

A lugos permanganometriás módszerrel összefoglalóan H. Stamm [29] foglalkozik, de a mandulasav mérését nem írja le.

b/ Kromatometriás módszer

K₂Cr₂O₇-t kénsavas közegben szerves vegyületek széntartalmának meghatározására régen alkalmazzák. Főként a reakció során keletkező CO₂-t mérték, de a CrO₃ fölösleg visszatitrálása is használatos. Utóbbi esetben általában 1+1 térfogatarányban higitott kénsavas közegben végzik az oxidációt [30]. Tapasztalataink szerint a Na₂Cr₂O₇ vízfürdő hőmérsékletén 69-98 %-os kénsavas közegben 20 perc alatt 34 egyenértékkel széndioxiddá és vízzé oxidálja a mandulasavat. Légfürdőben 115 C^o-on ugyanennyi idő alatt a reakció még 1+1 térfogat arányban higitott kénsavas közegben is teljesen végbemegy.

0,1-5 mg Zr-t tartalmazó oldatból leválasztott mandulasavas Zr csapadékot szűrjük, mossuk, szárítjuk és cc. H₂SO₄-ben oldjuk. Az oldathoz fölöslegben vizes, vagy kénsavas 0,1 n Na₂Cr₂O₇ mérőoldatot adunk, a választott kénsavkoncentrációtól függően vízfürdőn, vagy légfürdőben 115 C^o-on 20 percig melegítjük. Lehülés után vízzel annyira higitjuk, hogy a kénsav koncentrációja legalább 2n legyen és ferroin indikátor mellett Fe/II/ mérőoldattal visszatitráljuk a Cr/VI/ feleslegét. 1 ml 0,1 n Na₂Cr₂O₇ 67,07 μ g Zr-t

mér. 1 mg-nál több Zr esetében a hiba $\pm 1\%$.

Az ismertetett két térfogatoss meghatározás előnye, hogy olyan vegyületek kis mennyiségének jelenlétében is elvégezhető, melyeket mikrogravimetriás mérés előtt feltétlenül el kell különíteni a Zr-től (pl. SiO_2 , Ta).

Cirkon fotometriás meghatározása [31]

A morint (3, 5, 7, 2', 4', - pentahidrozi-flavon) mintegy 20 éve használják Zr kvalitatív kimutatására [32] a Zr-morin komplex ultraibolya fényben fellépő intenzív zöld fluoreszcenciája alapján. E jelenséget a Zr fluorometriás meghatározására is felhasználták [33]. Vizsgálataink szerint az élénk sárga színű komplex 420-470 $\text{m}\mu$ közötti hullámhosszon alkalmas a Zr fotometriás meghatározására. Méréseink szerint a Zr-morin mólaránya a komplexben 1:1. A komplex látszólagos disszociációs állandója $K_d = 2,6 \cdot 10^{-5}$, moláris extinkciós koefficiense $\epsilon = 9000$ körüli érték. A reakció érzékenysége [34] $0,01 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

A módszerrel 0,1-30 μg Zr határozható meg ml-enként, 2 n HCl-es közegben, 25-70 térf.% etanol jelenlétében. A mérést számos kation, a F^- és foszfát ionok zavarják. Meghatározás céljára a Zr-t kísérő elemektől legcélszerűbb papirkromatográfiásan elválasztani.

I r o d a l o m

- [1] Ray S.Long, David A. Ellis Richard H. Bailes: Recovery of Uranium from Phosphates by Solvent Extraction. Proceedings of the I. International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy. Volume 8, p.77.
- [2] H.K.Jackson, G.S.Sadowski: Nucleonics 8. 22, /1955/.
- [3] Wilbur E. Kelly: Nucleonics 9. 68, /1955/.
- [4] Robert R.Grinstead, K.Glenn Show, Ray S.Long: Solvent Extraction of Uranium from Acid Leach Slurries and Solutions. Lásd 1/ Volume 8, p. 71.

- [5] A.T.Gresky: Solvent Extraction Separation of U^{233} and Thorium from Fission Products by Means of Tributyl Phosphate.
Lásd 1/ Volume 9. p. 505.
- [6] H.A.C.McKay: Tri-n butyl Phosphate as an Extracting Agent for the Nitrates of the Actinide Elements.
Lásd 1/ Volume 7 p. 314.
- [7] A.R.Eberle and M.W.Lerner: Analyt. Chem. 29. 1134, /1957/
- [8] D.C.Stewart and H.W.Crandall: J. Am. Chem. Soc. 73. 1377, /1951/
- [9] D.C.Stewart, W.C.Bentley: Science, 120. 50, /1954/
- [10] G.R.Price, R.J.Ferretti, S.Schwartz: Analyt. Chem. 25. 322, /1953/
- [11] Almássy Gy., Dezső I., F.Kovács E., Straub J.: Hidrológiai Közlöny.
- [12] Kiss A., Almássy Gy.: Magy. Kém. Folyóirat 64. 332, /1958/
- [13] Almássy Gy., Kiss A.: Magy. Kém. folyóirat /sajtó alatt/
- [14] Almássy Gy., Ördögh M., Hadobás B.: M.T.A.VII.Oszt.Közl. /sajtó alatt/
- [15] N.F.Kember: Analyst 77. 78, /1952/
- [16] Almássy Gy., Dezső I.: Magy.Kém. Folyóirat 62. 60, /1956/
N.Fuksz: Uszp.Him.p. 206. /1949/.
N.Sz.Nametkin, V.M.Rogyionov, N.N.Melnyikov: Szerves vegyületek reakciói és kutatási módszerei. Akadémiai Kiadó Budapest, 1954. 161.
- [17] Almássy Gy., Nagy G.: M.T.A.VII.Oszt.Közl./sajtó alatt/
- [18] Almássy Gy., Hadobás B.: M.T.A.VII.Oszt.Közl./sajtó alatt/
- [19] V.I.Kuznyecov: Zs. Anal. Him. 12. 5, /1957/
- [20] F.S.Grimaldi, M.H.Fletcher: Analyt.Chem. 28. 812, /1956/
- [21] M.H.Fletcher, F.S.Grimaldi and Lillie B.Jenkins: Analyt. Chem. 29. 963, /1957/
- [22] C.A.Kumins: Analyt.Chem. 19. 376, /1947/
- [23] G.Gavioli és E.Traldi: Metallurg. Ital. 42. 179, /1950/
- [24] A.A.Astanina és E.A.Ostroumov: Zs.Anal.Him. 6. 27, /1950/
- [25] R.B.Hahn és E.S.Baginsky: Anal.Chim.Acta 14. 45, /1956/
- [26] G.W.C.Millner és P.T.Phennah: Analyst 79. 475, /1954/
- [27] C.E.Bricker és G.R.Waterbury: Analyt.Chem. 29, 558, /1957/

- [28] Schneer A. és Hartmann H. Magy. Kém. Folyóirat 63. 295, /1957/
- [29] G.Jander: Neuere Massanalytische Methoden 107-118 old. Enke, Stuttgart 1956
- [30] Összefoglaló cikk: Z.anal.Chem. 76. 297, /1929/
- [31] Schneer A. és Halmos T.: Magy. Kém. Folyóirat /sajtó alatt/
- [32] H.Goto: Repts Tohoku Imp. Univ. 28. 287, /1940/
- [33] R.A.Geiger és E.E.Sandell: Anal.Chim. Acta 16. 346, /1957/
- [34] E.B.Sandell: Color. Det. Tr. Metals, Interscience Publ. New-York 1950.

KFKI Közlemények 6.évf. 4.szám, 1958.

MAGYARORSZÁGI URÁNÉRCEK KÉMIAI FELDOLGOZÁSÁVAL
KAPCSOLATOS KUTATÁSOK^{*}

Irta: Fodor Miklós, Földes Péter, Molnár Ferenc,
Stocker Lajos, Szabó Elek, Vigvári Mihály

Magkémiai Osztály

Összefoglalás

Ismertetjük a hazai uránércek szódás feltárásának általunk alkalmazott módszereit, különböző paraméterek befolyását a feltárás határfokára. Közöljük eredményeinket a szódás feltárás közbeni gyantázás hatására és szerepére vonatkozólag.

Vizsgálatokat végeztünk különböző minőségű ioncserélő gyantákon a feltárási és szintetikus uránoldatok uraniltrikarbonát komplexeinek megkötődésére vonatkozóan. Megvizsgáltuk a hazai ioncserélő gyanták kapacitását, a szóda koncentráció, urántartalom és a gyanta szemcseméret függvényében. A hazai ioncserélő gyanták stabilitását vizsgáltuk szintetikus és szűrt feltárási oldatok esetében. Kimértük a kosaras módszerrel dolgozó szakaszos ellenáramu rendszer paramétereit, megvizsgáltuk a fluidágyas ioncsere néhány hidrodinamikai és ionadszorpciós kérdését.

Ismeretes [1], hogy a Pécs környékén 1953-ban megkezdett geológiai kutatások eredményeképpen olyan urántartalmu kőzeteket fedeztek fel, amelyeket mind urántartalmuk, mind mennyiségük érdemessé tesz a nagyüzemi feldolgozásra. Az érc üledékes homokkő. A kvarc- és földpátszemeket összekötő szerves kötőanyag piritet, szénrészeket, finom eloszlású szurokércet és fekete porhoz hasonló uránkormot tartalmaz.

