Vol. 18. No. 4-6. 1970

1971 FEB 2 3

KFKI

KÖZLEMÉNYEK

ОБЩЕНИЯ ЦЕНТРАЛЬНОГО ИНСТИТУТА ФИЗИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

PORTS OF THE CENTRAL RESEARCH INSTITUTE FOR PHYSICS

Szerkeszti: Ádám András
Редактор: А.Адам
Editor: A. Ádám

MTA KÖZPONTI FIZIKAI KUTATÓ INTÉZET KÖNYVTÁR- ÉS KIADÓI OSZTÁLYA
БИБЛИОТЕКА И ИЗДАТЕЛЬСКИЙ ОТДЕЛ
ЦЕНТРАЛЬНОГО ИНСТИТУТА ФИЗИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ ВЕНГЕРСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК
HUNGARIAN ACADEMY OF SCIENCES
CENTRAL RESEARCH INSTITUTE FOR PHYSICS LIBRARY AND DOCUMENTATION DEPARTMENT

BUDAPEST, 114. POB 49.

Technikai szerkesztő: Nagy Imréné
Megjelent: 1970. dec. 5.

Példányszám: 320
Rotaszám: 5337

A kiadásért felelős: Pál Lénárd igazgató

ÖSSZESITETT TARTALOMJEGYZÉK AZ 1970. ÉVBEN MEGJELENT SZÁMOKHOZ

Oldal

Balázs Árpád: Felületi záróréteges Si félvezető detektor előállitása 165

Balog János: Lásd Kósa Somogyi István

Bod László: A ZR-4 zéró teljesitményü reaktor fütőelemeiből kilépő hasadási termékek vizsgálata 39

Csath Géza: Hiradástechnikában alkalmazott vegyszerek szennyezéseinek meghatározása neutronaktivációs analizissel 23

Csath Géza: Tórium- és cirkóniumvegyületek szennyezéseinek meghatározása neutronaktivációs analizissel 139

Dézsi István: Lásd Kósa Somogyi István

Farkas Győző: Gigawattos és picosecundumos impulzussorozat előállitása modelocking üzemü laserrel és alkalmazása a másodrendü fotoeffektus vizsgálatára 55

Gróz Péter: Lásd Nagy G. Ágnes

Halkin V.A.: Lásd Nagy G. Ágnes

Horváth Zoltán: Lásd Farkas Győző

Jéki László: ^{232}Th, ^{233}U, ^{235}U, ^{238}U 14 MeV-es neutronok hatására bekövetkező hasadásánál keletkezett gamma-sugarak szögeloszlása 13

Király Péter: Kvantummechanikai többrészecske-rendszerek "vezérlése" egyrészecske potenciálokkal 125

Kluge Gyula: Lásd Jéki László

Kósa Somogyi István: Dimetil-anilinben oldott $FeCl_3$ Mössbauer-spektrumának vizsgálata gamma-besugárzás után 109

Krasznovszky Sándor: Multipól paraméterekre vonatkozó minnaert-féle feltételek 2-es spinü részecske esetén 3

Lajtai Albert: Lásd Jéki László

Oldal

J. Lichtwitz Vera: Lásd Krasznovszky Sándor

Nagy G. Ágnes: Hordozómentes $^{131}I^-$, $^{131}I^o$, $^{131}IO_3^-$ és $^{131}IO_4^-$ elválasztása papirkromatográfiás és papirelektrofrézises módszerrel 17

Nagy G. Ágnes: Szubmikrokoncentrációju jodát-oldatok radiolitikus redukciója savanyu és lugos közegben 115

Nagy G. Ágnes: Perasztatát-ionok előállitása és azonositása . . . 173

Németh András: Lásd Bod László

Németh Géza: Szférikus Bessel-függvények gyökeinek Csebisev-sorfejtése 85

Norszejev J.V.: Lásd Nagy G. Ágnes

Ördögh Mária: Lásd Csath Géza

Ördögh Mária: Lásd Csath Géza

T. Pósch Margit: Lásd Krasznovszky Sándor

Reznyikov Garij: Nagy felbontóképességü amplitudó-digitál átalakitó 69

Reznyikov Garij: Lásd Tarnay Katalin

Salamon Tamás: Boson-operátor azonosságok és a normál rendezési technika 31

Salamon Tamás: A Boson téroperátorok un. differenciál-operátor reprezentációja és ennek a normálrendezéssel való kapcsolata 99

Szabó Elek: Lásd Csath Géza

Szabó Elek: Lásd Csath Géza

Tarnay Katalin: Nagy felbontóképességü amplitudó-digitál átalakitó szabályozási rendszerének stabilitásvizsgálata szimulálással 79

Tarnay Katalin: Amplitudó-digitál átalakitás számlálási veszteségeinek számitógépes szimulálása 154

Tarnay Katalin: Lásd Reznyikov Garij

Tyung D.K. : Lásd Nagy G. Ágnes

KFKI
KÖZLEMÉNYEK

Vol. 18. No. 4-6. 1970.

T A R T A L O M

Oldal

1. Király Péter: Kvantummechanikai többrészecske-rendszerek "vezérlése" egyrészecske potenciálokkal 125

2. Csath Géza, Ördögh Mária, Szabó Elek: Tórium- és cirkóniumvegyületek szennyezéseinek meghatározása neutronaktivációs analizissel 139

3. Tarnay Katalin, Reznyikov Garij: Amplitudó-digitál átalakitás számlálási veszteségeinek számitógépes szimulálása 153

4. Balázs Árpád: Felületi záróréteges Si félvezető detektor előállitása 165

5. Nagy G. Ágnes, Gróz Péter, Halkin V.A., Do Kim Tyung, Norszejev J.V.: Perasztatát-ionok előállitása és azonositása 173

Р Е З Ю М Е

I. "Управление" квантово-механическими системами нескольких частиц с помощью одночастичных потенциалов

П. Кирай

В статье доказывается, что если разницы между собственными значениями (т.е. собственные частоты) системы N частиц различны или станут различными при одночастичных возмущениях, то исходя из данного состояния любое состояние системы может быть произвольно приближено управлением системой с помощью одночастичных потенциалов.

2. Определение примесей в соединениях тория и циркония методом нейтроно-активационного анализа

Г. Чат, М. Эрдег, Э. Сабо

Примеси меди, кадмия, марганца, кобальта, хрома и цинка в соединениях тория и циркония, применяемых в реакторной технике и технике связи были определены методом нейтроно-активационного анализа. Для предварительного отделения главного компонента перед облучением торий был удален методом бумажной хроматографии, затем после облучения экстракцией при помощи метил-изо-бутилового кетона и осаждением с купферроном. Цирконий был удален лишь после облучения осаждением в виде купферроната. После химического разделения примеси были измерены гамма-спектрометрически.

3. Имитация определения потерь в счете амплитудно-цифрового преобразования с помощью ЭВМ

К. Тарнаи, Г. Резников

В статье рассматриваются наиболее часто возникающие ошибки амплитудно-цифрового преобразования, приводятся классические зависимости для определения потерь в счете, возникающих в процессе преобразования. Подробно обсуждаются проблемы имитации определения потерь в счете на электронной вычислительной машине.

4. Изготовление кремниевого детектора с поверхностным запирающим слоем

А. Балаж

Была разработана надежная техника с средней эффективностью в 80% для производства полупроводниковых детекторов указанного выше типа. Измерены характеристические параметры детектора. Основные характеристики детектора соответствуют международному уровню и требованиям, выдвинутым перед ними опытами, проводимыми в Главотделе ядерной физики.

5. Получение и идентификация ионов перастатата

Агнеш Г. Надь, П. Гроз, В.А. Халкин, Д.К. Тюнг, Й.В. Норсеев

Получались ионы перастатата путем окисления с помощью дифторида ксенона, персульфата калия, гипохлорита калия и окислением на анодно поляризованной поверхности платины. Для идентификации образованных ионов перастатата был применен метод хроматографии на бумаге совместно с методом электрофореза на бумаге. В таблице приведены значения R_F астатида, элементарного астата, астатата и перастатата, а также соединений йода, свободного от носителя, соответствующих этим валентным состояниям астата, полученные при использовании этанола и гидроокиси аммония в качестве элюента.

Summaries

1. The "Steering" of Several Particle Systems by One Particle Potentials in Quantum Mechanics

P. Király

For a quantum mechanical N particle system the following is proved. If the differences of the energy eigenvalues /i.e. the eigenfrequencies/ are all different or can be made so by adding one-particle potentials to the Hamiltonian, then any state of the system can be arbitrarily well approximated from a given initial state by subjecting the system to time dependent one-particle potentials.

2. The Determination of Impurities in Thorium and Zirconium Compounds by Neutron Activation Analysis

G. Csath, M. Ördögh, E. Szabó

A neutron activation analytical method is deseribed for the determination of small concentrations of Cu, Ca, Mn, Co, Cr and Zn contaminants in thorium and zirconium compounds used in telecommunication and reactor techniques.

For thorium compounds paper chromatography is used for preirradiation separation of the matrix element and methyl-isobutylketone extraction and precipitation with cupferon for the isolation of the contaminants after irradiation. For zirconium only precipitation with cupferon is used after irradiation. Individual impurities are determined by gamma-spectrometry following chemical separation.

3. Computer Simulation of the Loss in Counts Due to Amplitude-Digital Conversion

K. Tarnay, G. Reznyikov

The errors most frequently encountered in amplitude analysis and the classical relationships for determining the loss in counts during conversion are discussed and a method is described for the computer simulation of these losses.

4. Production of Si Surface-Barrier Semiconductor Detectors

Á. Balázs

A reliable, and on average 80% efficient method has been developed for the production of surface barrier type Si semiconductor detectors. The measured values of the detector parameters are resistivity: 2000 Ωcm, sensitive surface: 2 cm^2 reverse current 0,4 μA/100 V, energy resolution 47 keV/4,7 MeV for α-particles.

5. Production and Identification of Perastatate Ions

Agnes G. Nagy, P. Gróz, V.A. Halkin, D.K. Tyung, J.V. Norseyev

Perastatate ions were produced from elemental astatine preparation by four methods of oxidation, namely, xenon difluoride, potassium persulphate, potassium hypochloride or anodically coupled Pt surface. The perastatate ions were identified by the use of a combined paper chromatographic and paper electrophoretic method. The R_F values with an ethanol and ammonium hydroxide eluent are listed for astatide, elemental astatine, astatate and perastatate along with those obtained for carrier free iodine in the comparable valence states.

KVANTUMMECHANIKAI TÖBBRÉSZECSKE-RENDSZEREK "VEZÉRLÉSE" EGYRÉSZECSKE POTENCIÁLOKKAL

Irta: Király Péter

Összefoglalás

Megmutatjuk, hogy ha a sajátenergiák különbségei /a sajátfrekvenciák/ különbözők, vagy egyrészecske-potenciálokkal különbözővé tehetők, akkor bármely N-részecske állapot bármely másikhoz tetszőlegesen közel vihető időben megfelelően változó egyrészecske-potenciálok segitségével.

Bevezetés

1. A kvantummechanikai állapotok időbeli változását a Schrödinger-egyenlet irja le:

$$\dot{\psi} = -\frac{i}{\hbar} H(t)\psi \quad . \qquad /1/$$

Ha megadjuk a $H(t)$ Hamilton operátort minden t időpillanatra, a ψ függvényt pedig a $t = 0$ időpillanatra, akkor /1/-ből kiszámitható ψ időbeli fejlődése.

A ψ függvény $t = 0$ időpontbeli értékét ψ_o-lal jelölve /1/ megoldása a következő alakban irható fel:

$$\psi(t) = U(t)\psi_o \quad , \qquad /2/$$

ahol $U(t)$ az $U(0) = I$ / I az egység-operátor/ kezdeti feltételnek és az

$$\dot{U}(t) = -\frac{i}{\hbar} H(t)U(t) \qquad /3/$$

differenciálegyenletnek eleget tevő unitér operátor. Az $U(t)$ operátor ismeretében /1/ megoldását minden lehetséges ψ_o kezdeti feltételre ismerjük, hiszen $U(t)$ független ψ_o-tól, s igy $\psi(t)$ /2/-ből tetszőleges ψ_o-ra megkapható.

Ha a $H(t)$ operátorok t különböző értékeire nem cserélhetők fel, akkor a /3/ egyenlet megoldása igen nehezen áttekinthető; bár az időrendezett szorzatok segitségével a formális megoldást fel tudjuk irni [1] , a valódi

megoldás csak közelitően, perturbációs sor segitségével számolható. Igen egyszerüvé válik azonban /3/ megoldása, ha a H Hamilton-operátor nem függ az időtől; ekkor

$$U(t) = e^{-\frac{i}{\hbar} Ht} . \qquad /4/$$

Az állapot /4/-nek megfelelő fejlődését a rendszer állandó környezetben végzett, "spontán" mozgásának tekinthetjük. A továbbiakban a környezet hatását két részre fogjuk szétválasztani: egy állandó részre, amelynek hatására a rendszer spontán mozgást végez, s egy időben változó részre, amelynek változását mi irjuk elő; e második rész segitségével kvantummechanikai rendszerünk mozgását vezérelni tudjuk.

E dolgozatban azt a kérdést fogjuk megvizsgálni, hogy mennyire változtathatjuk "szabadon" egy több részecskéből álló kvantummechanikai rendszer állapotát időben változó egyrészecske-potenciálok segitségével. Pontosabban a feladat annak eldöntése, hogy rendszerünket adott állapotából bármely más állapotba /ill. annak tetszőleges kis környezetébe/ át tudjuk-e vinni azáltal, hogy időben megfelelően változó egyrészecske-potenciálfüggvényeknek vetjük alá.

Az itt vázolt kérdést Jánossy Lajos vetette fel, egy a kvantummechanikai soktestproblémával foglalkozó dolgozatában [2]. A kérdés közvetlen matematikai érdekességén tulmenően mind a kvantummechanika, mind a statisztikus mechanika szempontjából jelentős.

Egyszerüség kedvéért feltételezzük, hogy többrészecske-rendszerünkben a részecskék mind különbözők, s mindegyik részecskére külön-külön tudunk hatni változó potenciáljainkkal. Ha a részecskék azonosak, akkor a rendszer állapotfüggvénye az egyes részecskék változóiban szimmetrikus vagy antiszimmetrikus, s mivel minden részecskére ugyanaz a potenciálfüggvény hat, e tulajdonság meg is marad. Igy a rendszer állapotát csak szimmetrikus, ill. antiszimmetrikus végállapotokba tudjuk átvinni, de hogy bármely ilyen állapotot valóban el tudunk-e érni, vagy meg tudunk-e közeliteni, az a fenti feladat megoldásával eldönthető.

2. Legyen rendszerünk Hamilton-operátora a következő alaku:

$$H(t) = H_o + \sum_{\nu=1}^{N} V_\nu (\underline{r}_\nu, t), \qquad /5/$$

ahol

$$H_o = \sum_{\nu=1}^{N} \left(- \frac{\hbar^2}{2m_\nu} \Delta_\nu + W_\nu(\underline{r}_\nu) \right) + \sum_{\nu \neq \mu} K_{\nu\mu}(\underline{r}_\nu - \underline{r}_\mu) . \qquad /6/$$

Itt Δ_ν a ν-edik részecske koordinátaváltozóinak megfelelő Laplace-operátor, $W_\nu(\underline{r}_\nu)$ a ν-edik részecske potenciális energiája az állandó erőtérben, $K_{\nu\mu}(\underline{r}_\nu - \underline{r}_\mu)$ pedig a ν-edik és a μ-edik részecske közötti kölcsönhatási energia.

Legyen a rendszer kezdeti állapota $\psi_o(\underline{\mathfrak{r}})$. Feladatunk az, hogy ezt a $V_\nu(\underline{r}_\nu, t)$ függvények megfelelő választásával egy adott $\Psi(\underline{\mathfrak{r}})$ állapotba vigyük át /$\underline{\mathfrak{r}}$ az $\underline{r}_1$, $\underline{r}_2$,...$\underline{r}_N$ vektorváltozók egyesitése, vagyis egy 3N-dimenizós vektor/. Pontosabban, olyan $\psi(\underline{\mathfrak{r}})$ állapotfüggvényhez akarunk eljutni, amelyre

$$\delta = \| \psi - \Psi \| \equiv \sqrt{\int | \psi(\underline{\mathfrak{r}}) - \Psi(\underline{\mathfrak{r}}) |^2 d\underline{\mathfrak{r}}} < \varepsilon \quad , \qquad /7/$$

ahol $\varepsilon > 0$ tetszőlegesen előirt kis szám. /Tulajdonképpen amiatt, hogy az állapotok csak egy $e^{i\phi}$ fázisszorzó erejéig vannak meghatározva, a δ távolságot a kifejezés ϕ szerinti minimumával is definiálhatnánk, de a két definició közti eltérésnek a továbbiakban nem lesz lényeges szerepe./

Egy 3N-változós, komplex értékü függvényt akarunk tehát tetszőleges pontossággal megközeliteni N darab 4-változós, valós értékü függvény segitségével, a Schrödinger-egyenlet felhasználásával. Hogy ez lehetséges-e, az távolról sem magától értetődő.

3. Felvetődhet az az ötlet, hogy a $V_\nu(\underline{r}_\nu)$ függvényeket minden pillanatban válasszuk meg ugy, hogy a δ távolság állandóan a lehető leggyorsabban csökkenjen, s az eljárást mindaddig folytassuk, mig végül a /7/ egyenlőtlenség már teljesül.

Az /1/ és /5/ egyenlet felhasználásával az állapotfüggvény dt idő alatti megváltozása

$$d\,\psi(\underline{\mathfrak{r}}) = -\frac{i}{\hbar} H_o \psi(\underline{\mathfrak{r}})\,dt - \frac{i}{\hbar} \sum_{\nu=1}^{N} V_\nu(\underline{r}_\nu, t)\,\psi(\underline{\mathfrak{r}})\,dt \quad . \qquad /8/$$

Mivel a δ távolságot a lehető leggyorsabban akarjuk csökkenteni, a V_ν függvényeket "igen nagynak" választjuk; ekkor /8/-ban az első tag a másodikhoz képest /legalábbis az $\underline{\mathfrak{r}}$ tér igen kis tartományától eltekintve/ elhanyagolható. Vizsgáljuk meg a Δt idő után kapott állapotot, ha 0 és Δt között V_ν állandó. Ekkor /8/-ból és a $\psi(\underline{\mathfrak{r}},0) = \psi_o(\underline{\mathfrak{r}})$ kezdőfeltételből

$$\psi(\underline{\mathfrak{r}}, \Delta t) = e^{-\frac{i}{\hbar} \sum_\nu V_\nu(\underline{r}_\nu)\Delta t}\, \psi_o(\underline{\mathfrak{r}}) \quad . \qquad /9/$$

/Ha O és Δt között V_ν változik, /9/-ben $V_\nu \Delta t$ helyett $\int_0^{\Delta t} V_\nu \, dt$ lép fel; mivel a $V_\nu(\underline{r}_\nu)$ függvények tetszőlegesek, az igy kapott $\psi(\underline{\mathfrak{r}}, \Delta t)$ függvény /9/-nél nem általánosabb/.

Próbáljuk a $\vartheta_\nu(\underline{r}_\nu) = V_\nu(\underline{r}_\nu)\Delta t$ potenciálimpulzusokat ugy megválasztani, hogy a $\psi(\underline{\mathfrak{r}})$ állapotfüggvényhez a lehető legközelebb jussunk. A

$$\psi^*(\underline{\mathfrak{r}})\,\Psi(\underline{\mathfrak{r}}) = e^{i\vartheta(\underline{\mathfrak{r}})}\,\left|\,\psi^*(\underline{\mathfrak{r}})\,\Psi(\underline{\mathfrak{r}})\right|$$

jelölést bevezetve, annak feltételére, hogy a δ távolságot a fenti módszerrel tovább már ne lehessen csökkenteni, a következőt kapjuk:

$$\int \sin\left[\vartheta(\underline{\mathfrak{r}}) + \sum_{\nu=1}^{N} \vartheta_\nu(\underline{r}_\nu)\right] \left|\,\psi^*(\underline{\mathfrak{r}})\,\Psi(\underline{\mathfrak{r}})\,\right| d\underline{r}_1\, d\underline{r}_2 \ldots d\underline{r}_{i-1}\, d\underline{r}_{i+1} \ldots d\underline{r}_N = 0, \qquad /10/$$

ahol tehát az i-edik helyvektorra nem integrálunk /i = 1,2,...,N/. Mivel /10/ N darab 3-változós függvény eltünését irja elő, kielégithető a szintén N darab 3-változós $\vartheta_\nu(\underline{r}_\nu)$ függvény megfelelő választásával. Egyébként nyilvánvaló, hogy a /9/ állapotfüggvény általában nem közelitheti meg tetszőlegesen Ψ-t, hiszen $\psi_o(\underline{\mathfrak{r}})$ szorzója egységnyi abszolut értékü, s igy csak a fázisokat változtatja, az abszolut értéket nem.

