310.565

II
1960
1-3

Atomki Közlemények

II. kötet 1960 1. szám

M.T.A.
ATOMMAG KUTATÓ INTÉZETE
DEBRECEN

2

Az ATOMKI KÖZLEMÉNYEK-et az MTA Atommag Kutató Intézete (ATOMKI) adja ki. A szerkesztésért és kiadásért felelős: dr. Szalay Sándor egyetemi tanár, az MTA lev. tagja, az intézet igazgatója. Technikai szerkesztő: Berényi Dénes tud. munkatárs, technikai segédszerkesztő: Meszéna György tud. s. munkatárs.
A lap anyagához hozzájárul a Debreceni Kossuth Lajos Tudományegyetem Kísérleti Fizikai Intézete, valamint Alkalmazott Fizikai Intézete is, amely intézetek szoros együttműködésben vannak az ATOMKI-vel. Kéziratot elvben külső szerzőktől is elfogadunk, ha az a lap célkitűzéseinek megfelel.
Az ATOMKI KÖZLEMÉNYEK feladatát a következőkben látjuk:
1. Lehetőleg hű képet ad az ATOMKI munkásságáról, tevékenységéről, fejlődéséről. Az ATOMKI tudományos eredményei közül csak azokat hozza részletesebben, amelyek más helyen, akadémiai, nemzetközi vagy egyéb folyóiratban nem jelentek meg. Az utóbbiakról csak felsorolást, esetleg rövid ismertetést, kivonatot hoz.
Más folyóiratokban megjelent közleményeinkhez egyes esetekben hozunk itt kiegészítő közleményt, ha az alkalmazott kutatási módszer eredetisége folytán külön leközlésre érdemes, és helyszűke miatt a nagyobb folyóiratokban a részletes leírás célszerűtlen lett volna.
2. Elősegíti különösen a fiatal hazai atomkutatók tudományos ismereteinek bővülését azzal, hogy az atommagfizika egyes területeiről összefoglaló, ismertető közleményeket hoz magyar nyelven.
3. Elősegíti a világon folyó atommagkutatás eredményeinek hazai békés alkalmazását más tudományok és az ipar területén olyan összefoglaló, ismeretterjesztő közlemények útján, amelyek bár tudományosan nem eredetiek, de e téren hazánkban — magyar nyelven — hézagpótló szerepet töltenek be.
Idetartozónak tekintjük az izotópok különböző alkalmazásait a tudományokban, az iparban, stb., valamint az atomkorszak bekövetkeztével kapcsolatban felmerülő szükségleteket, problémákat az oktatásban, és így tovább.
Az ATOMKI KÖZLEMÉNYEK évenként több számban jelenik meg. Tudományos intézeteknek, intézményeknek cserepéldányképpen, vagy kérésükre díjtalanul megküldjük, kötelezettség nélkül. Magánszemélyeknek esetenkénti kérésére 1—1 példányt vagy különlenyomatot szívesen küldünk. Ilyen irányú kéréseket az intézet könyvtárszolgálatához kell irányítani (ATOMKI, Debrecen, Bem-tér 18/c. Levélcím: Debrecen 1. Pf. 51. Távíratcím: ATOMKI, Debrecen).
[redacted]

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

ATOMKI KÖZLEMÉNYEK

II. kötet, 1960. 1. szám.

TARTALOMJEGYZÉK

TUDOMÁNYOS KÖZLEMÉNYEK Oldal

Szalay Sándor, Puskás Emil, Koltay Ede és *Félszerfalvi János*: Kétmillió Volt névleges feszültségü Van de Graaff generátor. 3

Csikai Gyula és *Dede Kálmán*: Neutronok diffúziós hosszának mérése vizben. 15

Buczkó Margit és *Csikai Gyula*: BF_3 proporcionális neutronszámlálók vizsgálata. 29

Angeli István: Számitások homogén, vizforraló tipusú reaktor temperaturakoefficiensére. 36

Szilágyi Mária: Uránsók oldhatósága szerves észterekben. 49

Sámsoni Zoltán: Az urán/VI/ morinnal alkotott komplexének abszorpciós spektruma. 53

MŰHELYÜNKBŐL, LABORATÓRIUMUNKBÓL

Csánky Lajos, Papp István és *Schlenk Bálint:* Vizsgálatok egy szervóberendezéssel. 57

AZ INTÉZETBŐL 1959-BEN MEGJELENT KÖZLEMÉNYEK BIBLIOGRÁFIÁJA 61

INTÉZETI HIREK 65

KÉTMILLIÓ VOLT NÉVLEGES FESZÜLTSÉGŰ VAN DE GRAAFF GENERÁTOR

Szalay Sándor, Puskás Emil, Koltay Ede, Félszerfalvi János*
Kossuth Lajos Tudományegyetem Kisérleti Fizikai
Intézete, Debrecen.

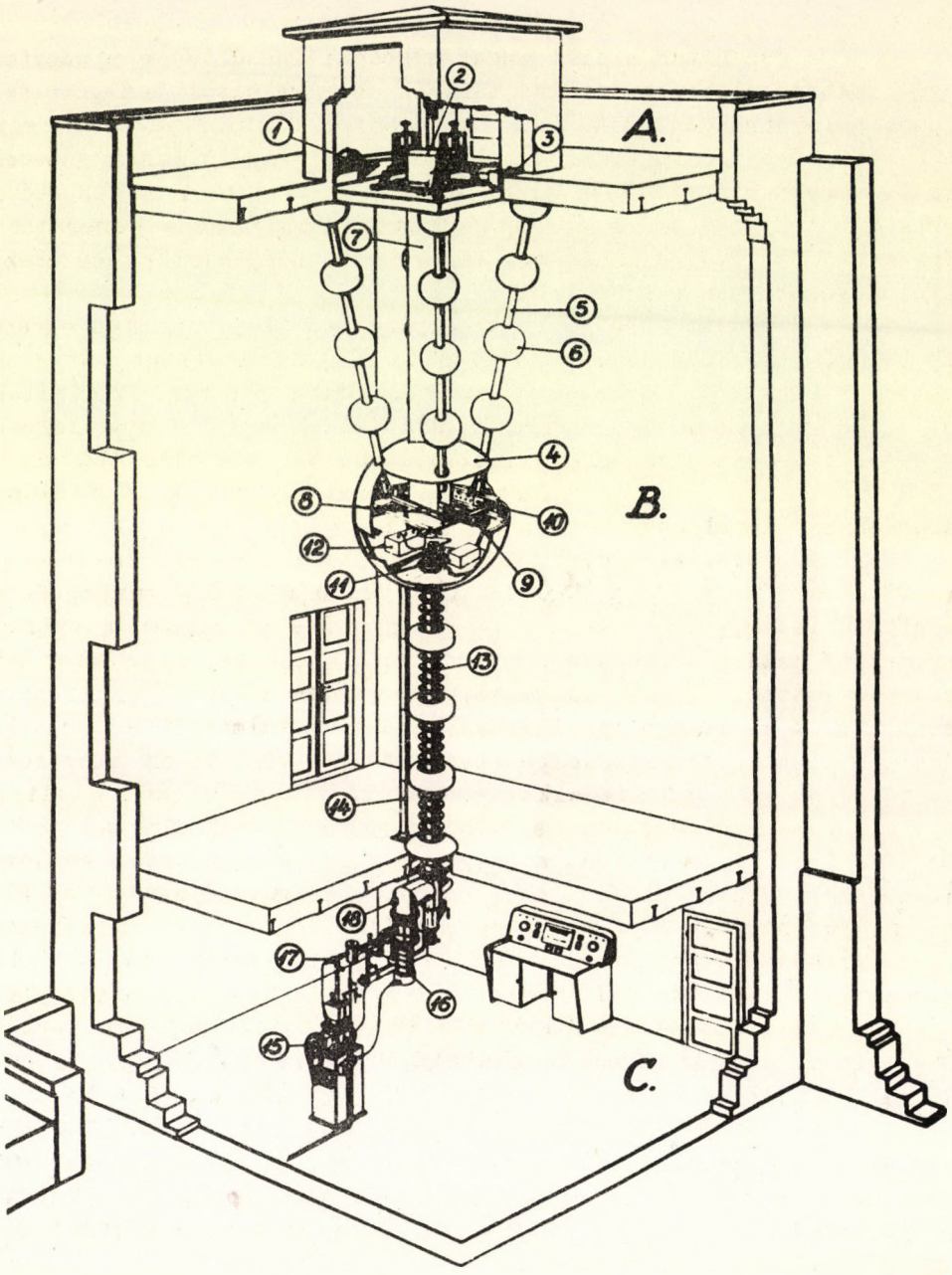
Cikkünkben a debreceni Kossuth Lajos Tudományegyetem Kisérleti Fizikai Intézetében felépitett 2 MV névleges feszültségű szabadtéri Van de Graaff generátorról adunk leirást. A berendezés újszerű függesztett elrendezésü: a töltőszalag felül, a függesztő tartók között van elhelyezve. A tartók bakelitizált papir csövekből /Ganz-Pabit/ készültek, és gyanta-cerezin masszával vákuumban történt impregnálásuk útján elektrosztatikailag szigetelőkké váltak. A függesztett elrendezés előnyös potenciáleloszlást biztosit a generátor terében. A szalag javitott áttöltő berendezése stabil töltési viszonyokat ad a maximális 465 μA rövidzárlati áramértékig. Inhomogén terű gyorsitócsöve immerziós ionoptikai hengerlencsékből van felépitve. A cikk foglalkozik a felmerült elektromos, elektronoptikai és vákuumtechnikai problémákkal és azok megoldásával.

I. Bevezetés. Általános leirás.

Atommagok gerjesztett energianivóinak mesterségesen gyorsitott részecskékkel keltett magreakciók útján történő vizsgálatához egy 2 MV névleges feszültségű szabadtéri Van de Graaff generátort épitettünk Intézetünkben [1]. A következőkben beszámolunk a magasfeszültségü generátornak s a vele összeépitett gyorsitórendszernek tervezésénél és felépitésénél alkalmazott módszerekről s azokról az eredményekről, amelyeket a berendezés konstruálásával, illetve üzembehelyezésével kapcsolatban végzett mérésekből nyertünk. Az egyes részletkérdések tárgyalása előtt megadjuk a generátor általános leirását.

A szokásos megoldásoktól eltérően generátorunk függesztett elrendezésű. /1. ábra./ A 2 méter átmérőjű gömbalakú nagyfeszültségű elektród függesztői "Ganz-Pabit" bakelitpapircsövekből készültek, az egyes elemek csatolási helyeit aluminiumgyürük fedik. A függesztők között foglal helyet a töltő szalag, meghajtása és töltéssel való ellátása a gyorsitóhelyiség fölött lévő töltő helyiségben történik. Az ionforrás és tápegységei a nagyfeszültségü elektród belsejében vannak elhelyezve, a tápláló elektromos energiát ezek a szalag által hajtott egyfázisú váltóáramú generátorból nyerik. A gömb alatt felépitett négytagú inhomogén terü gyorsitócső porcelánszigetelők belsejében vákuumba helyezett immerziós ionoptikai hengerlencsékből áll, az elektródokra a teljes feszültséget parafinba ágyazott ellenálláslánc osztja le. A vákuum előállitására szolgáló olajdiffuziós és rotációs szivattyú a gyorsitóhelyiség alatt lévő targethelyiségben van elhelyezve. Itt történik a fellépő magreakciók észlelése, s itt nyernek elhelyezést a generátor vezérlésére szolgáló egységek. A feszültség mérésére rotációs voltmérő szolgál.

*Jelenleg az Egyetem Alkalmazott Fizikai Intézetében.



1. ábra. A 2 MV-os generátor vázlatos áttekintő rajza.
A. Töltőhelyiség: 1. meghajtó motor, 2. felső henger, 3. töltőegység,
B. Gyorsitóhelyiség: 4. nagyfeszültségű elektród, 5. pabit szigetelők, 6. árnyékoló gyürük, 7. töltőszalag, 8. alsó henger, 9. váltóáramú generátor, 10. váltófeszültség-stabilizátor, 11. ionforrás, 12. ionforrás tápegységek, 13. gyorsitócső, 14. feszültségosztó ellenálláslánc,
C. Targethelyiség: 15. rotációs elővákuumszivattyú, 16. olajdiffuziós szivattyú, 17. elektropneumatikus elővákuumszelep, 18. kifagyasztás.

II. Elektrosztatikai kérdések.

A generátor előirt magas működési feszültsége a nagyfeszültségű elektród elektrosztatikus terének az alkalmazott szigetelők elektromos tulajdonságaihoz való illesztésével biztositható, ha egyuttal megfelelő, elektrosztatikai értelemben vett szigeteléssel gondoskodunk arról, hogy a szigetelőkön elfolyó veszteségi áramok magas nedvességtartalmú környezetben is elhanyagolhatók maradjanak a generátor árammérlegében. A következőkben azt tárgyaljuk, hogy esetünkben ezek a követelmények hogyan teljesülnek.

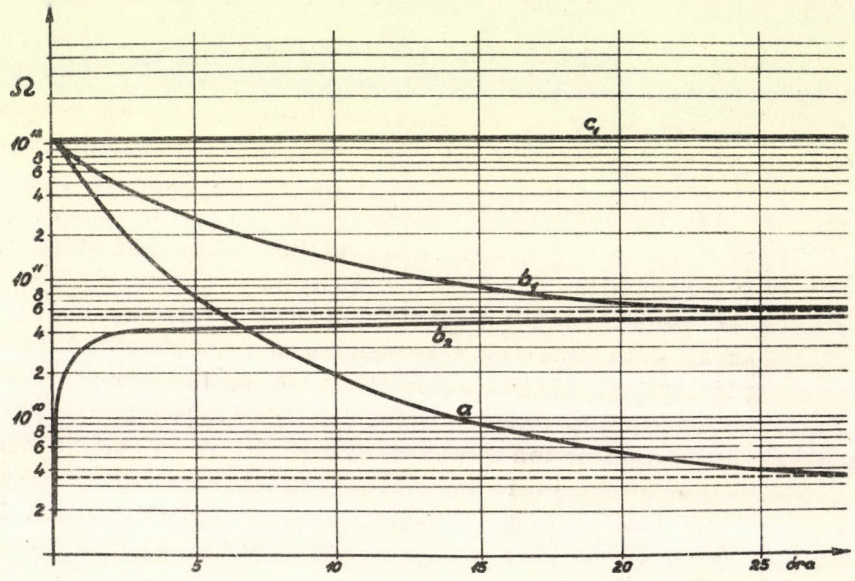
A földelt falú gyorsitóhelyiségben koncentrikus elrendezésben lebegő gömb idealizált esetében az elektrosztatikus tér a nagyfeszültségű elektród közelében szabályos gömbi jellegü. A kivitelezett optimális elrendezésre, melyben a gömbátmérő a fél teremszélességgel egyenlő, berendezésünk méretei mellett 2,1 MV, más becslést alkalmazva 2,3 MV maximális feszültség érhető el elvileg, a levegő átütési szilárdságának figyelembevételével. [2], [3].

Az idealizált gömbi erőtér két tartományban torzul el a szerkezeti elemek beépitése révén. A gömb felső részén a szalag és a függesztőkön levő gyürük szerepe jelentős, az alsó részen a gyorsitócső tértorzitó hatása érvényesül. A konstrukció előnye, hogy ez a két tartomány egymástól el van választva, igy minden zavaró egymásrahatás elkerülhető. A kialakuló tér leirására a MTA Alkalmazott Matematikai Intézete különböző közelitésekben számitásokat végzett az elektrosztatikus tükrözés módszerének alkalmazásával. A ténylegesen kivitelezett esetre a potenciáleloszlást a szerzők egyike modellméréssel határozta meg [4]. Hasonló mérésekből a függesztők árnyékológyürüin fellépő térerősség 2 MV generátorfeszültség esetén a szigetelő mentén az első szigetelési szakaszban 28,4 kV/cm-nek, a többiben 14,4 kV/cm-nek adódott, a maximális térerősség irányában pedig 19 kV/cm; 8,3 kV/cm; ill. 2,1 kV/cm a megfelelő térerősségértékek a gömbtől való távolodás sorrendjében. A gyorsitócső árnyékológyürüire közelitőleg számitott értékek: a szigetelő mentén 21 kV/cm, a maximális térerősség irányában pedig 24 kV/cm; 17 kV/cm; ill. 8 kV/cm az előbbi sorrendben.

A fellépő meglehetősen magas felületi igénybevétel miatt nagy átivelési szilárdságú szigetelőket kellett alkalmaznunk. Minthogy *Schwaiger* vizsgálatai szerint a felületi párahártya megszüntetésével az átivelési szilárdság a szigetelőt környező levegő átütési szilárdságáig növelhető [3], a szigetelőként alkalmazott pabit- és porceláncsövek felületének antihigroszkópossá tételétől a technikai alkalmazásokban megszokottnál jóval nagyobb átivelési feszültségeket várhatunk. Ezzel párhuzamosan a szigetelési ellenállás is lényegesen javul a felületi vezetés csökkenése, ill. gyakorlatilag teljes megszünése révén.

Méréseket végeztünk *Ganz-Pabit* csőmintákon a megfelelő kezelési eljárás kikisérletezésére. Minthogy fentiek szerint az átivelési szilárdság és a felületi ellenállás a felület nedvesedésével párhuzamosan, együtt változik, a felhasznált szigetelőkön a felületi kezelés hatását a meghatározott méretü minták ellenállásváltozásán keresztül vizsgáltuk meg.