Két éve folytatunk vizsgálatokat a lelőhely érceiből való uránkinyerésre vonatkozólag. A munka elkezdésekor az uránérc fel-

^{*} Az 1958. évi genfi II. Nemzetközi Atomenergia Konferencián előadott előadás.

dolgozás néhány tudományos vonatkozása, a technológiai munkát előkészítő, alapkérdésével való foglalkozást tekintettük feladatunknak és nem tűztük ki célul, hogy ezt a hazai viszonylatban új, sokoldalú, technológiai feladatot teljesen megoldjuk.

Vizsgálatainkat az ércfeldolgozás fázisainak megfelelően két irányban folytattuk: egyrészt az ércfeltárás optimális körülményeit tanulmányoztuk, másrészt a feltárási oldatokból való uránki-nyerés lehetőségeit, különös tekintettel az ioncserélő gyanták alkalmazhatóságára.

Az alábbiakban a nátriumkarbonátos feldolgozás kutatási eredményeit ismertetjük.

1. Az uránérc feltárásának vizsgálata

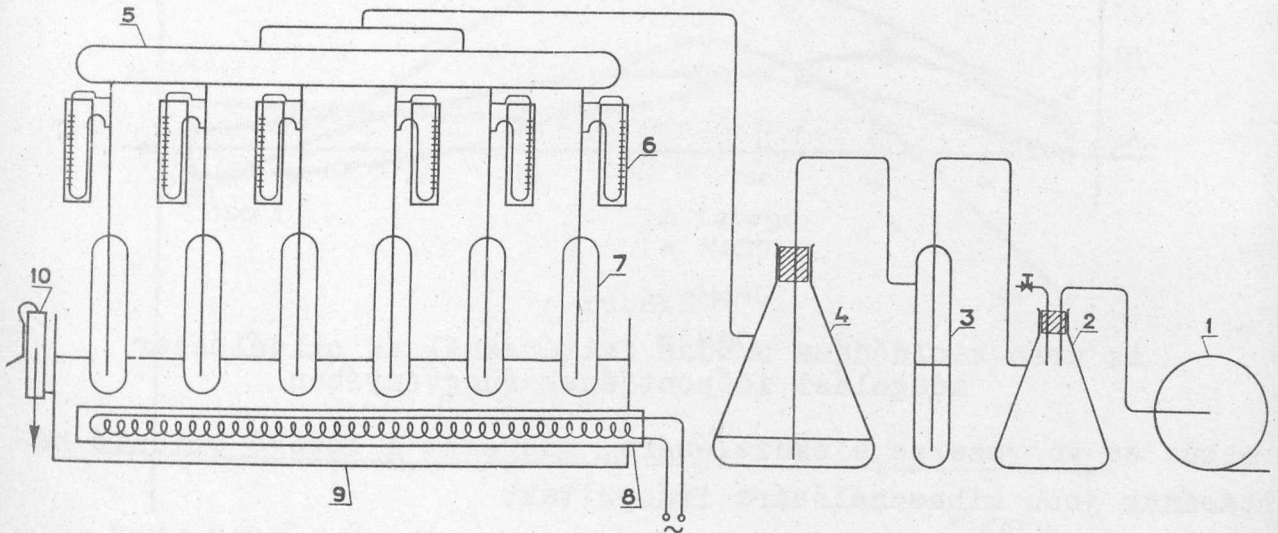
Az érc feltárásának vizsgálatára egyszerű készüléket állítottunk össze (1. ábra). Az ércmintát a feltáró oldattal együtt a hengeralaku üvegedénybe (7) helyezzük el. A feltárási zagy keverését levegő bevezetéssel végezzük (1-4). Az átáramló levegő sebességét reométerek mutatják (6). A feltáró edények elektromos fűtésű termosztátba merülnek (9).

A szódás feltárási paraméterek tanulmányozásakor megvizsgáltuk a karbonát koncentráció, a szemcseméret, a szilárd-folyadék arány, a hőmérséklet, az oxidálószer (KMnO_4) mennyiségének és adagolási időpontjának, a karbonát-hidrokarbonát arány, a feltárási idő és a levegő áramlási sebesség befolyását kioldás mértékére. Az általunk vizsgált ércek esetében a feltáró oldat összetétele 3-5 % Na_2CO_3 és 1-1,5 % NaHCO_3 volt. A hőmérséklet emelése kedvező a kihozatalra. 90 °C-on 75 perc alatt 90-92 %-os feltárás érhető el, ha a szemcseméret -70 mikron és a szilárd-folyadékarány 1:2.

Megfigyeltük, hogy a kioldásnál az oxidálóanyag behelyezésének időpontja is szerepet játszik (2. ábra). Eszerint a KMnO_4 -t legcélszerűbb a feltárás befejezése előtt 10 perccel bevinni, nyilván azért, mert a későbbi adagolás esetén a keverésre használt levegő már reagált a könnyebben oxidált anyagokkal. Ezért a kálium-permanganát teljes mennyisége a nehezebben oxidálható komponensekkel való reagálásra fordítható.

Néhány ércmintával vizsgálatokat végeztünk az ércben lévő urán eredeti "oxidáltsági fokára" vonatkozólag. Inert N_2 gáz-

áramban végeztük el a szódás feltárást és azt tapasztaltuk, hogy a mintáktól függően az ércben lévő urán 3-30 %-a oldódik így ki. Az ilyen körülmények mellett, valamint az előzőekben ismertetett KMnO_4 -el végzett feltárások eredményei között nem tapasztaltunk összefüggést.



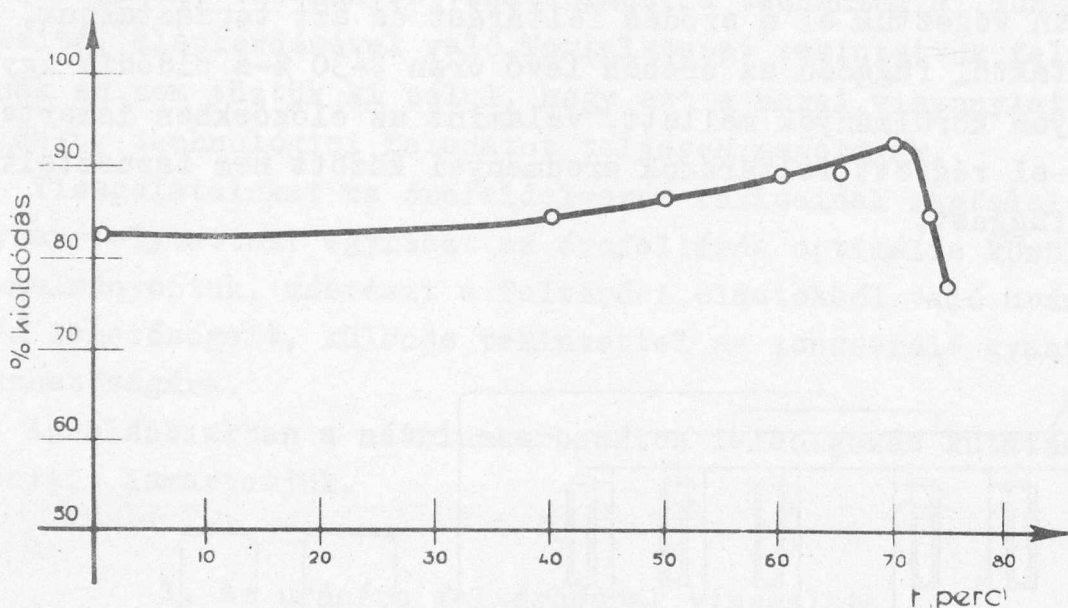
1. ábra

Feltáró készülék

1 vákuumszivattyú; 2 olajfogó és sebességszabályozó;
3 kénsavas gázmosó palack; 4 vizes mosó edény;
5 puffer-henger; 6 reometer; 7 feltáró edény;
8 elektromos fűtés; 9 vizfürdő; 10 tulfolyó.

Az urán kioldási hatásfokának növelésében jelentős a zagy mosásának körülménye. Megvizsgáltuk a feltárási zagy üleptéses és centrifugás mosásának viszonyait. Ennek során kimértük a zagy ülepedési sebességének a hőfok és a mosási szám növekedésével, valamint a zagysűrűség csökkenésével való növekedését. Megállapítottuk, hogy a centrifugás mosás 20-30 %-kal hatásosabb a szakaszosnál. Megfigyeltük, hogy az urán egy része a zagyon adszorbeálódik, ami csak intenzív mosással távolítható el; így pl. az ércre számított nyolcszoros mennyiségű mosóoldattal 6 %-kal több uránt mostunk ki, mint kétszeres mennyiségűvel.

Vizsgálatokat végeztünk a drága és devizát igénylő KMnO_4 helyettesítésére vonatkozóan; ezek egyrészt a kőzet előzetes ter-



2. ábra

Az urán kioldódása szódás feltárásnál az oxidálószer adagolási időpontjának függvényében

mikus és vegyszeres előkezelésére, másrészt a levegő oxidáló hatásának jobb kihasználására irányultak.

A termikus előkezelés során megvizsgáltuk a különböző minőségű és koncentrációjú oxidálóanyagokkal való termikus előkezelésnek a hatását a szódás feltárásra, az előkezelés hőfokának függvényében. Bizonyos anyagok, pl. a NaClO_3 , NaNO_3 , KNO_2 , a preparáló anyag nélkül végzett termikus előkezelésekkel összehasonlítva növelik a kihozataalt, különösen $300\text{ }^\circ\text{C}$ körüli előkezelés esetén (3. ábra).