A "lehető leggyorsabb közelitéssel" tehát mindig eljutunk egy /10/-nek megfelelő állapotba, amelyből már nem juthatunk közelebb Ψ-hez "erőszakkal", vagyis anélkül, hogy megvárnánk, mig rendszerünk /8/ első tagjának hatására magától tovább fejlődik. A spontán fejlődés viszont állapotfüggvényünket vagy közelebb viszi Ψ-hez, vagy ismét eltávolitja attól; általános szabályt itt nem lehet adni. Ha ugyanis feladatunkkal együtt a "konjugált feladatot" is megvizsgáljuk /amelyben az a cél, hogy ψ_o^*-ból Ψ^*-ba vigyük át az állapotfüggvényt/, azt kapjuk, hogy ha eredeti feladatunkban a spontán fejlődés közeliti a célhoz állapotfüggvényünket, akkor a konjugált feladatban távolitja, és megforditva. Belátható, hogy egyetlen potenciálimpulzussal az sem érhető el, hogy $\psi_o(\underline{\mathfrak{r}})$ idővel spontán fejlődése során az előirt Ψ állapotba, vagy ahhoz tetszőlegesen közeli állapotba fejlődjön. Igy egyetlen erőszakos "vezérléssel" az állapotot nem tudjuk a kivánt állapothoz tetszőlegesen közel vinni, s azt sem tudjuk elérni, hogy állapotunk a vezérlés után magától a kivánt állapot közelébe fejlődjön. Kérdés, nem tudunk-e többet elérni, ha az állapot spontán fejlődését figyelemmel kisérve a megfelelő pillanatokban adott kis "lökésekkel" próbáljuk azt a cél felé irányitani.

4. Foglalkozzunk először a spontán fejlődéssel. Az állandó H_o Hamilton-operátornak megfelelő fejlesztő operátort $\phi(t)$-vel jelölve,

/4/ szerint

$$\phi(t) = e^{-\frac{i}{\hbar} H_o t} . \qquad /11/$$

Válasszuk bázisként a H_o operátor sajátfüggvényeit és általánositott sajátfüggvényeit; ekkor $\phi(t)$ reprezentánsa diagonális mátrix, s a ψ függvény fejlődésére a következőt kapjuk:

$$\psi(\underline{r}, t) = \sum_k c_k e^{-\frac{i}{\hbar} E_k t} \varphi_k(\underline{r}) + \int c(E) e^{-\frac{i}{\hbar} Et} \varphi_E(\underline{r}) dE, \qquad /12/$$

ahol φ_k a közönséges /diszkrét/, φ_E az általánositott /folytonos/ sajátfüggvényeket jelöli, c_k, $c(E)$ pedig a ψ_o kezdeti állapot kifejtési együtthatói. Feltesszük, hogy a diszkrét és folytonos sajátfüggvények a szokásos értelemben ortonormáltak. A /12/-ben szereplő második tag $t \to \infty$ esetén $\underline{r}$ minden értékére zérushoz tart, abszolut értéke négyzetének $\underline{r}$ szerinti integrálja viszont állandó, vagyis a hullámfüggvénynek ez a része a térben "szétfolyik".

Hogy a szétfolyással járó bonyodalmakat elkerüljük, zárjuk részecskéinket olyan potenciálgátak közé, amelyek a végtelenben végtelen magasra nyulnak, vagyis egyrészecske-potenciálok hozzáadásával módositsuk a /6/ kifejezésben szereplő $W_\nu(\underline{r}_\nu)$ egyrészecske-potenciálokat ugy, hogy H_o teljes spektruma diszkrét legyen. A vezérlésre használt időfüggő $V_\nu(\underline{r}_\nu, t)$ potenciálokat a végtelenben korlátosnak választva elérjük, hogy a teljes Hamilton-operátor spektruma is minden esetben diszkrét legyen [3]. A továbbiakban mindig feltesszük, hogy a Hamilton-operátor spektruma diszkrét.

A Hamilton-operátor sajátfüggvény-rendszerének teljessége miatt az összes normált állapotfüggvények a $\sum_k a_k \varphi_k(\underline{r})$ alakban állithatók elő, ahol $\sum_k |a_k|^2 = 1$, egyébként az a_k komplex számok tetszőlegesek. Az adott $\psi_o(\underline{r}) = \sum_k c_k \varphi_k(\underline{r})$ állapotból spontán létrejövő állapotok ezzel szemben mind

$$\psi(\underline{r}, t) = \sum_k c_k(t) \varphi_k(\underline{r}) = \sum_k c_k e^{-\frac{i}{\hbar} E_k t} \varphi_k(\underline{r})$$

alakuak, vagyis a $c_k(t)$ együtthatók r_k abszolut értékei mozgásállandók.

Vizsgáljuk meg annak feltételét, hogy állapotunk időbeli fejlődése során a Hilbert-térnek legalább az r_k mozgásállandók adott értékrendszeréhez tartozó valamennyi elemét tetszőleges pontossággal megközelitse, vagyis t-t mindig megválaszthassuk ugy, hogy tetszőlegesen kis adott $\varepsilon > 0$-ra fennálljon a

$$\sum_k r_k^2 \left| e^{-i\left(\alpha_k + \frac{1}{\hbar} E_k t\right)} - e^{i\beta_k} \right|^2 < \varepsilon \qquad /13/$$

egyenlőtlenség, ahol β_k $(k = 1,2,..)$ tetszőlegesen előírt 0 és 2π közé eső szám, α_k pedig a c_k együttható fázisa. Kronecker egy ismert tétele [4, 5] szerint ez akkor és csak akkor teljesül, ha az E_k energiasajátértékek "racionálisan függetlenek", vagyis ha a

$$\sum_{\nu=1}^{\ell} k_\nu E_{i_\nu} = 0 \qquad (k_\nu \text{ egész}) \qquad /14/$$

összefüggés csak valamennyi k_ν eltünése esetén állhat fenn.

Azt, hogy e feltétel szükséges, igen könnyü belátni, hiszen ha /14/ fennáll valamilyen $k_\nu \neq 0$ együtthatókkal, akkor /13/-ban a /14/-nek megfelelő ℓ darab fázis közül ℓ-1-et kiválasztva azok adott értékéhez az ℓ-ediknek csak véges sok különböző értéke tartozik, s igy /13/ általában nem elégithető ki bármilyen kis ε-ra. A feltétel elégséges voltának belátása lényegesen nehezebb, ezért azzal itt nem foglalkozunk.

Kronecker tétele a $\phi(t)$ fejlesztő operátor H_o sajátvektor-rendszerében kapott mátrixára a következőt jelenti: ha H_o sajátértékei racionálisan függetlenek, akkor $\phi(t)$ mátrixa "bejárja" az unitér diagonális mátrixok halmazát, vagy pontosabban megfogalmazva, $\phi(t)$ bármely véges diagonális almátrixa idővel tetszőleges pontossággal megközelit minden megfelelő dimenzióju unitér diagonális mátrixot.

5. Próbáljuk most többrészecske-állapotunkat egy igen egyszerü módszerrel vezérelni: bizonyos $t_1, t_2, \ldots, t_k$ időpontokban alkalmazzunk a rendszerre Δt ideig valamilyen adott $V = \sum_{\nu=1}^{N} V_\nu(\underline{r}_\nu)$ potenciált. Tekintsük a V potenciált és a Δt időtartamot egyelőre rögzitettnek, s a vezérlést végezzük a $t_1, t_2, \ldots, t_k, \ldots$ időpontok megfelelő megválasztásával.

Legyen

$$t_{k+1} \geq t \geq t_k + \Delta t > t_k \geq t_{k-1} + \Delta t \ldots > t_1 \geq 0;$$

ekkor a ψ_o kezdeti állapotot $\psi(t)$-be átvivő unitér operátor a következő lesz:

$$U(t) = e^{-\frac{i}{\hbar} H_o(t-t_k-\Delta t)} e^{-\frac{i}{\hbar} H\Delta t} e^{-\frac{i}{\hbar} H_o(t_k-t_{k-1}-\Delta t)} \ldots e^{-\frac{i}{\hbar} H\Delta t} e^{-\frac{i}{\hbar} H_o t_1} \cdot \qquad /15/$$

A vezérlő impulzus egyszeri perturbáló hatását a következő unitér operátorral jellemezhetjük:

$$S = e^{\frac{i}{\hbar} H_o \Delta t} e^{-\frac{i}{\hbar} H\Delta t} \qquad /16/$$

Ha Δt vagy $V = H-H_o$ zérus, akkor S az egységoperátorba megy át. Bevezetve még a

$$\tau_k = t-t_k ,$$

$$\tau_{i-1} = t_i-t_{i-1} , \quad (i = 2,3,\ldots,k)$$

$$\tau_o = t_1$$

jelöléseket, /11/ és /16/ felhasználásával /15/-ből a következőt kapjuk:

$$U(t) = \phi(\tau_k)\, S\phi(\tau_{k-1}) S\phi(\tau_{k-2}) \ldots S\phi(\tau_o) , \qquad /17/$$

vagy a

$$\phi(\tau_i)\ \phi(\tau_{i-1}) \ldots \phi(\tau_o) = e^{-\frac{i}{\hbar} H_o \sum_{\nu=o}^{i} \tau_\nu} = F_i$$

jelölést bevezetve:

$$U = F_k F_{k-1}^{-1} SF_{k-1} F_{k-2}^{-1} SF_{k-2} \ldots F_1 F_o^{-1} SF_o . \qquad /18/$$

Vizsgáljuk meg, hogy $\{U\}$-nak, a Hilbert-térben ható összes unitér operátorok halmazának melyik az az $\{U_s\}$ részhalmaza, amely /18/ alakban tetszőleges k és $\tau_\nu,\ldots,\tau_k$ mellett, vagy /18/ alaku operátorok sorozatának határértékeként előállitható. Az operátorsorozat határértékén itt és a továbbiakban az un. "erős topológia" szerinti határértéket értjük:

$$\lim_{i\to\infty} O_i = O, \text{ ha } \lim_{i\to\infty} \| O_i\psi - O\psi \| = o \text{ bármely } \psi\epsilon L_2\text{-re} , \qquad /19/$$

vagyis $O_i \to O$, ha az $O_i\psi$ sorozat bármely rögzitett ψ esetén a Hilbert-tér $O\psi$ eleméhez konvergál a Hilbert-térbeli erős konvergencia értelmében*.

Megmutatjuk, hogy bizonyos feltételek teljesülése esetén $\{U_s\} = \{U\}$, vagyis minden unitér operátor előállitható /18/ alaku operátorok határértékeként. Ebből viszont közvetlenül adódik, hogy bármely kvantummechanikai állapot tetszőlegesen megközelithető bármely másik állapot megfelelő vezérlésével.

---

* Egy operátorsorozat erős topológia szerinti konvergenciájánál lényegesen erősebb követelmény az operátornorma szerinti konvergencia. Egy O operátor normája az $\|O\psi\|$ normák felső határa, ha ψ a Hilbert-tér egységnyi normáju elemeit futja be. Egy O_i sorozat akkor tart O-hoz az operátornorma szerint, ha $\lim_{i\to\infty} \|O_i - O\| = o \cdot E$ definició előnye, hogy $\|O_i - O\|$ távolságként fogható fel, s igy van értelme arról beszélni, hogy $i > i_o$ esetén az O_i operátor ε-nál kevesebbel tér el O-tól. Az opertátornorma szerinti konvergencia céljainkra általában tul erős követelmény.

A definició alapján nyilvánvaló. hogy $\{U_s\}$ zárt részhalmaz $\{U\}$-ban, s az is könnyen belátható, hogy $\{U_s\}$ csoport, vagyis tartalmazza az egységelemet, bármely elemének inverzét, s bármely két elemének szorzatát.

Lássuk most el H_o sajátvektorait indexekkel olyan módon, hogy minden sajátvektor véges indexet kapjon /mivel a sajátvektorok halmaza megszámlálható, ilyen indexezés mindig lehetséges, de nem minden lehetséges indexezés tesz eleget e követelménynek/. Legyen $\{U^{(n)}\}$ a H_o operátor első n sajátvektora által kifeszitett vektortérben ható unitér operátorok halmaza; H_o sajátvektorrendszerében $\{U^{(n)}\}$ elemei n-edrendü unitér mátrixokkal reprezentálhatók. Az erős konvergencia /19/ definiciója alapján könnyen látható, hogy bármely $U \in \{U\}$ operátorhoz kiválasztható egy $U^{(n)} \in \{U^{(n)}\}$ $(n = 1,2,...)$ sorozat, amely U-hoz konvergál. Mivel $\{U_s\}$ zárt részhalmaz $\{U\}$-ban, annak szükséges és elégséges feltétele, hogy $\{U_s\} = \{U\}$ legyen, a következő.

$$\{U^{(n)}\} \subset \{U_s\} \qquad (n = 1,2,...) \quad . \qquad /20/$$

6. Mivel az $\{U_s\}$ halmaz topológikus csoport, elég megvizsgálnunk, hogy valamennyi $\{U^{(n)}\}$ csoport infinitezimális transzformációit tartalmazza-e, ha igen, akkor az összes $\{U^{(n)}\}$ csoportot is tartalmazza, s igy azonos $\{U\}$-val.

A /16/-ban szereplő Δt időtartamot és a $V = H - H_o$ vezérlő potenciált mi választhatjuk meg. Egyelőre tegyünk fel csak annyit, hogy $V = \lambda V'$, ahol $V' = \sum_\nu V'_\nu(\underline{r}_\nu)$ és λ olyan kicsi, hogy jó közelitésben

$$S = I + i\lambda A \quad . \qquad /21/$$

Az A hermitikus operátor természetesen függ a $V'_\nu(\underline{r}_\nu)$ egyrészecske-potenciálok alakjától és Δt nagyságától. Helyettesitsük be a kapott kifejezést /18/-ba, s hanyagoljuk el a λ-ban magasabb rendü tagokat:

---

* A perturbációs sor vizsgálatával megadható annak pontos feltétele, hogy $\lim_{\lambda \to 0} \frac{1}{\lambda} \| S - (I + i\lambda A) \| = 0$ legyen, s igy /21/ jó közelités legyen, függetlenül attól, hogy a Hilbert-tér mely függvényeire alkalmazzuk operátorunkat [3] . Céljainkra azonban az is elég, hogy minden egyes függvényre alkalmazva jó közelitésben egyenlőséget kapjunk.

$$U = F_k \left(I + i \lambda \sum_{\nu=0}^{k-1} F_\nu^{-1} A F_\nu \right) \quad . \qquad /22/$$

Az unitér F_ν operátorok mátrixa H_o sajátvektor-rendszerében diagonális. Vizsgáljuk meg, milyen unitér mátrixokat állithatunk elő /22/ alakban, ha F_ν ($\nu = 0,1,\ldots,k$) /11/ alaku spontán fejlődést leiró mátrix, A pedig adott hermitikus mátrix. Mivel /11/ alaku mátrixok határértékeként az egységmátrixhoz közeli diagonális mátrixokat is előállithatunk, feltehetjük, hogy $F_k = I + i\lambda L$, ahol L valós diagonális mátrix. Ekkor az

$$U = I + i\lambda B$$

jelölést bevezetve, a B hermitikus mátrixra a következőt kapjuk:

$$B = L + \sum_{\nu=0}^{k-1} F_\nu^{-1} A F_\nu \quad . \qquad /23/$$

Ha A és a megengedett F_ν, L mátrixok segitségével /23/ alakban valamennyi $\{U^{(n)}\}$ csoport generátorrendszere előállitható, akkor $\{U_s\} = \{U\}$.

Tegyük fel először, hogy H_o sajátértékei racionálisan függetlenek. Ebben az esetben a 4. pont alapján bármely unitér diagonális mátrix előállitható /11/ alaku, spontán fejlődést leiró mátrixok sorozatának határértékeként. Ekkor B diagonális elemeit L megválasztásával szabadon változtathatjuk, pl. valamennyit zérussá tehetjük. B azon nem-diagonális elemeinek értéke, amelyekre A megfelelő eleme zérus, az F_ν mátrixok választásától függetlenül zérus. Tekintsük most B azon b_{ij} nem-diagonális elemeit, amelyekre $a_{ij} \neq 0$:

$$b_{ij} = \sum_{\nu=0}^{k-1} \left[F_\nu^{-1}\right]_{ii} a_{ij} \left[F_\nu\right]_{jj} \quad ,$$

vagy az $\left[F_\nu\right]_{jj} = e^{i\theta_j^{(\nu)}}$ jelölést bevezetve:

$$b_{ij} = a_{ij} \sum_{\nu=0}^{k-1} e^{i\left(\theta_j^{(\nu)} - \theta_i^{(\nu)}\right)} \quad . \qquad /24/$$

A B mátrixnak ezeket az elemeit k és a θ fázisok megfelelő megválasztásával gyakorlatilag tetszőlegesen változtathatjuk. Elérhetjük pl., hogy b_{ij} és b_{ji} kivételével a B mátrix minden olyan b_{nm} eleme tünjön el, amely-

re $n,m \leq K$, ahol K tetszőleges pozitiv egész szám, s B elemei $n,m > K$ esetén se nőjenek az i,j elemhez viszonyitva, vagyis

$$\left| \frac{b_{nm}}{b_{ij}} \right| \leq \left| \frac{a_{nm}}{a_{ij}} \right| \quad \text{legyen.}$$

Emellett a b_{ij} elem fázisát is tetszőlegesen előirhatjuk.

A fázisok, valamint k egy egyszerü megválasztása, amely e követelményeknek eleget tesz (i = 1, j = 2 esetén):

Legyen $k = 2^{K-2}$. Legyen $\theta_1^{(\nu)} = \theta$ és $\theta_2^{(\nu)} = 0$ minden ν-re. Legyen $\theta_3^{(\nu)} = 0$, ha $\nu \leq 2^{K-3}$ és π, ha $\nu > 2^{K-3}$. Legyen $\theta_4^{(\nu)} = 0$, ha $\nu \leq 2^{K-4}$ vagy $2.2^{K-4} < \nu \leq 3.2^{K-4}$, ν többi értékeire pedig π ; az eljárást folytatva /az intervallumokat mindig felezve, s egyik feléhez 0, másik feléhez π fázist rendelve/, végül $\theta_K^{(\nu)} = 0$, ha ν páratlan és π, ha ν páros. Ekkor /24/ felhasználásával fenti állitásunk közvetlenül igazolható.

Az igy kapott mátrixok "határértéke" $K \to \infty$ esetén olyan hermitikus mátrix, melynek csak i,j és j,i eleme különbözik zérustól; mivel az infinitezimális elemek csak egy valós szorzó erejéig vannak meghatározva, az i,j elem abszolut értékét 1-nek választhatjuk s fázisa a fentiek szerint tetszőleges. Jelölje e hermitikus mátrixot $\beta^{(ij)}$.

A $\beta^{(ij)}$ mátrixnak megfelelő unitér operátor a φ_i és φ_j sajátállapot között létesit átmenetet, a többi sajátállapotot pedig invariánsul hagyja. Igy ha $a_{ij} \neq 0$, akkor φ_i és φ_j között közvetlen átmenetet létesithetünk. Könnyen belátható a következő állitás: annak szükséges és elégséges feltétele, hogy a "megengedett" ($a_{ij} \neq 0$-nak megfelelő) $\beta^{(ij)}$ mátrixok az összes $\{U^{(n)}\}$ csoportot generálják, az, hogy bármely $\varphi_{i'}$ és $\varphi_{j'}$ között legyen közvetlen vagy közvetett átmenet, vagyis legyen olyan $i', \ell_1, \ell_2, \ldots, \ell_s, j'$ sorozat, melyre $a_{i'\ell_1}$, $a_{\ell_1\ell_2}, \ldots, a_{\ell_s j'}$ közül egyik sem zérus. A bizonyitásnál fel kell használnunk, hogy $\{U^{(n)}\}$ infinitezimális operátorai Lie-algebrát alkotnak, s hogy a $\beta^{(ij)}$ mátrixokban egy fázis szabadon választható.