Kiindulásul meghatároztuk a felépitésnél használt külső és belső /100 mm, illetve 60 mm/ átmérőkkel biró minta térfogati és felületi ellenállásának viszonyát. Méréseink szerint ez a viszonyszám 300-nak adódott, igy a felület megfelelő kezelésétől kb. két nagyságrendnyi össz ellenállás-növekedést várhatunk. A továbbiakban kezeletlen felületü minták mellett gyanta-cerezin masszával vákuum alatt impregnált, ill. sellakkozott felületü pabit mintákat vizsgáltunk. A mérések során a vákuum alatt száritott felületekre a környező magas nedvességtartalmu levegőből történő párahártya lerakódás következtében fellépő ellenállásesökkenést mértük az idő függvényében. A mérési eredményeket szemléltető 2. ábrán az /a/ görbe kezeletlen felületü minta, /b_1/ a sellakkozott minta ellenállásesését szemlélteti.



2. ábra. Felületi kezelés hatása *Ganz-Pabit* /bakelitpapir/ cső minta ellenállására. A felületen kialakuló párahártya következtében létrejövő ellenállásváltozás az idő függvényében: /a/, kezeletlen pabitmintán; /b_1/, ill. /b_2/, sellakkozott száraz, ill. nedves felületü mintán; /c/, szigetelőmasszával vákuumban impregnált száraz felületü mintán.

A masszázott felületnél ilyen esést nem lehetett kimutatni; az erre vonatkozó /c_1/ görbe az időtengellyel párhuzamos egyenes. Hogy az aszimptotikusan beálló $R_{t\to\infty}$ ellenállásértékeket becsülni tudjuk, a méréseket 10 percen át forró vizgőzbe tartott minták száradása során is elvégeztük. Az azonos mintán felvett két görbe, mint az a sellakkos felületre vonatkozó méréseknél jól látható (/b_1/ és /b_2/ görbe) a közös $R_{t\to\infty}$ értékhez tart. A masszázott felületen ilyen /c_2/ görbét nem lehetett kimérni, tekintve, hogy a gőzből kivett minta ellenállása néhány másodperc alatt felvette a /c_1/ egyenessel jelzett ellenállásértéket.

A vázolt mérések számszerü kiértékelése arra az eredményre vezet, hogy az előzőleg vákuumban száritott pabitminta felületére felvitt sellakkréteg a kezeletlen minta ellenállását 15-szörösre, a masszszabevonat pedig mintegy 270-szeresre növeli. Ez utóbbi eredmény a tér-

fogati ellenállás /felületi ellenállás-viszonyra nyert emlitett értékkel egybevetve azt jelenti, hogy a párahártyaképződés ilyen kezelés után gyakorlatilag teljesen megszünik; a minta eredő ellenállása a mért térfogati ellenálláskomponenssel válik egyenlővé.

Az utóbbi felületi kezeléssel javitott szigetelésü pabit csövekből készültek a generátor függesztői. A felfüggesztett gömb szigetelési ellenállása 9.10^{12}Ohm, ez az érték a szalag beépitésével 5.10^{12} Ohm-ra csökken.

A porcelánfelületeken az irodalom szerint igen jelentős átivelési szilárdságcsökkenés lép fel a levegő nedvességtartalma miatt. A leszéritott porceláncsövek sellakkal való bevonásával az ilyen nehézségeket is sikerült kiküszöbölni, megfelelően a várakozásnak [5].

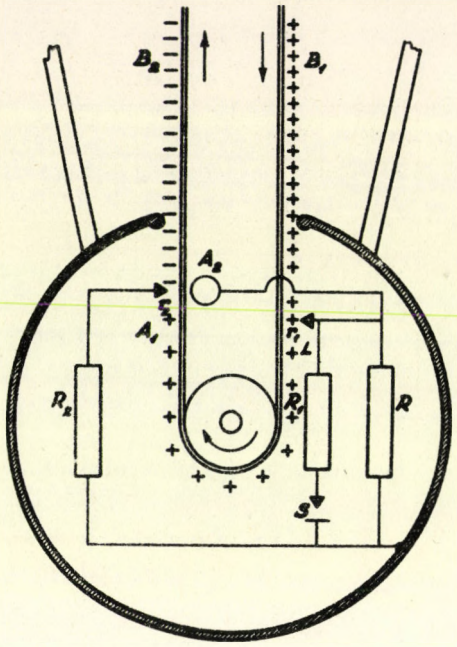
III. A töltőrendszer.

A töltéshez négy rétegből vulkanizált 60 cm szélességü hernyóselyem szalagot alkalmazunk, de a szalag két külső felülete nem volt gumival bevonva, hogy a hengereken a sima futást biztositsuk. A szalag lineáris sebessége 23,4 $msec^{-1}$, a felületi sebesség pedig 14 $m^2\ sec^{-1}$. Az elért rövidzárlati áram teljes töltésnél 465 μA, az elméleti töltéssürüség alapján várható érték 62 %-a. Ez az érték az irodalomban közölt hasonló adatok alapján igen jónak mondható.

Az általánosan elterjedt áttöltő berendezésről a kisérletek során egy tökéletesitett kivitelre tértünk át [2] a következő okokból. Az egyenletes müködés szempontjából igen lényeges annak biztositása, hogy a két szalagág minden esetben közel azonos töltéssürüséggel rendelkezzék. Ilyenkor ugyanis a szalagágak ellenkező előjelü töltései egymást lekötik s a szalagon töltésleáramlás, kisülés nem lép fel. A szokásos áttöltő berendezések ilyen üzemre csak egy bizonyos töltőáram értéknél állithatók be. A generátor feszültségének a töltőáramon keresztül történő szabályozásánál ilymódon a megkivánt feltétel általában nem teljesül; a szalagon átütések, koronajelenségek lépnek fel. Kis töltőáramértékeknél ezenkivül az áttöltő szikraköz már csak pulzálva tud begyúladni, a visszafutó ágon a töltéssürüség periodikusan ingadozik, s ez természetesen a generátor feszültségének erős hullámzására vezet. A stabilitás szempontjából káros mindkét jelenség kiküszöbölhető a 3. ábrán vázolt javitott áttöltő berendezés alkalmazásával. Működésének elve röviden a következő. Általános tapasztalat szerint az L leszedő tűsor a B_1 befutó szalagágon szállitott áramnak csak mintegy kétharmadát veszi le, a többi töltés közömbösitése az A_1-A_2 rendszer feladata. Eszerint, ha a B_1 és B_2 szalagág minden töltőáramértéknél egyforma töltéssürüségü, úgy A_1-ről B_2-re az L-en leáramló áram 4/3-szorosa jut. Ez úgy teljesül, ha

$$\frac{I_{A_1}}{I_L} = 2 = \frac{r_1 + R_1}{r_2 + R_2}$$

áll minden töltőáramértéknél. Az $r_1 = 2r_2$; $R_1 = 2R_2$ speciális eset



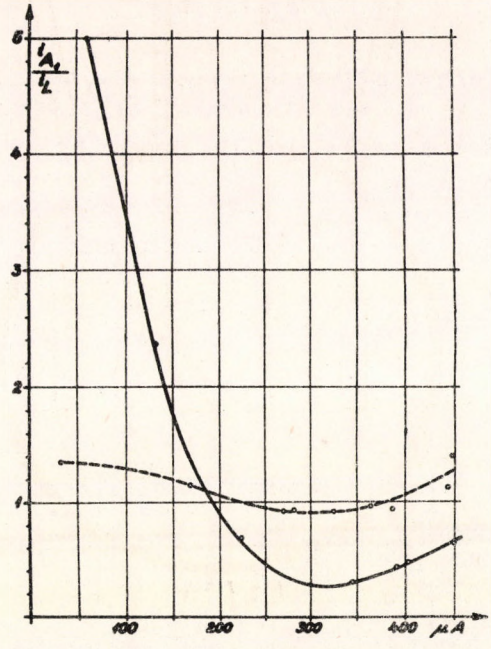
3. ábra. Átalakitott áttöltő berendezés. L a leszedő, A_1 az áttöltő tűsort, A_2 az áttöltő ellenelektródot, S az áttöltő szikraközt jelenti. B_1 ill. B_2 a befutó ill. kifutó szalagágak, r_1 és r_2 a megfelelő szikraközök ellenállását jelenti. A használt ohmikus ellenállások: R = 200 MOhm, R_1 = 18 MOhm, R_2 = 9 MOhm.

fennállása úgy teljesithető, ha az ohmikus ellenállások megfelelő megválasztásán kivül az S szikraközt az L tűsorral azonos formában képezzük ki, fél hosszúsággal. Ilyenmódon azonos karakterisztikáju szikraközöket alkalmazva a kivánt feltétel minden töltőáramértékre teljesül. A kis áramértékeknél tapasztalt ingadozások R jelenléte révén szintén megszünnek.

A gyakorlatban a vázolt viszonyok pontos megvalósitása több okból körülményes. A módszer nagy előnye azonban már akkor is megmutatkozik, ha a fenti követelmény legalább közelitőleg teljesül. A 4. ábrán az A_1, illetve L tűsorok által szállitott I_{A_1}, illetve I_L áramok I_{A_1}/I_L viszonyát tüntettük fel a rövidzárlati áram függvényében. A szokásos áttöltő berendezés alkalmazása mellett felvett folytonosan kihúzott görbe nagy változási intervallumával szemben a javitott elrendezésre vonatkozó szaggatott görbe kis változása gyakorlatilag kielégitő eredményt jelent, annak ellenére, hogy utóbbi nem esik pontosan a 2 értékhez, mivel a beállitásnál elsődleges feladatként az emlitett pulzálás kiküszöbölését tűztük magunk elé.

IV. Az ionforrás és tápegységei.

A gyorsitandó ionokat egy, a gömb belsejében elhelyezett *Thonemann* rendszerű rádiófrekvenciás ionforrás [6] állitja elő. Az ionforrás a MTA Atommag Kutató Intézetében *dr. Nagy János* által kidolgozott példányok egyike, igy ezzel és müködési adataival kapcso-



4. ábra. Az i_{A_1}/i_L viszony a rövidzárlati áram függvényében a szokásos /folytonos vonal/, ill. a javitott /szaggatott vonal/ áttöltőberendezésnél.

latban a szerző eddig megjelent dolgozataira hivatkozunk. [7], [8].

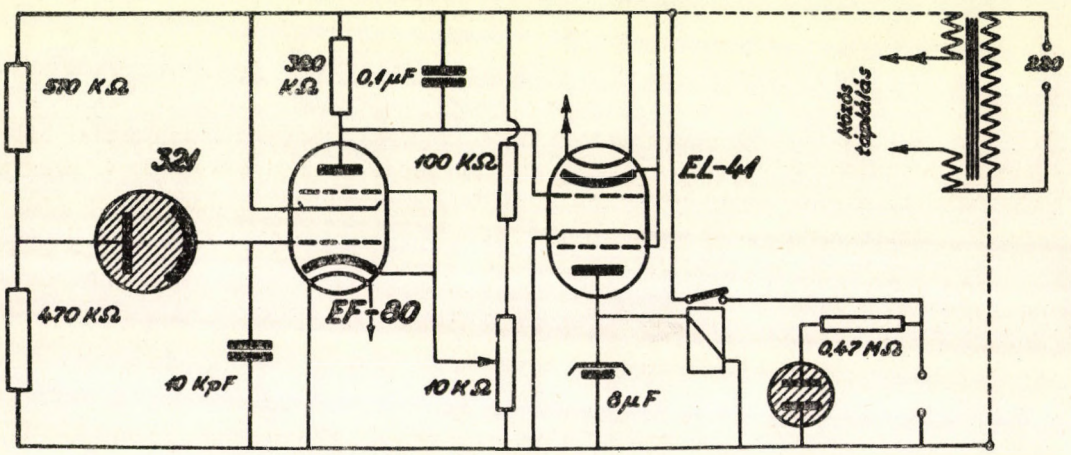
Az ionforrás oszcillátorának, a szükséges kivonó- és előfokuszáló feszültség egyenirányitó egységeinek táplálásáról a töltőszalag által meghajtott 220 Volt, 1 kVA-es egyfázisú, 50 periodusú generátor gondoskodik. Tapasztalat szerint a generátor teljes terheléssel órák hosszat működtethető anélkül, hogy a szalag futásában bármilyen rendellenesség lépne fel. A váltófeszültségü generátor kapocsfeszültségének a terheléstől való függését, amely az egyes egységek egymás után történő bekapcsolásánál zavart okozhat, egy a generátor kimenetére kapcsolt hálózati feszültségstabilizátorról /Transzformátor KTSZ, Typ: Tr-1000/ küszöböltük ki.

Az egyes tápegységek bekapcsolását, s a beömlés adagolását öt csatornás fotocellás távkapcsolóegység végzi. Tekintettel arra, hogy a generátor gömbjében elhelyezett egységek működésen kivül könnyen hozzáférhetőek, nem volt szükséges a nyomásgenerátoroknál alkalmazott bonyolultabb távszabályozó és távmérő rendszer kiépitése, ill. alkalmazása.

Az egységet a szalag mellett belépő fénysugarakkal vezéreljük, fényforrásul 35 Wos autóizzók szolgálnak egy-egy kondenzorlencsével összeépitve, a fotocellától kb. 6 méter távolságban. A negativ reakcióval dolgozó, váltófeszültségről táplált párhuzamos kapcsolókörök egyikének kapcsolási rajzát az 5. ábrán közöljük. A bekapcsolt állapot jelzésére szolgáló lámpák tükörrendszer közvetitésével a vezérlő helyiségből megfigyelhetők.

V. A gyorsitócső.

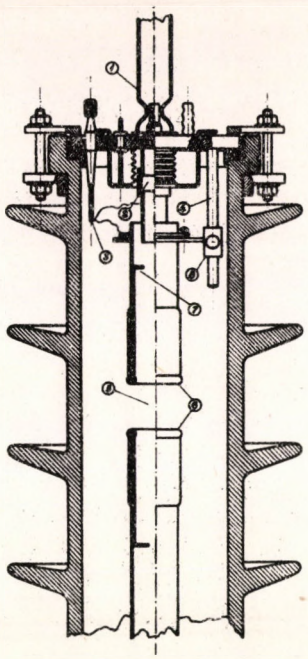
A generátorhoz négytagú, inhomogén terű gyorsitócsövet épitettünk. Az egyes fokozatokat blendékkel ellátott immerziós elektronoptikai hengerlencsék képezik, melyek a 15 kV-os előfokuszáló lencse által csökkentett nyilásszögű ionnyalábot egy közbenső kép létrehozása után a targetre fokuszáljuk. A csőnek a *Gans*-féle poligonmódszerrel történt tervezéséről, s a kialakuló sugármenetről szerzők egyike más helyen már beszámolt [9]. Itt a cső felépitésével és működésével kapcsolatban közlünk néhány adatot.



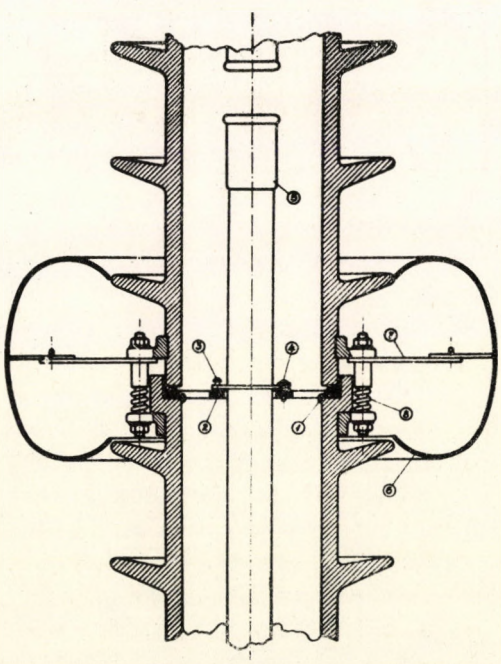
5. ábra. A fotocellás távkapcsolóegység egy csatornájának kapcsolása.

A gyorsitórések által alkotott lencsék kiképzését a 6. ábrán láthatjuk. A toroiddal lezárt hengerelektródák jól közelitik a *Kirkpatrick* és *Beckerley* által megadott elektródelrendezést, melynek tengelypotenciáladatait használtuk a cső tervezésénél [10]. Az elektródokat egy-egy, a toroiddal egy mechanikai egységet képező, térmentes tartományban felállitott blendével láttuk el. Ezzel az egyszerű elrendezéssel is sikerül az általánosan elterjedt, első izben *Bouwers* és *Heijn* által leirt [11], [12], [13] árnyékoló serleggel ellátott gyorsitórések előnyös tulajdonságait biztositani.

Tekintettel arra, hogy az egymást követő gyorsitó fokozatok azonos feszültségkülönbség mellett egyre nagyobb energiáju ionokat fokuszálnak, egyre gyengébb lencsék gyanánt szerepelnek. A lencse erősségét megszabó kilépő energia/belépő energia viszony a négy résre



6. ábra. Előfokuszálás és az első gyorsitórés. 1. rádiófrekvenciás ionforrás, billenthető alaplapon; 2. előfokuszáló lencse; 3. nagyfeszültségü bevezető; 4. plexit szigetelők; 5. első gyorsitó rés; 6. lecsavarható elektródfej; 7. blendék; 8. felső elektród jusztirozása.