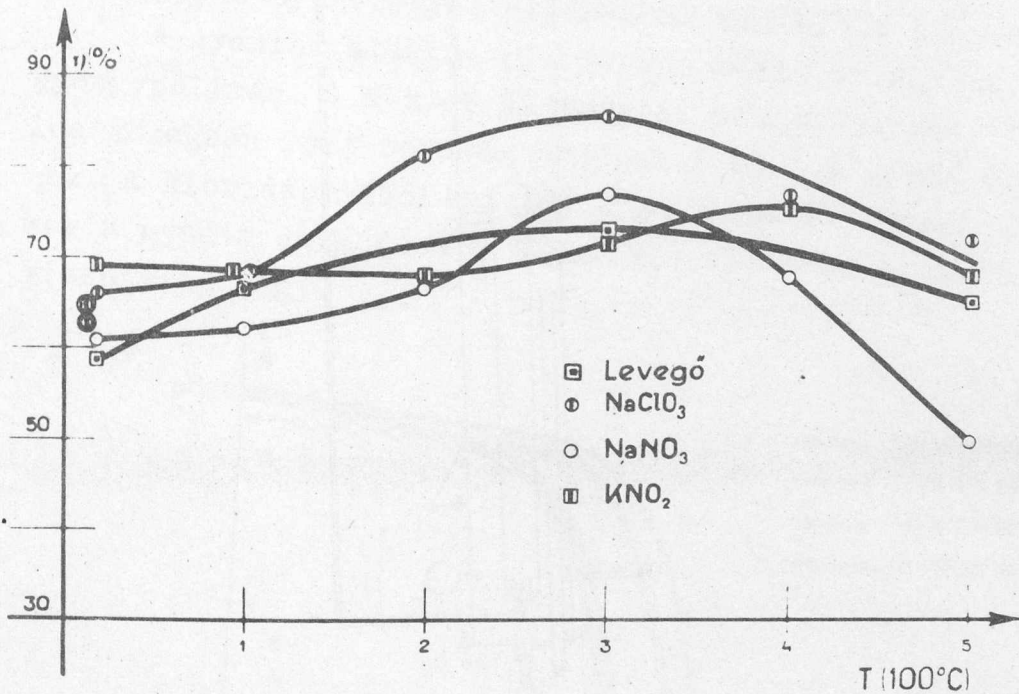
A levegő oxidáló hatása jobb kihasználásának tanulmányozására megfelelő kísérleti berendezést készítettünk; pacsukákban [2]-légkeverős tartályokban - végeztük a feltárásokat. A készülék vázlata a 4. ábrán látható.

A feltáró edény (1) közepén elhelyezett légsugárcső (2) és a légsugárcső alján bevezetett porlasztott levegő (3) biztosítja a feltárási zagy intenzív keverését.

Atmoszferikus és nyomás alatti kísérleteket végeztünk, melyek során azt tapasztaltuk, hogy pacsukában (légsugárcső behelyezésével) 4-5 %-kal jobb feltárási hatásfok érhető el, mint anélkül. 90° -on 4 órás kilugozási idővel egyes érceknél 85 %, másoknál 80 % az elérhető hatásfok. Az eddigi vizsgálatok azt mu-

tatták, hogy a nyomásnak 5 atm-ig és a hőmérsékletnek 105 C°-ig való növelése nem jár lényeges kihozatal növekedéssel.

A feltárási hatások néhány százalékkal megnövelhető még úgy is, ha feltáráás közben az urán egy részét ioncserélő gyantával

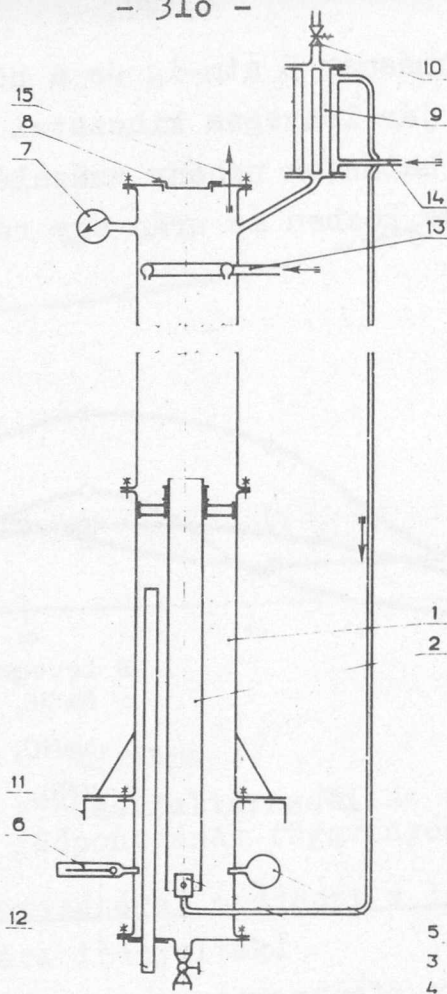


3. ábra

A szódás feltáráás hatásfoka termikus előkezelés hőfokának függvényében különböző oxidálóanyagokkal és azok nélkül

eltávolítjuk. Ioncsere nélkül és azzal végezve a kísérletet 6 óra alatt 71, illetve 84 %, 24 óra alatt pedig 79, illetve 88 % kihozatalt értünk el, bizonyos nehezen feltáráható érceknél 80 C°-on.

A feltárási hatások ilyen módon való megnövekedése szerintünk azzal függ össze, hogy az urán feltáráás egyensúlyi folyamata az urán komplexnek az ioncserélő által történő eltávolításával eltolódik és ezáltal az oldódás mértéke megnő.



4. ábra

Légkeverős feltáró berendezés /pacsuka/ vázlatja

1 pacsuka külső köpenye; 2 légsugárcső; 3 fuvófej;
4 leeresztő csap; 5 pneumatikus Hg-manométer; 6 hőfok-
szabályozó; 7 manométer; 8 pacsuka fedője; 9 hőcserélő;
10 lefújószelep; 11 állványzat; 12 elektromos fűtés;
13 vízbevezetés; 14 levegőbevezetés; 15 elektromos
szintjelző bevezetése

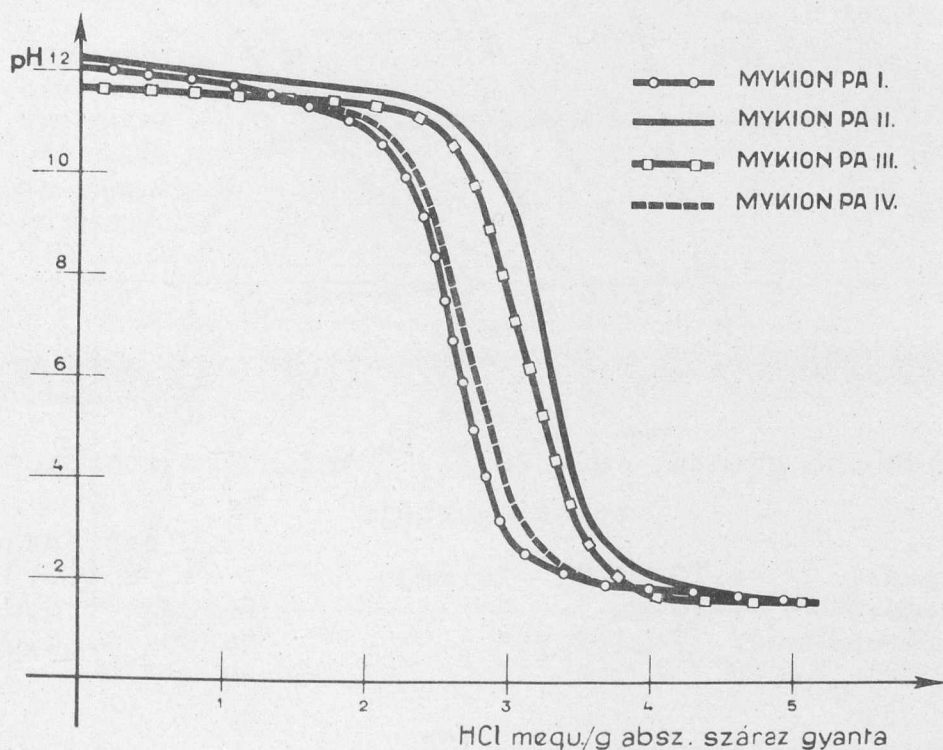
2. Az urán kinyerése szódás feltárási oldatból ioncse-
relő gyanták alkalmazásával

Megvizsgáltuk a hazai, erősen bázikus, kvaterner-ammonium típusu, Mykion PA jelzésű gyanták [3] felhasználásának lehetőségeit, az uránnak szódás feltárási oldatokból történő kinyerésére. Megvizsgáltuk a különböző porozitású és aktív csoportu (benzildimetiletanolammonium és benzildietiletanolammonium aktív csoportot tartalmazó) Mykion PA gyanták fizikai és kémiai tulajdonságait és alapvető kísérleteket végeztünk az oszlopos nyugvóágyas-, a

"resin in pulp" és a fluidizációs módszer alkalmazására vonatkozóan.

A gyanták nedves szita-analizisei azt mutatták, hogy a laboratóriumi termékek 60-80 %-a 0,32-0,63 mm szemcseméretű, ami az oszlopos nyugvóágyas eljárásnak megfelelő szemcseméret.