A kapott feltétel a következőképpen is megfogalmazható: H_o sajátvektorait ne lehessen ugy két csoportra osztani, hogy a_{ij} mindig zérus legyen, ha φ_i az egyik, φ_j a másik csoporthoz tartozik, vagy ami ezzel egyenértékü: H_o-nak és A-nak ne legyen közös invariáns altere a Hilbert-térben.

Annak elégséges feltételei tehát, hogy a kvantummechanikai rendszert bármely állapotból bármely másik közelébe át tudjuk vezérelni, a következők:

1. A H_o operátor spektruma legyen racionálisan független;

2. H_o-nak és A-nak ne legyen közös invariáns altere.

7. Próbáljuk most gyengiteni e feltételeket, s vizsgáljuk meg, hogy uj feltételeink milyen megszoritást jelentenek a $K(\underline{r}) = \Sigma K_{\nu\mu}(\underline{r}_\nu - \underline{r}_\mu)$ kölcsönhatási energiára.

Foglalkozzunk először a 2., feltétellel. Az A operátor mátrixának a_{ij} eleme a perturbációszámitás első közelitésében

$$a_{ij} \approx \frac{i}{\hbar}(\phi_i \, V\phi_j) \, \frac{e^{\frac{i}{\hbar}(E_i - E_j)\Delta t} - 1}{\frac{1}{\hbar}(E_i - E_j)} \quad \text{ha} \quad i \neq j \,,$$

vagyis az a_{ij} mátrixelem csak akkor lehet Δt minden értékére zérus, ha V megfelelő mátrixeleme is zérus. Igy H_o-nak és A-nak csak akkor van közös invariáns altere Δt minden értékére, ha H_o-nak és V-nek is van közös invariáns altere.

Megmutatjuk, hogy H_o-nak nincs közös invariáns altere valamennyi $V_\nu(\underline{r}_\nu)$ alaku operátorral. Ha ugyanis lenne, akkor H_o-nak lenne két olyan $\phi_i(\underline{r}), \phi_j(\underline{r})$ sajátfüggvénye, hogy $\left(\phi_i(\underline{r}), f(\underline{r}) \, \phi_j(\underline{r})\right) = 0$ legyen, ahol $f(\underline{r})$ tetszőleges $V_\nu(\underline{r}_\nu)$ alaku függvények szorzataiból tetszőleges együtthatókkal képzett lineárkombináció. Mivel azonban ilyen lineárkombinációk alakjában a 3N-dimenziós tér egy véges tartományában bármely korlátos 3N-változós függvény előállitható, a fenti mátrixelem értékét tetszőlegessé tehetjük.

Ha tehát megengedjük, hogy minden egyes vezérlő "lökésnél" másik egyrészecske potenciált alkalmazzunk, akkor az 1. feltétel már elégséges ahhoz, hogy bármelyik állapotból bármelyikbe el tudjunk jutni.

Kérdés, szükséges-e az 1. feltétel, vagy gyengébbel helyettesithető-e - sőt esetleg 2.-höz hasonlóan egyszerüen el is hagyható-e? Hogy nem hagyható el, az abból látható, hogy a kölcsönhatásmentes esetben nem tudunk egy állapotból bármely másikba eljutni egyrészecske-potenciálok segitségével. Ha ugyanis az állapot kezdetben egyrészecske-függvények szorzata volt, akkor mindig az is marad, bárhogy vezéreljük is egyrészecske-potenciáljainkkal.

Általánosabban, ha az N részecskéből álló rendszer felbontható két részre ugy, hogy a két rész között ne legyen kölcsönhatás, akkor a két részrendszer együttes állapotfüggvénye szorzatalaku marad, bármilyen egyré-

szecske-perturbációkat alkalmazzunk is. A Hamilton-operátor sajátfüggvényei ekkor szintén szorzatalakuak - a két részrendszerre ható Hamilton-operátorok sajátfüggvényeinek szorzatai, a sajátértékek pedig a megfelelő sajátértékek összegei. Az $E_{ij} = \varepsilon_i^{(1)} + \varepsilon_j^{(2)}$ $(i,j = 1,2,\ldots)$ sajátértékek ekkor nem racionálisan függetlenek, hiszen pl. minden i,j, i',j' esetén fennáll az

$$\left(E_{ij} - E_{ij'}\right) - \left(E_{i'j} - E_{i'j'}\right) = 0 \qquad /25/$$

racionális összefüggés.

A 6. pontban közölt meggondolást kissé finomitva belátható, hogy a sajátértékek racionális függetlensége szükségtelenül erős követelmény. Elég annyit feltennünk, hogy a sajátértekek közti különbségek mind különbözők. Ekkor ugyanis a /24/-ben szereplő összeg i,j különböző értékeire már függetlenül változtatható, bár az egyes $e^{i\left(\theta_j^{(\nu)} - \theta_i^{(\nu)}\right)}$ tagok nem függetlenek. /Az, hogy B diagonális elemei nem tehetők zérussá, nem jelent nehézséget, hiszen a B mátrixokra épitett Lie-algebra bármely két "elérhető" mátrix különbségét is tartalmazza, s a különbségekben a főátló már zérussá tehető./ Igy 1/ helyett a következő, gyengébb feltétel is elégséges:

$$\left(E_\nu - E_{\nu'}\right) - \left(E_\mu - E_{\mu'}\right) \neq 0 \quad \text{minden} \quad \nu, \nu', \mu, \mu' \quad \text{esetén} . \qquad /26/$$

Ha tehát a Hamilton-operátor olyan, vagy egyrészecske-perturbációkkal olyanná tehető, hogy a sajátértékekre /26/ fennálljon, akkor egy állapot bármely másikba átvezérelhető.

Annak feltétele, hogy egy $(E_\nu - E_{\nu'}) - (E_\mu - E_{\mu'}) = 0$ összefüggést egyrészecske-perturbációkkal ne lehessen megszüntetni:

$$\int\left[\sum_{\nu=1}^{N} V_\nu(\underline{r}_\nu)\right]\left[\left(|\phi'_\nu(\underline{w})|^2 - |\phi'_{\nu'}(\underline{w})|^2\right) - \left(|\phi'_\mu(\underline{w})|^2 - |\phi'_{\mu'}(\underline{w})|^2\right)\right] d\underline{w} \equiv 0 , \qquad /27/$$

ahol $V_\nu(\underline{r}_\nu)$ tetszőleges korlátos függvény, ϕ'_ν, $\phi'_{\nu'}$, ϕ'_μ, $\phi'_{\mu'}$ pedig a ϕ_ν, $\phi_{\nu'}$, ϕ_μ, $\phi_{\mu'}$ sajátfüggvény-négyesből egyrészecske-perturbációkkal kapott bármely sajátfüggvény-négyes. A /27/ összefüggésből következik, hogy

$$\int\left[\left(|\phi'_\nu(\underline{w})|^2 - |\phi'_{\nu'}(\underline{w})|^2\right) - \left(|\phi'_\mu(\underline{w})|^2 - |\phi'_{\mu'}(\underline{w})|^2\right)\right] d\underline{r}_1 \ldots d\underline{r}_{\ell-1}\, d\underline{r}_{\ell+1} \ldots d\underline{r}_N \equiv 0$$

/28/

minden ℓ-re. Ez H_o sajátfüggvényeire, s igy magára H_o-ra rendkivül erős megszoritást jelent. Mivel /28/ az egyrészecske-potenciálok tetszőleges módositása esetén is fenn kell hogy álljon, az hogy /28/ teljesül-e, kizárólag a kölcsönhatási potenciál szerkezetétől függ. Ha a kölcsönhatási poten-

ciál olyan, hogy rendszerünk független /egymással nem kölcsönható/ részrendszerekre bomlik, akkor mint már emlitettük, mindig fennállnak /25/ tipusu összefüggések. Ebben az esetben a /25/-nek megfelelő sajátfüggvényekre /28/ is mindig teljesül; a két független részrendszer állapotfüggvényeit $\chi_i^{(1)}(\underline{r}^{(1)})$, $\chi_j^{(2)}(\underline{r}^{(2)})$ -vel jelölve /28/ a következő alakba irható:

$$\int\left(|\chi_i^{(1)}(\underline{r}^{(1)})|^2 - |\chi_{i'}^{(1)}(\underline{r}^{(1)})|^2\right)\left(|\chi_j^{(2)}(\underline{r}^{(2)})|^2 - |\chi_{j'}^{(2)}(\underline{r}^{(2)})|^2\right) d\underline{r}_1 \ldots d\underline{r}_{\ell-1} d\underline{r}_{\ell+1} \ldots d\underline{r}_N \equiv 0,$$

ami valóban minden ℓ-re fennáll, függetlenül a részrendszerek sajátállapotainak konkrét alakjától. Sejtésünk az, hogy ha a rendszer nem bontható fel független részrendszerekre, akkor /28/ nem teljesülhet, bármilyen is legyen az egyes részecskepárok között ható kölcsönhatási potenciálok alakja.

Ha sejtésünk igaz, akkor az, hogy a rendszer nem bontható független részrendszerekre, szükséges és egyben elégséges feltétel arra, hogy egyrészecske-perturbációkkal bármely N-részecske állapot tetszőlegesen megközelithető legyen.

I r o d a l o m

[1] Marx, Gy.: Kvantummechanika, Müsz. Könyvkiadó, Budapest, 1964.

[2] Jánossy, L.: Acta Phys. Hung., 27, 35 /1969/

[3] Функциональный Анапиз, под редакцией С.Г. Крейна, Изд. Наука, Москва, 1964.

[4] Neumann, J.V.: Mathematische Grundlagen der Quantenmechanik, Springer Verlag, Berlin, 1932.

[5] Kronecker: Ber. d. Preuss, Akad. d. Wiss. zu Berlin, 1884; 1071-1080, 1179-1193, 1271-1299.

Érkezett: 1970. aug. 17.

KFKI Közl., 18.évf. 4-6. szám, 1970.

TÓRIUM- ÉS CIRKÓNIUMVEGYÜLETEK SZENNYEZÉSEINEK MEGHATÁROZÁSA NEUTRONAKTIVÁCIÓS ANALIZISSEL

Irta: Csath Géza, Ördögh Mária, Szabó Elek

Összefoglalás

A reaktor és hiradástechnikában alkalmazott tórium- és cirkóniumvegyületek réz-, kadmium-, mangán-, kobalt-, króm- és cinkszennyezéseit határoztuk meg neutronaktivációs analizissel.

A tóriumvegyületeknél a főkomponens besugárzás előtti előzetes elválasztásaként a papirkromatográfiát, majd a besugárzás után metil-i-butilketonos extrakciót és kupferronos lecsapást alkalmaztunk. A cirkónium esetében csak a kupferronos lecsapást végeztük el. Az egyes szennyező elemeket kémiai elválasztás után gamma-spektrometriásan mértük.

Bevezetés

A tórium- és cirkóniumvegyületek felhasználása a reaktortechnikában, mint fütőelem illetve szerkezeti anyag, valamint a hiradástechnikában, mint katódbevonat, igen széleskörü. Mindezeken a területeken a felhasznált alapanyagok tisztasága iránti követelmények meglehetősen szigoruak, oly mértékben, hogy a konvencionális kémiai módszerek teljesitőképessége erre a célra sok esetben nem kielégitő.

Közleményünkben neutronaktivációs analitikai módszert irunk le hiradástechnikában használt tórium- és cirkóniumnitrát kobalt, króm, cink, réz, kadmium és mangán szennyezéseinek meghatározására.

A tórimmátrixból reaktorban történő besugárzáskor primer és szekunder magreakciók, valamint hasadási reakciók révén igen nagy intenzitásu aktivitások keletkeznek, igy érhető, hogy az irodalomban tóriumvegyületek szennyezéseinek neutronaktivációs analitikai meghatározására csak kevés közleményt találunk. Japán szerzők [1-5] ritka földfémszennyezéseket határoztak meg tóriumban és tórium dioxidban aktivációs analizissel. Mullins és munkatársai [6] ittriumot határoztak meg tórium-dioxidban roncsolásmentes aktivációs analizissel oly módon, hogy a stabil szennyező elemet besugárzás előtt elválasztották a főkomponenstől, mivel a mérésre felhasznált ^{89m}Y izotóp felezési ideje /16 sec/ nem tette lehetővé a besugárzás utáni kémiai elválasztást. Tóriumban az oxigén meghatározását vagy ^{3}He részecskékkel bombázva [7, 8], illetve az $^{16}O(t,n)^{18}F$ magreakció felhasználásával [9] végezték. Tóriumnitrát urántartalmát besugárzás után gyors kémiai

elválasztási lépések után határozták meg [10]. Voigt és munkatársai [11] tantál és volfrám nyomszennyezéseket határoztak meg tórium mátrix jelenlétében. Alian és Shabana [12] kobalt-, vas-, cink-, ezüst-, higany- és szkandium szennyezéseket határoztak meg tóriumban, a tóriumot előzetes elválasztás nélkül sugározták be.

Cirkónium fém és cirkóniumvegyületek tisztaságának aktivációs analitikai módszerrel történő ellenőrzésével már igen régen foglalkoznak. Számos közlemény foglalkozik reaktortisztaságu cirkónium fémben, illetve ötvözeteiben hafnium meghatározásával [13-27]. Hudgens és Cali cirkónium-dioxidban antimont [28], Leddicotte fém cirkóniumban nikkelt [29], Adamski és munkatársai nátriumot és káliumot [30] határoztak meg. Néhány közlemény az oxigén meghatározásának lehetőségeit vizsgálja cirkóniumban: Cerrai és Gadda [31] az oxigén meghatározására 14 MeV-es neutronokat használnak, Ricci és Hahn [32] 5 és 10 MeV energiáju ^{3}He részecskékkel bombázva néhány elemre /berillium, szén, nitrogén, fluor/, köztük oxigénre ppb érzékenységet értek el. Ugyancsak ^{3}He részecskékkel bombázva /11 MeV-nél kisebb energiáju ^{3}He részecskék/ Revel és Albert [33-34] 10^{-8} g érzékenységet értek el oxigénre cirkóniumban. Möller és Starfelt [35] protonbesugárzással, a $^{19}F(p,\alpha\gamma)^{16}O$ magreakció felhasználásával cirkóniumötvözet felületén, ill. felületi rétegeiben fluorszennyeződést határoztak meg 0,01 $\mu g/cm^2$ alatti mennyiségben. Albert és munkatársai [36-41] a nagytisztaságu cirkónium vizsgálata során nagyon sok szennyező elemre dolgoztak ki eljárásokat, mind rövid, mind hosszu felezési idejü izotópokat használva fel. A hosszu felezési idejü izotópok egymástól való elkülönitése céljából a legkülönbözőbb kémiai elválasztási módszereket /lecsapás, elektrolizis, ioncsere, desztilláció, oldószeres extrakció/ alkalmazták. Szisztematikus vizsgálataik eredményeképpen olyan eljárások állnak rendelkezésünkre, amelyekkel egy egész sor szennyező elem /Al, V, Mg, Ti, Se, Hg, As, Sb, W, Te, Au, Pd, Ag, Cu, Mo, Bi, Fe, Ga, In, Pa, Sc, Cr, Ni, Co, Cd, Mn, Zn, Na, K, Rb, Cs, ritka földfémek Ca, Sr, Ba/ meghatározható.

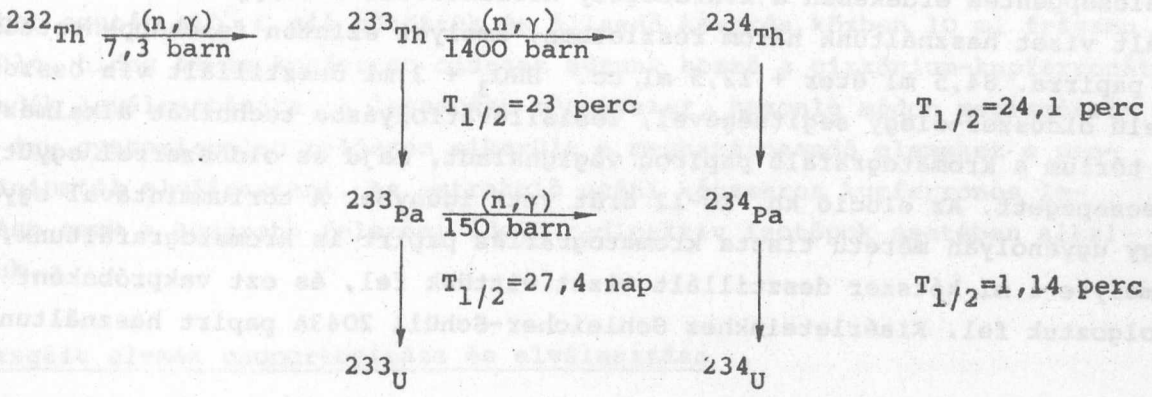
A tórium- és cirkónium-nitrát szennyező elemeinek meghatározására alkalmas aktivációs analitikai módszer kidolgozásánál abból a tényből indultunk ki, hogy a cirkónium a protaktiniumnak nem izotópos hordozója, igy a tórium-nitrát besugárzása során keletkező ^{233}Pa, valamint a cirkónium-nitrát besugárzása során keletkező ^{97}Zr eltávolitása hasonló módon történhet. A következőkben beszámolunk a kobalt-, króm-, cink-, réz-, kadmium- és mangán szennyezések meghatározására kidolgozott eljárásainkról.

Kisérleti rész

A. Tórium-nitrát szennyezéseinek meghatározása

A tórium a periódusos rendszerben mint természetes radioaktiv elem

fordul elő. A ^{232}Th-ot neutronokkal besugározva a következő magreakciók játszódnak le:



A fenti sémából látható, hogy tóriumot termikus neutronokkal besugározva lényegében egy hosszu felezési idejü izotóp, a ^{233}Pa $T_{1/2}$=27,4 nap jelenlétével kell számolnunk, amely azonban olyan nagy aktivitást képvisel, hogy nemcsak a roncsolásmentes mérést hiusitja meg, hanem a minta kezelését is nehézkessé teszi. Ezért szükségessé vált a tórium főtömegének a besugárzás előtt valamilyen alkalmas módszerrel a meghatározandó szennyezésektől való elválasztása. A megfelelő módszer kiválasztásánál figyelembe kellett venni egyrészt, hogy a tórium elválasztása minél hatékonyabb legyen, másrészt, hogy az elválasztás lehetőleg kevés és egyszerü müveletből álljon, nehogy a vizsgálandó anyagot elszennyezzük. Végül a legfontosabb, hogy a tórium előzetes elválasztása során a szennyezések eredeti mennyiségében veszteségek ne állhassanak elő. Korábbi munkánkban [42-43] az uránnak nyomszennyezéseitől való besugárzás előtti elválasztására ugyancsak papirkromatográfiás eljárást használtunk. Ismeretes ugyanis [44-47], hogy uranil-nitrátot 5 tf.% cc HNO_3-t tartalmazó dietil-éter oldószerrel kromatografálva az urán a kromatografáló papiron az élvonalban halad, mig a legtöbb fém a felcseppentés helyén marad. Hasonlóan viselkedik kromatografáláskor a tóriumnitrát, azzal a különbséggel, hogy nagyobb HNO_3-koncentráció alkalmazása szükséges [48-49]. Az uránvegyületek vizsgálatánál kidolgozott módszert használtuk megfelelő módositásokkal a tórium elválasztására.

A tórium elválasztása a nyomszennyezésektől papirkromatográfiás módszerrel

Kisérletileg megállapitottuk, hogy cc. HNO_3, dietil-éter és desztillált viz megfelelő arányu elegyében a tórium az oldószerrel együtt mozgott a kromatografáló papiron, ugyanakkor a meghatározni kivánt fémek mindegyike a felcseppentés helyén maradt.