7. ábra. A gyorsitócső felépitése. 1. beragasztott fémbetét a tömités és az elektródtartó tárcsa rögzitésére; 2. elektródtartó tárcsa; 3. billentőcsavarok; 4. rögzitőcsavarok; 5. lecsavarható elektródfej; 6. árnyékológyürü; 7. elfordithatóives tartólemez; 8. spirálrugók.

rendre a következő értéket vesz fel 1 MV generátorfeszültség mellett: 17,6; 1,94; 1,48; 1,32. Az általunk felépitett csőnél az első két lencse nagymértékben különböző fokusztávolsága miatt különböző elektródhosszakat alkalmaztunk az egyes fokozatban.

A gyorsitóelektródok egy tengelyre való jusztirozását a 7. ábrán látható szintező és rögzitőcsavarok segitségével végezzük el. A párhuzamosság ellenőrzésére speciális *Zeiss*-gyártmányu szintezőtávcsőberendezést használunk. Magát a távcsövet egy távolságmérő feltéttel a target helyére rögzitjük, a beállitandó elektródra pedig az elektródfej helyett egy iránymérő kollimátort illesztünk. Utóbbival a távcsőtengely és az elektródtengely párhuzamossága 1' pontossággal detektálható, a távolságmérő feltét pedig a két párhuzamos irány egybeesésének 0,01 mm pontosságu kimutatására szolgál.

A gyorsitócső "fényforrása", a csőmembránra szerelt ionforrás és előfokuszáló lencse együttesen billentve szintén a cső tengelyébe állitható.

A gyorsitócső fokuszálási tulajdonságai jól egyeznek a számitottakkal. A mérések eredményei szerint, a néhány mm átmérőjű targetfolt az előre számitott helyen jelentkezik 1 MV bombázó energiánál.

A teljes feszültségkülönbséget a gyorsitóelektródok számára nagyohmikus osztólánccal osztjuk le egyenletesen. Az osztóláncot pabitcsőben, parafin alá helyezett SECI magasfeszültségü ellenállásokból épitettük fel. A lánc egyes elemei 10^9 Ohmos ellenállások, melyek levegőn 12 kVolt feszültségre használhatók. Transzformátorolajban, illetve parafinban méréseink szerint 50 kV rendü feszültséget is kibirnak átivelés nélkül. A lánc össz ellenállása 3.10^{10} Ohm. Az oszlop fémes csatoló elemek nélkül van felépitve, igy külön árnyékológyürük használata elkerülhető volt. A gyorsitócső árnyékológyürüivel rugós érintkezők segitségével csatoljuk az egyes fokozatoknak megfelelő feszültségü ellenállás-végpontokat.

VI. A vákuumrendszer.

Az ionok az ionforrás és a target között mintegy 450 cm hosszú utat futnak be a gyorsitócsőben. Ebben a rendszer méreteivel egyező szabad ion-úthossz biztositása érdekében 10^{-5} Torr vákuumot kell létrehoznunk, hidrogéngyorsitás esetén. A vákuumrendszer össz térfogata 200 liter. Az ionforrásból eredő 8-10 cm^3/óra beömlést a 130 l/sec vezetőképességü gyorsitó csövön keresztül kell eltávolitanunk. A rendszer adatait figyelembevéve erre a célra egy 1500 l/sec szivósebességü olajdiffuziós szivattyut alkalmazunk, ez egy nagy átmérőjü szivócsonkon keresztül csatlakozik a gyorsitócsőhöz. Az elővákuumot 30 m^3/óra szivósebességü rotációs szivattyú szolgáltatja. A rendszert áramkimaradás esetére elektropneumatikus szelep biztositja, mely ilyen esetben a nagyvákuumteret az elővákuumszivattyú felől lezárja, s igy a használt Silicon DC-703 olajat megvédi a forró állapotban történő fellevegőzéssel járó károsodástól. A forgószivattyú egyidejü fellevegőzésével az ebben használt olajnak a rendszerbe való beszivását is meggátoljuk.

Az olajgőzöknek a gyorsitócsőbe való behatolása ellen a dif-

fuziós szivattyút lezáró 21 cm torkú nagyvákuumszelep fölött cseppfolyós levegős kifagyasztó csapdát helyeztünk el. A nyert 350 cm^2 hűtőfelület a rendszerben levő kondenzálható gőzökre további 5000 l/sec szivósebességet jelent. A vezetéses hőveszteségek csökkentésére a vörösréz kifagyasztó edényt 0,7 mm falvastagságu ujezüst csövön keresztül csatoljuk a rendszer szobahőmérsékleten levő falához. Ezzel az elrendezéssel a cseppfolyós levegő fogyasztást kb.napi 5 literre lehetett leszoritani.

A gyorsitócső porcelánhengereinek vákuumillesztése a 7. ábrán látható. A tömitést és az elektródtartó tárcsát rögzitő betétgyürüket az egyes csövek méretre köszörült hornyába Polikon H-1 mügyanta ragasztóval ragasztottuk be.

A felépitett rendszer saját beömlése /lezárt ionforrás mellett/ néhány tized µl/sec rendü. A rendszerben az üzemi vákuumérték a bekapcsolás után kb. egy óra alatt elérhető. Az egyes egységek /pl. targettér/ külön fellevegőzhetők, ezeket elővákuumnyomásról a nagyvákuumtérre visszakapcsolva a 10^{-5} Torrnál jobb vákuum másodpercek alatt ujra helyreáll.

VII. Megjegyzések.

A generátorba beépitett ionforrás kidolgozásáért és rendelkezésünkre bocsátásáért *dr. Nagy Jánosnak*, egyes mérésekben nyújtott segitségéért *Bánhalmi Józsefnek* mondunk köszönetet.

A generátor terével kapcsolatos számitásokat a MTA Alkalmazott Matematikai Intézetében *Freud Géza* osztályvezető irányitásával *Csukás Andrásné, Darab Zsuzsa* és *Balássy Ágnes* végezte.

Irodalom

[1] *Szalay S., Puskás E.:* Egy kétmillió Voltos Van de Graaff generátor. Előadás az Eötvös Loránd Fizikai Társulat debreceni Vándorgyülésén, 1954. V.24.

[2] *U.Neubert:* Elektrostatik in der Technik. Verlag von Rollenbourg. München, 1954.

[3] *Verebély L.:* Villamos erőátvitel. I. Gyakorlati elektrosztatika. Tankönyvkiadó, Budapest. 1951.

[4] *Koltay E.:* Magyar Fiz. Folyóirat, 4, 213, /1956/.

[5] *A.Roth:* Hochspannungstechnik. Springer Verlag, Wien. 1950.

[6] *Thonemann:* Proc. Roy. Soc. 61, 438, /1948/.
Erő J.: Magy.Fiz.Folyóirat, 3, 529, /1955/.

[7] *Berecz I., Bornemisza Gy.-né, Nagy J.:* Magyar Fiz. Folyóirat, 6, 431, /1956/.

[8] *Nagy J.:* Acta Univ. Debreceniensis, 4, 109, /1959/.

[9] *E.Koltay:* Nuclear Instruments, 6, 45, /1960/.

[10] *P. Kirkpatrick, J. G. Beckerley:* Rev. Sci. Instr. 7, 25, /1936/.
[11] *Bouwers, Heijn:* Philips Techn. Rundschau, 6, 46, /1941/.
[12] *E. W. Titterton:* Nucleonics, 10. No. 5, 28, /1952/.
[13] *Pásztor J., Siegler J.-né:* Magyar Fiz. Folyóirat, 3, 497, /1955/.

NEUTRONOK DIFFUZIÓS HOSSZÁNAK MÉRÉSE VIZBEN

Csikai Gyula és Dede Kálmán

Stacionárius módszert dolgoztunk ki hidrogéntartalmu közegek diffúziós hosszának meghatározására, kis anyagmennyiség felhasználásával. A módszer alkalmazhatóságát a viz diffúziós hosszának mérésével ellenőriztük. L = 2,73 ± 0,08 cm-t kaptunk, ami jó egyezésben van a legújabb mérési eredményekkel, valamint végtelen közegben elvégzett mérésünk eredményével. A módszer szerves moderátorok neutrondiffúziós paramétereinek vizsgálatánál különösen előnyös.

I. Bevezetés.

Az utóbbi időben felmerült a gondolat, hogy energiatermelő reaktorokban moderátor - vagy hűtőfolyadékként előnyös lenne a nagyobb termikus hatásfok érdekében viz helyett magasabb forrpontu és ugyanakkor jó lassitási hatásfokkal rendelkező szerves folyadékot használni. *Trilling* és munkatársai által végzett vizsgálatok szerint [1] például a polifenileket általános fizikai tulajdonságaik - 250 - 350 C°-os forrpontjuk, megfelelő hővezetésük, viszkozitásuk, sugárellenállóképességük - alkalmassá teszik moderátorként való felhasználásra. Természetesen, a felsorolt előnyös tulajdonságok csak akkor használhatók ki, ha moderátor sajátságaik is megfelelőek. A viz tulajdonságaitól való eltérés különösen a termikus neutronok diffuziójánál jön figyelembe. Itt a hidrogén atomok már nem tekinthetők szabadnak, a molekula kötések is befolyásolhatják a diffuziós paraméterek értékét és igy az adott moderátor hidrogén sürüségéből nem vonható le egyértelmü következtetés a diffuziós együttható és diffuziós hossz nagyságára. Fontos feladat tehát a számbajöhető szerves moderátor diffuziós hosszának megmérése. Ezen méréseknél olyan módszer használata célszerű, amelyhez kis anyagmennyiség szükséges, mivel esetleg az alkalmasnak látszó moderátor anyagok nagy mennyiségben való beszerzése nehézkes és költséges. Módszerünk alkalmazhatóságát a viz diffuziós hosszának mérésével ellenőriztük, mivel vizre vonatkozó mérési adatok nagy számban állnak rendelkezésre.

II. A mérés elvi alapjai.

Termikus neutronok diffuzióját stacionárius esetben az un. diffuzió-egyenlet irja le, amelynek alakja forrás nélküli térrészben

$$\Delta\phi(r) - 1/L^2\phi(r) = 0 \qquad /1/$$

ahol ϕ a termikus neutronfluxus, L pedig az un. diffuziós hossz, mely a Σ_a abszorpciós hatáskeresztmetszettel és a λ_t transzport szabadúthosszal

$$L = \sqrt{\frac{\lambda_t}{3\Sigma_a}} \qquad /2/$$

alakban fejezhető ki. Az /1/ egyenlethez járuló határfeltétel az, hogy a fluxus lefutását a közeg belsejében olyan függvény irja le, mely a határtól számitott $0,71\ \lambda_t$ távolságban zéró. Ezenkivül a neutron áramnak a koncentrált források körüli zárt felületen vett integrálja kielégiti az

$$\int_F j\,df = \lambda_t/3 \int_F grad_n \phi\, df = S \qquad /3/$$

összefüggést, ahol S az F felület által körülvett termikus forrás intenzitása neutron/sec-ban.

Az L stacionárius módszerekkel való mérése az /1/ egyenleten, illetve annak megoldásain alapul. A termikus fluxus, mint a hely függvénye, termikus neutronokra nagy aktiválási hatáskeresztmetszetet mutató próba-fóliákkal, vagy kisméretü neutronszámlálókkal mérhető, s a mért fluxust /1/-nek az adott geometriához tartozó megoldásával összehasonlitva az L paraméter értéke meghatározható.

Vizben, vagy vizhez hasonló anyagokban való méréseknél meghatározott geometriáju sikforrás előállitása jelent nehézséget. Mig grafitnál, berilliumnál és nehézviznél az általában használt neutronforrások /Ra-Be, Rn-Be, Po-Be/ bizonyos távolságtól - néhány lelassulási hossztól /definicióját lásd a [2] vagy [5] hivatkozásnál/ - termikus pontforrásnak tekinthetők, s a fenti anyagok végtelen közegében a termikus fluxus asszimptotikus lefutása

$$\phi(r) = konst\ exp(-r/L)/r \qquad /4/$$

alaku, addig végtelen vizmoderátorban az asszimptotikus lefutás

$$\phi(r) = konst\ exp(-r/\lambda_s)/r^2 \qquad /5/$$

ahol λ_s a forrásneutronok szórási szabad úthossza. (A /4/ $L>\lambda_s$, az /5/ pedig $L<\lambda_s$ esetén érvényes [5].)

Elő lehet azonban állitani "negativ" termikus forrást a *Fermi*-féle kadmium-differenciás módszerrel [6]. Ha egy neutrontérbe kadmium-lapot helyezünk - amelynek éppen a termikus neutronokra van nagy befogási hatáskeresztmetszete - a termikus fluxus csökkenése egyenlő lesz azzal a fluxussal, amit egy, a kadmium laphoz hasonló geometriáju és a kadmium által abszorbeált neutronoknak /szám, hely, energia szerint/ megfelelő intenzitásu forrás keltene. Ezzel a módszerrel mérte meg vizben a diffuziós hosszt többek között *Beckurts*[7], *Larsson*[8], valamint *Ádám* és *Bata*[9].

Larsson és *Beckurts* gömbszimmetrikus geometriával dolgozott. *Beckurts*nál a Ra-Be forrás egy kadmium gömbhéj középpontjában volt el-

helyezve, s a "kadmium-különbség" a gömbön kivül

$$\phi(r) = A\ exp(-r/L)/r \qquad /6/$$

alakú; $ln(r\phi)$-t ábrázolva, az egyenes iránytangenséből L-re, L = = /2,70 ± 0,03/ cm-t kapott.

Larsson módszere is hasonló, csak nála a kadmium-abszorbens aluminium gömbben $CdSO_4$ oldat. Az általa közölt eredmény L=/3,25±0,13/ cm, azonban mérési eredményeinek általunk történt átértékelése után L= = 2,80 cm adódott.*

Ádám és *Bata* méréseiknél Po-Be forrást és kadmium sikot alkalmaztak. A kadmium-különbségből

$$\phi(z) = A\ exp(-z/L) \qquad /7/$$

alapján számitották a diffuziós hosszt. Eredményük:

L = /2,622 ± 0,003/ cm /Ag detektorral/
L = /2,81 ± 0,009/ cm /In detektorral/

A szerzők a két érték közti eltérés okát a detektorok különbözőségében keresik. Az indiummal kapott értéket hitelesnek elfogadva, korrekciós faktorral kivánják kiküszöbölni az ezüsttel mért érték ettől való eltérését. Mindkét detektor $\frac{1}{v}$ abszorbens a termikus tartományban, ezért az a feltevés, hogy a detektorok anyagi minősége szisztematikusan befolyásolja a mért L értéket, indokolatlannak látszik. A geometriai elrendezés a két mérésnél egyforma volt, s az eredmények különbözősége egyszerüen szórás lehet. A feltüntetett hibák ellenére is elképzelhető ilyen nagy szórás. Az alkalmazott formula ui. homogén sikforrásra vonatkozik, ezt pedig egy kadmium lap mögé helyezett pontforrás csak közelitőleg valósitja meg, mégpedig annál jobb közelitéssel, minél távolabb vagyunk a siktól. Ekkor viszont a kadmiummal, illetve anélkül kapott aktivitások relativ különbsége nagyon lecsökken /10 cm távolságban ~5 %/ s igy a szórásból eredő hiba igen nagy lesz. A két érték közül az ezüst detektorral kapott L látszik reálisabbnak, mivel inhomogén sikforrás esetén - mint egyszerű meggondolással beláthatjuk - a szimmetriatengely menti fluxus gyorsabban csökken, mint homogén forrás esetén, s igy az L paraméter értéke kisebbnek adódik.

De *Juren* és *Rosenwasser* [10], valamint *Barkov* és munkatársai [11] nem kadmium-differenciás módszerrel mértek, hanem lassu neutro-

*Larsson el akarta kerülni, hogy a kadmium-gömbön kivül lelassult, visszafele diffundáló neutronoknak a kadmiumban való abszorpciója is figyelembe jöjjön, s ezért különböző $CdSO_4$ koncentrációknál elvégezve a mérést, a 0 koncentrációra extrapolált értéket tekintette L valódi értékének. A probléma közelebbi vizsgálata azt mutatja, hogy a Larsson által elkerülni akart effektus a /6/ formula érvényességét nem befolyásolja, másrészt viszont nagyobb kadmium koncentráció esetén a relativ kadmium különbség nagyobb s igy a mérés hibája kisebb. Ezért a négy legnagyobb koncentrációnál kapott L értékek átlagát vettük a 0 koncentrációra extrapolált L érték helyett.

nokat emittáló fotoneutron-forrást használtak, melynél a λ_s reláció igaz, /λ_s a forrás-neutronok energiájától függ/, és igy a /4/ asszimptotikus fluxuslefutásból kaphatták L-t. A módszer előnye az előzőekkel szemben, hogy igy valóban a termikus egyensulyba került neutronok diffuziós hosszát kapták, ami /inkább elvileg, mint gyakorlatilag/ eltér a kadmium-rezonanciához tartozó un."C-neutronok"-étól. Hátránya a forrás kis intenzitása. A diffuziós hosszra kapott értékeik

$L = /2,76 \pm 0,02/$ cm */De Juren - Rosenwasser/*
$L = /2,69 \pm 0,02/$ cm */Barkov/*

Termikus forrás megvalósitására a harmadik módszert, atomreaktor termikus oszlopának használatát *Heintzé* [12] alkalmazta. Az előző mérésekkel szemben itt a moderátorközeg nem végtelen volt, hanem véges átmérőjű henger. A fluxus tengelyirányú lefutása itt /lásd részletesebben a III. pontban/,

$$\phi(z) = A\, exp[-z\sqrt{1/L^2+(2,405/R)^2}] \qquad /8/$$

ahol $R = R_0 + 0,71\,\lambda_t$ az un. extrapolált sugár; R_0 a henger valódi sugara. *Heintzé* mérésének eredménye:

$$L = /2,86 \pm 0,03/ \text{ cm}.$$

A felsorolt stacionárius mérési módszerek előnye, hogy egyszerű eszközökkel megvalósithatók s megfelelő pontosságú eredményt adnak. További előnyük, hogy a mérés közvetlenül L-t adja. Hátrányuk, hogy a mérések elég hosszadalmasak, továbbá, hogy a D, illetve λ_t értékeket más mérésből kell ismernünk, vagy pedig Σ_a ismeretében számitanunk; ha pedig a fluxus határmenti lefutásának extrapolálásával kapott λ_t értéket használjuk, akkor véges, kis geometriánál az extrapolált határ bizonytalansága növeli L hibáját (lásd /8/ formula).