A gyanták alakját mikroszkóp alatt vizsgálva, azok 60-80 %-a gyöngypolimér. A Mykion PA gyanták piknométerben, vizes és benzo-los közegben mért sűrűség értékei 1,18-1,2 g/cm³ értékek közé esnek. A kloridformából az uraniltrikarbonát formába való átmenetkor a gyanta duzzadása 5 %-nál kisebb, azaz a térfogat állandóság viszonylag nagy.



5. ábra

A Mykion PA gyanták titrálási görbéje

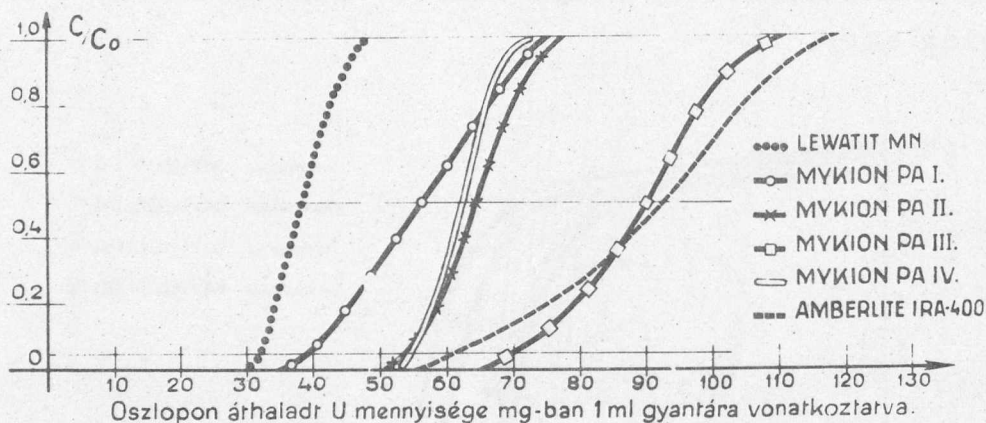
A titrálási görbék az erősen bázikus gyantákra jellemzőek és azt mutatják, hogy a vizsgálat tárgyát képező gyanták közel pH=12-ig használhatók.

A Mykion PA gyanták klorid kapacitás értékei, összehasonlítva az Amberlite IRA-400 prospektus adataival, azzal közel megegyező, 2,7-3,4 mekv/g száraz gyanta értékek.

Meghatároztuk az uraniltrikarbonát ionok áttörési és teli-

tési kapacitás értékeit a különböző gyantákon, azonos körülmények mellett. Az áttörést 5 %-os átfolyásnál adtuk meg [4].

A 6.ábrából azt láthatjuk, hogy a Mykion PA gyantáknak 40-71 mg U/ml gyanta áttörési és 57-90 mg U/ml gyanta telítési kapacitásuk van, míg azonos körülmények között, az Amberlite IRA-400 áttörési kapacitása 62 mg U/ml gyanta, telítési kapacitása pedig 94 mg U/ml gyanta. A kapacitás meghatározásoknál szintetikus uraniltrikarbonát oldatot használtunk.



6.ábra

Különböző gyanták $[UO_2/CO_3/3]^{4-}$ anionokra vonatkozó áttörési görbéje

Bemért gyanta: : 10 ml Cl^- formájú
 Oszlop átmérő : 10 mm
 Átfolyási sebesség: 7 ml/perc

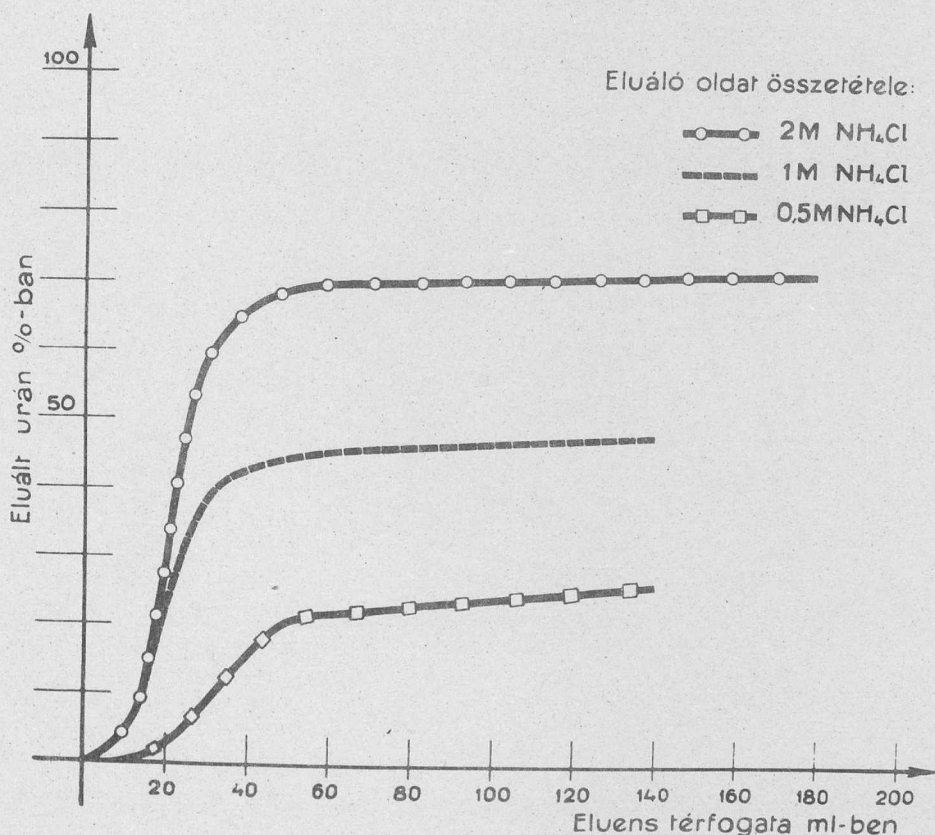
Oldat összetétele:
 U : 0,3 g/l
 Na_2CO_3 : 8,0 g/l
 $NaHCO_3$: 4,0 g/l

a/ Oszlopos nyugvóágyas eljárás

Kimértük az uraniltrikarbonát ionok megkötődését befolyásoló tényezőket. Azt tapasztaltuk, hogy a nátriumkarbonát-nátriumhidrokarbonát koncentráció növelésével a gyanta kapacitása csökken, mivel a feleslegben lévő karbonát-ionok az uraniltrikarbonát ionok helyét elfoglalják. Pl. a 4 g/l Na_2CO_3 és 2 g/l $NaHCO_3$ tartalmat 8 g/l Na_2CO_3 és 4 g/l $NaHCO_3$ -ra növelve a telítési kapacitás csökkenés 12 %-os; a 8 g/l Na_2CO_3 és 4 g/l $NaHCO_3$ tartalmat 16 g/l Na_2CO_3 és 8 g/l $NaHCO_3$ -ra növelve a telítési kapacitás csökkenés 6 %-os. Ezért a feltárás adott lehetőségein belül cél-

szerü minél kisebb koncentrációju nátriumkarbonát-nátriumhidrokarbonát oldatot használni.

Az oldat urán-koncentrációjának csökkenésével - alacsony koncentrációnál - a kapacitás csökken, ami azzal magyarázható, hogy hig oldatok esetében a gyanta egyensúlyi uránkoncentrációja kisebb. A 0,5 g/l uránkoncentrációt 0,3 g/l értékre lecsökkentve a telítési kapacitás számottevően nem csökken. Azonban 0,1 g/l



7. ábra

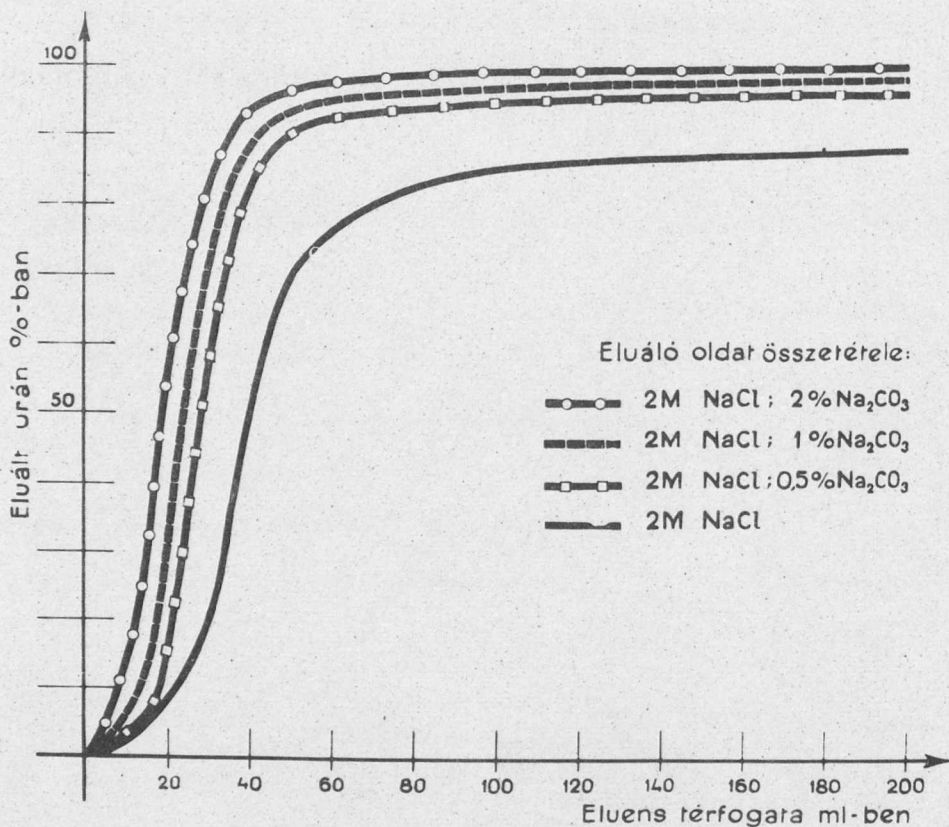
Az urán eluciója NH₄Cl-es eluálószer használata esetén.