Az elválasztást a következőképpen végeztük: 100 mg tórium-nitrátot 1 ml kétszer desztillált vizben oldottunk fel. Az oldatot ezután 6 cm szé-

lességü kromatografáló papirra csik alakban vittük fel, ugy, hogy a felvitt tórium a kromatografáló papir tetejétől 9 cm távolságra essék. A kvantitativ felcseppentés érdekében a kvarctégely kiöblitésére 3 csepp kétszer desztillált vizet használtunk három részletben, amelyet szintén felcseppentettünk a papirra. 84,5 ml éter + 12,5 ml cc. HNO_3 + 3 ml desztillált viz összetételü oldószer-elegy segitségével, leszálló-átfolyásos technikát alkalmazva a tórium a kromatografáló papiron végighaladt, majd az oldószerrel együtt lecsepegett. Az elució kb. 10-12 órát vett igénybe. A tóriummintával együtt egy ugyanolyan méretü tiszta kromatográfiás papirt is kromatografáltunk, amelyre 1 ml kétszer desztillált vizet vittünk fel, és ezt vakpróbaként dolgoztuk fel. Kisérleteinkhez Schleicher-Schüll 2043A papirt használtunk.

A minta besugárzása

A kromatografálás után a kromatogramot megszáritottuk, majd a papircsikot a startvonaltól felfelé 1 cm, lefelé 3 cm távolságban eltéptük és csiszoltdugós kvarcampullába téve elhamvasztottuk. A mintákkal egyidejüleg és azonos körülmények között ismert mennyiségü standardokat is besugároztunk. A standardok Merck p.a. reagensekből készültek. A besugárzásokat a VVR-Sz tipusu atomreaktor egyik függőleges csatornájában végeztük, ahol a termikus neutronfluxus értéke kb. 3.10^{13} $n/cm^2.sec$. A besugárzási idő 12-24 óra között változott, annak megfelelően, hogy mely elemek meghatározását kivántuk elvégezni.

A ^{233}Pa elválasztása a vizsgált elemektől

A kromatografálás után a papiron visszamaradó csekély mennyiségü tóriumból a besugárzás során keletkező aktivitás intenzitása sugárvédelmi szempontból már nem jelentős, de az analizis szempontjából a keletkezett ^{233}Pa még erősen zavaró, ezért szükséges volt a meghatározandó elemektől kémiailag elválasztani.

A besugárzás után a kvarcampullákból cc. sósavval kioldott mintákhoz hozzáadtuk a vizsgálandó elemek 15-15 mg inaktiv hordozóit, ezután az anyagot kb. 5 ml cc. sósavban forralással oldatba vittük. Oldás után az oldat sósav koncentrációját desztillált vizzel kb. 6 normálra állitottuk be, majd 6 n sósavval telitett metil-i-butil-keton 3x10 ml-évl, egy perces rázási időt alkalmazva a ^{233}Pa főtömegét extraháltuk. Az extrakció után a gamma-spektrum mérését még kisebb-nagyobb mértékben zavaró protaktinium-aktivitás maradt vissza, amelyet további kémiai elválasztás utján távolitottunk el a rendszerből.

A protaktiniumnak abból a sajátságából kiindulva, hogy kémiailag hasonló tulajdonságokkal rendelkezik, mint a cirkónium, az elválasztásnál

a cirkóniumot a protaktinium nem izotópos hordozójaként alkalmaztuk.

Az extrahált sósavas oldathoz kb. 40 mg cirkóniumiont adtunk. Az oldatot ezután +10° C alá hütöttük és állandó keverés közben 10 ml frissen készült, hideg 6%-os kupferron oldatot adtunk hozzá a cirkónium-kupferronát csapadék leválasztására. A lecsapást mégegyszer, hasonló módon megismételtük, igy gyakorlatilag teljesen sikerült a meghatározandó elemeket a protaktiniumtól elválasztani. Az extrakció utáni kétszeres kupferronos lecsapást csak a hosszabb felezési idejü radioaktiv izotópok esetében alkalmaztuk.

A vizsgált elemek csoportositása és elválasztása

A meghatározandó elemeket /Co, Cr, Zn, Cu, Cd, Mn/ felezési idejük szerint két csoportba osztottuk, és ennek megfelelően az egyes elemek elválasztására különböző kémiai elválasztási módszert dolgoztunk ki.

Az I. táblázat a meghatározott elemek fontosabb nukleáris adatait tartalmazza.

I. táblázat

Elem	Radioaktiv izotóp	$T_{1/2}$	E_γ (MeV)
Kobalt	^{60}Co	5,27 év	1,17; 1,33
Króm	^{51}Cr	27,8 nap	0,32
Cink	^{65}Zn	250 nap	1,11
Réz	^{64}Cu	12,8 óra	0,51
Kadmium	^{115}Cd	2,3 nap	0,34; 0,53
Mangán	^{56}Mn	2,57 óra	0,84

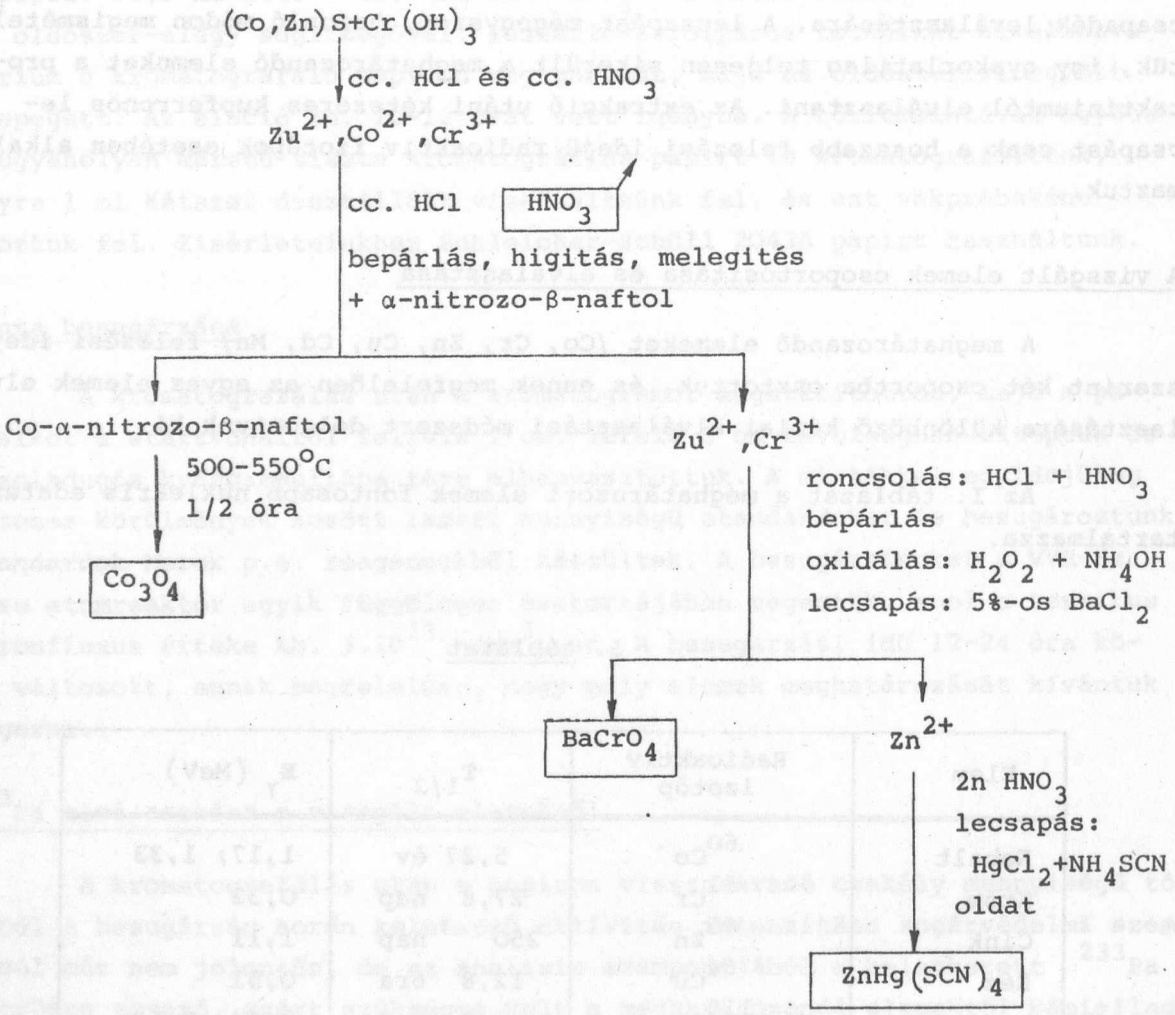
Az első csoportba a hosszabb felezési idejü radioaktiv izotópokat: ^{60}Co, ^{51}Cr és ^{65}Zn, a másodikba a rövidebb felezési idejü radioaktiv izotópokat: ^{64}Cu, ^{115}Cd, ^{56}Mn soroltuk.

A hosszabb felezési idejü radioaktiv izotópok meghatározása

A protaktinium elválasztása után a vizes oldat Co, Cr és Zn-ionokat és a feleslegben alkalmazott kupferront tartalmazta. A kupferrontól a meghatározandó elemeket szulfidos lecsapással tisztitottuk meg. A minták feldolgozását a következő séma szerint végeztük el:

II. táblázat

Kobalt-, króm- és cinkszennyezések elválasztása



Az egyes elemek kezelése tehát a következő volt:

Kobalt: a szulfidok királyvizes oldása után az oldatból cc. sósavas forralással a salétromsavat eltávolitottuk és a maradékot desztillált vizzel kb. 20 ml-re higitottuk. Kevés H_2O_2 hozzáadása után az oldatot kb. 80°C-ra melegitettük és keverés közben 5 ml α-nitrozo-β-naftol reagenst adtunk az oldathoz. A kivált csapadékot forralással tömöritettük, majd szürtük. A csapadékot először 2 n sósavval, majd forró desztillált vizzel savmentesre mostuk, megszáritottuk és gamma-spektrometriásan mértük. A kémiai kihozatal meghatározásához sulymérésre alkalmas csapadéknak a Co-α-nitrozo-β-naftol csapadék 500-550°C-on való izzitása után kapott Co_3O_4 csapadékot tekintettük.

Króm: a kobalt-α-nitrozo-β-naftol csapadék szürlete tartalmazta a króm- és cinkionokat, valamint a feleslegben alkalmazott α-nitrozo-β-naftol reagenst. A szerves reagenst cc. salétromsav adagolással forralás közben elroncsoltuk és az oldatot szárazra pároltuk. A maradékot 20 ml desztillált vizzel felvettük, kevés H_2O_2-t és 1-2 csepp $BaCl_2$ oldatot adtunk hozzá, majd redős szürőn szürtük. /A S^{2-} ionok oxidációjából keletkező /SO^{2-}_4/$BaSO_4$ csapadék kiszürése./ A szürletben lévő Cr^{3+} ionokat további H_2O_2 és NH_4OH adagolással CrO^{2-}_4 ionokká oxidáltuk, majd 5 ml 5%-os $BaCl_2$ oldattal a krómot $BaCrO_4$ formában csaptuk le. A $BaCrO_4$ aktivitás- és sulymérésre alkalmas csapadék volt.

Cink: a $BaCrO_4$ csapadék szürletében már csak a cink volt jelen. A cink lecsapását jeges hütés és állandó kevergetés közben hig salétromsavas közegből kálium-rodanid és higany/II/-kloridból készült lecsapószer /KSCN: 3,9 g és $HgCl_2$: 2,7 g 100 ml desztillált vizben oldva/ adagolásával /20 ml/ végeztük, $ZnHg/SCN/_4$ csapadékot állitva elő.

A rövidebb felezési idejü radioaktiv izotópok elválasztása

Egy másik besugárzott mintából végeztük a réz-, kadmium-, és mangánszennyezések meghatározását. A protaktinium extrakciós elválasztását az előzőekben leirt módon végeztük. A protaktiniumnak a metil-i-butil-ketonos extrakció után alkalmazott kupferronos lecsapását csak a réz- és kadmiumionok szulfidos elválasztása után, a mangán tisztitása előtt végezhetjük el. Ebben az esetben ezzel a módszerrel a cirkónium csak a mangántól választható el, mert a réz és kadmium is képez kupferronátot.

Az elválasztás menetét a következő séma /III. táblázat/ mutatja be.

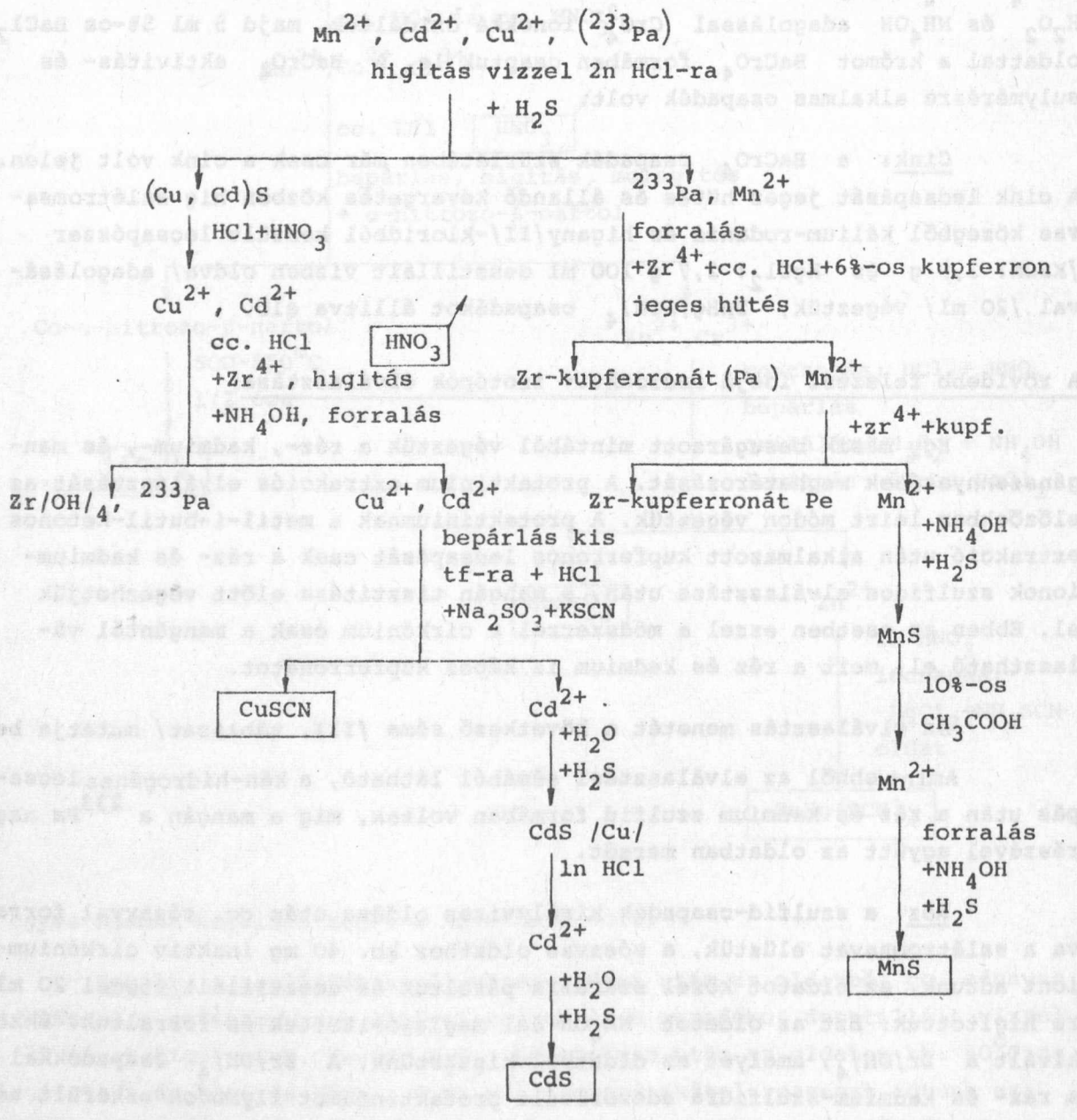
Amint ebből az elválasztási sémából látható, a kén-hidrogénes lecsapás után a réz és kadmium szulfid formában voltak, mig a mangán a ^{233}Pa nagy részével együtt az oldatban maradt.

Réz: a szulfid-csapadék királyvizes oldása után cc. sósavval forralva a salétromsavat elüztük, a sósavas oldathoz kb. 40 mg inaktiv cirkóniumiont adtunk, az oldatot közel szárazra pároltuk és desztillált vizzel 20 ml-re higitottuk. Ezt az oldatot NH_4OH-dal meglugositottuk és forraltuk. Ekkor kivált a $Zr/OH/_4$, amelyet az oldatból kiszürtünk. A $Zr/OH/_4$ csapadékkal a réz- és kadmium-szulfidra adszorbeált protaktiniumot ilymódon sikerült teljesen eltávolitani a rendszerből. Az enyhén lugos oldatot ezután sósavval gyengén megsavanyitottuk, majd nátrium-szulfittal a Cu^{2+} ionokat Cu^{+} ionokká redukáltuk és melegités közben szilárd kálium-rodaniddal CuSCN csapadékot választottunk le.

Kadmium: a CuSCN csapadék szürletének savkoncentrációját desztillált vizzel kb. 0,2n-ra higitottuk, majd kén-hidrogén-gáz bevezetése nyomán

III. táblázat

Réz, kadmium- és mangánszennyezések elválasztása



leválta CdS, amelyet szürés után 1n sósavban feloldottunk, majd a kadmiumot ismét szulfid alakban csaptuk le.

Mangán: a mangánt inaktiv cirkóniumionok adagolása után, kétszeres kupferronos lecsapással sikerült teljesen megtisztitani a protaktiniumtól. A feleslegben maradt szerves reagens mellől a mangánt szulfid alakban válasz-

tottuk le, ugy, hogy kén-hidrogén-gázt vezettünk az 50-60°C-ra melegitett oldatba, majd NH_4OH-dal meglugositottuk. A kivált csapadékot szürtük, 10%-os ecetsavban oldottuk, majd ismét MnS csapadékot választottunk le.

Az egyes elemek elválasztása során a végtermékek előállitásánál a legtöbb esetben Erdey L.: A sulyszerinti elemzés módszerei c. könyvében [50] leirt eljárásokat használtuk. A végtermékek sulyából kémiai kitermelést számitottunk, amelyet a felvett gamma-spektrumok kvantitativ kiértékelésénél használtunk fel. A minták gamma-spektrumait 3x3" NaI/Tl/ Nuclear Enterprises kristállyal, valamint EMI 9531A tipusu fotoelektron-sokszorozóval mértük, amely KFKI tipusu NTA-512 csatornás analizátorhoz csatlakozott.

B. Cirkónium-nitrát nyomszennyezéseinek meghatározása

A hiradástechnikában felhasznált cirkónium-nitrát ugyanezen nyomszennyezéseinek meghatározása lényegében a tórium-nitrátnál ismertetett eljárással azonos módon történt.

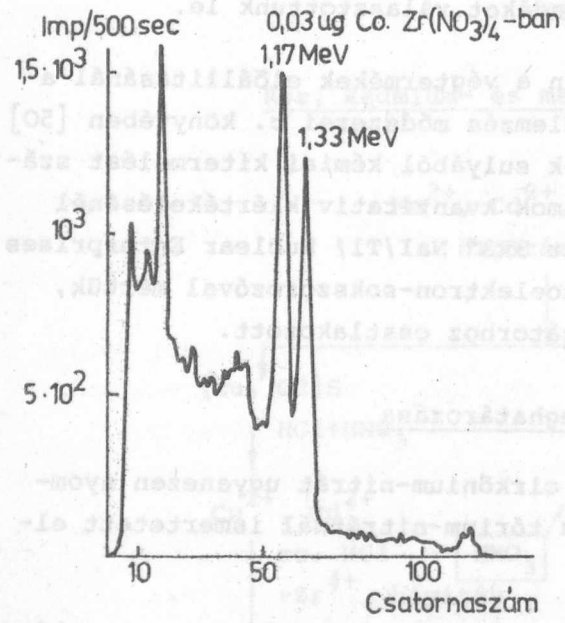
A meghatározást roncsolásmentesen nem lehetett elvégezni, mert bár a cirkónium önmagában nem nagyon jól aktiválódik /0,1 g cirkóniumból 24 órás besugárzás alatt $1,1 \times 10^7$ bomlás/sec aktivitás keletkezik/, de a cirkónium, illetve a szennyezések koncentrációi között mintegy 6-8 nagyságrend különbség van, igy a cirkónium főkomponensből keletkezető aktivitás messze felülmulja a szennyezésekből keletkező aktivitásokat. Ezért szükségessé vált, hogy az egyes szennyező elemeket először kémiailag elválasszuk, majd gamma-spektrometriásan mérjük.