Az ujabban elterjedten használt un. impulzusmódszer a neutronfluxus időbeni változásának mérésén alapul. Ha a moderátortérbe rövid neutronimpulzust juttatunk, a neutronsűrűség időbeli változását az időtől függő diffuzió-egyenlet irja le [2], [13].

$$\partial n(r,t)/\partial t = D'\,\Delta n(r,t) - (1/L_0)\,n(r,t) \qquad /9/$$

Itt a fluxus helyett célszerű az n neutronsűrűség használata. Célszerű továbbá a $D' = D\bar{v}$ és $L_0 = \Sigma_a \frac{1}{\bar{v}}$ új paraméterek bevezetése.

Véges közegben a megoldás:

$$n(r,t) = \sum_n A_n R_n(r)\, exp[-(1/L_0 + D' B_n^2)\,t] \qquad /10/$$

ahol $R_n/r/$ az adott határérték probléma n-edik sajátfüggvénye, B_n pedig a hozzátartozó sajátérték. A nagyobb B_n-hez tartozó tagok gyorsabban csökkennek és bizonyos idő mulva az alapharmonikus mellett a többi tag elhanyagolható. Ekkor

$$n(r,t) = A_0 R_0(r) \exp[-(1/L_0 + D' B_0^2)t] \qquad /11/$$

A logaritmikus ábrázolásnál az idő függvényében kapott egyenes iránytangense

$$1/L_0 + D' B_0^2 = 1/L \qquad /12/$$

A különböző B_0^2-ekhez tartozó $\frac{1}{L}$ értékeket megmérve és

$$1/L = f/B_0^2/\text{-et}$$

ábrázolva L_0 és D' külön-külön kiszámitható. Ezekből pedig

$$\lambda_t = 3D'/\bar{v}$$

illetve

$$L = D' L_0$$

Ezzel a módszerrel határozta meg L-et többek között *v. Dardel* és *Sjöstrand*[14], *Antonov* és munkatársai[15], valamint *Dio* és *Schopper*[16]. A mért L értékek:

$L = /2,725 \pm 0,03/$ cm — */Dardel és Sjöstrand/*
$L = /2,68 \pm 0,11/$ cm — */Antonov/*
$L = /2,70 \pm 0,05/$ cm — */Dio és Schopper/*

Az impulzusmódszerek előnye, hogy a mérések gyorsabban elvégezhetők, továbbá λ_t is közvetlenül kapható, igy az extrapolált határ bizonytalansága kisebb, ezért kis geometriánál is megfelelő pontosságot lehet elérni. Hátránya, hogy bonyolultabb berendezést igényel /pulzált neutronforrás, időanalizátor/. A feltüntetett hibák azt mutatják, hogy az impulzusmódszerek pontossága még nem mulja felül a stacionárius módszerekét. Figyelembe kell azonban venni, hogy mig a stacionárius módszerekkel történő mérések legtöbbjénél végtelen moderátorközeg szükséges, addig a fenti méréseknél kis anyag mennyiség, pl. vizből mindösszesze néhány liter kell.

A különböző módszerekkel mért diffuziós hosszak összehasonlitásánál ügyelnünk kell arra, hogy a diffuziós hossz a hőmérséklet függvénye. *Deutsch*[17] szerint - jó egyezésben *Dardel*[13], *Dio*[16] és *Antonov*[15] kisérleti eredményeivel - 10-30°C között a diffuziós hossz hőmérsékletfüggését az alábbi összefüggés adja:

$$L = [L_0 + 0,0049/T - T_0/] \text{ cm} \qquad /13/$$

Stacionárius és impulzus-módszerrel történő méréseknél pedig a diffuziós melegedést, illetőleg hűlést is figyelembe kell vennünk. Stacionárius esetben a neutrongáz hőmérséklete a moderátor hőmérsékleténél nagyobb lesz, mivel a lassú neutronok nagyobb valószinűséggel abszorbeálódnak. Impulzus-módszernél viszont a gyorsabb neutronok na-

gyobb valószinűséggel hagyják el a moderátort s igy a neutrongáz hőmérséklete lefele tolódik el. A diffuziós hűlés és melegedés problémája kvantitative még nincs pontosan tisztázva; *Dardel* és *Sjöstrand*[13] szerint a vizben stacionárius módszerrel mért diffuziós hossz a diffuziós melegedés miatt kb.1 %-kal nagyobb, mintha a neutrongáz és a moderátor hőmérséklete azonos volna.

III. Saját vizsgálataink.

A méréseket három különböző geometriáju elrendezéssel végeztük el:

a./ *Véges hengeralakú közeg és kötszimmetrikus sikforrás.*
b./ *Végtelen moderátor és körszimmetrikus sikforrás.*
c./ *Végtelen moderátor és végtelen homogén sikforrás.*

a./ A véges henger- és körszimmetrikus sikforrás esetén a diffuzió-egyenlet megoldása

$$\phi(z,r) = \sum_{n=o}^{\infty} A_n J_o(\mu_n r/R) \exp[-z\sqrt{1/L^2+(\mu_n/R)^2}]\{1-\exp[-2(Z-z)\sqrt{1/L^2+(\mu_n/R)^2}]\} \qquad /14/$$

alakba irható, ahol J_o az első fajú nulladrendű *Bessel*-függvény, μ_n pedig ennek n-edik zérushelye. $Z = Z_o + 0,71\ \lambda_t$ és $R = R_o + 0,71\ \lambda_t$ a henger extrapolált magassága, illetve sugara /Z_o és R_o a valódi magasság, illetve sugár/. Az A_n együtthatók meghatározhatók például a $z = 0$ sikban lévő fluxuseloszlásból:

$$A_n = \frac{1}{(R^2/2)J_1(\mu_n)} \cdot \frac{1}{1-\exp[-2Z\sqrt{1/L^2+(\mu_n/R)^2}]} \int_0^R \phi(o,r) J_o(\mu_o r/R)\, r\, dr \qquad /15/$$

Ha Z elég nagy, a /14/-ben szereplő második exponenciális kifejezés zérusnak vehető, és igy az A_n kifejezése is egyszerűsödik. Másrészt, növekvő z-vel a magasabb harmónikusok gyorsabban csökkennek és igy egy bizonyos távolságtól

$$\phi(z,o) = A_o \exp[-z\sqrt{1/L^2+(\mu_o/R)^2}]\{1+(A_1/A_o)\exp[-z(\sqrt{1/L^2+(\mu_1/R)^2}-\sqrt{1/L^2+(\mu_o/R)^2})]\} \qquad /16/$$

A {} zárójelben álló tag értéke közel 1 és igy korrekciós faktornak tekinthető. L meghatározása iterációs eljárással történhet. A radiális fluxuseloszlásból kiszámithatók az A_n *Fourier-Bessel* együtthatók, az axiális fluxuseloszlás logaritmikus ábrázolása pedig az alábbi mennyiséget adja:

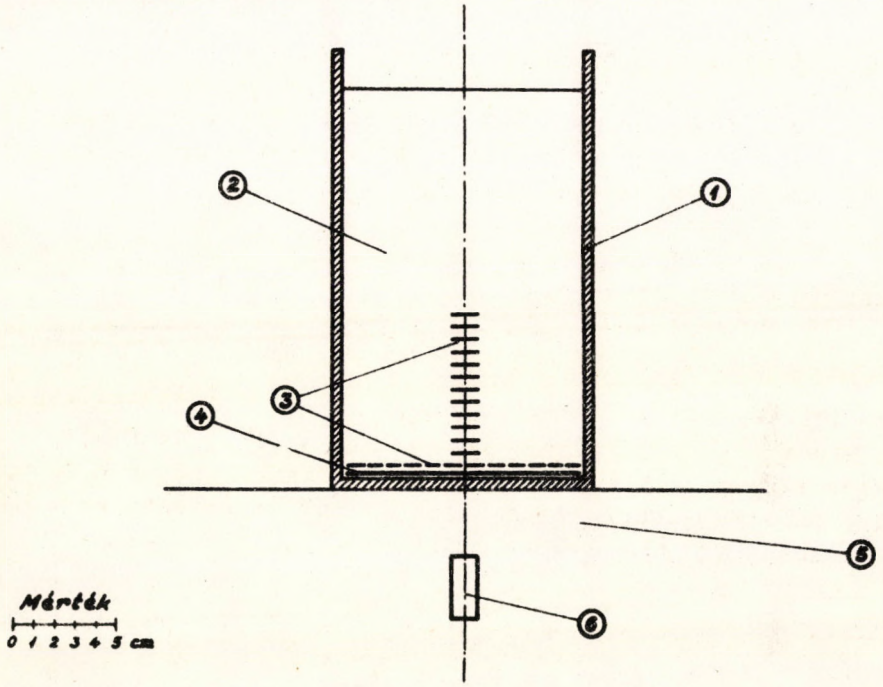
$$tg\alpha = \sqrt{1/L_1^2 + (\mu_o/R)^2} \qquad /17/$$

ahol L_1 az L első közelitése. Ezzel a korrekciós faktor mint z függvénye meghatározható, és

$$\ln \frac{\phi(z,o)}{1+(A_1/A_o)\exp\{-z[\sqrt{1/L_1^2+(\mu_1/R)^2}-\sqrt{1/L_1^2+(\mu_o/R)^2}]\}} = -z\sqrt{1/L_2^2+(\mu_o/R)^2} \qquad /18/$$

iránytangenséből kapjuk L második közelitését, az L_2-t. Mostmár ezzel számolva a korrekciót, kapjuk L-et harmadik közelitésben. Az eljárás tetszőleges pontosságig folytatható.

A fenti követelményeknek megfelelő elrendezés megvalósitható úgy, hogy a mérendő folyadékot tartalmazó véges hengert egy, a gyors forrást tartalmazó moderátor közeg felszinére helyezzük és az igy kialakuló neutron-térbe helyezett kadmium-lap realizálja a termikus sikforrást.



1. ábra. Geometriai elrendezés az a./ méréshez. 1. Hengeres edény; 2. Mérendő közeg; 3. Detektor-fóliák; 4. Kadmium-lap; 5. Moderátor; 6. Neutronforrás.

A módszernél alkalmazható legkisebb geometriát megszabja az a tény, hogy R csökkenésével a közvetlenül mért

$$tg\alpha = \sqrt{1/L_1^2 + (\mu_o/R)^2}$$

hibája L-ben egyre nagyobb hibát eredményez. $R = 2L$ esetén a szórásból származó hiba kb. megkétszereződik /ekkor ugyanis a gyök alatti két mennyiség egyforma nagyságú/. Ugyancsak nagyobb súllyal jön figyelembe az extrapolációs határban lévő bizonytalanság is.

b./ Végtelen közegben körszimmetrikus sikforrás esetén a megoldást *Fourier-Bessel* integrál alakjában vehetjük fel:

$$\phi(z,r) = \int_0^\infty A(\mu) J_o(\mu, r) exp(-z\sqrt{1/L^2+\mu^2})\,\mu d\mu \qquad /19/$$

ahol

$$A(\mu) = \int_0^\infty J_0(\mu, \rho)\phi(o, \rho)\rho d\rho \qquad /20/$$

A /19/ összefüggést célszerüen átalakitva

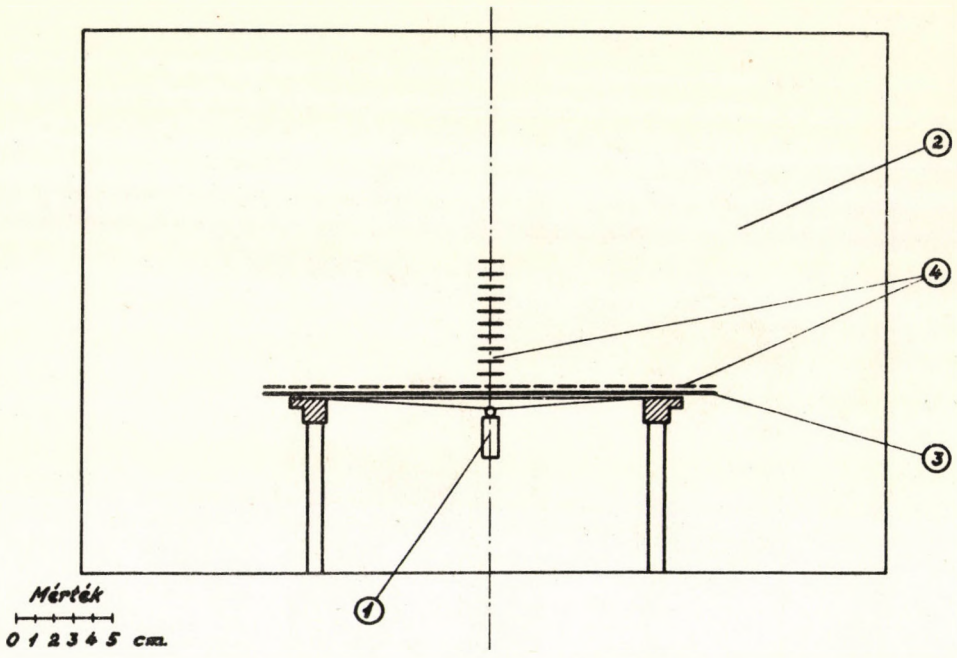
$$\phi(z, r)/k(z, L) = exp(-z/L) \qquad /21/$$

ahol

$$k(z, L) = \frac{\int_0^\infty A(\mu) exp[-z(\sqrt{1/L^2+\mu^2}-1/L)]\mu d\mu}{\int_0^\infty A(\mu)\mu d\mu} \qquad /22/$$

Amennyiben $A/\mu/$ értéke olyan, hogy csak $\mu^2 \ll \frac{1}{L}_2$ esetén különbözik lényegesen zérustól, $k/z, L/$ értéke közel 1, és igy korrekciós faktornak tekinthető. L meghatározásának menete a továbbiakban ugyanaz, mint a fenti mérésnél.

Az itt tárgyalt geometria realizálható pontszerű gyors neutronforrás elé helyezett /végtelen, vagy véges köralakú/ kadmium-lappal.



2. ábra. Geometriai elrendezés a b./ méréshez. 1. Neutronforrás; 2. Mérendő közeg; 3. Kadmium-lap; 4. Detektor-fóliák.

c./ Végtelen közegben, az $x = 0$ sikban lévő végtelen homogén sikforrás esetén a diffuzió-egyenlet megoldása

$$\phi(x) = konst\ exp(-x/L) \qquad /23/$$

Végtelen homogén sikforrás a következő meggondolás alapján valósitható meg: Az /1/ diffuzió-egyenlet és a /3/ feltétel linearitása miatt egy kiterjedt felületi forrás által keltett fluxus az egyes felületelemek

által létrehozott fluxusokból additive tehető össze. Mivel egy r' helyen lévő pontszerű termikus forrásból származó fluxus az r helyen:

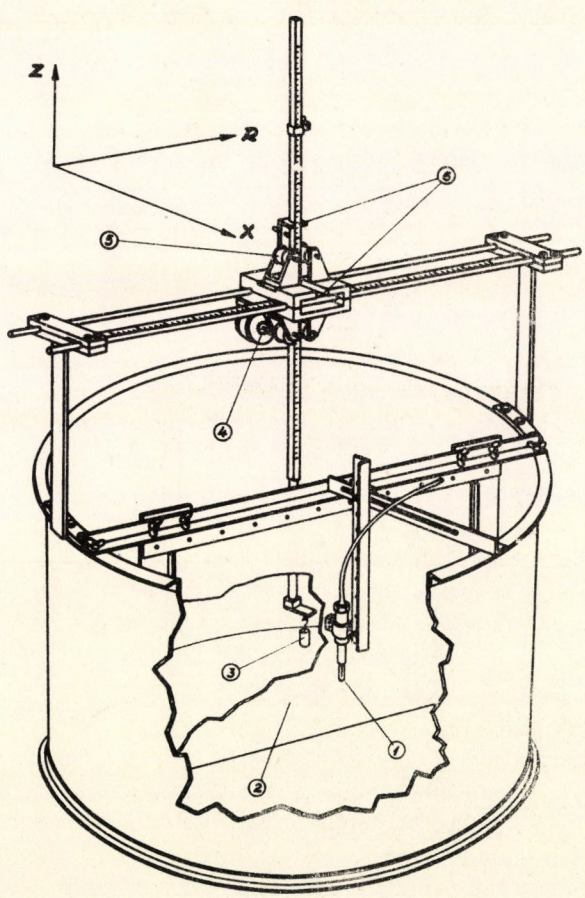
$$\phi(r) = konst\ [exp(-|r-r'|/L)]/(|r-r'|) \qquad /24/$$

igy végtelen, homogén sikforrás esetén a fluxus

$$\phi(x)=konst \int_0^\infty \int_0^\infty \{[exp(-|r-r'|/L)]/(|r-r'|)\}dy'\,dz' = konst\ exp(-x/L) \qquad /25/$$

A /25/ egyenlet érvényes akkor is, ha a sikforrás pontjai időben nem egyszerre, hanem egymás után emittálnak /azonos intenzitással/ neutronokat, s $\phi(x)$ alatt az integrális fluxust értjük. Az /1/ és /3/ egyenlet linearitása fizikailag éppen azt jelenti, hogy az egyik forráspontból származó neutronok a másikból származók eloszlását nem befolyásolják.