Bemért gyanta : 10 ml Cl⁻ formáju
Gyantán lévő urán mennyisége: 745 mg
Oszlop átmérő : 10 mm
Átfolyási sebesség : 3 ml/perc

uránkoncentrációnál a telítési kapacitás a 0,5 g/l koncentrációju oldathoz viszonyítva már 13,6 %-kal csökken. Ebből következik, hogy nagyobb oszlop szükséges adott mennyiségű urán kinyeréséhez, hig oldatok esetén, mint koncentráltak esetében.

A szorpció mértéke függ még az áthaladó oldat lineáris sebességétől is. A kapacitás nagobbmértvű csökkenésének elkerülése,

és a szorpciós idő lerövidítésének kompromisszumából az adódik, hogy az optimális átfolyási sebesség kb. 8 m/ó.



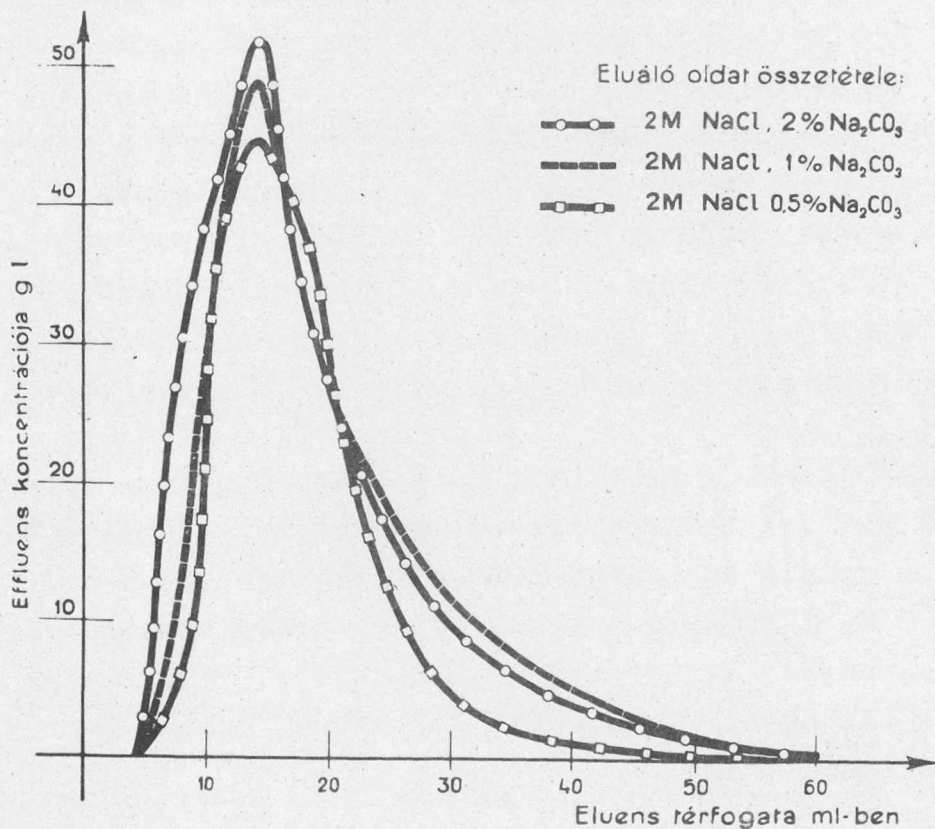
8. ábra

A Na_2CO_3 befolyása az urán eluciójára NaCl-os eluens használata esetén.

Bemért gyanta : 10 ml Cl^- formájú
Gyantán lévő urán mennyisége : 745 mg
Oszlop átmérő : 10 mm
Átfolyási sebesség : 3 ml/perc

Az elució tanulmányozásakor különböző koncentrációjú ammonium-klorid és nátriumklorid eluenseket alkalmaztunk. Azt tapasztaltuk, hogy ha az eluálószerhez kis mennyiségű nátriumkarbonátot is adunk, az elució hatásossága megnő. 1 % nátriumkarbonátot tartalmazó 2,0 N nátriumklorid eluálószer alkalmazva, az elució majdnem kvantitatív és a legdusabb oldatfrakciók urántartalma eléri a 40-50 g/l-t (7., 8. és 9. ábrák).

Az ioncserélő gyanták stabilitását és használhatóságának idejét, több kémiai és fizikai tényező befolyásolja. A gyanták cserélő kapacitását a gyantáról nehezen, vagy egyáltalában nem eluálható ionok, az ún. gyanta-mérgek csökkentik. Az erős oxidáló-



9. ábra

A Na₂CO₃ befolyása az urán eluciójára a NaCl-os eluens használata esetében

Bemért gyanta	: 10 ml Cl ⁻ formájú
Gyantán lévő urán mennyisége	: 745 mg
Oszlop átmérő	: 10 mm
Átfolyási sebesség	: 3 ml/perc

anyagok is károsak. Befolyásolják a kapacitást a kolloid anyagok és általában a mechanikus szennyeződések is, melyek a gyanta pórusokat eltömik és a gyanta szemeket koptatják. Az ioncserélő gyanták kopási vesztesége a duzzadásnak, valamint a gyanta-gyanta-felület és a gyanta berendezés dörzsölődésének tulajdonítható. Oszlopos nyugvóágyas eljárásnál viszonylag nagyobb igénybevételt csak a visszamosás jelent.

A gyanta stabilitásának vizsgálatát ún. öregbitő készüléken végeztük.

A két, 0,2 mm lyuk-átmérőjű műanyagszita közé elhelyezett gyantát 1000 szorbció-kimosás-deszorbció-kimosás ciklusnak vetettük alá. A berendezés automatikusan működik, a ciklusok száma a fordulatszám-lálón leolvasható. Az oldatok átengedése a megfelelő időben nyitó és záró, higanyal töltött üvegszelepeken keresztül történik. Egy teljes ciklus átfutási ideje 10 perc. A tápláló oldat 2 g/l uránt tartalmaz, uraniltrikarbonát formájában. Az eluens 10 %-os nátriumklorid oldat, mely nátriumkarbonátra nézve 0,5 %-os. Az öregítésre felhasznált gyanta térfogata 5 ml.

A kísérlet kezdetén 300, 600 és 1000 ciklus után megmértük a gyanta térfogatát klorid formában és uraniltrikarbonát formában, és meghatároztuk a gyanta kapacitását. A kísérlet elején és végén megmértük a szemcseméret eloszlását és a gyanta szárazanyag-tartalmát.

A kísérletekből megállapítható, hogy a gyanta térfogat- és sulykapacitása szintetikus oldatot használva, számottevően nem változik. A gyanta duzzadása 1000 ciklus után 8,5 %-os. A gyanta-veszteség 6 %. A gyöngypolimérek kopása szabálytalan alakúvá 6 %-os. Végeredményben az öregítő készülékbe helyezett 5 ml gyanta kapacitása 441 mg-ról lecsökkent 416 mg-ra, azaz 6 %-os uránmegkötési veszteség volt.

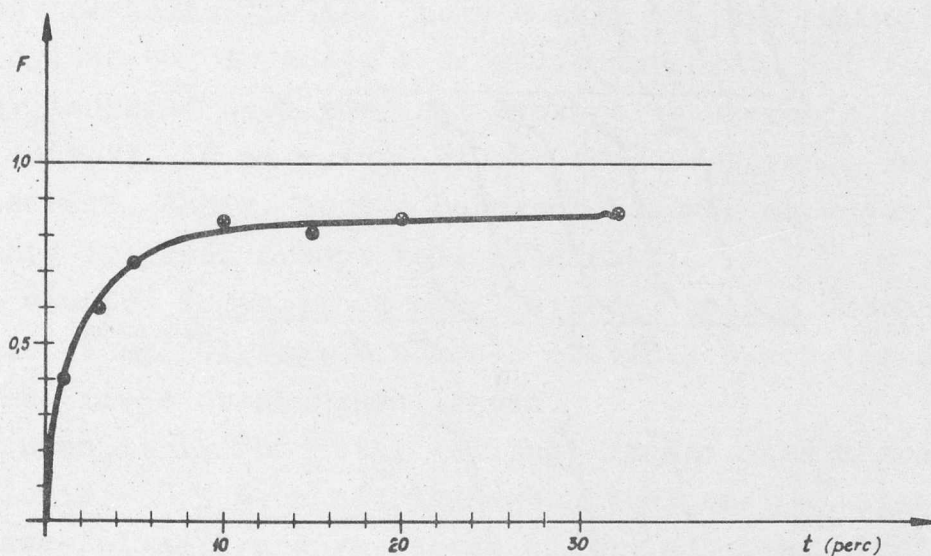
b/ RIP módszer

A RIP módszer előnyeit figyelembe véve elővizsgálatokat végeztünk hazai anioncserélő gyantákkal, az uránnak szódás feltárási zagyokból történő kinyerésére [5].