Az elválasztást a tóriumnál alkalmazott módszer szerint végeztük el, annyi változtatással, hogy a protaktinium elválasztására szükséges metil-i-butil-ketonos extrakciót elhagytuk.

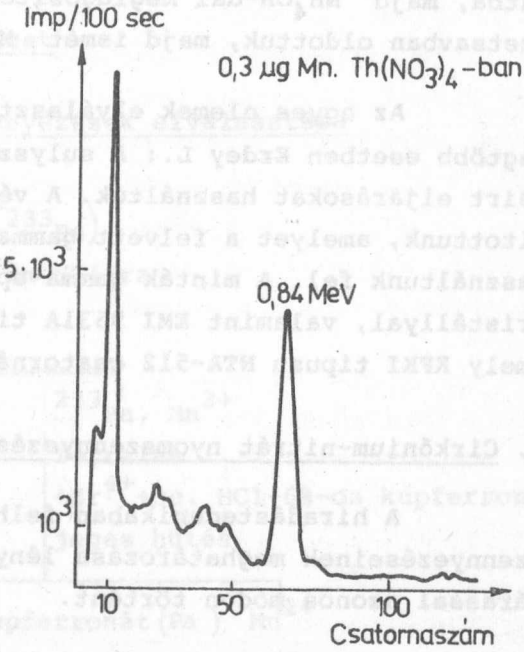
A közölt módszer megfelelő változtatással kiterjeszthető a tórium- és cirkónium-nitrát más nyomszennyezéseinek meghatározására is.

Kisérleti eredmények és értékelésük

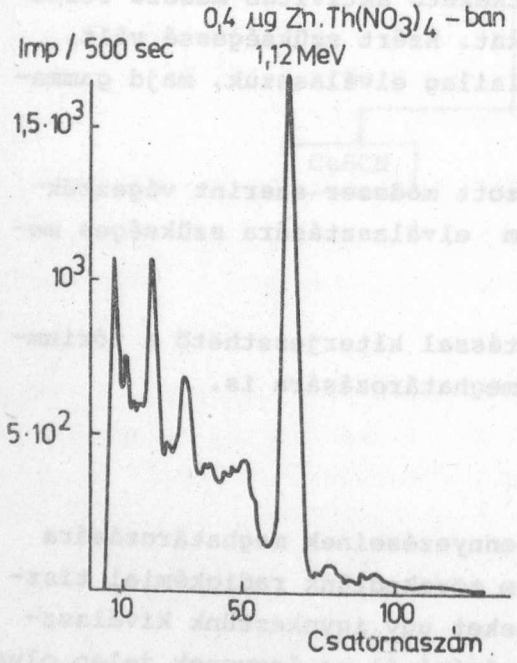
A tórium- és cirkóniumvegyületek szennyezéseinek meghatározására alkalmas elválasztási séma kidolgozásánál nem törekedtünk radiokémiai tisztaság elérésére. Az egyes elválasztási lépéseket ugy igyekeztünk kiválasztani, hogy a végtermék gamma-spektrometriás mérésénél ne legyenek jelen olyan izotópok, amelyek a meghatározandó elem mérésre alkalmas izotópjának fotocsucsát zavarnák. Ilyen elemek voltak a kobalt, a mangán és a cink /1., 2. és 3. ábra/. Amint az ábrákon látható, a végtermékek tisztasága a gamma-spektrometriás mérések szempontjából kielégitő.



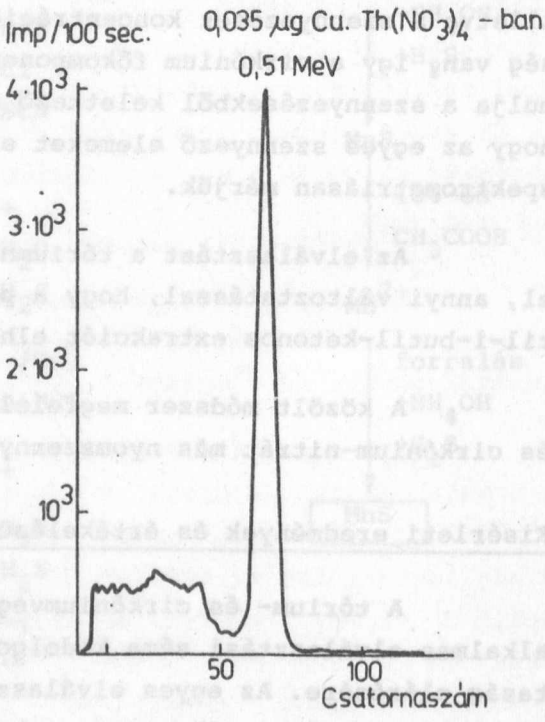
1. ábra



2. ábra



3. ábra

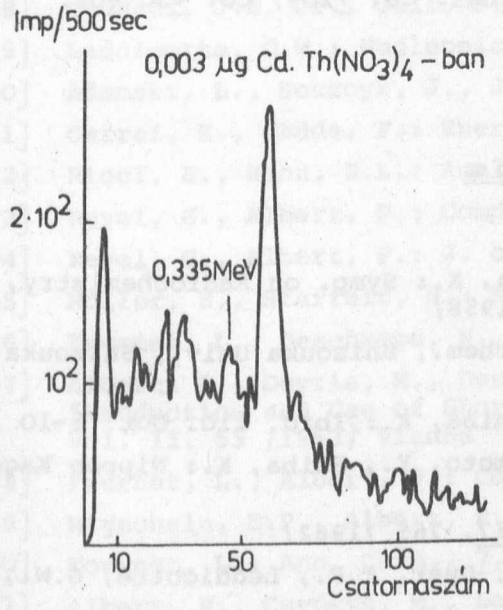


4. ábra

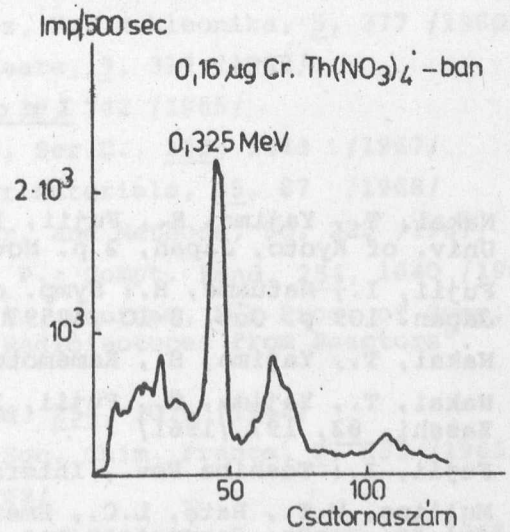
Annak ellenére, hogy a réz tisztitásánál meglehetősen kevés müveletet alkalmaztunk, a CuSCN végtermék minden esetben radiokémiailag tiszta volt /4. ábra/. Rézszennyezés meghatározásánál a CuSCN alakban történő lecsapás igen szelektiv voltát egyébként más főkomponensek mellett történő vizsgálatánál is tapasztaltuk.

Legnagyobb körültekintéssel tóriumvegyületek kadmium- és krómszennyezéseinek meghatározásánál kellett eljárnunk, mivel a jelentékeny aktivitást képviselő ^{233}Pa egyik összetett fotocsucsa (0,30-0,31-0,34 MeV) egybeesik a ^{115}Cd-^{115m}In mérésre alkalmas 0,34 MeV értékü fotócsucsával. Ugyanez a helyzet a ^{51}Cr esetében (E_γ = 0,32 MeV), azzal a különbséggel, hogy itt még a felezési idők is gyakorlatilag azonosak /a ^{51}Cr felezési ideje 27,8 nap, a ^{233}Pa-é 27 nap/. Ennél a két elemnél a tisztitás hatásosságát a ^{233}Pa 0,103 MeV-es energiájának jelenlétével, illetve eltünésével tudtuk ellenőrizni. A kadmium vizsgálatánál segitséget nyujtott még a 0,34 és 0,49-0,52 MeV-es energiák csucsarányának figyelembevétele. A kadmiummeghatározás esetében tekintetbe kellett venni, hogy a ^{115}Cd radioaktiv leányelem keletkezéseivel bomlik ($^{115}Cd \xrightarrow{54\ óra} {}^{115m}In \xrightarrow{4,5\ óra}$). Az ebből eredő esetleges mérési hibák elkerülése végett a mintákat és a standardot azonos időben és azonos módon készitettük, és a gammaspektrumok felvétele előtt mintegy 20 órát vártunk, amely alatt a radioaktiv egyensuly gyakorlatilag beállt.

Az 5. és 6. ábrákon egy kadmium-, illetve egy króm-végtermék gammaspektrumát mutatjuk be. Amint az ábrákon látható, a kadmium tisztitása meg-



5. ábra



6. ábra

felelő, a króm esetében a rézhez hasonlóan minden esetben radiokémiai tisztaságot értünk el. Ebben az esetben a jó tisztitási hatásfok a $BaCrO_4$ alakban történő lecsapás szelektivitását bizonyitja.

A tóriumminták vizsgálatánál a mintákkal egyidejüleg szürőpapir-vakpróbát is készitettünk. A fent leirt eljárással három tórium-nitrát és két cirkónium-nitrát mintát elemeztünk meg. A IV. táblázatban foglaltuk ösz-sze a kapott eredményeket. A táblázat tartalmazza a Schleicher-Schüll 2043A kromatografáló papir 6x4 cm nagyságu darabjában található nyomszennyezések mennyiségét is.

IV. táblázat

Tórium- és cirkónium-nitrát minták nyomszennyezései

Vizsgált anyag	Talált szennyezések, µg/g					
	Cu	Cd	Mn	Co	Zn	Cr
1. $Th(NO_3)_4$	0,89	0,1	0,15	1,3	∅	0,01
2. $Th(NO_3)_4$	1,5	0,01	∅	0,12	5,3	1,42
3. $Th(NO_3)_4$	0,32	0,38	1,48	∅	∅	1,67
1. $Zr(NO_3)_4$	5,0	0,1	∅	3,15	9,75	∅
2. $Zr(NO_3)_4$	3,6	0,27	∅	0,51	5,9	1,38
Szürőpapir	0,81	0,01	0,096	0,18	0,17	0,037

Az egyes elemek meghatározásának hibái: Cu: ±10%, Cd: ±30-40%, Mn: ±20%, Co: ±10%, Zn: ±20% és Cr: ±10%.

I r o d a l o m

[1] Nakai, T., Yajima, S., Fujii, I., Shiba, K.: Symp. on Radiochemistry, Univ. of Kyoto, Japan, 2 p. Nov. 2-3 /1958/

[2] Fujii, I., Natusme, H.: Symp. on Radiochem., Shizouka Univ., Shizouka, Japan. 109 p. Oct. 8-10 /1959/

[3] Nakai, T., Yajima, S., Kamemoto, Y., Shiba, K.: Ibid. 110. Oct. 8-10 /1959/

[4] Nakai, T., Yajima, S., Fujii, I., Kamemoto, Y., Shiba, K.: Nippon Kagaku Zasshi, 82, 197 /1961/

[5] Fujii, I.: Toshiba Rev., Intern. Ed., 17, 765 /1962/

[6] Mullins, W.T., Bate, L.C., Emery, J.F., Dyer, F.F., Leddicotte, G.W., Grimanis, A.P.: ORNL-3397 102 /1963/

[7] Markovitz, S.S., Mahony, J.D.: Anal. Chem., 34, 329 /1962/

[8] Demildt, A.C.: Anal. Chem., 35, 1228 /1963/

[9] Born, H.J., Wilkniss, P.: J. Appl. Rad. Isotopes, 10, 133 /1961/

[10] Maddock, R.S., Meinke, W.W.: US. AEC Progress Report No.9. Nov. 1959-Oct. 1960. 114. Univ. of Michigan

[11] Voigt, A.F., Jewett, G.L., Jacobson, E.C., Malaby, K.L., Woods, J.D.: Proc. of 1965 Int. Conf. on "Modern Trends in Activation Analysis..." 26. /1965/ College Station, Texas.

[12] Alian, A., Shabana, R.: Talanta, 15, 257 /1968/

[13] Getoff, N.: Atompraxis, 5, 472 /1959/

[14] Mackintosh, W.D., Jervis, R.E.: Anal. Chem.,30, 1180 /1958/

[15] Nakai, T., Yajima, S., Fujii, I., Okada, M.: J. Chem. Soc. Japan, 80, 49 /1959/

[16] Stribel, T.: Z. angew. Phys., 9, 293 /1957/

[17] Einfeld, K., Ruppert, E., Tornau, R.: Die Atomwirtschaft, 7, 312 /1962/

[18] Guinn, V.P.: Proc. of Symp. on "Production and Use of Short-lived Radioisotopes from Reactors" Vol. II. 3 /1963/ Vienna

[19] Okada, T., Nishi, T., Matsumoto, C.: AEC-TR-4482, 404 /1960/

[20] Kamemoto, Y., Yamagishi, S.: J. Chem. Soc. Japan, 84, 270 /1963/

[21] Girardi, F., Guzzi, G., Pauly, J.: Radiochim. Acta, 4, 109 /1965/

[22] Zitnansky, B., Sebestian, I.: Chem. Listy, 57, 518 /1963/

[23] Grothe, K.H., Reinhardt, K.: Z. Anal. Chem.,204, 176 /1964/

[24] Hecker, R., Herr, W.: Nukleonik, 4, 19 /1962/

[25] Lobanov, E.M., Khunutdinov, R.I.: Dokl. Akad. Nauk, Üzb. SzSzR, No. 1. 31 /1966/

[26] Haerdi, W., Balsenc, L., Monnier, D.: Chimia, 20, 429 /1966/

[27] Onosov, A.I., Perovskii, A.P.: Radiokhimya, 9, 269 /1967/ Radiokhimya, 9, 271 /1967/

[28] Hudgens, J.E. Jr., Cali, P.J.: Anal. Chem.,24, 171 /1952/

[29] Leddicotte, G.W.: Nucleonics, 14, No. 5. 47 /1956/

[30] Adamski, L., Bouzoyk, J., Jozefowicz, K.: Nukleonika, 5, 277 /1960/

[31] Cerrai, E., Gadda, F.: Energia Nucleare, 9, 317 /1962/

[32] Ricci, E., Hahn, R.L.: Anal. Chem., 37, 742 /1965/

[33] Revel, G., Albert, P.: Compt. Rend., Ser.C., 265, 1443 /1967/

[34] Revel, G., Albert, P.: J. of Nuclear Materials, 25, 87 /1968/

[35] Möller, E., Starfelt, N.: Nucl.Instr. and Methods, 50, 225 /1967/

[36] Fournet, L., Deschamps, N., Albert, P.: Compt. Rend. 254, 1640 /1962/

[37] Albert, P., Deyris, M., Deschamps, N., Fournet, L.: Proc. of Symp. on "Production and Use of Short-lived Radioisotopes from Reactors". Vol. II. 53 /1963/ Vienna

[38] Fournet, L., Albert, P.: Compt. Rend. 254, 1076 /1962/

[39] Mignonsin, E.P., Albert, P.: Bull. Soc. Chim. France, 2, 553 /1965/

[40] Fournet, L.: Ann. Chim., 7, 763 /1962/

[41] Albert, P., Cuypers, M., Lesbats, A., Mignonsin, E.: Proc. of 1965 Int. Conf. on "Modern Trends in Act. Analysis..." 310 /1965/ College Station, Texas

[42] Ördögh, M., Szabó E., Hegedüs, D.: Symp. on Radiochem. Meth. of Anal. Vol. 1, 175 /1965/

[43] Ördögh, M., Upor-Juvancz, V.: Journ. of Chromat., 25, 464 /1966/

[44] Arden, T.V., Burstall, F.H., Linstead, R.P.: J. Chem. Soc. 5311 /1949/

[45] Burstall, F.H., Wells, R.A.: Analyst, 76, 396 /1951/

[46] Rabbitts, F.T.: Can. Mining Met. Bull. No. 477, 27 /1952/

[47] Ördögh, M.: KFKI Közl., 7, 76 /1959/

[48] Kember, N.F.: Analyst, 77, 78 /1952/

[49] Almássy, Gy., Ördögh, M., Hadobás, B.: Magy. Kém. F., 64, 240 /1958/

[50] Erdey, L.: A kémiai analizis sulyszerinti módszerei I-III. Akad. Kiadó, 1960

Érkezett: 1970. szept. 3.
KFKI Közl., 18.évf. 4-6. szám, 1970.

AMPLITUDÓ-DIGITÁL ÁTALAKITÁS SZÁMLÁLÁSI VESZTESÉGEINEK SZÁMITÓGÉPES SZIMULÁLÁSA

Irta: Tarnay Katalin, Reznyikov Garij

Összefoglalás

A cikkben összefoglaljuk az amplitudó-analizis leggyakoribb hibáit, közöljük az átalakitás közben fellépő számlázási veszteségek meghatározásának klasszikus összefüggéseit és részletesen ismertetjük az amplitudó-analizis és a számlálási veszteségek számitógépes feldolgozásra alkalmas szimulálását.

Az Elektronikus Főosztályon kidolgozott nagyfelbontóképességü amplitudó-digitál átalakitó fejlesztésével párhuzamosan programkészletet állitottunk össze az átalakitás szimulálására.

Ebben a cikkben az amplitudó-analizis leggyakoribb hibáit foglaljuk össze, közöljük az átalakitás közben fellépő számlálási veszteségek meghatározásának klasszikus összefüggéseit és részletesen ismertetjük az amplitudó-analizis és a számlálási veszteségek számitógépes feldolgozásra alkalmas szimulálását.

1. Amplitudóanalizis

Az 1. ábrán látható a reaktor-alközpont egyik bemenő egysége, a nagyfelbontóképességü, 8192 csatornás amplitudó-digitál átalakitó /tipusa: NE-289/, amely amplitudóspektrumok mérésére alkalmas [1].

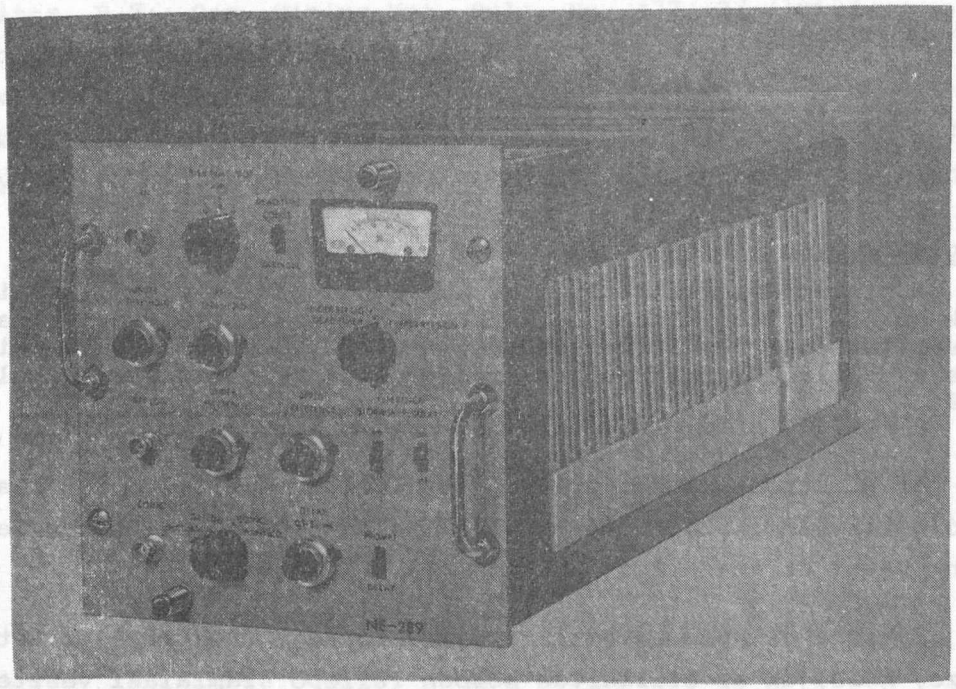
A mért komplex spektrumok értékelhetőségét idő- és amplitudó-függő spektrumtorzulás nehezíti. Ez a részecskedetektálás statisztikájából eredő téves információ és az amplitudó-digitál átalakitás hibája miatt keletkezik.