Ez a geometria megvalósitható egy végtelen kadmium-lap mögé helyezett pontforrással, mely egy - a lappal párhuzamos - sikot egyenletes sebességgel bejár. Az integrális fluxust mérhetjük például BF_3 töltésű proporcionális számlálóval.



3. ábra. Aluminium tank a c./ mérésnél alkalmazott összeállitásban. 1. BF_3 számlálócső; 2. Kadmium-lap; 3. Neutronforrás; 4. Szinkron-motor; 5. Golyóscsapágyazott görgők; 6. Leolvasó jelek /az r és a z koordinátákhoz/.

Számitásokat végeztünk arra vonatkozólag, hogy mekkora sikforrás tekinthető végtelennek. Ugy találtuk, hogy $9\ L$ sugarú körlapforrás esetén a $ln\phi(x,o)$ negativ reciprok iránytangense kevesebb, mint 0,2 %-kal tér el L-től. Igy 50x50 cm^2 sikforrás viz esetén, a fenti pontossággal végtelennek tekinthető.

Mindhárom mérésnél csapvizet használtunk, ezért, ha mérési eredményeinket más szerzők desztillált vizre vonatkozó eredményeivel akarjuk összehasonlitani, figyelembe kell vennünk a vizben oldott anyagok neutronabszorpcióját. A használt csapvizre vonatkozó adatok alapján

$$\Sigma_a(\text{csapviz})/\Sigma_a(\text{deszt.viz}) \approx 1{,}01$$

igy az

$$L = \sqrt{D/\Sigma_a}$$

összefüggésből L /deszt.viz/ $\approx 1{,}005\ L$ /csapviz/.

Kisérleti elrendezések.

A mérésnél használt tartály 80 cm magas, 120 cm átmérőjű henger volt. Erre szereltük fel az r-z irányban mozgatható fóliótartót, a c./ mérésnél használt kadmium-sikot /75x100 cm^2/, valamint a neutronszámláló x-irányú mozgását biztositó sint.

A méréseket közel 3 Curie erősségű Po-Be neutronforrással végeztük.

Az a./ és b./ mérésnél a kadmium különbséget 2,25 cm átmérőjű, 110 mg/cm^2 vastagságú ezüstfóliával mértük. (Az a./ mérésnél $\phi(o,\rho)$ meghatározásához a mért kadmium-különbségeket pontszerű detektorra korrigáltuk.) A detektorként használt fóliákat egy r-z *irányban* 0,1 mm pontossággal állitható plexi-csipeszben helyeztük el. A fluxus megzavarásának elkerülése végett egyrészt a fóliákat egyenként aktiváltuk, másrészt speciális fóliatartót készitettünk plexiből, melynek zavaróhatása elhanyagolható. Az r-z irányban mozgatható fóliatartó a 3. ábrán látható. Az alkalmazott görgők lehetővé teszik a fóliatartó rúd gyors mozgatását és igy az aktiválási idő szórása elhanyagolható. A detektorfóliák béta aktivitását végablakos GM számlálóval mértük.

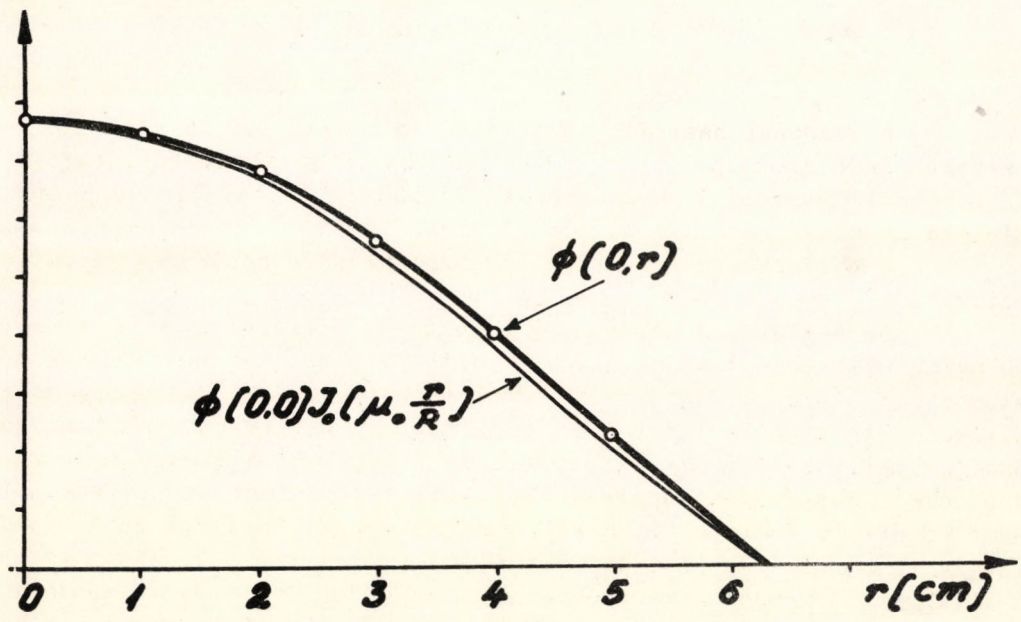
A c./ mérésnél a fóliatartó rúdra rögzitettük a forrást és a rudat egy szinkronmotor 7 cm/sec sebességgel felfelé emelte. Ezt a $\pm r$ irányban 5 cm-enként ismételtük, igy az 50x50 cm^2 forrásfelületet 10 sávban fedtük le. A fluxust itt egy, a sikra merőlegesen mozgatható és a forrás sikjának középpontjával egyszinten levő szilárd bór bevonatú, BF_3 töltésű proporcionális neutronszámlálóval mértük. A számláló érzékeny térfogatának méretei: átmérő 9 mm, hossz: 30 mm. A forrás - kadmium távolság 4,5 cm. A $\phi(x)$ mérését a kadmium siktól 4 cm távolságban kezdtük.

Mérési eredmények.

I. táblázat.

	T/C°/	L/cm/	L/20°C/	L/deszt.víz/	Kisérleti elrendezés
a./	18	2,73 ± 0,08	2,74 ± 0,08	2,75 ± 0,08	véges henger
b./	13	2,69 ± 0,04	2,72 ± 0,04	2,73 ± 0,04	∞ közeg, körszimmetrikus sikforrás
c./	15	2,71 ± 0,06	2,73 ± 0,06	2,74 ± 0,06	∞ közeg, homogén sikforrás

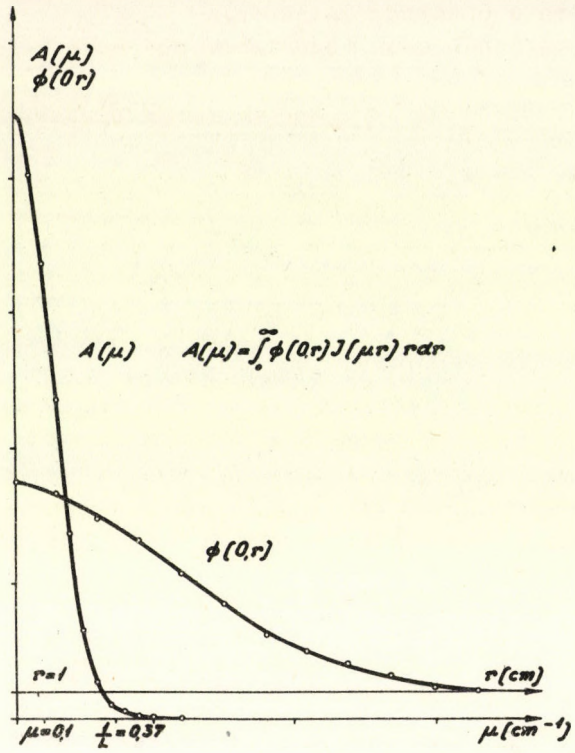
Az a./ hibájánál figyelembe vettük a statisztikus szórást, valamint az extrapolált határban 0,5 mm bizonytalanságot. Az első közelités L_1 = 2,86 cm. A 4. ábrán feltüntetett radiális fluxus-eloszlásból látható, hogy $\phi(o,r)$ a $J_o(\mu_o r/R)$ *Bessel*-függvénytől kevéssel tér el. Ennek megfelelően a harmónikus korrekció csak kb. 4 % csökkenést okozott.



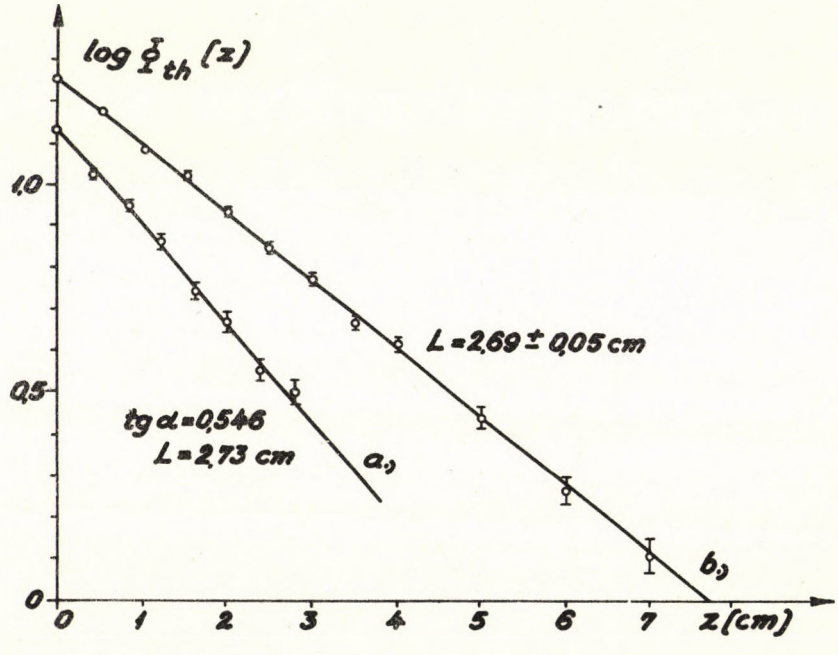
4. ábra. Radiális fluxuseloszlás az a./ mérésnél.

A b./ mérésnél L első közelitése L_1 = 2,45 cm, a korrekció kb. 10 % volt. /A korrekcióhoz szükséges $\phi(o,r)$ radiális fluxuseloszlás és *Fourier-Bessel* transzformáltja az 5. ábrán látható.

A korrekciós faktor számitása közel 5 % pontossággal történt /az integrálásokat planiméterrel végezve/, igy a statisztikus szórásból származó hiba mellett a korrekciós eljárásból eredő 0,5 %-os hibát is figyelembe vettük.



5. ábra. Radiális fluxuseloszlás a b./ mérésnél és *Fourier-Bessel* transzformáltja.



6. ábra. Axiális fluxuseloszlások az a./ és b./ mérésnél.

Az a./ és b./ méréshez tartozó korrigált értékek logaritmusai z függvényében a 6. ábrán láthatók.

A c./ mérésnél csak a szórásból származó valószinű hibát tüntettük fel.

A végeredményeket mindhárom mérésnél a legkisebb négyzetek módszerével számitottuk ki.

A három mérési eredményünknek egymással, valamint a feltüntetett adatokkal való egyezése azt mutatja, hogy a módszerek megbizhatóak és az a./ módszerrel aránylag gyorsan és egyszerű eszközökkel kielégitő pontossággal meghatározható a termikus neutron diffuziós hossza, kis anyagmennyiség felhasználásával.

Ezuton fejezzük ki köszönetünket *dr. Szalay Sándor* professzornak munkánk iránti érdeklődéséért és támogatásáért.

Köszönettel tartozunk *Csikai Gyulánénak* és *Schlenk Bálint*nak a speciális neutronszámlálócső, illetőleg a hozzátartozó elektronikus berendezés tervezéséért és elkészitéséért, valamint a műhely mérnökeinek és dolgozóinak a kisérleti berendezések tervezésében nyújtott segitségükért.

F ü g g e l é k .

Kiszámitjuk, hogy homogén, véges sikforrás esetén $ln\phi(z,o)$ negativ reciprok iránytangense mennyivel különbözik L-től.

Tekintsük a sikforrást pontforrásokból szuperponáltnak. Egy r' helyen levő d^2r' felületelem által képviselt pontforrásból származó fluxus

$$d\phi(r) = A[exp(-|r-r'|/L)/(|r-r'|)]d^2r'$$

A teljes, F forrásfelületből származó pedig

$$\phi(r) = A\int_F [exp(-|r-r'|/L)/(|r-r'|)]d^2r'$$

Legyen a forrásfelület az egyszerűség kedvéért R sugarú kör és számitsuk ki a fluxust a kör középpontjára merőleges egyenes mentén. Ekkor - henger-koordinátokat bevezetve és az integrálást elvégezve -

$$\phi(z,o) = 2\pi A\int_0^R \{exp[-\sqrt{(r^2+z^2)}/L]/\sqrt{r^2+z^2}\}rdr = 2\pi A\int_z^{\sqrt{R^2+z^2}} [exp(-\rho/L)/\rho]\rho d\rho =$$

$$= 2\pi AL[exp(-z/L)-exp(-\sqrt{z^2+R^2}/L)]$$

és

$$\frac{dln\phi}{dz} = \frac{1}{L}\cdot\frac{exp(-z/L)-z/\sqrt{z^2+R^2}\,[exp(-\sqrt{z^2+R^2}/L)]}{exp(-z/L)-exp(-\sqrt{z^2+R^2}/L)} = \frac{1}{L_1}$$

ahol L_1 az iránytangensből közvetlenül kapható diffuziós hosszérték. A megfelelő értékeket behelyettesitve úgy találtuk, hogy $R = 9L$ és $0<z<4L$ esetén

$$(L-L')/L<0,002$$

Irodalom

[1] *C.A.Trilling* et al.: Geneva Conference Vol. 29. 292,/1958/.
[2] *K.Wirtz, K.H.Beckurts:* Elementare Neutronenphysik, Springer Verlag Berlin-Göttingen-Heidelberg, 1958.
[3] *C.W.Tittle:* Nucleonics 9, /1951.jul./ 60.
[4] *A.Gray, G.B.Methews:* A Treatise on Bessel Functions, McMillan and Co. London, /1952/.
[5] *Ádám A., Kosály Gy.:* KFKI Közl. 6, 12, /1958/.
[6] *E.Amaldi, E.Fermi:* Phys.Rev. 50, 899, /1936/.
[7] *K.H.Beckurts, O.Külber:* Z.Naturforsch. 13, 822, /1958/.
[8] *K.E.Larsson:* Ark.Fysik, 2, 47, /1950/.
[9] *Ádám A., Bata L.:* KFKI Közl. 6, 3, /1958/.
[10] *J.A.de Juren, H.Rosenwasser:* J.Res.Nat.Bur.Stand. 51, 203, /1953/.
[11] *L.M.Barkov* et al.: J.Nucl.Energy, 5, 41, /1957/.
[12] *L.R.Heintzé:* Nucleonics, 14, 108, /1956/.
[13] *G.von Dardel, N.G.Sjöstrand:* Progr.Nucl.Eng. 2, 183, /1958/.
[14] *G.von Dadrel, N.G.Sjöstrand:* Phys.Rev. 96, 1245, /1954/.
[15] *A.V.Antonov* et al.: Geneve Conference Vol. 5, 3, /1955/.
[16] *W.H.Dio, E.Schopper:* Nucl.Phys. 6, 175, /1958/.
[17] *R.W.Deutsch:* Nucl.Sci.Eng. 1, 252, /1956/.