A módszer lényege az, hogy szitakosárba helyezett anioncserélő gyantát meritettünk közvetlenül a feltárási zagyba. A szita lehetővé teszi az oldat és a gyanta intenzív érintkezését, ugyanakkor biztosítja a gyantának a rendszerből történő egyszerű eltávolítását is.

Mivel az ioncsere egyensúlyra vezető folyamat, az oldat teljes urántartalma csak több lépcsős rendszerben nyerhető ki. Ilyen rendszerrel adott gyanta kapacitás esetén a folyamatot meghatározó változó tényezők az érintkezési idő, a betáplált oldat koncentrációja és a gyantafolyadék aránya stb.

Laboratóriumi kísérlet céljára egy 8 kosárból álló rendszert készítettünk, amely szakaszos ellenáramu művelet végrehajtását teszi lehetővé. Egy-egy lépcsőben 200 ml oldat térfogattal dolgoztunk. A kosarak vázát PVC csőből készítettük és szita-szövettel huzztuk be. A kosarakat egy motorral hajtott excenter segítségével 3 cm-es lökethosszal le-fel mozgattuk és így biztosítottuk a gyantaágy fellazulását.



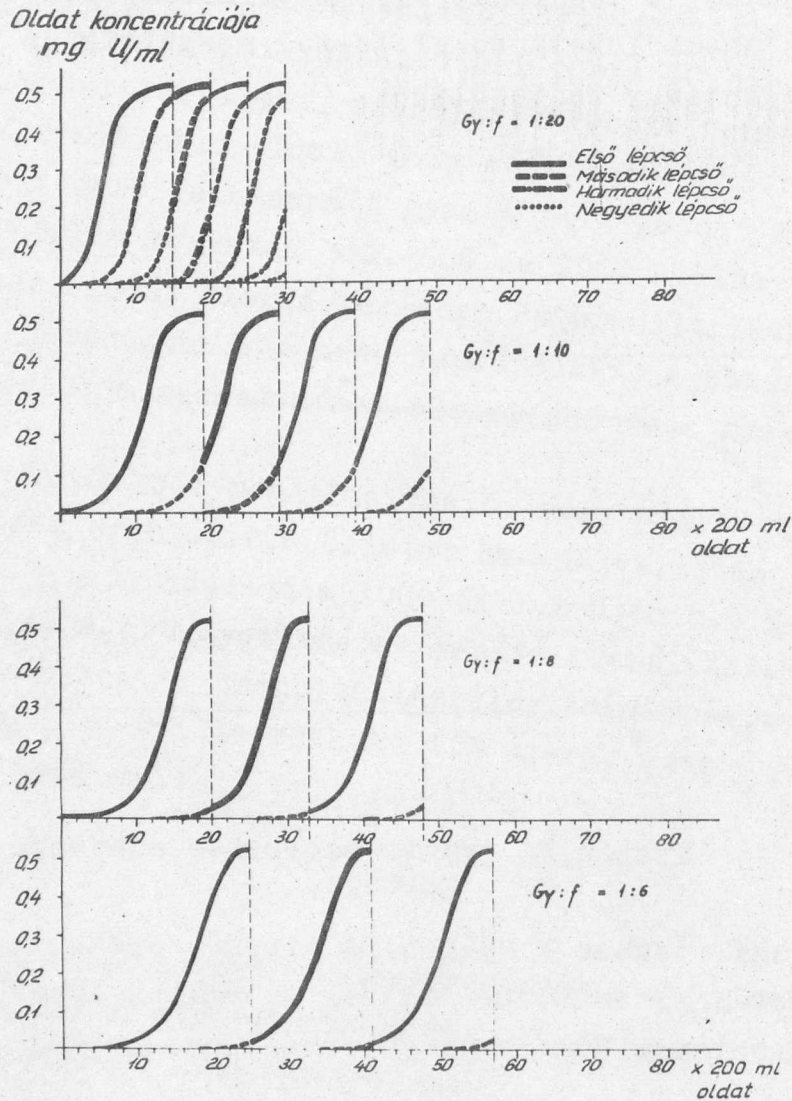
10. ábra

Mykion PA gyanta szorpciós sebesség görbéje.

A vizsgálatokhoz a Mykion PA típusu, erősen bázikus anioncserélő gyantát használtuk, melynek sztatikus kapacitása 53 mg U/ml. Előbb szintetikus, majd feltárási oldatokkal végeztük a méréseket.

A gyanta- és oldat-fázis optimális érintkezési idejének megállapítására kimértük a szorpció sebesség görbéket. A Mykion PA gyantára jellemző lefutású görbe a 10. ábrán látható. Az ordinátára $F = \frac{x_t}{x_\infty}$ mennyiséget vittük fel mint a két fázis érintkezési idejének a függvényét. Az egyenletben szereplő x_t és x_∞ az urán mennyisége a gyantán kísérlet kezdetétől számított "t" idő múlva és egyensúlyban. A görbe alakja független az oldat töménységétől, a gyantán már megkötött urán mennyiségétől, valamint az alkalmazott gyanta folyadék arányától. A szorpció sebességére vonatkozó vizsgálataink alapján 10 perc érintkezési időt alkalmaztunk egy-egy lépcsőben.

A vizsgált oldatok uránkoncentrációja 0,5 mg U/ml és a karbonát koncentráció kb. 1,5 % volt. Ilyen körülmények mellett megállapítottuk, hogy különböző gyantafolyadék arány esetén a gyanta hány lépésben telitődik. Megállapítottuk, hogy hány lép-



11. ábra

Több lépcsős rendszer áttörési görbéi különböző gyantafolyadék arány esetében.

csős rendszer szükséges különböző gyanta-folyadék arány esetén az oldat teljes elszegényesítéséhez (11. ábra). Az abszcisszán az átfolyt oldat térfogata, az ordinátán pedig az egyes lépcsőből távozó oldat uránkoncentrációja van feltüntetve. A rendszerben elsőnek kapcsolt kosár telitődése után azt eltávolítottuk és a rendszer végére egy uránmentes gyantát tartalmazó kosarat iktattunk be.

A rendszerben az elsőnek, a másikkal stb. kapcsolt kosárra vonatkozó görbe szakaszt az ábrán különbözőképpen rajzolt vonalakkal jelöltük. Mint látható, 1:20 gyanta-folyadék aránynál 5 lépcső, 1:10 aránynál 4 lépcső, 1:8 és 1:6 aránynál pedig 3 lépcső szükséges ahhoz, hogy a meddőként tárolt urán koncentrációja kisebb legyen a megengedett értéknél. A gyanta kihasználása szempontjából előnyösebb a nagyobb gyanta-folyadék arány, ezért a több lépcsős rendszer alkalmazása a legmegfelelőbb.

Megvizsgáltuk továbbá, hogy a zagy szilárd részeinek jelenléte mennyiben befolyásolja a szorbció mértékét. Azt tapasztaltuk, hogy lényeges befolyást nem gyakorol a szorbció kémiájára. Homoktalanított, 50 mikronnál kisebb szemcsenagyságu zagy vihető RIP ioncsereére. Ahhoz, hogy a rendszer homogén maradjon, legalább 1:5 szilárd-folyadék arányt kell alkalmazni.

Az eluciós folyamatnak alkalmazkodni kell a szorbciós rendszerhez is, hogy folyamatos működés esetén a szorbciós és az eluciós ciklus ideje összhangban legyen.

Az uraniltrikarbonáttal telített gyanta eluálására 10 %-os nátriumklorid + 0,5 %-os nátriumkarbonát eluenst alkalmaztunk, 1:20 gyanta-folyadék aránya esetén a gyanta teljes eluciója már 4 lépcsőben megtörténik. Az elvezetett oldat urántartalma 10 mg U/ml.

c/ Fluidágyas ioncsere

A fluidágyas módszer vizsgálata a feltárási zagyokból történő közvetlen uránkinyeréssel kapcsolatban vált szükségessé. Vizsgálataink a fluidágyas ioncsere műveletének elvi jellegű kísérleti kutatási eredményeiről számol be. Vizsgálatainkat két irányban folytattuk:

- I. hidrodinamikai mérések,
- II. ionadszorpciós mérések.