Vizsgáljuk meg a spektrumtorzulás főbb okait:

A részecskék időeloszlásának statisztikája. Ha valamilyen radioaktiv bomlási jelenséget vizsgálunk, akkor annak valószinüsége, hogy egy atommag t ideig nem bomlik el

---

* Részletek a novoszibirszki "Tudományos kutatások automatizálása digitális számitógépek alkalmazásával" c. konferencián /1970. szeptember 14-18/ elhangzott előadásból.



1. ábra

8192 csatornás amplitudó-digitál átalakitó
/NE-289/

$$P(t) = e^{-nt} \qquad /1/$$

ahol n a sugárzás intenzitásával arányos állandó. P(t) deriváltja, a valószinüségsürüség megadja azt a valószinüséget, hogy T pillanatot követően az első beütés dt időpontban következzen be, vagyis

$$P(t) = \frac{dP(t)}{dt} = ne^{-nt} \qquad /2/$$

A számitógépes szimulálásnál a /2/ összefüggést használtuk fel az ennek megfelelő szubrutint rdmexp 1 (n) névvel jelöltük.

Általánosabb alakban a Poisson-eloszlással jellemezhetjük annak valószinüségét, hogy T idő alatt éppen m impulzus érkezzék:

$$P(m,t) = \frac{(nT)^m}{m!} e^{-nT} \qquad /3/$$

A részecskék amplitudóeloszlásának statisztikája normáleloszlással jellemezhető. Bár az izotópok diszkrét energiákon sugároznak, az amplitudóanalizátorokkal mért csucsok általában több csatornába esnek. Az első hibaforrás az, hogy a félvezető vagy szcintillációs kristályban nem végtelen sok részecske, hanem P valószinüséggel N diszkrét számu részecske keletkezik. A félvezető kristályban keletkező elektronlyuk-párok, ill. multiplierrel történő mérésnél a fotokatódból kilépő fotonok Bernoulli-eloszlást követnek, amely Gauss-eloszláshoz tart, ha N elég nagy:

$$G(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} e^{-\frac{(x-m)^2}{\sigma^2}} \qquad /4/$$

ahol

m - az eloszlás első momentuma, a várható érték;

σ^2- az eloszlás második momentuma, a szórásnégyzet.

A számitógépes szimulálásnál a /4/ összefüggésnek megfelelő szubrutint rdmnorm 1(m,s) névvel jelöltük.

Az amplitudó-digitál átalakitás is idő- és amplitudófüggő hibákat okoz. Az időfüggő hibák közül elsősorban az átalakitás véges idejét kell megemliteni, ami miatt számlálási veszteség keletkezik. Az átalakitási idő lehet állandó vagy változó. A változó átalakitási idő a mérendő amplitudótól függ, pl. azzal egyenesen arányos. Igy az idő. és amplitudófüggő hibák összekapcsolódnak. Koincidencia-mérésekben hibát okoz még a koincidenciaáramkör időfelbontóképessége. Nagy beütésszámu izotópok analizálásánál a pile-up effektus már nem hanyagolható el és jelentkezése jellegzetes spekt-

rumtorzuláshoz vezet. Az átalakitó fontos jellemzője a differenciális nemlinearitás, amely az energiaskála egyenletességét jellemzi. Hibát okoz a bemenő erősitő zaja is. Érdemes megemliteni még a kvantálási hibát, amely az amplitudó-digitál átalakitásból ered. Nagy felbontóképességü konverterekнél az alkatrészek hőmérsékletfüggése többcsatornányi instabilitást okozhat. Az instabilitás miatt az átalakitási karakterisztika nullpontja és meredeksége megváltozik. A kifejlesztett konverterben kéthurku szabályozási rendszer müködik, amely ezt a megváltozást csökkenteni igyekszik.

Bár a spektrumtorzulás okait 20-22 program segitségével szimuláltuk [2], most elsősorban a számlálási veszteségek vizsgálatával foglalkozunk.

2. Amplitudó-digitál átalakitás számlálási veszteségeinek vizsgálata klasszikus módszerekkel

Az amplitudóspektrumok energiafüggő és intenzitásfüggő megváltozásának klasszikus módszereit részletesen kidolgozták. Ezek közül kiragadjuk a számlálási veszteségre vonatkozó összefüggéseket [3].

A számlálási veszteséget a regisztrált részecskék és összes beérkező részecskék aránya határozza meg:

$$V = \frac{n_r}{n} = \frac{1}{1+g(T)} \qquad /5/$$

ahol

n - a másodpercenként beérkező részecskék száma;
n_r - a másodpercenként regisztrált részecskék száma;
$g(T)$- egy holtidő-periódus alatt elvesző impulzusok átlagos száma;
T - a holtidő.

Vizsgáljuk meg a számlálási veszteséget állandó holtidő esetén. Egy mért impulzust követő T holtidő alatt érkező és igy nem regisztrált impulzusok száma:

$$g(T) = \sum_{m=1}^{\infty} m \cdot P(m,T) \qquad /6/$$

ahol

$P(m,T)$- annak valószinüsége, hogy T idő alatt éppen m impulzus érkezett.

Mivel $P(m,T)$ Poisson-eloszlás, tehát

$$g(T) = \sum_{m=1}^{\infty} m \frac{(nT)^m}{m!} e^{-nT} = nT \qquad /7/$$

Igy az állandó holtidő esetén jelentkező számlálási veszteség jól ismert képletét kapjuk:

$$V = \frac{1}{1+nT} \qquad /8/$$

Változó holtidő esetén legyen a holtidő-eloszlás függvénye $q(T)$. Egy holtidő-periódus alatt elvesző impulzusok átlagos száma:

$$G(T) = \int_T g(T)q(T)dT = n \int_T T \; q(T)\, dT = n\, M_{1T} \qquad /9/$$

ahol

M_{1T} - a $q(T)$ holtidő-függvény első momentuma.

Mivel változó holtidő esetén $q(T)$ az amplitudóeloszlástól függ, határozzuk meg a $q(T)$ és az $A(T)$ amplitudóeloszlás közti összefüggést. Tételezzük fel, hogy a konverter a lineáris kódolás elvén müködik és az adatokat ferritmagos tárolóban gyüjtjük, tehát a holtidő

$$T = T_m + cA \qquad /10/$$

ahol

T_m - a tárolási holtidő;
cA - egy amplitudó-idő átalakitási periódus.

A holtidő-eloszlást az amplitudóeloszlás transzformálása utján kapjuk, vagyis

$$q(T) = f[A(T)]\, \frac{dA(T)}{dT} = \frac{1}{c}\, f\left(\frac{T-T_m}{c}\right) \qquad /11/$$

Gauss-eloszlás esetén a számlálási veszteség jó közelitéssel

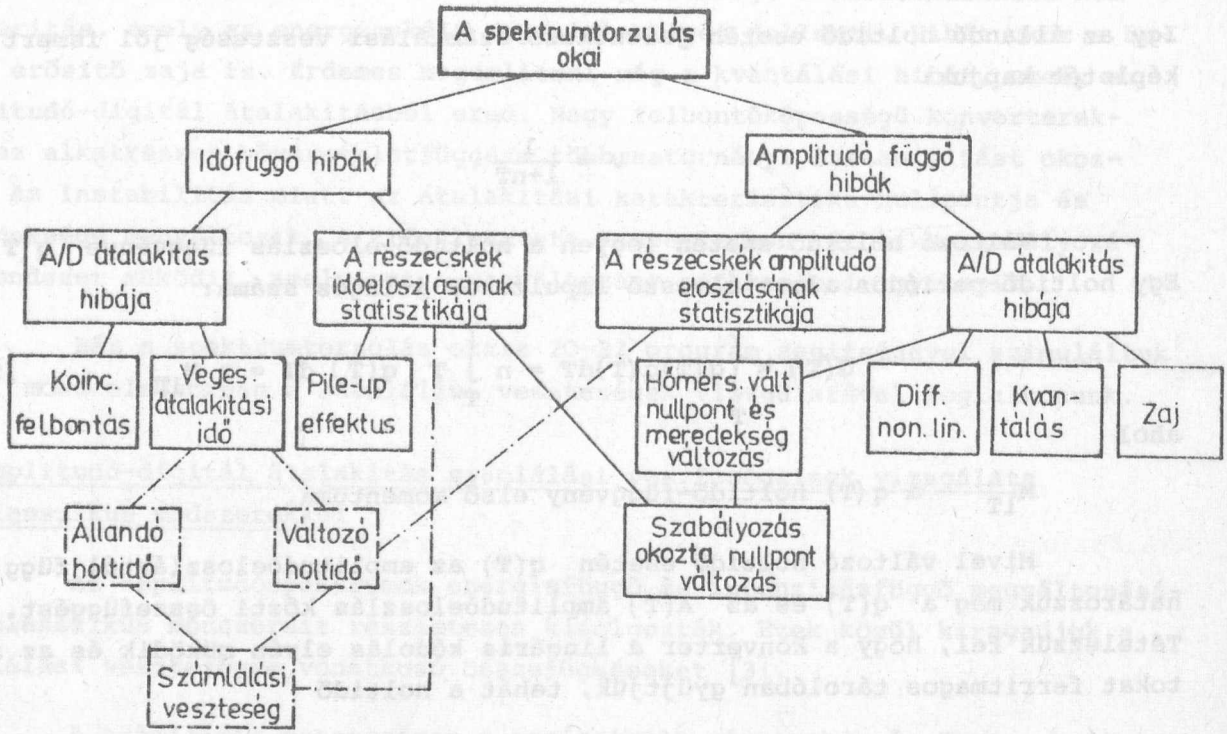
$$G(T) = nT_m + nc\, M_{1G} \qquad /12/$$

ahol

M_{1G} - a Gauss-eloszlás várható értéke.

Ha $c = 0$, akkor visszakapjuk az állandó holtidőhöz tartozó kifejezést.

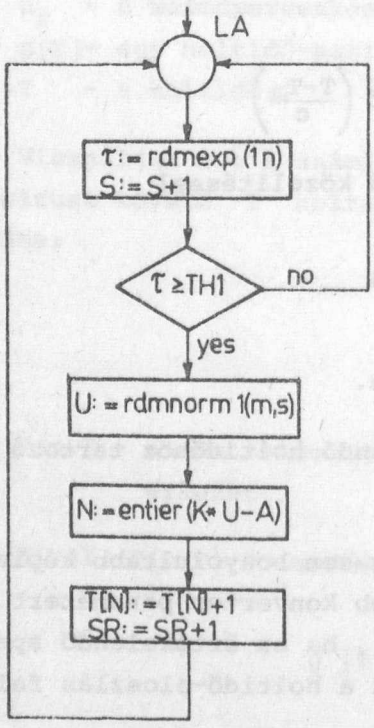
Ezek az alapvető összefüggések. Lényegesen bonyolultabb képletekkel jellemezhetjük a számlálási veszteséget, ha több konverter paramétert figyelembe akarunk venni. További nehézséget jelent , ha az értékelendő spektrum több, különböző energiáju csucsból áll, amelyek a holtidő-eloszlás felirását megnehezitik.



2. ábra

3. Az amplitudó-digitál átalakitás szimulálása

Az amplitudó-digitál átalakitás alapprogramja a 3. ábrán látható.



3. ábra

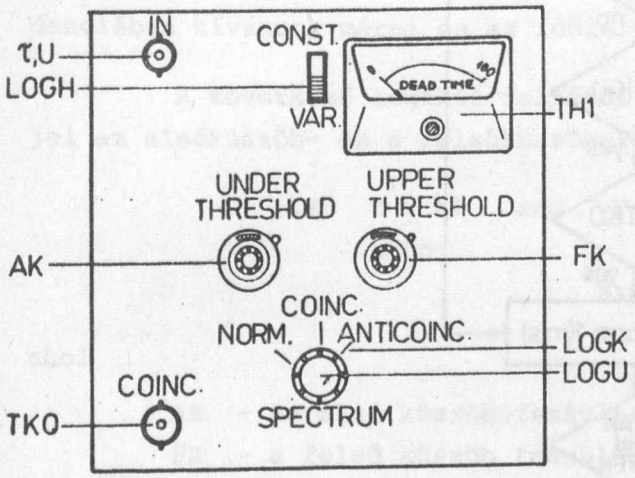
Minden ciklus kezdetén egy τ véletlen számot hivunk be az n paraméterü exponenciális eloszlásból. Az exponenciális eloszlásu véletlen számokat az rdmexp 1(n) valós függvényeljárás állitja elő. Ha τ az előző jelhez tartozó TH1 holtidőn belül van, akkor uj időpontot hivunk be. Ha az rdmexp 1(n) szubrutinnal aktivizált időpont a holtidő befejezte után van, akkor a mérendő feszültségamplitudóra jellemző, normáleloszlásu U véletlen számot állitunk elő az rdmnorm 1(m,s) valós függvényeljárás segitségével.

Megjegyezzük, hogy mindkét szubrutin alaprutinja az YNEXTRAN 2, amely a /0,1/ intervallumban lévő

kváziegyenletes eloszlásból pszeudóvéletlen számokat állit elő. Mindkét szubrutin az alaprutin véletlen számait az előirt függvénykapcsolat szerint transzformálja.

Az J bemenő feszültségből a konverter paraméterek ismeretében meghatározhatjuk a csatornaszámot, azután az igy nyert csatornaszámhoz tartozó csatornatartalmat eggyel növeljük. A regisztrált események számát az SR regiszterbe számláljuk. Ezután a ciklus ujra indul. Ha S egy előre meghatározott maximális értéket elér, akkor a τ, U értékpárok behivása befejeződik. A ciklusból való kilépés után kiirhatjuk vagy kirajzolhatjuk az amplitudóspektrumot. A számlálási veszteséget az SR/S arány adja meg.

Az amplitudó-digitál átalakitás alapprogramját célszerü még a főbb konverter paraméterekkel kibőviteni. A 4., illetve 4/a. ábrán látható a konverter előlapjának egyszerüsitett rajza és a kibővitett program.



4. ábra

A SPECTRUM elnevezésü üzemmód-kapcsoló lehetővé teszi normál, koincidencia vagy antikoincidencia üzemmód kiválasztását. A koincidenciajel periodikus vagy statisztikus lehet. A mérési tartomány alsó ill. felső határát az alsóküszöb és felsőküszöb helipotokkal változtathatjuk. A holtidő-kapcsoló állásától függően a holtidő állandó vagy változó lehet.

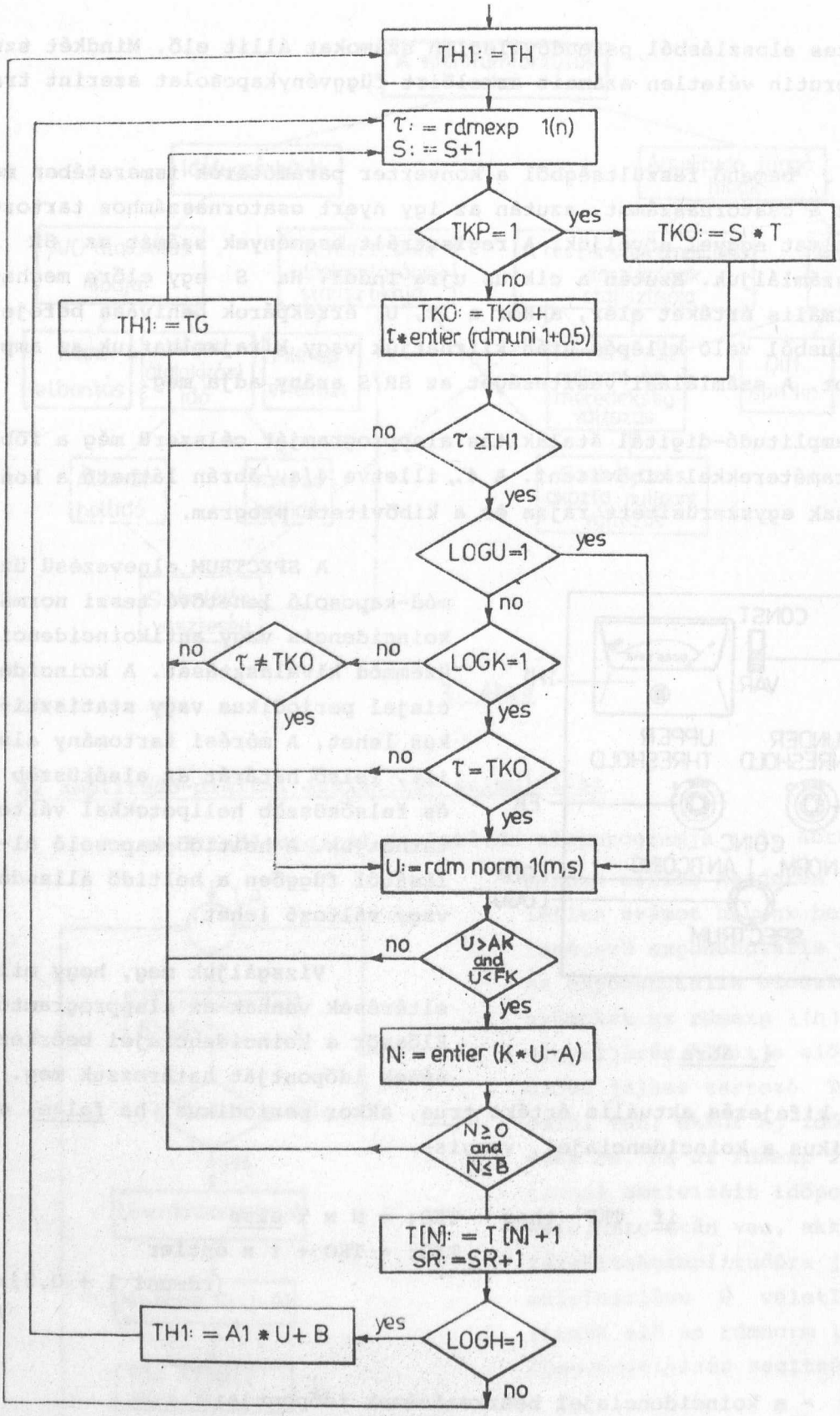
Vizsgáljuk meg, hogy milyen eltérések vannak az alapprogramtól. Először a koincidenciajel beérkezésének időpontját határozzuk meg. Ha TKP logikai kifejezés aktuális értéke true, akkor periodikus, ha false, akkor statisztikus a koincidenciajel, vagyis

```
if TKP then   TKO: = N * T else
              TKO: = TKO + τ * entier
                                (rdmuni 1 + 0,5);
```

/13/

ahol

TKO - a koincidenciajel beérkezésének időpontja;
T - a koincidenciajel ismétlődési ideje.


TH1: =TH
τ: = rdmexp 1(n)
S: = S+1
TKP=1
yes
TKO: = S * T
no
TKO: = TKO +
τ * entier (rdm,uni 1+0,5)
TH1: = TG
no
τ ≥TH1
yes
LOGU=1
yes
no
no
τ ≠ TKO
no
LOGK=1
yes
yes
no
τ = TKO
yes
U: = rdm norm 1(m,s)
no
U>AK
and
U<FK
yes
N: = entier (K*U-A)
N≥0
and
N≤B
T[N]: = T[N] +1
SR: =SR+1
TH1: = A1 * U+ B
yes
LOGH=1
no

4/a. ábra

Az rdmuni 1 valós függvényeljárás minden aktivizálásra egyetlen pszeudovéletlen számot ad a /0,1/ intervállumban kváziegyenletes valószinüségi eloszlásból.

Az előlapon lévő kapcsolók beállitását a következő logikai feltétel vizsgálja:

```
if   LOGU
     or (LOGK and (τ ≥ 0.9 * TKO and τ ≤ 1.1 * TKO))
     or (not LOGK and (τ ≤ 0.9 * TKO or τ ≥ 1.1 * TKO))
then
          U: = rdmnorm 1(m,s) else goto LX;                    /14/
```

Tehát az amplitudót meghatározó U véletlen szám beolvasására csak akkor kerül sor, ha az üzemmód-kapcsoló normál állásban van, vagy koincidencia-állásban van és a koincidencia-feltételek teljesülnek, vagy antikoincidenciában kivánunk mérni és az időfeltételek nem teljesülnek.