BF_3 PROPORCIONÁLIS NEUTRONSZÁMLÁLÓK VIZSGÁLATA

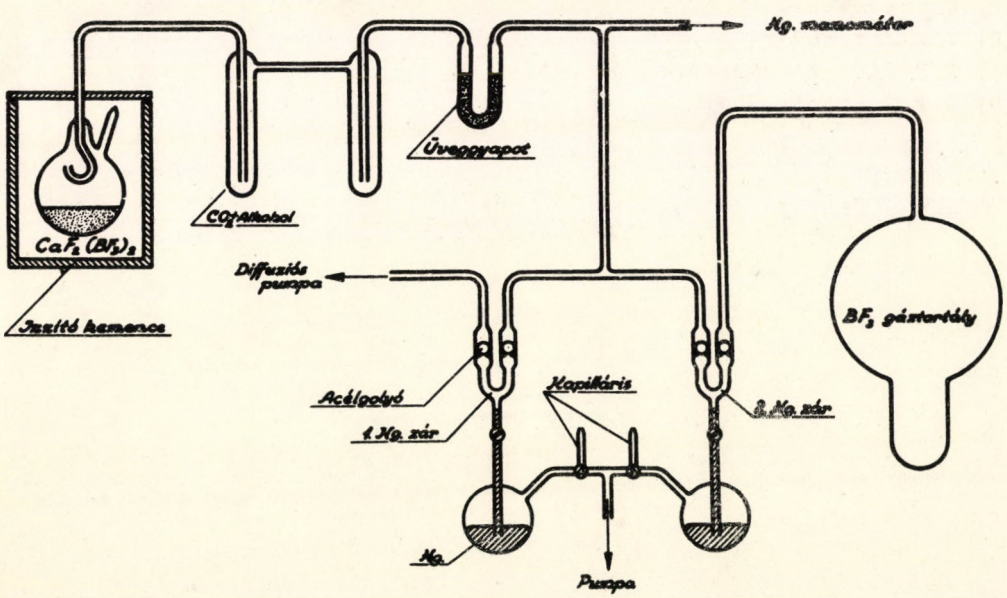
Buczkó Margit és Csikai Gyula

A BF_3 proporcionális neutronszámlálók vizsgálata azt mutatta, hogy erős gammaháttér hatására a neutronok okozta impulzusok amplitudó eloszlása eltorzul. Különböző katódu számlálónál megvizsgáltuk az amplitudó-eloszlás torzulását az elektronikus erősités függvényében. A kapott eredmények jól magyarázhatók az anód körül - a külső sugárzás miatt - kialakuló pozitiv tértöltés árnyékoló hatásával.

Lassú neutronok detektálására - különösen kis neutron intenzitás esetén - igen elterjedten alkalmazzák a BF_3 töltésű proporcionális neutronszámlálót a $B^{10}/n,\alpha/Li^7$ reakció kedvező hatáskeresztmetszete miatt. Természetes izotópkeverék esetén, lassú neutronokra $\sigma = 114\ E_n^{-\frac{1}{2}}$ barn, ahol E_n a neutronok energiája eV-ban. Az Intézetben felépő igényeknek megfelelően különböző konstrukcióju BF_3proporcionális neutronszámlálót készitettünk és vizsgáltuk azok tulajdonságait.

a./ A BF_3 gáz fejlesztése.

A BF_3 gázt a $CaF_2/BF_3/_2$ termikus bontása útján állitottuk elő. [1] A gázfejlesztő és tárolórendszert az 1. ábra szemlélteti.

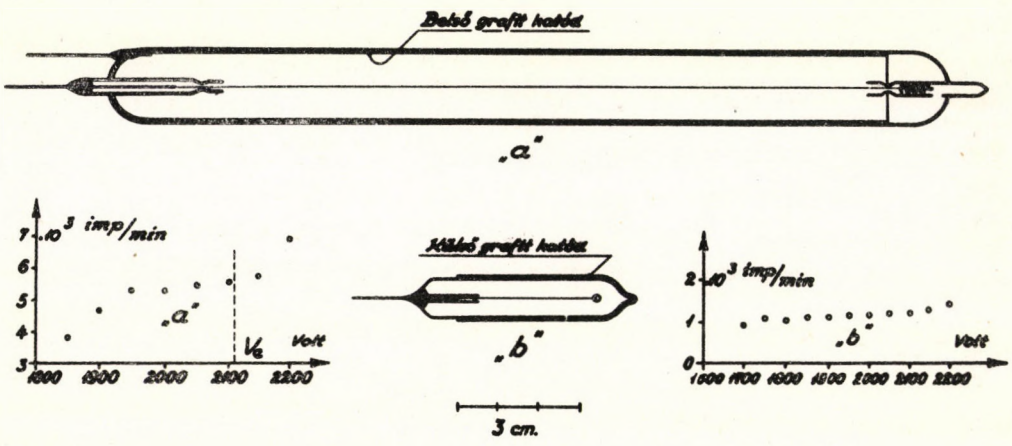


1. ábra. BF_3 gáz fejlesztő rendszer.

A kalciumfluoborátot tartalmazó lombik egy kemencében foglal helyet, amelynek hőmérséklete szabályozható. A rendszerben jelenlévő viznyomok és a keletkező HF megkötésére két kifagyasztó edény és egy üveggyapottal töltött U-cső szolgál, amelyeket szénsavhó + alkohol keverékével hűtünk. A gáz tárolására egy higanyzáras lombikot alkalmazunk. Fejlesztés előtt a rendszert több napon keresztül vákuumoztuk, majd a száraz kalciumfluoborátot a fejlesztőlombikba vittük és cca 10 órán keresztül állandó szivás mellett 200° C-on tartottuk. A vákuumozás alatt a rendszerben közel 10^{-5} Hgmm volt a nyomás, amit egy olajdiffuziós pumpa állitott elő. Az 1. higanyzárral a szivást elzárva, a hőmérsékletet egyenletesen kb. 4 óra alatt 400° C-ig emeltük. A BF_3 gáz fejlődés 250° C körül indult meg. Az 1. higanyzár a gázt - a több órai fejlesztési idő alatt - megvédte a csapzsirral és olajjal való érintkezésből származó szennyeződéstől. A fejlődött gázt cseppfolyós levegővel kifagyasztva, az esetleges levegőszennyeződést további vákuumozással távolitottuk el. A gázfejlesztő rendszer razoterm üvegből készült.

b./ A számlálócsövek készitése és működési adataik.

A számlálócsövek töltésére szintén az 1. ábrán látható rendszert használtuk azzal a különbséggel, hogy a fejlesztő lombik helyére a töltendő csövekkel csatlakoztunk. A csöveket több órán át 400° C hőmérséklet mellett 10^{-5} Hgmm nyomáson tartottuk, majd normál hőmérsékleten 100-400 Hgmm BF_3 gázzal töltöttük meg. A jénai normál üvegből készült számlálócsövek konstrukciója a 2. ábrán látható.



2. ábra. A számlálócsövek konstrukciója és karakterisztikáik.

Az anód 0,1 mm átmérőjű wolfram-szál, a katód vékony grafitréteg /aquadag/. Az "a" tipusú cső érzékeny térfogata 17 mm átmérőjű, 160 mm hosszú henger. Mivel - a BF_3 proporcionális számlálónál fellépő "kritikus rádiusz" /2/ /ami 100-380 Hgmm nyomás esetén 8-4 mm/ miatt - az érzékeny térfogat az átmérővel egy bizonyos határon túl nem növelhető, ezért 15-20 mm-nél nagyobb átmérőjű csöveket készíteni nem célszerű. Speciális mérési feladatokra készitettük a 2. ábrán látható "b" tipusú külsőkatódos kisméretű számlálót, melynek érzékeny térfogata 9 mm átmérőjű, 25-30 mm hosszú henger.

A 260 Hgmm nyomásra töltött 10 db "a" tipusú cső karakterisztikájának vizsgálata - a töltés után néhány hónappal - azt mutatta, hogy a plató meredeksége 2-6 %/100 V, a plató hossza 150-200 V, 450-szeres elektronikus erősitésnél. A 200 Hgmm-re töltött 10 db "b" tipusú csőnél a plató meredeksége 2-6 %/100 V, a plató hossza 250-350 V, 35-szörös elektronikus erősitésnél /2. ábra/. A "b" tipusú csövek feloldási ideje több mint egy nagyságrenddel nagyobb, mint az "a"tipusúaké, vagyis a külső katódú csövek számlálási sebessége a belső katódú csövekhez viszonyitva sokkal kisebb. A számlálócsöveket a karakterisztika felvételénél egy parafin henger felületére helyeztük, melynek belsejében - a felszintől 3 cm távolságban - egy cca 3 C erősségű Po-Be neutronforrás volt.

A BF_3 gáz elektronegativ szennyezettsége és a proporcionális plató meredeksége között kapcsolat van. Felhasználva az erre vonatkozó irodalmi adatot [2], úgy találtuk, hogy a kalciumfluoborátból a fent leirt módon fejlesztett gáz a kommerciális BF_3 gázból kétszer frakcionált desztillációval és termodiffuzióval nyert gáz tisztaságának felel meg. A további - bonyolult eljárásokkal való - tisztitás nem célszerű, mivel maga a BF_3 gáz is elektron affin [2] [3].

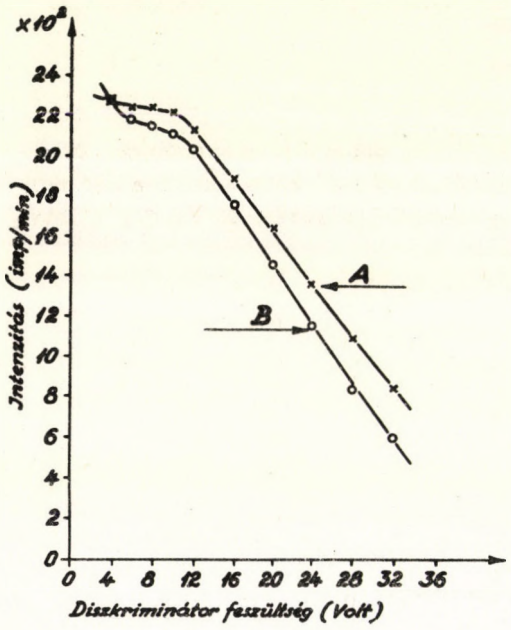
c./ A γ-háttér hatásának vizsgálata.

Gyakran intenziv γ-háttér jelenlétében kell a neutronokat detektálni, ezért megvizsgáltuk a γ-háttér hatását a BF_3 proporcionális neutronszámlálók működésére. Azt tapasztaltuk, hogy erős γ-háttér jelenlétében az integrális amplitudó eloszlás eltorzul. A 3.ábrán látható a neutronoktól származó impulzusok integrális amplitudó eloszlása γ-háttér nélkül /A/ és γ-háttér jelenlétében /B/. Az amplitudó-eloszlást egy "a" tipusú csőnél vettük fel úgy, hogy a számlálóra adott feszültség az elektron-küszöbhöz /V_e/ tartozónál 50 V-tal kisebb volt, s igy az elektronoktól származó impulzusokat nem detektáltuk. γ-forrásul 4 mC Co^{60} preparátumot alkalmaztunk közvetlenül a cső mellé helyezve. Nagy γ-intenzitás esetén az integrális amplitudó eloszlás plátója teljesen eltűnik, ami miatt a neutronok-, és a γ-sugarak okozta impulzusokat nem lehet szétválasztani.

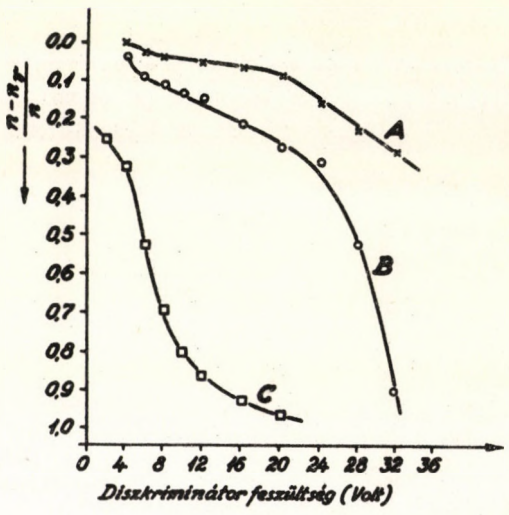
Azonos körülmények között megvizsgáltuk az amplitudó eloszlás torzulását különböző katódú számláló esetén. A 4.ábrán az $(n-n_\gamma)/n$ /ahol n és n_γ a neutronoktól származó impulzusok száma γ-háttér nélkül ill. γ-háttér esetén/ mennyiséget ábrázoltuk a diszkriminációs feszültség függvényében, belső grafit /A/, belső réz /B/ és külső grafitkatód /C/ esetén. Jól látható, hogy a γ-háttér hatása a belső grafitkatód esetén a legkisebb.

Ugyancsak megvizsgáltuk az amplitudó eloszlás torzulását az

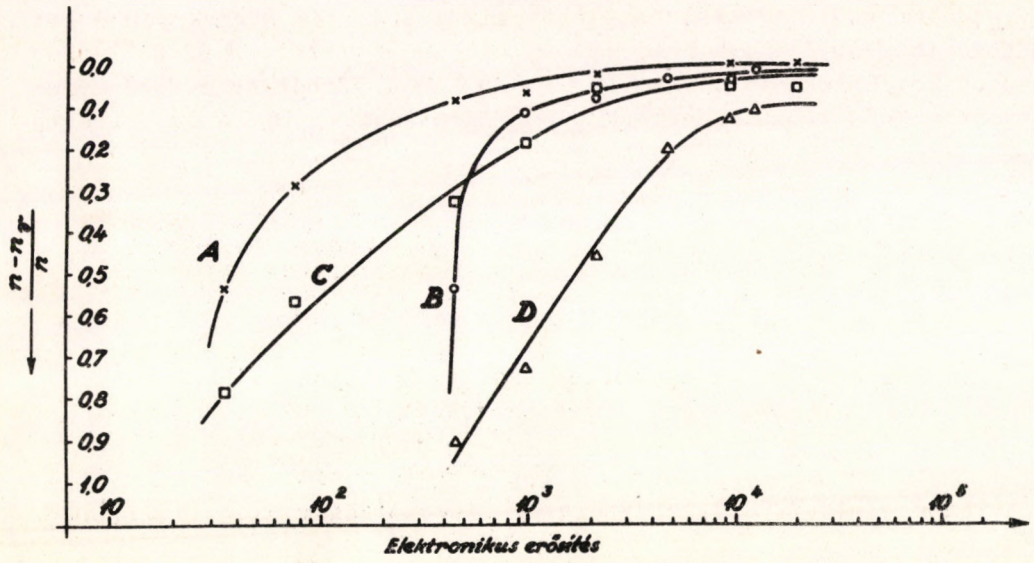
elektronikus erősités függvényében egy "b" tipusú csőnél. Minden egyes elektronikus erősitésnél a V_e-50 V feszültségre állva mértük az n és n_γ értékeket 10 és 20 V diszkriminátor állásnál. Az 5. ábrán az $(n-n_\gamma)/n$ mennyiségeket tüntettük fel az elektronikus erősités függvényében két különböző intenzitású γ-forrás esetén. Az A és B görbét, 3 mC Co^{60} preparátumot közvetlenül a cső mellé téve, a C és D görbét 45 mC Co^{60} preparátumot a csőtől 1 cm távolságra helyezve kaptuk, 10 /A,C/, illetve



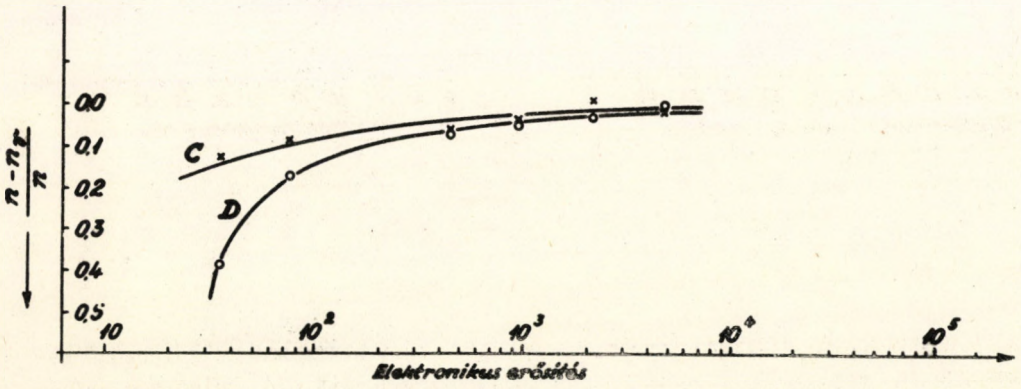
3. ábra. A neutronoktól származó impulzusok integrális amplitudó eloszlása, γ-háttér nélkül /A/ és γ-háttér esetén /B/.



4. ábra. A γ-háttér hatása különböző katódu (belső grafit /A/, belső réz /B/ és külső grafit /C/) számlálócsövek működésére.



5. ábra. A γ-háttér hatása egy "b" tipusú számlálócső amplitudó eloszlására, különböző elektronikus erősités esetén. Az *A* és *B* görbe 3 mC Co^{60} közvetlenül a cső mellé-, a *C* és *D* görbe 45 mC Co^{60} a csőtől 1 cm távolságra helyezve, 10 /*A, C*/, illetve 20 /*B, D*/ Volt diszkriminátor állásnál van felvéve.



6. ábra. A γ-háttér hatása egy "a" tipusú számlálócső amplitudó eloszlására, 45 mC Co^{60} a csőtől 1 cm távolságra helyezve, 10 /*C*/ és 20 /*D*/ Volt diszkriminátor állásnál.

20 /B,D/ Volt diszkriminátor állásnál. Mint az ábrából látható kis elektronikus erősitésnél - vagyis nagy gázerősitésnél - a γ-háttér hatása igen jelentős, ami az elektronikus erősités növelésével rohamosan csökken. Összehasonlitásul egy "a" tipusú csőnél is meghatároztuk az $(n-n_\gamma)/n$ mennyiségeket az elektronikus erősités függvényében, 10 és 20 V diszkriminátor állásnál, 45 mC Co^{60} preparátumot a számlálótól 1 cm távolságra helyezve. /6. ábra./ Az elektronikus berendezés felbontóképessége, mint az 5. és 6. ábrából is látható, a vizsgálatot lehetővé tette.