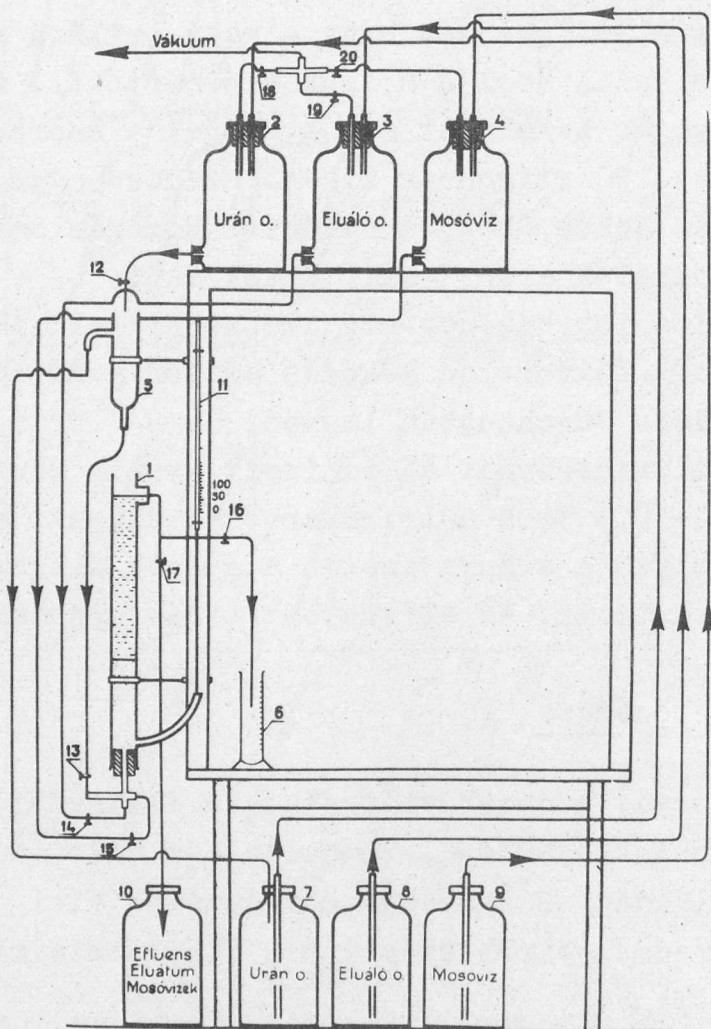
I. Hidrodinamikai mérések

A fluidtöltet nyomásesése független a fluidum szabadcsőkeresztmetszetre vonatkoztatott áramlási sebességétől és egyenlő a szilárd részecskékből álló "folyadék" hidrosztatikus nyomásával:

$$\Delta p_{fl} = H (1 - \varepsilon) (\gamma_1 - \gamma_2) \quad (1)$$

ahol

Δp_{fl}	- a fluidréteg nyomásesése	kg/m^2
H	- rétegmagasság	m
ε	- relatív hézagterefogat	
γ_1	- szilárd anyag fajsulya	kg/m^3
γ_2	- fluidum fajsulya	kg/m^3
$\gamma_1 - \gamma_2$	- archimedesi fajsul-	kg/m^3

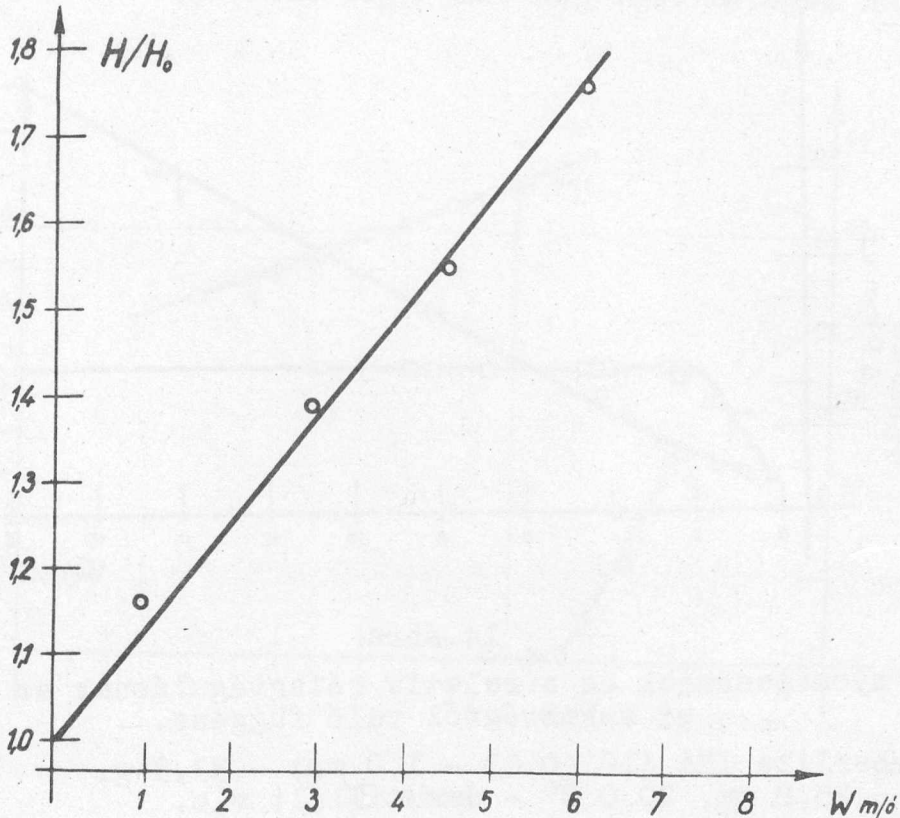


12. ábra

A kísérleti berendezés vázlatja.
1 üvegcső; 2-4 üvegballon; 5 túlfolyó edény; 6 mérőhenger; 7-10 üvegballon; 11 manométercső; 12-20 Mohr-szorító.

A kísérletek során mértük a fluidizáláshoz szükséges minimális áramlási sebességeket, a kihordás kezdetét jellemző maximális sebességet, továbbá a gyantaréteg kiterjedését és a nyomásesést az áramlási sebesség függvényében. A méréseket különböző minőségű és méretű ioncserélő gyantával, csap- és desztillált víz-

zel, 30 és 25,8 mm átmérőjű üvegcsövet alkalmazva végeztük. A sebesség meghatározásánál mérőhengert és stopperórát, a nyomásesés mérésnél pedig az oszlop alsó részéből kiágazó víztöltésű üvegmanométer csövet alkalmaztunk. A kísérleti berendezés a 12. ábrán látható.



13. ábra

A relativ rétegtágulásnak az áramlási sebességtől való függése.

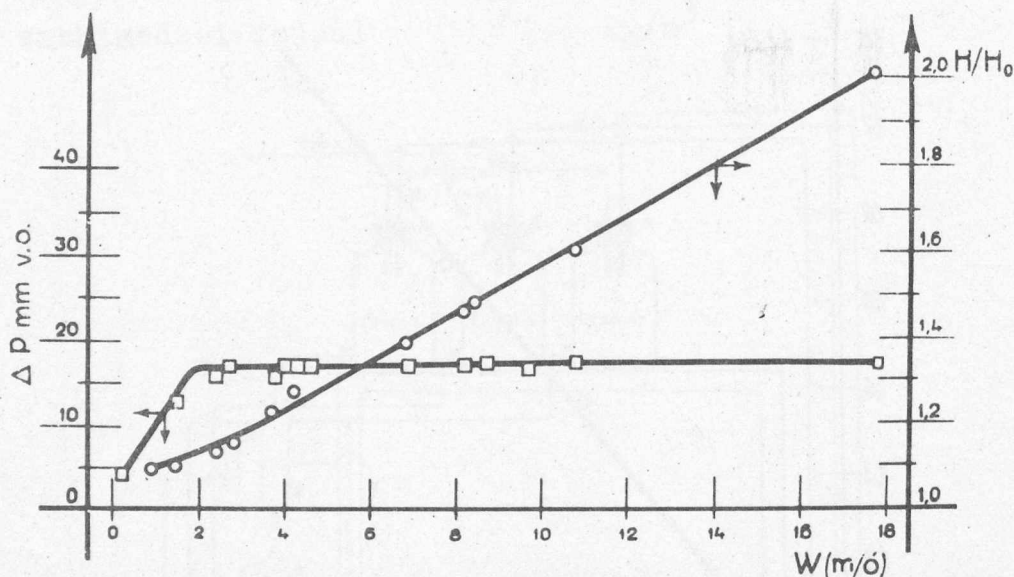
Mykion PA-II gyanta (0,32-0,63 mm) - 55,7 g,
D = 30 mm, 21 C° - csapviz.

A méréseket a gyantaréteg előzetes duzzasztása és fluidizáció útján történő fellazítása után végeztük. A különböző gyantákra vonatkozó rétegtágulási és nyomásesési adatokat a 13. és 14. ábrák szemléltetik.

Mint az eredmények mutatják, a fluidizálódás, a gyanta és a folyadék közötti viszonylag kis fajsúlykülönbség miatt már aránylag kis sebességeknél (2-3 m/ó) kezdődik. A kísérleti eredmények jó közelítő egyezést mutatnak az (1) egyenlettel. A tervezés-

nél tájékoztató adatként kb. 0,2-0,3 m vizoszlop/méter gyanta nyomáseséssel lehet számolni.

A relatív rétegtágulás független a H_0 -tól és a kezdeti fluidizálási sebességtől kb. 20 m/ó-ig terjedő intervallumban a sebesség lineáris függvénye. A H/H_0 értéke ugyanazon sebesség mellett



14. ábra

A nyomásesésnek és a relatív rétegtágulásnak az áramlási sebességtől való függése.

Amberlite IRA 410 (0,63 - 1,0 mm) - 33,3 g,
D = 25,8 mm, 20,0 C° - desztillált víz.

a kisebb méretű szemcséknél nagyobb. 0,6 mm-nél nagyobb átmérőjű gyanták esetében a gyakorlatilag alkalmazható sebesség intervallumban a relatív rétegtágulás nem haladja meg a 200 %-ot. Nagyobb sebességeknél (25-30 m/ó) megkezdődik a kisebb részecskék kihordása. A teljes kihordás 0,63-1,0 mm átmérőjű gyanta esetében kb. 50 m/ó sebességnél kezdődik.