A következő logikai feltétel azt vizsgálja meg, hogy az U bemenő jel az alsóküszöb- és a felsőküszöb-feszültségek közötti érték.

```
if   U ≥ AK   and   U ≤ FK
then
          N: = entier (K * U-A)                                /15/
```

ahol

AK - az alsó küszöb feszültsége;
FK - a felső küszöb feszültsége.

Ha az N csatornaszám az analizálási tartományba esik /a maximális csatornaszám B/, akkor megnöveljük a csatornatartalmat 1-gyel.

Ha a holtidő állandó, akkor az alapprogram szerint vesszük figyelembe. Ha pedig változó, akkor

```
TH1: = A1 * U+B                                                /16/
```

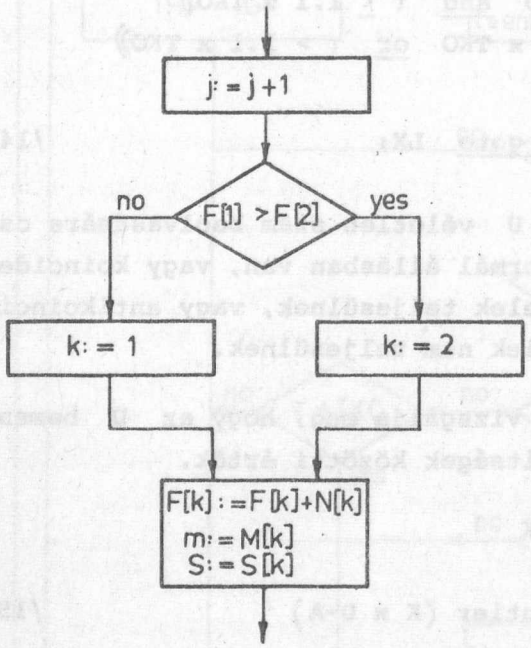
összefüggés alapján határozzuk meg,
ahol

A1 - a csatornánkénti holtidő;
B - a változó holtidő állandó komponense.

Ha valamelyik logikai feltétel nem teljesül, akkor egy rövid veszteségi időnek, a gyorskisütés időtartamának /TG/ számitásba vétele után a ciklus ujra indul.

A kapott információ kiértékelése az alapprogramhoz hasonlóan történik.

Programjainkban eddig egyetlen csucs előállitásával foglalkoztunk. Ha több csucsot időben egymás után állitunk elő, akkor az amplitudóspektrumot meghamisitjuk. Ezért a normáleloszlásu véletlen szám behivása előtt még egy segédprogramot /5. ábra/ iktattunk be, amely különböző normáleloszlásokból választ ki számokat. A segédprogramban két csucsot állitunk elő. Az intenzitásarányoktól függ, hogy egymásután hányszor választunk ki számokat az egyik eloszlásból és azután hányszor a másikból. Ez a program tetszőleges számu csucsra kibővithető.



5. ábra

Összefoglalás

Az amplitudóanalizis és spektrumtorzulás néhány jellemzőjét vizsgáltuk meg klasszikus módszerekkel és szimulálással.

A szimulálás előnyei:

1. Pontos eredményt ad egyszerü számitási módszerek segitségével, az eredményeket a méréshez hasonlóan közvetlenül kirajzolt spektrum alakjában vagy táblázatban adhatjuk meg;
2. A programba egyszerü módon beiktathatók a különböző konverter paraméterek, vagy bemenő jel jellemzők, és igy tetszőleges mennyiség függvényében meghatározhatjuk a számlálási veszteséget vagy spektrumtorzulást;
3. A blokkséma megfelelő átalakitással más mérőrendszerek számlálási veszteségének meghatározására is alkalmas, különösen ha a mérőrendszer több paraméterének megváltozása valamilyen valószinüségi eloszlást követ.

Köszönetnyilvánitás

Köszönetet mondunk Almási Lajos, Blasovszky Miklós és Szanyi László tudományos munkatársaknak értékes megjegyzéseikért.

Irodalom

[1] Reznyikov, Garij, Tarnay, K.: Nagyfelbontóképességü amplitudó-digitál átalakitó KFKI Közl., 1970. 2. szám.

[2] Tarnay, K.: Amplitudómérés szimulálása. Mérés és Automatika 1970. okt.

[3] Soucek, B.: Losses in systems with variable dead time, Nuclear Instruments and Methods 27 /1964/

Érkezett: 1970. szept. 14.
KFKI Közl., 18. 4-6. szam, 1970.

I=I+1
FI(I)>FI(I-1)
no
igen
K=1
K=2

FELÜLETI ZÁRÓRÉTEGES Si FÉLVEZETŐ DETEKTOR ELŐÁLLITÁSA

Irta: Balázs Árpád

Összefoglalás

Kidolgoztunk egy megbizható, átlagosan 80 %-os hatásfoku technológiát a fenti tipusu félvezető detektor előállitására. Megmértük a detektor jellemző paramétereit. A detektor fő jellemzői megfelelnek a nemzetközi szinvonalnak és a Magfizikai Főosztályon folyó kisérletek által támasztott követelményeknek.

Bevezetés

Az elmult években a Magfizikai Főosztály laboratóriumai egyre nagyobb számban kivántak félvezető detektorokat felhasználni a tudományos kisérleti munkákban. Ennek az igénynek kielégitésére két lehetséges mód kinálkozott: egyrészt kész import detektorok beszerzése, másrészt pedig import nyersanyagból a Főosztály Technológiai Laboratóriumában történő előállitásuk. A kész detektorok beszerzésének kétségtelen előnye volt, hogy garantáltan kiváló minőségü, tetszés szerinti tipust lehetett megrendelni, mig a Főosztály Technológiai Laboratóriumában először ki kellett dolgozni egy megbizható metodikát a detektor gyártására. Ez utóbbinak azonban feltétlen előnye, hogy - mint a későbbiekben látni fogjuk - lényegesen olcsóbb, tetszés szerinti időre, nagy számban, folyamatosan elkészithető, tehát sem pénzügyi, sem pedig a rendelések hosszu átfutási idejéből származó problémákkal nem kell számolnunk. Ezek voltak azok a tényezők tehát, amelyek szükségessé tették a fenti detektortipusok saját laboratóriumunkban történő előállitását.

A Magfizikai Főosztályon már korábban is folytak eredményes kisérletek, főleg kisebb felületü detektortipusok készitésére, amelyeket rendszeresen felhasználtak a különböző mérésekben.

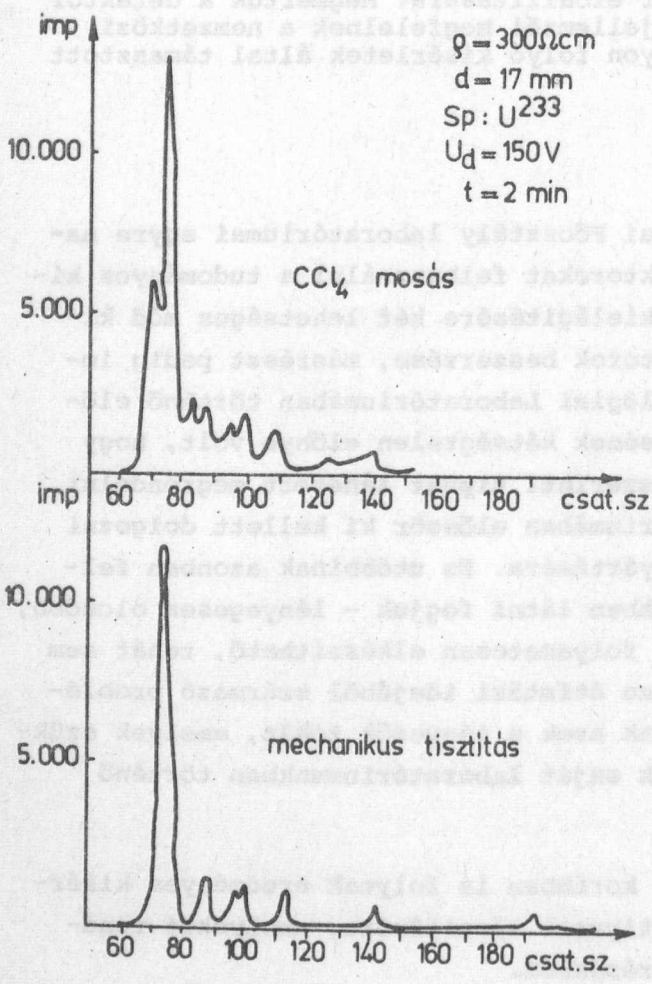
A detektor készitésének technológiája

1. Előkészités

A nyersanyag n tipusu Si egykristály rud, amelyet 0,8 mm vastag szeletekre vágatunk. A kellő felületi simaság elérésére a Si korongokat

előbb 300-as /KA-6/, majd 600-as /F-20/ szemcsefinomságu SiC csiszolóporral mattra csiszoljuk. Tapasztalataink szerint nem elég csak a korongok két oldalát lecsiszolni, hanem körbe, a perem mentén is végig kell csiszolni őket, mert az eljárás egyuttal mechanikai tisztitás is. Ezután a korongokat néhány liter desztillált, majd dezionizált vizben alaposan átmossuk, majd 42 KHz-es ultrahangos mosásnak vetjük alá, itt is gyakorta cserélve a mosófolyadékot.

Az ilymódon elért rendkivüli tisztaságot a továbbiakban is fenn kell tartani, mert ez a detektor jóságát, sőt használhatóságát meghatározó tényező.



1. ábra

Jól látható a CCl_4-os mosásnak alávetett kristály esetében a szennyezés okozta kettős csucsok megjelenése, ami a szennyezés miatti rekombinációs centrumok létrejöttével magyarázható.

Ismeretesek olyan tisztitási eljárások is, amikor a korongokat a csiszolás után szerves oldószerrel, igy pl. kloroformmal, széntetrakloriddal még egyszer megtisztitják. Tapasztalataink szerint azonban ez nem vált be, mert a feloldott szennyezéseket a szerves oldószer gyors elpárolgása következtében szétteritjük a kristály teljes felületén, bevisszük a mikroszkopikus és makroszkopikus egyenetlenségekbe, ahonnan többé eltávolitani nem lehet, és a későbbiek folyamán ez többnyire alapvetően károsan befolyásolja a detektor minőségét. Erre vonatkozik 1. sz. ábránk.

A mosás után teljes kiszáritott Si korongok egyik oldalát un. lehuzható fedőlakkal vonjuk be, aminek az a célja, hogy a következő lépésben sorrakerülő savfürdő a lakkal bevont felülettel ne érintkezhessen. A felhasznált lakk vinil-polimer PC-2 tipusu, amelyből 6 réteget kenünk fel szemcseppentővel. Kb. 6-8 órai száradás után a lakk saválló, gumiszerüen nyulik, és igen jó a tapadóképessége.

2. P tipusu felületi réteg kialakitása

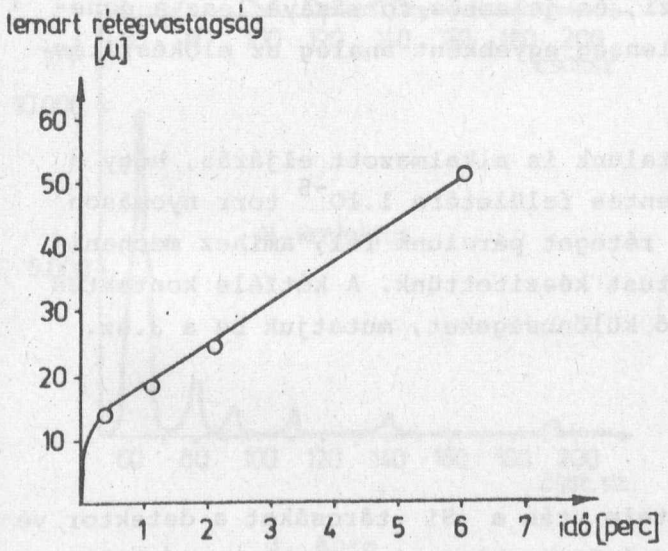
Az eredetileg n tipusu Si egykristályon az ellentétes vezetési tipusu p réteget egy speciális savkeverékben történő, un. polirmarással hozzuk létre.

Az analitikai tisztaságu savkeverék összetétele:

3tf HNO_3	96 %
1tf H_2F_2	38 %
1tf CH_3COOH	100 %

A savkeverék mennyisége kb. 60 ml/Si tárcsa.

A savfürdőt -5° és 0° C körül kell tartani, mert csak igy biztositható a kellő sebességü és felületi simaságot eredményező marás. A marási idő ilyen hőmérsékleten legkevesebb 5 perc, ennél tovább csak abban az esetben érdemes folytatni, ha a kristálylapka vastagságát csökkenteni akarjuk. A marás sebességét kimértük, és a 2. sz. ábrán mutatjuk be. A marás alatt a savkeveréket és benne a kristályt állandóan mozgatni kell, ellenkező esetben a gyors oldódás miatti intenziv melegedés következtében a védőlakk leoldódik, másrészt a felületre adszorbeálódó gázbuborékok el nem távolitása rücskös, egyenetlen felületet eredményez.



2. ábra

A megfelelő ideig történt polirmarás után a savkeverékre hirtelen 2-3 dl 0° C-os dezionizált vizet öntünk, és ezzel megszüntetjük a további oldódást. Azért kell ennek is 0° C-os-nak lenni, mert a viz-sav oldódási hője exotherm, és igy a közeg felmelegedve a védőlakkot feltépheti. A vizes savkeveréket a továbbiakban óvatosan lehigitjuk, ugyhogy a Si tárcsa felületét ne érhesse levegő, mert a hirtelen bekövetkező parciális oxidálódás miatt egyenetlen vastagságu, félvezető detektor céljaira nem alkalmas oxidréteg keletkezik. A higitást kb. 2 liter dezionizált vizzel elvégezve már kiemelhetjük a tárcsát, a lakkot óvatosan lehuzzuk, és áttesszük egy mosó edénybe, amely ugyancsak polietilénből készült, és ismét kb. 2 liter dezionizált vizzel átmossuk, majd ezt a processzust még két másik edénybe megis-

mételjük. Célszerü a mosóedényeket számmal ellátni, hogy biztosithassuk a mosási sorrend változatlanságát. A legutolsó mosás után a mosó folyadékot egy viz-ellenállás mérőcellába öntjük, és amennyiben az ellenállás legalább 4 MΩ, akkor a tisztaság kielégitőnek mondható. Ezután a Si tárcsát egy tiszta, szálmentes szürőpapirra helyezzük és megszáritjuk.

3. Ohmikus kontaktus elkészitése

Az ohmikus kontaktus jósága döntően befolyásolja félvezető detektorunk használhatóságát. Ha a legkisebb mértékü oxidáció is bekövetkezne a kontaktus alatt, ez azt jelentené, hogy itt is kialakul egy p-n átmenet, ami egy nyitó-irányba kapcsolt félvezetőként müködve a visszáramot igen megnövelné, felhasználásra alkalmatlanná tenné.

Megvizsgáltuk a kontaktuskészitésnek egy korábban széles körben alkalmazott módját, hogy ti. a polirmarás előtt az egész Si tárcsára kémiai uton Ni-t választanak le, majd az egyik oldalt lakkozva a felesleges Ni-t lemarják hig HNO_3-ban, és eztuán következik a polirmarás.

Véleményünk szerint ez a metódus azzal a veszéllyel jár, hogy a HNO_3 Ni-sóját nem lehet a Si egyenetlenségeiből eltávolitani, igy az bekerül a polirfürdőbe, azt elszennyezi, és jelentős forrásává lesz a generációs visszáram-komponensnek. A jelenség egyébként analóg az előkészitésnél tárgyaltakkal.

Megfelelőnek látszik és általunk is alkalmazott eljárás, hogy a polirmarás után a Si tárcsa oxidmentes felületére 1.10^{-5} torr nyomáson igen vastag, kb. 2 mg/cm^2 aluminium réteget párolunk fel, amihez mechanikailag jól illeszthető rugós kontaktust készitettünk. A kétféle kontaktus alkalmazását, illetve az ebből adódó különbségeket, mutatjuk be a 3.sz. ábrán.

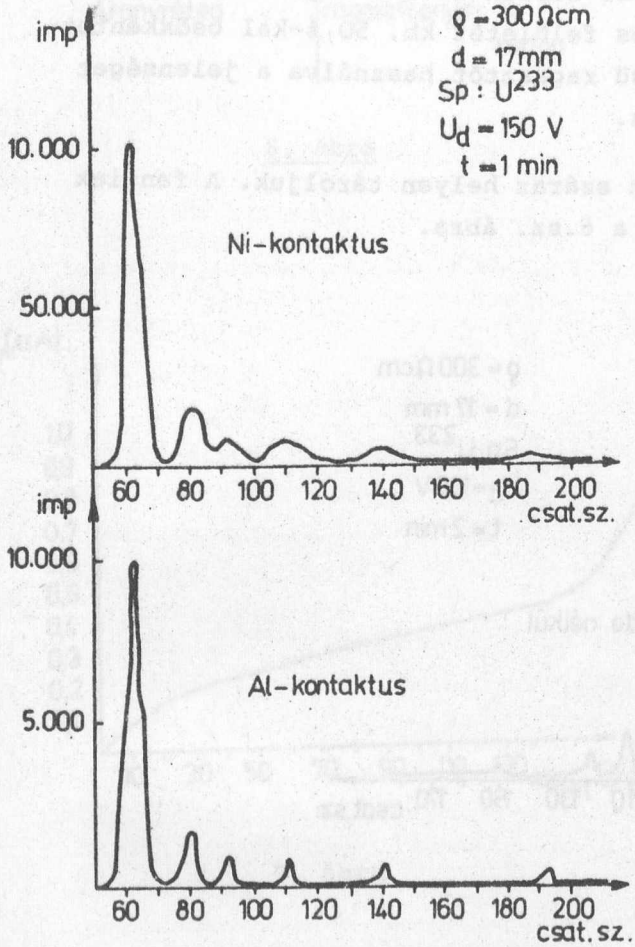
4. Felületi oxidréteg kialakulása

Az ohmikus kontaktus felvitele után a Si tárcsákat a detektor védelmét és egyuttal villamos csatlakozását is biztositó tokba, majd telitett vizgőzbe helyezzük.

A telitett vizgőz elősegiti a stabil, intenziv oxidréteg kialakulását, és mérési tapasztalataink szerint jelentősen hozzájárul a detektor minőségi szinvonalának /visszáram, felbontóképesség/ emeléséhez. Egyes detektoroknál előfordulhat olyan jelenség, hogy egy jó paraméterekkel rendelkező félvezető vákuumkamrába helyezve hirtelen leromlik, aminek magyarázata a felületi oxidréteg lebomlása. Korábbi nézetekkel szemben ez azonban nem a fenti eljárás hibája, mert ugyanez a jelenség a "száraz" levegőn tör-

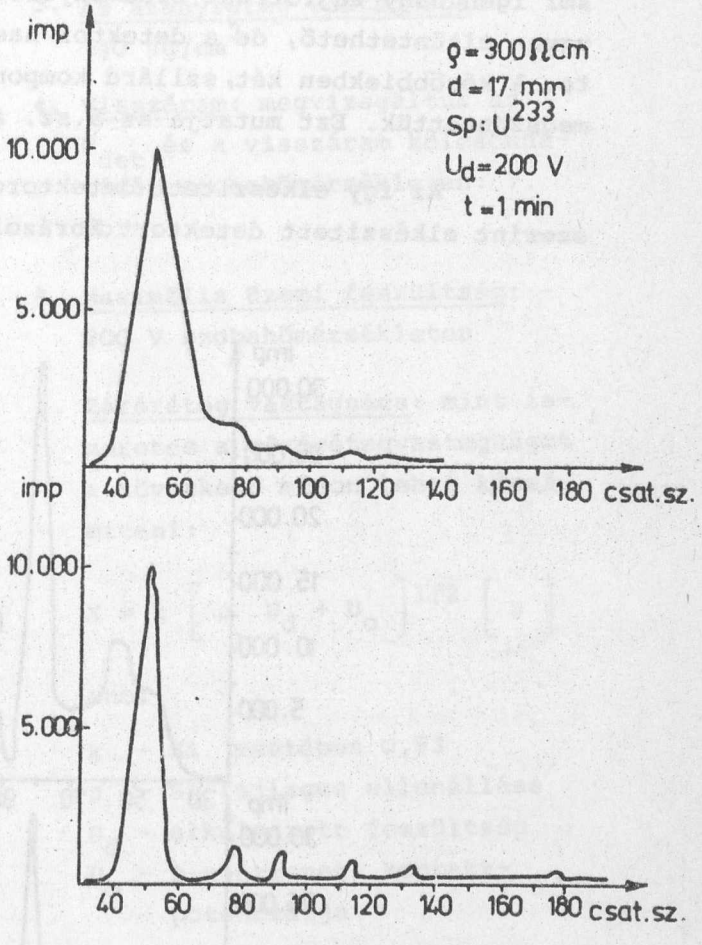
tenő oxidáció utáni leszivás következtében is előfordul. A 4.sz. ábrán bemutatjuk a kétféle eljárás után tapasztaltakat, természetesen ugyanazon a Si kristályon.