A fenti vizsgálatból kiderül, hogy a γ-háttérnek BF_3 számlálóra gyakorolt hatása nem elhanyagolható és függ a katód anyagától, a gázerősitési tényező értékétől, a kezdeti ionizáció nagyságától, valamint a γ-háttér intenzitásától. Feltehetően ezek az okai az erős γ-háttérben BF_3 proporcionális számlálóval, és a γ-háttérre érzéketlen módszerrel kapott mérési eredmények [4], [5], [6] eltérésének.

A γ-háttér BF_3 proporcionális számlálóra gyakorolt hatása, feltehetően a következőkkel magyarázható: az intenziv γ-sugárzás által kiváltott nagy számú elektron a szál közelében a gázerősités révén felsokszorozódik. Az elektron lavinák következtében a szál körül egy pozitiv tértöltés alakul ki, mely adott γ-intenzitás esetén annál nagyobb, minél nagyobb a gázerősitési tényező értéke. A pozitiv tértöltés miatt a $B^{10}/n,\alpha/Li^7$ reakcióból származó α-részecske és a meglökött mag által keltett elektronok lavinája gyengébb elektromos térben alakul ki, igy a gázerősités és ezen keresztül az impulzus nagysága kisebb lesz /3.ábra/. Ilyen módon a gázerősitési tényező értékének csökkentésével a γ-háttér hatásának is csökkenie kell, amit az 5. és 6. ábrán látható adatok valóban igazolnak.

A γ-háttér hatásának a katód anyagától való függését azzal magyarázhatjuk, hogy a külső sugárzás, valamint a gázerősités folyamatában keletkező fotonok által a katódból kiváltott elektronok száma és ezen keresztül a pozitiv tértöltés nagysága a katód anyagával változik. Külső katódú számlálónál a nagyobb hatás a számláló kis számlálási sebességével magyarázható.

Köszönettel tartozunk *Szalay Sándor* professzornak, az Intézet igazgatójának, hogy ezen vizsgálatok elvégzését lehetővé tette. A szükséges elektronikus berendezések megtervezéséért és kivitelezéséért *Schlenk Bálint*nak, az üvegtechnikai munkák elvégzéséért *Seicher János*nak mondunk köszönetet.

Irodalom

[1] *A. C. Graves, D. K. Froman:* National Nuclear Energy Series, div. V. 3, 47. McGraw-Hill Book Company, Inc. New York, 1952.

[2] *A. Milojevic, M. Kurepa, S. Ribnikar:* Proceedings of the Second International Conference Geneva, 1958. Vol. 14, 325. P/493.

[3] *V.C.Tongiorgi, S.Hayakawa, M.Widgoff*: Rev.Sci.Instr. 22, 899. /1951/.
[4] *Nagy L., Orient O.*: KFKI Közlemények 2, 253. /1957/.
[5] *K.E.Larsson*: Ark.f.Fys. 9, 293. /1955/.
[6] *R.Montalbetti, L.Katz, J.Goldemberg*: Phys.Rev. 91, 659. /1953/.

SZÁMITÁSOK HOMOGÉN, VIZFORRALÓ TIPUSU REAKTOR TEMPERATURAKOEFFICIENSÉRE

Angeli István

A reaktorra jellemző mennyiségek hőmérsékletfüggéséből a reaktivitás hőmérsékletfüggésére következtetünk. A különböző hőmérsékletekhez tartozó átlagos hatáskeresztmetszetek számitását a Függelék tartalmazza.

Bevezetés

Reaktorokban fellépő hőmérsékletváltozás sűrűség- és hatáskeresztmetszetváltozást okoz. Ennek eredményeképpen homogén, vizforraló reaktoroknál a hőmérséklet növekedése a neutronsokszorozási tényező csökkenését, tehát a reaktivitás csökkenését, vonja maga után: a reaktor temperaturakoefficiense negativ. Jelen dolgozat célja az, hogy egy ilyen tipusú reaktor példáján /0,92-mólos UO_2SO_4 -oldat, 20 % U-235/ végigkövessük a hőmérsékletváltozás hatását a reaktort jellemző paraméterekre és igy az ezekkel kifejezhető reaktivitásra.

A temperaturakoefficiens számitásához a reaktivitásnak

$$\rho = (k_{eff}-1)/k_{eff}$$

definiciójába - H-tartalmú moderátorról lévén szó - a

$$k_{eff} = k_\infty / \prod_1^4 (1+B^2 . L_i^2)$$

kifejezést irjuk be. Mivel k_∞, B^2 és L_i^2 függ a térfogategységben levő atomok számától és a mikroszkópikus hatáskeresztmetszetektől, azért először ezeknek a hőmérsékletfüggését állapitjuk meg, majd ebből következtetünk k_∞, B^2 és L_i^2-en keresztül

$d\rho/dT$-re.

A különböző hőmérsékletekhez tartozó átlagos mikroszkópikus hatáskeresztmetszetek számitását a "Függelék" tartalmazza.

Jelölések:

k_∞ : végtelen kiterjedésű közegre vonatkozó neutronsokszorozási tényező;

k_{eff} : a reaktor véges méreteit figyelembe vevő "effektiv" sokszorozási tényező;

B^2 : a reaktor alakjától és méreteitől függő mennyiség, amely a fluxus térbeli eloszlásának változására jellemző /neve: "buckling"/;

$L = L_4$: a termikus neutronok diffuziós hossza;

$L_i / i = 1, 2, 3/$: termikusnál nagyobb energiájú neutroncsoportokra vonatkozó, L_4 -gyel analóg mennyiségek /"részleges lassitási hosszaknak" nevezhetnénk ezeket/;

ε : gyors neutronok által előidézett maghasadás valószinűsége;

p : rezonancia befogás elkerülésének valószinűsége;

η : egy - U-235 magban abszorbeálódott - neutron hatására kilépő neutronok átlagos száma;

f : abszorbeálódott összes neutronoknak U-235-ben elnyelt hányada;

ν : U-235 mag hasadásakor kilépő neutronok átlagos száma;

T' : C°-ban mért hőmérséklet;

T : K°-ban mért hőmérséklet.

1./ Sürüség hőmérsékletfüggése.

Egy kis dT hőmérsékletváltozáshoz tartozó sűrűségváltozás jó közelitéssel

$$dN/dT = -3\alpha N$$

ahol N az 1 cm^3-ben levő atomok száma és

$\alpha(T)$ a közeg lineáris hőkiterjedési együtthatója. 20 C° és 80 C° között $\alpha(T)$ a hőmérséklettől közel lineárisan függ:

$$\alpha = aT' + b$$

Irodalomban [1] található adatokból számolva példánkban $a = 0{,}016.10^{-4}$
$b = 0{,}65 .10^{-4}$

2./ Mikroszkópikus hatáskeresztmetszetek hőmérsékletfüggése.

Feltesszük, hogy a hatáskeresztmetszetek energia-, illetve hőmérsékletfüggése a termikus tartományban ilyen alakú:

$$\sigma/\sigma_0 = (E_0/E)^y = (T_0/T)^y$$

ahol y a hőmérséklettől független, atommagonként változó érték; meghatározása a kisérleti $\sigma(E)$ adatokból történhet.

Fenti formulából:

$$d\sigma/dT = -(y/T).\sigma$$

a./ *y meghatározása.*

$$\sigma/\sigma_o = (T_o/T)^y$$

alapján

$$y = ln(\sigma/\sigma_o)/ln(T_o/T).$$

Ezért T_o = 273 + 20 = 293 és
T = 273 +120 = 393 K° választással

$$y = 3,417.ln(\sigma_o/\sigma)$$

A megfelelő átlagos hatáskeresztmetszeteket beirva /lásd Függelék 1. táblázat/:

y_a/*U-235*/	= 3,417.ln 600/513 = 0,525	/abszorpció/
y_f/*U-235*/	= 3,417.ln 489/412 = 0,594	/hasadás/
y_c/*U-235*/	= 3,417.ln 111/101 = 0,325	/befogás/
y_s/H_{viz}/	= 3,417.ln 46/42 = 0,334	/szórás a vizben kötött H-magokon/

Más, később emlitendő módszerrel kapott értékek: (L. 3/a, 3/b, 3/c)

y_a/H_{viz}/	= ..... = 0,179
y_a/*oldat*/	= ..... = 0,439
y_s/*oldat*/	= y_s/H_{viz}/ = ... = 0, 334

b./ y_a, y_f *és* y_c *összefüggése U-235 esetében.*

$$\sigma_a = \sigma_f + \sigma_c$$

Differenciálva:

$$-(y_a/T).\sigma_a = -(y_a/T).[(y_f/y_a).\sigma_f + (y_c/y_a).\sigma_c] \equiv -(y_a/T).\sigma'_a$$

ahol a

$$\sigma'_a \equiv (y_f/y_a).\sigma_f + (y_c/y_a).\sigma_c$$

jelölést vezettük be. Az a feltevésünk tehát, hogy $\sigma \sim (1/E)^y$ alakú, a jelen esetben σ_a és σ'_a azonosságát követeli meg. De ez a követelmény jó közelitéssel teljesül is, mert a relativ differencia $\approx$ 2,8 %.

3./ Makroszkópikus hatáskeresztmetszetek (Σ) hőmérsékletfüggése.

Definició szerint:

$$\Sigma = N.\sigma$$

ebből

$$d\Sigma/dT = -(3\alpha + y/T).\Sigma$$

/α és Σ a T helyen veendők/.

Fenti képletből jól látható a hőmérsékletváltozás kettős hatása: megváltoztatja az 1 cm^3-ben jelenlévő atomok számát, és az egyes atommagok hatáskeresztmetszetét is.

a./ $y_a(H_{viz})$ *meghatározása*

nem végezhető el a 2/a-ban leirt módon, mert a megfelelő $\sigma_a(E)$ nem áll rendelkezésünkre, tehát más módszerhez kell folyamodni.

Dio és *Schopper* [2] megmérték vizben a D diffuziós együttható és az L diffuziós hossz értékét különböző hőmérsékletek esetében. Felhasználva az

$$L = (D/\Sigma_a)^{\frac{1}{2}}$$

definiciót, $\Sigma_a(T)$-t ki tudjuk számitani és ez a viz lineáris hőkitágulási együtthatójának ismeretében már meghatározza y-t. Az emlitett szerzők mérési eredményeit felhasználva kapjuk: $y_a(H_{viz}) = 0,179$. Ezt irtuk az előbbi 2/a. alatti táblázatba.

b./ $y_a(oldat)$ *meghatározása.*

$$\Sigma_a(oldat) = [\sigma_a(U\text{-}235)+4.\sigma_a(U\text{-}238)+296.\sigma_a(H_2O)].N(U\text{-}235) \qquad /1/$$

(mert esetünkben $N(U\text{-}238)/N(U\text{-}235) = 4$ és $N(H_2O)/N(U\text{-}235) = 296$).

/1/-ből:

$$[d\Sigma_a(oldat)/dT]_{N=konst.} \approx -[y_a(U\text{-}235).\Sigma_a(U\text{-}235)+y_a(H_2O).\Sigma_a(H_2O)]/T$$

Milyen $y_a(oldat)$ érték esetén lehet a jobb oldalt

$$= -y_a(oldat).\Sigma_a(oldat)/T$$

alakra hozni?

A jobb oldalakat egyenlővé téve kapjuk, hogy

$$y_a(oldat) = y_a(U\text{-}235).\Sigma_a(U\text{-}235)/\Sigma_a(oldat)+y_a(H_2O).\Sigma_a(H_2O)/\Sigma_a(oldat)$$

A 20 C°-hoz tartozó átlagos hatáskeresztmetszeteket /1/-be irva látható, hogy

$$\Sigma_a(U\text{-}235)/\Sigma_a(oldat) \approx 3/4 \quad \text{és} \quad \Sigma_a(H_2O)/\Sigma_a(oldat) = 1/4,$$

tehát az $y_a(U\text{-}235) = 0,525$ és $y_a(H_2O) = y_a(H_{viz}) = 0,179$ értékek felhasználásával $y_a(oldat) = 0,439$.

Ezt is a 2/a. alatti táblázatba irtuk

c./ $y_s(oldat) = y_s(H_{viz})$,
mert

$$\sigma_s(U) \ll \sigma_s(H_{viz}) \quad \text{és} \quad N(U) \ll N(H_{viz})$$

és ezért

$$\Sigma_s(oldat) \approx \Sigma_s(H_{viz})$$

4./ k_∞ = ε.p.f.η hőmérsékletfüggése.

Ezt célszerű a következőképpen előállitani:

$$dk_\infty/dT = (\partial k_\infty/\partial \varepsilon).(d\varepsilon/dT)+(\partial k_\infty/\partial p).(dp/dT)+[\partial k_\infty/\partial(f.\eta)].[d(f.\eta)/dT]$$

a./ ε *hőmérsékletfüggése.*
Gyors neutronokra vonatkozik, ezért a hőmérséklettől gyakorlatilag független:

$$d\varepsilon/dT = 0$$

b./ *p hőmérsékletfüggése.*
Irodalom szerint [3] természetes U-rudak esetében:

$$dp/dT \approx -10^{-4}.(1-p) \approx -2.10^{-5}/C^\circ$$

U-235-ben dúsitott hasadó anyag és homogén elrendezés p-t növeli, $1-p$ tehát csökken, ezért esetünkben

$$|dp/dT| < 2.10^{-5} \qquad \text{és negativ.}$$

Ha pl. $k_\infty/p = \partial k_\infty/\partial p \approx 1,6$, akkor $|(dp/dT).(\partial k_\infty/\partial p)| < 3,2.10^{-5}/C^\circ$

Mint később látni fogjuk, a teljes temperaturakoefficiens ennél legalább egy nagyságrenddel nagyobb, ezért a továbbiakban feltesszük, hogy

$$(\partial k_\infty/\partial p).(dp/dT) \approx 0$$

c./ *f.η hőmérsékletfüggése.*
Definició szerint:

$$f = \Sigma_a(U\text{-}235)/\Sigma_a(oldat), \quad \eta = \nu.\Sigma_f(U\text{-}235)/\Sigma_a(U\text{-}235)$$

ezért

$$f.\eta = \nu.\Sigma_f(U\text{-}235)/\Sigma_a(oldat)$$

és igy

$$d(f.\eta)/dT = -(f.\eta).[y_f(U\text{-}235)-y_a(oldat)]/T$$

másrészt

$$\partial k_\infty / \partial(f.\eta) = \varepsilon . p$$

Tehát k_∞ teljes megváltozása:

$$dk_\infty / dT \approx [\partial k_\infty / \partial(f.\eta)] . [d(f.\eta)/dT] = -(y_f - y_a) . k_\infty / T$$

5./ "Buckling" hőmérsékletfüggése.

Gömbalakú reaktorra:

$$B^2 = (\pi / R)^2$$

ahol R a gömb sugara. Ebből

$$dB^2/dT = -2\alpha B^2$$

/Hengeralakú reaktorra is majdnem pontosan ez jön ki./

6./ Diffuziós hossz hőmérsékletfüggése.

$\Sigma_a \ll \Sigma_s$ esetén érvényes:

$$1/L^2 \approx 3 . \Sigma_s . \Sigma_a . (1 - \bar{\mu}_o)$$

$\Sigma_a(oldat) = 0{,}0924\ cm^{-1}$ és $\Sigma_s(oldat) = 3{,}5\ cm^{-1}$ miatt fenti feltétel teljesül.

a./ *Megjegyzés.*

$$\bar{\mu}_o \equiv \overline{\cos\theta} = 2/3A,$$

ahol θ a neutron szóródási szöge és A a szóró /moderátor/-mag tömegszáma. Fenti képlet proton szórócentrumok esetére $\bar{\mu}_o = 2/3 = 0{,}667$-et adna. A $\bar{\mu}_o = 2/3A$ összefüggés azonban csak arra az esetre érvényes, ha az A tömegszámú mag szabad atomhoz tartozik. Kötött szórócentrumok esetén A helyébe $(\mu'/\mu).A$ irandó,
ahol μ' a szórt neutron redukált tömege, ha a szórócentrum kötött.
μ a szórt neutron redukált tömege, ha a szórócentrum szabad.
μ'/μ értékét termikus neutronok esetére a következő módon határozhatjuk meg:
n atomból álló molekula teljes szórási hatáskeresztmetszete:

$$\sigma_s = 4\pi . \sum_1^n (\mu_i'/\mu_i)^2 . a_{is}^2$$

ahol a_{is} az i-edik atommagra vonatkozó szórási amplitudó, kötéstől független mennyiség. /Pontosabban: minden szórási amplitudó két rész-

ből tehető össze, egy un. koherens és egy inkoherens részből. Jelen esetben elég ez utóbbival foglalkozni/. Az összegezés a molekulában szereplő atomokra történik. Mivel

$$\sigma_s(H) \gg \sigma_s(O)$$

ezért vizre:

$$\sigma_s(H_2O) \approx 2.\sigma_s(H_{viz}) = 2.4\pi.(\mu'_H/\mu_H)^2.a_{Hs}^2$$

Néhány eV-os vagy ennél nagyobb energiájú (E) neutronokat a protonok úgy szórják, mintha szabadok lennének, ekkor:

$$\mu'_{HE} = m_N.m_p/(m_N+m_P) = \mu_H \approx \tfrac{1}{2}m_N$$

igy

$$\sigma_{sE}(H_2O) = 2.4\pi.a_{Hs}^2$$

Ilyen energiájú neutronokra a mérések szerint: $\sigma_{sE}(H_2O) = 40$ barn, ebből $a_{Hs}^2 = 1,59$ barn.
Kis energiájú (ε) neutronok esetében a proton tömege helyébe az egész vizmolekula tömegét kell irni:

$$\mu'_{H\varepsilon} = m_N.18/19 \approx m_N = 2\mu_H$$

Tehát ilyenkor $(\mu'_{H\varepsilon}/\mu_H)^2 \approx 4$, vagyis $\sigma_{s\varepsilon}(H_2O) \approx 160$ barn.
A mérések valóban igazolták is ezt a hatáskeresztmetszetnövekedést [4].
Termikus neutronok esetében a fent emlitett két határeset közötti állapottal van dolgunk; a kötés által okozott látszólagos tömegnövekedést a kisérletileg meghatározott termikus hatáskeresztmetszet segitségével lehet kiszámitani. Mivel ez utóbbi

$$\sigma_{st}(H_2O) \approx 105 \text{ barn-nak adódott, ebből}$$

$$\mu'_{Ht}/\mu_H = (\sigma_{st}/8\pi a_{Hs}^2)^{\frac{1}{2}} = (105/40)^{\frac{1}{2}} = 1,63$$

A $\bar{\mu}_o$ nevezőjében szereplő $\mu'_H/\mu_H = 1,63$ tényező miatt értéke termikus neutronokra: $\bar{\mu}_o = 0,409$.