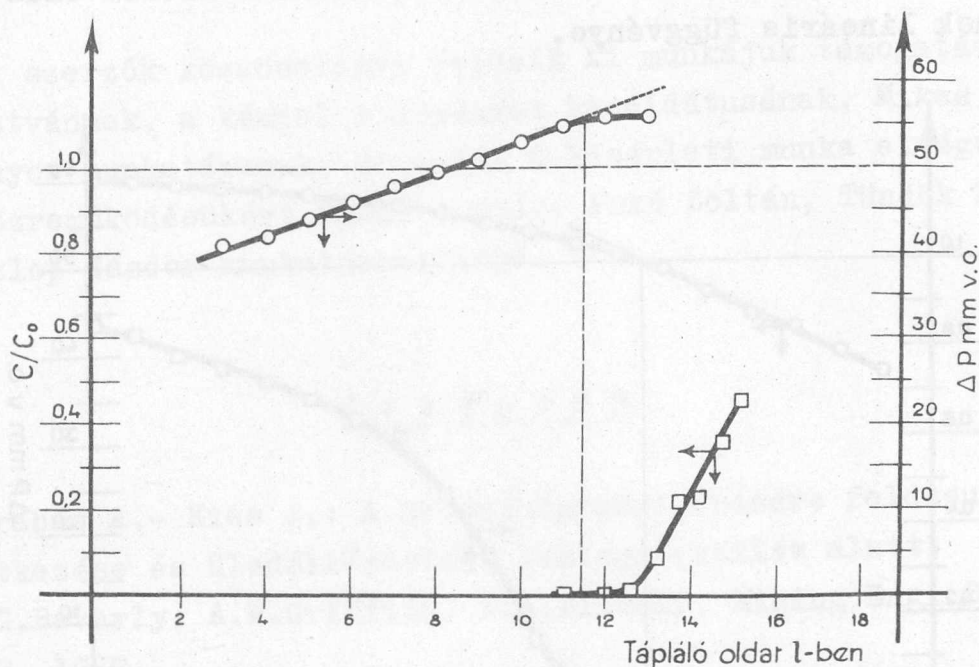
Az uránoldatokkal végzett nyomásesési és rétegtágulási mérésekre a szorbciós kísérletek tárgyalásánál térünk ki.

II. Ionadszorbción mérések

A kísérletek során meghatároztuk az Amberlite IRA 410 anioncserélő gyanta áttörési kapacitásait, felvettük az áttörési görbéket (az utolsó szakasz elhagyásával) különböző kezdeti rétegmagasság, gyantaátmérő, áramlási sebesség és szintetikus uránoldat koncentráció mellett. A kísérleteket 25,8 mm átmérőjű üveg-

csővel végeztük. A berendezés vázlatát a 12. ábra mutatja, a kísérleti eredményeket pedig a 15. és 16. ábrákon tüntettük fel.

Fluidágyas adszorpciónál a részecskék állandó keveredése miatt nem alakulhat ki éles szorpciós front; a "telített", "dolgozó" és az ioncserélésben még részt nem vett rétegek határa el-



15. ábra

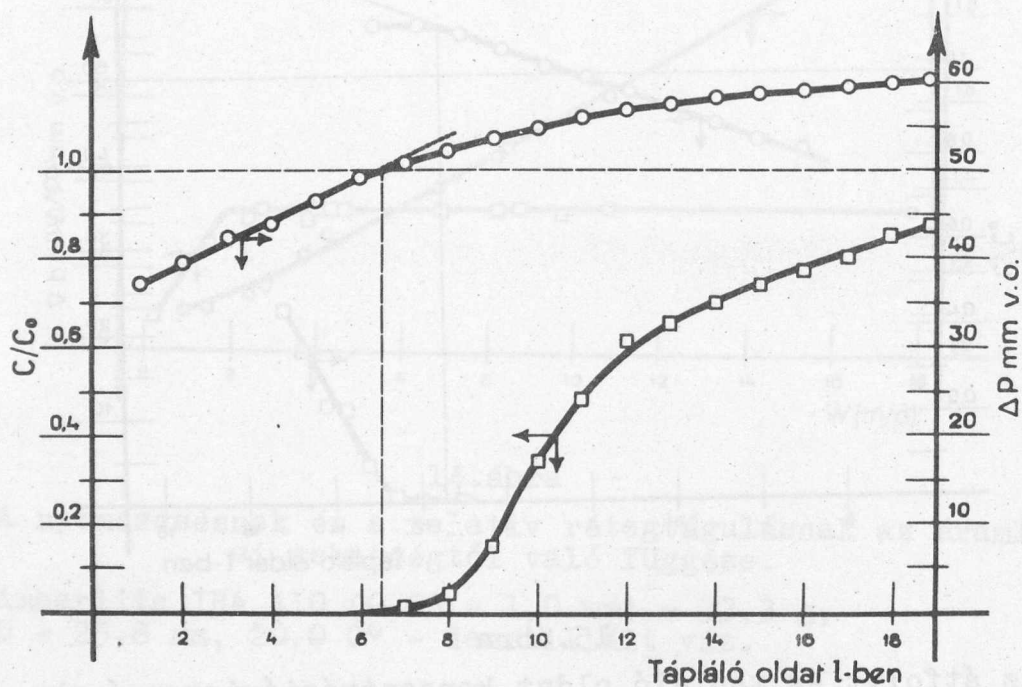
Az átfolyt és tápláló oldat koncentrációviszonyának, valamint a nyomásesésnek az átbocsátott oldat mennyiségétől való függése

Amberlite IRA-410 (0,63 - 1,00 mm), 62,74 g,
 $H_0 = 29,6$ cm, $c_0 = 0,91$ g U/l, $w = 4,95-5,75$ m/ó

mosódik. Ennek következtében, mint azt a kísérleti eredmények is bizonyítják, az áttörési kapacitás kisebb, az áttörési görbe pedig laposabb és elnyultabb, mint az azonos körülmények között dolgozó nyugvóágyas oszlop esetében. Tehát az áttörési kapacitás: telítési kapacitás viszony (más kifejezéssel áttörési hatásfok) kisebb mint állóágyas oszlopnál.

A különböző tényezők befolyása hasonló jellegű mint nyugvóágy esetében. Pl. a sebesség növelésével - egyéb azonos körülmények mellett - az áttörési kapacitás csökken, az áttörési görbe pedig laposabb, mint ez a 14. és 15. ábrák összehasonlításából kitűnik.

Az uránadszorpció folyamán a Cl^- és $[\text{UO}_2/\text{CO}_3/3]^{4-}$ ionok ekvivalens ionsúlyainak különbözősége miatt a gyanta fajsúlya és a nyomásesés nő. A lecserélt ionok tömege és a gyanta fajsúlyának növekedése az áttörésig arányos az átteresztett oldat mennyiséggel. Ebből következik, hogy áttörésig az (1) képletben szereplő fajsúlykülönbség és a nyomásesés az átteresztett oldat mennyiségének lineáris függvénye.



16. ábra

Az átfolyt és tápláló oldat koncentrációviszonyának, valamint a nyomásesésnek az átbocsátott oldat mennyiségétől való függése.

Amberlite IRA-410 (0,63 - 1,00 mm), 62,74 g,
 $H_0 = 29,6$ cm, $C_0 = 0,95$ g U/l, $w = 7,3-9,6$ m/ó.

Kísérleti eredményeink fentieket alátámasztják. A 16. és 17. ábrákból látható, hogy a Δp -liter oldat görbéknek az áttörésig terjedő szakasza egyenes. Áttörés után az átfolyó oldat urántartalma csak részben és egyre kisebb mértékben kötődik meg: a "nyomásesés-oldat liter" görbe lehajlik és a teljes kapacitás elérésekor vízszintesbe megy át. Tehát a " Δp -oldat liter" görbe iránytangense az ioncserélődési folyamat sebességével arányos.

Igy az áttörési pont fluidágyas adszorpció esetén meghatározható, ill. ellenőrizhető a nyomásesés mérése útján is. Általá-

ban ez a módszer a szükséges finomításokkal kiegészítve a szorpciós folyamat előrehaladásának vizsgálatára alkalmazható.

A gyantafajsúly növekedése, ill. sebesség csökkenése a rétegmagasság csökkenését is okozza az adszorpció folyamán.

Az ismertetett szintetikus oldatokkal végzett előkísérleteken kívül folyamatban vannak a feltárási zagyokkal végzett fluidágyas ioncserés vizsgálatok is.

A szerzők köszönetüket fejezik ki munkájuk támogatásáért Kiss Istvánnak, a kémiai tudományok kandidátusának, Mikes János tudományos munkatársnak, valamint a kísérleti munka elvégzésében való közreműködésükért Sárdi András, Pokó Zoltán, Tündök Sándor és Doszlop Sándor munkatársainknak.

I r o d a l o m

- [1] Barabás A.- Kiss J.: A mecsekhegységi uránérc feldusulás keletkezése és üledékkőzettani jellege (közlés alatt)
- [2] R.G.Beverly, A.W.Griffith, W.A.Milesap, Mining Eng. Sept. 982. 1957.
- [3] Mikes János: Magyar Kémikusok Lapja, XI, 8.sz. 1956.
- [4] Jagdich Shankar, D.V.Bhatnagger, T.K.S.Murthy, Proc. of the Int.Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 8, 64. 1956.
- [5] R.F.Hollis, C.K.Mc Arthur, Mining Eng. 443.April 1957.

A kiadásért felelős a Felsőoktatási Jegyzetellátó Vállalat igazgatója

Megrendelve: 1958-X.13 Pédányszám: 450
Készült Rotaprint eljárással az MSZ 5601-54 Á és MSZ 5602-55 Á szabványok
szerint 15.-(A/5) ív terjedelemben 40 ábrával

FELSŐOKTATÁSI JEGYZETELLÁTÓ VÁLLALAT

Felelős: Heitter Imre

Táskaszám: 2851