Az oxidréteg kialakulása lényegében 3-5 nap alatt befejeződik, illetve stabilizálódik.



3. ábra

Jól látható, hogy a Ni kontaktussal készitett detektoraink felbontása rosszabb.



4. ábra

A száraz oxidáció után nem alakult ki a megfelelő oxidréteg, igy rossz felbontásu detektort kaptunk.

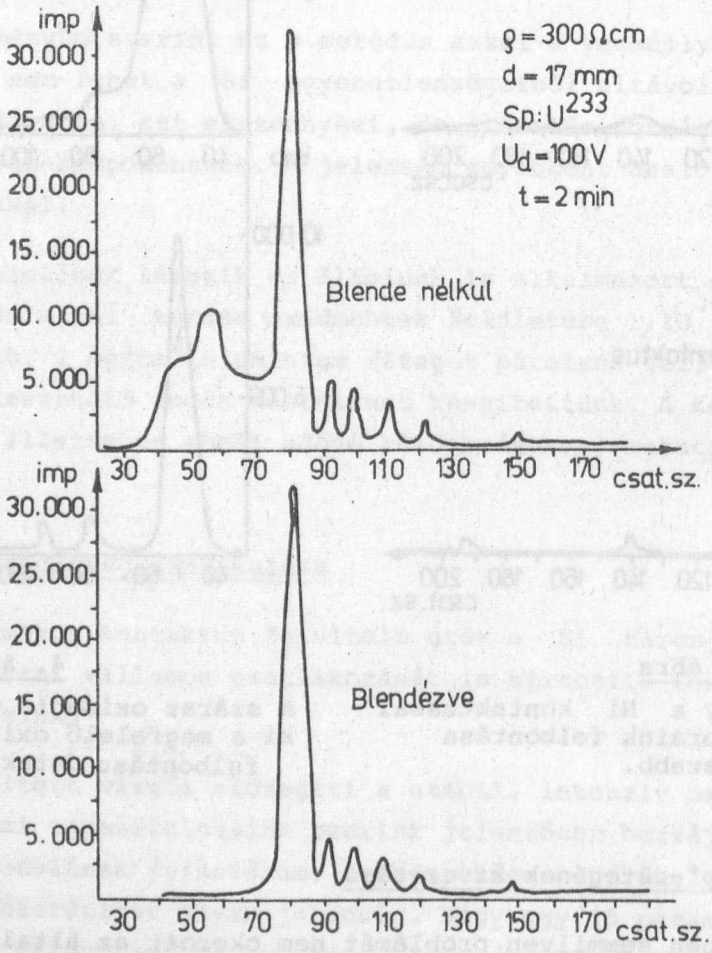
5. A detektor "p"-rétegének kivezetése

Lényegében semmilyen problémát nem okozott az általánosan használt 40-70 $\mu gr/cm^2$ vastag aranyréteg felvitele, amely vákuum gőzöléssel történt, 1.10^{-5} torr nyomáson. Az aranyréteg vastagságát jelentős részben ez határozza meg.

Az aranyréteghez való csatlakozást ugy oldottuk meg, hogy az aranyréteg és a detektor közé gombostűfejnyi araldit 125B polimergyantát cseppentettünk, majd erre a polimerizáció után 2-300 µg-nyi aranyat pároltunk. Tapasztalataink szerint a kontaktus készitésének ez a módja jó, mechanikailag szilárd, elektronikusan kifogástalan.

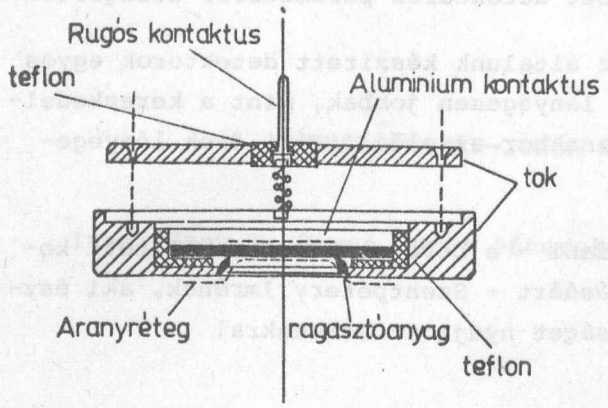
Egyetlen problémát okozott kezdetben, hogy a folyékony Härter ragasztókomponens felületi diffuziója folytán szennyezte a detektor felületét, ami igen nagy zajforrást eredményezett. Ez leblendézve a ragasztás helyén ugyan eltüntethető, de a detektor hasznos felületét kb. 50 %-kal csökkentette. A későbbiekben két, szilárd komponensü ragasztót használva a jelenséget megszüntettük. Ezt mutatja az 5.sz. ábra.

Az igy elkészitett detektorokat száraz helyen tároljuk. A fentiek szerint elkészitett detektort ábrázolja a 6.sz. ábra.

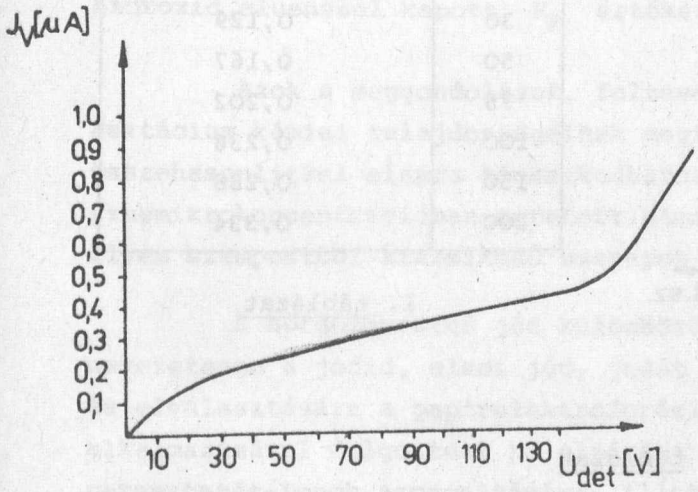


5. ábra

Az 1. görbe a blende nélküli, a 2. görbe ugyanez a detektor blendézve.



6. ábra



7. ábra

A detektor minőségi jellemzői

1. A nyersanyagot a Hoboken-cég szállitotta, n tipusu, átlagosan 2000 Ωcm-es fajlagos ellenállásu Si egykristály.
2. Hasznos felülete: 2,03 cm^2
3. Az aranyréteg vastagsága: $\sim 40\ \mu g/cm^2$
4. Visszáram: megvizsgáltuk az U_{det} és a visszáram kölcsönhatását szobahőmérsékleten: 7. ábra.
5. Maximális üzemi feszültség: 200 V szobahőmérsékleten
6. Záróréteg vastagsága: mint ismeretes a zárórétegvastagságot a következő módon lehet kiszámitani:

$$X = k \left[\rho \, U_d + U_o \right]^{1/2} \left[\mu \right]$$

ahol

k - Si esetében 0,53
ρ - Si fajlagos ellenállása
U_d - alkalmazott feszültség
U_o - p-n átmeneti kontaktpotenciálja.

Az ilyen módon kiszámitott zárórétegvastagság 0,11 - 0,33 mm-ig adódott. Az 1.sz. táblázatban közöljük a különböző üzemi feszültségekhez tartozó zárórétegvastagság-értékeket.

7. Felbontóképesség: U^{233} radioaktiv forrásból származó 4,7 MeV-os α-részecskék spektrumára vonatkoztatva a felbontás 47 KeV.

A 8.sz. ábrán bemutatjuk 4,7 MeV-os α-részecskék jó felbontásu, kifogástalan, a fenti technológiával készitett detektorral felvett spektrumát.

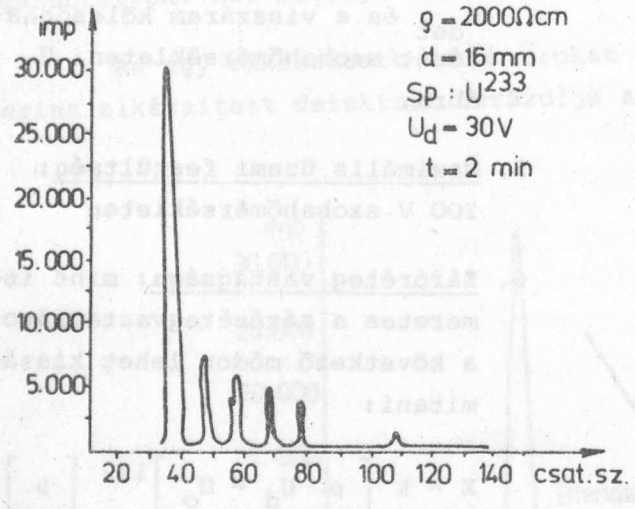
A kisérletek értékelése

Az értékelést a 2. sz. összehasonlitó táblázatban adjuk meg, azzal a

megjegyzéssel, hogy az általunk készitett detektorok paraméterei átlagértékek.

Mint a táblázatból látható, az általunk készitett detektorok egyes paraméterei lényegében azonosak, mások lényegesen jobbak, mint a kereskedelmi forgalomban kapható félvezetők, ugyanakkor az előállitási áruk lényegesen kisebb azok beszerzési áránál.

Itt szeretnénk köszönetet mondani - a bevezetőben már emlitett korábbi kisérletek tapasztalatainak átadásáért - Szentpétery Imrének, aki észrevételeivel, javaslataival nagy segitséget nyujtott számunkra.



8. ábra

U_d V	Záróréteg vastagság mm
25	0,118
30	0,129
50	0,167
75	0,202
100	0,236
150	0,288
200	0,334

1. táblázat

2. táblázat

Detektor-tipus	Fajlagos ellenállás Ωcm	Visszáram μA/V	Hasznos felület cm^2	Felbontás KeV 25° C-on spektrum	Ára
Argonne National Laboratory /USA/	850	1/100 V	0,5	26 KeV/6,1 MeV	-
"	850	0,27/100 V	1	24,4 KeV/ 5,5 MeV	-
M8813-A-50 Toshiba	1000	2/50 V	1,2	-	238 $
M8813-A-25 Toshiba	1000	4/25 V	1,2	-	-
M8810-B-100 Toshiba	4000	1/100 V	0,2	-	86 $
ZK-12	2000	0,4/100 V	2,03	47 KeV	1400 Ft

Érkezett: 1970. nov. 15.
KFKI Közl., 18. évf. 4-6. szám, 1970.

PERASZTATÁT-IONOK ELŐÁLLITÁSA ÉS AZONOSITÁSA

Irta: Nagy G. Ágnes, Gróz Péter, Halkin V.A., Do Kim Tyung, Norszejev J.V.

Összefoglalás

Perasztatát-ionokat állitottunk elő xenondifluoridos, káliumperszulfátos, káliumhipokloridos és platinafelületen történő anódos oxidációval. A képződött perasztácium-ionok azonositására a papirkromatográfiás és papirelektroforézises módszert együttesen alkalmaztuk. Táblázatban közöltük az asztatid, elemi asztácium, asztatát és perasztatát, valamint a hordozómentes jód ezeknek megfelelő vegyértékállapotu formáinak etanol és ammoniumhidroxid eluenssel kapott R_F értékeit.

Azok a meggondolások, feltevések, munkatervek, amelyek jelenleg az asztácium kémiai tulajdonságainak megismerésére irányulnak, főleg arra az összehasonlitási alapra támaszkodhatnak, amelyet a többi négy halogénelem szubmikrokoncentrációban mutatott kémiai tulajdonságainak ismerete nyujt. Ilyen szempontból kiemelkedő szerepet játszik a hordozómentes jód [1, 2].

A hordozómentes jód különböző vegyértékállapotban lévő formáinak - nevezetesen a jodid, elemi jód, jodát és főként a perjodát - azonositására és elválasztására a papirelektroforézis és a papirkromatográfia együttes alkalmazásával dolgoztunk ki eljárást [3] . Ezt a módszert használtuk fel a perasztatát-ionok azonositására, illetve szeparálására és elfogadtuk perasztatát-ionoknak azt a fajtát, amely a makromennyiségü, illetve a hordozómentes perjodát-ionokhoz hasonlóan viselkedett.

Az asztácium izotópok - ^{209}At, ^{210}At, ^{211}At - fémtóriumnak 660 MeV-os protonokkal történő besugárzásakor a spallációs termékek között lévő Rn izotópok leányelemeiként képződtek [4]. Az elválasztás és tisztitás után kapott lugos /1 M-os nátriumhidroxidra/ asztáciumkészitmény fajlagos aktivitása $\sim 5\ mCi.ml^{-1}$ volt. Ebből 0,5 ml-t desztillált vizzel tizszeresére higitottunk és mint kiindulási anyagot használtuk az alábbi munkáknál.

Perasztatát-ionokat négyféle módon állitottunk elő

1. Ismeretes az, hogy a jodid-ionok mind makromennyiségben [5, 6], mind szubmikrokoncentrációban [3] xenondifluoriddal viszonylag

könnyen oxidálhatók perjodáttá. Ezt az oxidáló ágenst használtuk fel a perasztatát előállitására [9]. A kiindulási oldathoz /0,4 ml-hez/ 10 mg xenondifluoridot adtunk, majd az oldatot állni hagytuk. A xenondifluorid feloldódása és hidrolizise után / ∿ 60 perc/ az oldatot káliumhidroxiddal lugositottuk és papirelektroforézises, valamint papirkromatográfiás módszerrel ellenőriztük az oxidációt /lásd alább/.

2. A kiindulási lugos asztácium-preparátumot /0,4 ml/ kénsavval savanyitottuk és 10 mg káliumperszulfátot adtunk hozzá. Az oldatot kétszer, háromszor felmelegitettük, majd lehülés után elektroforizáltuk és kromatografáltuk.

3. A kiindulási lugos asztácium-preparátumot /0,4 ml/ ismételten klórgázzal telitettük és telités után az oldatot forrásig melegitettük. Ezt a müveletet többször megismételtük, ugyhogy az oldatot káliumhidroxid-oldat adagolásával mindig lugosan tartottuk /pH 8-9/.

4. 1 ml térfogatu platinacsészét 0,1 M-os kénsav elektrolittal és 3 V kapocsfeszültséggel katódosan polarizáltuk [7]. Az előkezelés után a platinacsészét desztillált vizzel többször kiöblitettük, majd a kiindulási asztatidoldattal megtöltöttük. 30 perc várakozás után az asztácium gyakorlatilag teljes mértékben adszorbeálódott a platinacsésze falán. A csészét desztillált vizzel kiöblitettük és 0,1 M-os nátriumklorid elektrolittal 12 V kapocsfeszültséggel - áramerősség 30 mA - 30 percig anódként kapcsoltuk. Az asztácium anódos oxidációját 0,1 M-os nátriumszulfát elektrolittal is elvégeztük 40 mA áramerősséggel. Az igy kapott oldatokat mindkét módszerrel ellenőriztük. A nátriumklorid elektrolittal végzett anódos oxidációk mértéke 60-70 %-os, a nátriumszulfát elektrolittal végzetteké 30-40 %-osnak adódott.

A papirkromatográfiás vizsgálatoknál a leszálló technikát alkalmaztuk. Eluensként 96 %-os etilalkohol és koncentrált ammóniumhidroxid 60 : 10 arányu elegyét használtuk. A kromatogramokat Schleicher-Schüll No. 6. papircsikokon fejlesztettük ki. A papircsikok hosszusága 340 mm, szélessége 15 mm volt. A müveletet üveghengerben végeztük, ugyhogy a papircsikok külön-külön 18 mm-es átmérőjü üvegcsőben függtek, a párolgás miatti aktivitásveszteség elkerülése céljából. Ugyanezeket a mintákat a papirkromatográfiás vizsgálattal egyidőben papirelektroforizáltuk. Elektroforézisnél 15 mm széles Whatman-1 papircsikokat használtunk. A feszültség-

gradiens 30 $V.cm^{-1}$ volt. 0,1 M-os nátriumszulfát elektrolittal az ionfajtákat 20 percig vándoroltattuk [3]. Az elektroforegramok és a kromatogramok kifejlesztése után /90 perc/ a papircsikokat polietilén fóliákba forrasztottuk és aktivitásukat GM csöves félautomata mérőmüszerrel mértük [8].

Előző közleményünkben beszámoltunk arról, hogy a hordozómentes elemi jód és perjodát-ionok oldatát papirelektroforizálva azok a megcseppentési pontban vagy közel ahhoz maradnak /l. részletesen [3] /, igy egymástól nem különülnek el. Ugyanilyen módon viselkedik az elemi asztácium és a perasztatát is. Az elemi asztáciumtól jól szeparálható azonban papirelektroforézises módszerrel az egy negativ töltéssel rendelkező asztatid [8] . Az asztatid-ionok vizsgálati körülményeink között 13-14 cm-re vándorolnak el a megcseppentési ponttól. A papirkromatográfiás módszernél viszont forditott a helyzet. A perasztatát-ionok - amint azt tapasztaltuk - közel a felcseppentési pontban maradnak, mig az elemi asztácium, jól oldódva az eluensben, a folyadékfrontban található. Papirelektroforézissel ellenőrizhető tehát, hogy a kiindulási asztatid-ionok oxidálódtak - vagy elemi asztáciummá, vagy perasztatáttá -, majd a papirkromatográfiás vizsgálat eldönti, hogy a perasztatáttá oxidálódás megtörtént-e. A fent ismertetett négy módszer közül az első három esetében teljes mértékü, mig az anódos oxidációnál csak részbeni oxidációt észleltünk.

Az asztácium többi, különböző vegyértékállapotu, ionjait a már közölt módon állitottuk elő [8] és R_F értékeit az I. táblázatban tüntettük fel. Összehasonlitásként a hordozómentes ^{131}I megfelelő ionformáinak R_F értékei is itt találhatók.

I. táblázat

Ionfajta	R_F érték	Ionfajta	R_F érték
At^-	0,98-1,0	I^-	0,98
At^o	0,97-1,0	I^o	0,94
AtO_3^-	0,86-0,94	IO_3^-	0,52
AtO_4^-	0,03-0,05	IO_4^-	0,01

Irodalom

[1] Aten, A.H.W.: Advances in Inorganic Chemistry and Radiochemistry. Acad. Press. New York and London, 1964.

[2] Appelman, E.H.: Doktori disszertáció, Berkeley, California, 1960.

[3] Nagy, G.A.: KFKI Közl., 1, 17 /1970/

[4] Beljaev, B.N., Van Jun-Jui, Szinotova, E.N., Német, L., Halkin, V.A.: Radiohimija 2, 603 /1960/

[5] Erdeyné Schneer Anna, Kozmutza, Kornélia: Magy. Kém. F., 75, 378 /1969/

[6] Kirin, J.Sz., Iszupov, V.K., Tihonov, V.J., Ivannikova, N.V., Guszev, Ju.K., Szelihov, G.G.: Zsurnal Neorg. Himii. 12, 1088 /1967/

[7] Tóth, G., Nagy, G.A.: Int. J. Appl. Rad. and Isotopes 17, 359 /1966/

[8] Nagy, G.A., Halin, V.A., Norszejev, J.V.: Magy. Kém. F., 5, 191 /1967/

[9] Halkin, V.A., Norszejev, J.V. Nefedov, V.D., Toropova, M.A., Kuzin, V.I.: Preprint EAI 12-5109

Érkezett: 1970. szept. 7.
KFKI Közl., 18. évf. 4-6. szám, 1970.

MTA
KFKI