/A $\bar{\mu}_o$ függ ugyan a hőmérséklettől, de kimutatható, hogy nem ad lényeges járulékot a temperaturakoefficienshez/.

b./ A 6./ alatti kifejezésből látjuk, hogy L^2 részben Σ_a-n, részben pedig Σ_s-en keresztül függ T-től. Szükségünk van tehát a parciális differenciálhányadosokra:

$$\partial L^2/\partial\Sigma_a = -L^4.\partial(1/L^2)/\partial\Sigma_a = -3L^4.\Sigma_s.(1-\bar{\mu}_o)$$

3./-ból:

$$d\Sigma_a/dT = -[3\alpha+y_a(oldat)/T].\Sigma_a$$

igy

$$(\partial L^2/\partial \Sigma_a).(d\Sigma_a/dT) = (3\alpha + y_a/T).L^2$$

És hasonlóan:

$$(\partial L^2/\partial \Sigma_s).(d\Sigma_s/dT) = (3\alpha + y_s/T).L^2$$

Igy L^2 hőmérsékletfüggése:

$$dL^2/dT = [6\alpha + (y_a + y_s)/T].L^2$$

amit a későbbiek kedvéért igy is irhatunk:

$$= 6\alpha L_4^2 + L_4^2.(y_a + y_s)/T$$

7./ $L_i^2 (i \neq 4)$ hőmérsékletfüggése.

A magasabb energiájú neutroncsoportokra vonatkozó L_i^2 csak N-en keresztül függ a hőmérséklettől, σ révén nem:

$$d\sigma_E/dT = 0$$

Tehát

$$dL_i^2/dT = (\partial L_i^2/\partial N).(dN/dT)$$

Másrészt [5]:

$$L_i^2 = L_{i0}^2.(N_0/N)^2$$

vagyis

$$\partial L_i^2/\partial N = -2L_i^2/N$$

és ezért:

$$dL_i^2/dT = 6\alpha L_i^2$$

8./ A teljes temperaturakoefficiens.

Kiszámitásához irjuk fel a reaktivitás kifejezését:

$$\rho = (k_{eff}-1)/k_{eff} = 1-\prod_1^4(1 + B^2L_i^2)/k_\infty$$

Ennek hőmérséklet szerinti teljes differenciálhányadosa:

$$d\rho/dT = -\{[d\prod_1^4(1+B^2L_i^2)/dT].k_\infty - \prod_1^4(1+B^2L_i^2).(dk_\infty/dT)\}/k_\infty^2$$

$$d\prod_1^4(1+B^2L_i^2)/dT = (k_\infty/k_{eff})\sum_1^4(L_i^2dB^2/dT + B^2dL_i^2/dT)/(1+B^2L_i^2) =$$

5./, 6./ és 7./-ből dB^2/dT és dL_i^2/dT beirásával:

$$= (k_\infty/k_{eff}).[4\alpha\sum_1^4 B^2L_i/(1+B^2L_i^2) + (y_a+y_s).B^2L_4^2/T(1+B^2L_4^2)]$$

4./-ből dk_∞/dT kifejezését felhasználva:

$$d\rho/dT = -\{4\alpha\sum_1^4 B^2L_i^2/(1+B^2L_i^2) + [(y_a+y_s).B^2L_4^2/(1+B^2L_4^2) + y_f-y_a]/T\}.k_{eff}^{-1}$$

$k_{eff} = 1$ esetén:

$$\boxed{d\rho/dT = -[4\alpha(T)\sum_1^4 b_i + Y/T]}$$

ahol

$$b_i \equiv B^2L_i^2/(1+B^2L_i^2) \quad \text{és} \quad Y \equiv y_f-y_a + (y_a+y_s).b_4$$

a./ $4\sum_1^4 b_i$ *az* $\alpha(T)$ *mellett és* Y *az* $1/T$ *mellett konstansnak tekinthető,* mert adott hőmérsékletváltozás hatására értékük csak kevéssé változik.

Számértékeik: $4.\Sigma_i b_i = 1{,}58$, $Y = 0{,}180$.

igy:

$$d\rho/dT = -[1{,}58.\alpha(T) + 0{,}180/T]$$

$\alpha(T) = (0{,}016.T' + 0{,}65).10^{-4}$ beirásával

20 C°-on $d\rho/dT = -7{,}8.10^{-4}/C°$,
80 C°-on $d\rho/dT = -8{,}2.10^{-4}/C°$ eredményt kapjuk.
Esetünkben tehát (20 és 80 C° között) a dT nagyságú hőmérsékletváltozás

$$d\rho \approx -8.10^{-4}.dT$$

nagyságú reaktivitásváltozást okoz. /Megjegyzendő, hogy a forráspont közelében, vagy a radiolizis miatt már a buborékképződés hoz be egy a fentinél nagyobb abszolut értékű negativ temperaturakoefficienst/.

b./ *Irodalmi értékek*

Water-Boiler tipusú reaktorokra vonatkozólag [6]:

LOPO /39 C°-on/	:	$-6{,}2.10^{-3}/C°$
HYPO	:	$-2{,}6.10^{-4}/C°$
SUPO	:	$-3{,}0.10^{-4}/C°$

F ü g g e l é k

Átlagos hatáskeresztmetszetek számitása a termikus energia közelében.

A számitás alapjául a

$$\bar{\sigma}(kT) = \int_0^\infty \sigma(E).\phi(E,kT).dE.\left[\int_0^\infty \phi(E,kT).dE\right]^{-1}$$

képlet szolgál.

a./ *Maxwell-Boltzmann eloszlás.*

Első közelitésül feltehetjük, hogy a T hőmérsékletű moderátorban a termikus energiára lelassult neutronok M.-B. eloszlást követnek. Ekkor az átlagos hatáskeresztmetszet $x = E/k.T$ jelölés bevezetésével igy adódik:

$$\bar{\sigma}(kT) = \int_0^\infty \sigma(xkT).x.exp(-x).dx \approx \int_0^{x_0} \sigma.x.exp(-x).dx$$

Mivel $\sigma(E)$ nincs analitikusan megadva, és közelitő formula alkalmazása sem célszerű, ezért az un. trapézformulát alkalmazzuk:

$$\int_a^b f(x).dx = \left[\sum_0^n f_i - \tfrac{1}{2}(f_0+f_n)\right].\Delta x$$

Jelen esetben az x-tengelyt a /0,4/ intervallumban $\Delta x = 0,25$
/4,8/ " 0,50
/8,10/ " 1,00
hosszúságú részekre osztjuk.

A számitásokat T' = 20, 40, 60, 80, 100, 120, 140 C° hőmérséklet és Sm, Cd, B, U, U-235, U-235$_f$, U-238, H és O esetére végeztük el. Az eredményt az 1. táblázat tartalmazza. Ahol megkülönböztető index nincs, ott teljes /abszorpciós + szórási/ hatáskeresztmetszet értendő. /Egyes szerzők véleménye szerint a ritka földfémek pl. Sm a jövőben komoly szerepet kaphatnak a reaktorszabályozásban [9]./

1. táblázat: $\bar{\sigma}$

	20 C°	40 C°	60 C°	80 C°	100 C°	120 C°	140 C°	R(%/100 C°)
Sm	7830 barn	7870	8000	8110	8160	8150	8130	4,0 %
Cd	2900	2940	3030	3080	3150	3220	3290	10,4 %
B	656	642	615	598	579	568	556	-14,3 %
U	14,7	14,5	14,4	14,2	14,0	14,0	13,9	- 4,8 %
U-235	600	577	557	540	524	513	496	-15,6 %
U-235$_f$	489	469	454	441	426	412	403	-17,0 %
U-238	10,3	10,3	10,2	10,2	10,2	10,3	10,1	0,0 %
H	33,2	32,6	32,0	31,5	31,3	31,2	30,7	- 6,2 %
H$_{viz}$	46,0	45,0	44,2	43,5	42,7	42,0	41,2	- 9,2 %
O	4,14	4,12	4,10	4,08	4,05	4,03	4,02	- 2,6 %

b./ *"Keményedés", vagy "diffuziós melegedés" szerepe.*

A kisebb energiájú termikus neutronok viszonylag jobban abszorbeálódnak a reaktormag /tehát az oldat/ anyagában, ezért bizonyos fokú "keményedés", vagy "diffuziós melegedés" lép fel. Ez általában úgy változtatja meg az eloszlást, hogy az továbbra is *Maxwell-Boltzmann*-szerű lesz, de eltolódik olyan módon, mintha a moderátor hőmérséklete megnövekedett volna kb. 20-50 C°-kal.

Ezért az a./ részben említett számításokat célszerűnek látszott 140 C°-ig elvégezni.

c./ *Lassuló neutronok szerepe.*

Figyelembe kell még vennünk a *Maxwell-Boltzmann*-eloszlás nagyenergiájú részének az éppen lelassúló neutronoktól származó növekedését. Tekintsük lelassultnak a neutront, ha energiája kisebb, mint a négyszeres termikus energia: $E_c = 4E_t$.

Ha feltesszük, hogy a keletkezési /hasadási/ $E_f = 2.10^6$ eV és az E_c energia között a lassúló fluxuseloszlás

$$\theta(E).dE/\int_{E_c}^{E_f}\theta(E).dE = K'.dE/E$$

alakú, akkor - mindkét oldalon integrálva -

$$K' = (ln5.10^5 - lnE_t)^{-1}$$

eredményt kapjuk. Mivel a zárójelben levő második tag minden szóbajövő hőmérséklet esetében kisebb az elsőnél, ezért hőmérsékletfüggését most nem vesszük figyelembe, és a továbbiakban $E_t = 3.10^{-2}$ eV. értéket fogunk behelyettesiteni. Igy $K' = 0,06012$.

A lassuló fluxushoz tartozó átlagos hatáskeresztmetszet

$$\bar{\sigma}' = \int_{x_c}^{x_f}\sigma(xkT).\theta(xkT).dx/\int_{x_c}^{x_f}\theta(xkT).dx$$

lenne. /$x_c = 4$/. Azonban $x = 10$-en túl σ nagyon kicsi, viszonylag nagy értékeket pedig csak szűk intervallumokban vesz fel /rezonanciahelyek/, másrészt növekvő energiával $\theta(E)$ is csökken, ezért

$$\int_{x_c}^{x_f}\sigma.\theta.dx \approx \int_4^{10}\sigma.\theta.dx$$

Ennek kiértékelése előtt érdemes megjegyeznünk, hogy a $\theta(E)\sim 1/E$ fluxus eloszlás E_c-hez közeli energiáknál már nem érvényes, mert

a lassitó közeg atomjai nem tekinthetők nyugvóknak, tehát a neutronok relativ energiacsökkenése is egyre kisebb lesz, és mert

abszorbeáló anyagok jelenléte is elsősorban a kisebb energiájú neutronok számának csökkenésére vezet. Ezért feltesszük, hogy az x: /4, 10/ intervallumban

$$\theta(E) = konst = \bar{\theta}$$

E konstans értékét úgy választjuk meg, hogy a /4, 10/ intervallum hosszával szorozva, eredményül az $\int_4^{10}\theta(x).dx$ értéket adja. Ez a feltevés

elég durva ugyan, de megengedhető, mert ugyis csak egy viszonylag kis értékű korrekció számitásához használjuk fel. Ebből a feltevésből:

$$\bar{\theta} = \int_4^{10} \theta . dx/6 = 9,17.10^{-3}$$

ekkor tehát

$$\int_4^{10} \sigma\bar{\theta} dx = 9,17.10^{-3} . \int_4^{10} \sigma(xkT) . dx$$

A jobb oldalon álló integrál értékének meghatározása ugyancsak numerikusan, a trapéz-formula segitségével történik. Az eredmények a 2. táblázatban láthatók.

2. táblázat: $\bar{\sigma}$

	20 C°	40 C°	60 C°	80 C°	100 C°	120 C°	140 C°
Sm	224 barn	154	136	107	86	70	58
Cd	324	322	293	258	255	234	216
B	17,8	17,1	16,6	16,2	15,7	15,4	15,0
U	0,70	0,70	0,70	0,70	0,68	0,68	0,68
U-235	15,0	14,9	14,9	14,7	14,8	14,4	14,3
$U\text{-}235_f$	11,8	11,6	11,6	11,3	11,3	11,1	10,9
U-238	0,57	0,57	0,57	0,57	0,58	0,58	0,58
H	1,47	1,46	1,45	1,44	1,43	1,42	1,41
H_{viz}	1,77	1,73	1,69	1,67	1,64	1,61	1,60
O	0,225	0,225	0,225	0,224	0,224	0,224	0,224

d./ *M.-B. eloszlású neutronfluxus aránya a lassuló neutronfluxushoz képest.*

Tudnunk kell még azt is, hogy mennyiszer nagyobb a M.-B. eloszlású neutronok teljes

$$\int \phi(E) . dE$$

fluxusa a lassuló neutronok teljes fluxusához képest:

$$\int \theta(E) . dE$$

Erre vonatkozólag a hozzáférhető irodalom csak nagyságrendi tájékoztatást nyújt. Jelöljük K-val a

$$K = \int \phi dE / \int \theta dE$$

viszonyt; irodalmi adatok alapján [7], [8] kapjuk a következő tájékoztató értékeket:

kisméretű, vizmoderátoros reaktorra: $K \sim 1 - 10$

nagy, grafitmoderátorosra: $K \sim 20 - 200$

e./ *Az eredő átlagos hatáskeresztmetszet.*

Most már meghatározhatjuk - a lelassúló neutronokat is figyelembe véve - az eredő átlagos hatáskeresztmetszetet:

$$\bar{\bar{\sigma}}(kT) = \int_0^\infty \sigma(E).[\phi(E,kT)+\theta(E)]\,dE / \int_0^\infty [\phi(E,kT)+\theta(E)].dE \equiv [K.\bar{\sigma}(kT)+\bar{\sigma}']/(K+1)$$

Látható, hogy ha $K \gg 1$, akkor

$$\bar{\bar{\sigma}} = \bar{\sigma}$$

Számitsuk ki a 100 C° hőmérsékletkülönbséghez tartozó relativ hatáskeresztmetszetváltozást pl. 20 és 120 C° között:

$$R(\%/100\ C^\circ) = 100.[\sigma(120\ C^\circ) - \sigma(20\ C^\circ)]/\tfrac{1}{2}[\sigma(120C^\circ+\sigma(20\ C^\circ)]$$

Az első táblázat utolsó oszlopa azt mutatja, hogy pl. a Cd kb. háromszor akkora változást szenved, mint a Sm.

Köszönet illeti *Veress Zoltánnét* a számitások elvégzésében nyújtott segitségéért.

Irodalom

[1] Reactor Handbook: Engineering. 577.old. McGraw-Hill Book Co., New-York, /1955/.
[2] *Dio, Schopper:* Nuclear Physics, Vol. 6, No. 2, 175. /1958/.
[3] *Littler, Raffle:* An Introduction to Reactor Physics. 122. Pergamon Press, London, /1955/.
[4] Reactor Handbook: Physics. 80, 144.
[5] *Glasstone, Edlund:* The Elements of Nuclear Reactor Theory. 342. Macmillan, London.
[6] *Beck:* Nuclear Reactors for Research. 136-154. Van Nostrand Co., Prenceton, /1957/.
[7] *Wirtz:* Elementare Neutronphysik. 170, 172. Springer, Berlin, /1958/.
[8] *Grigorieff:* Proceedings, University Reactor Conf., 1954.AECU-2900, Technical Information Service, Oak Ridge, /1954/.
[9] *Ransohoff:* Nucleonics, 1959. jul., 80.

URÁNSÓK OLDHATÓSÁGA SZERVES ÉSZTEREKBEN

Szilágyi Mária

Uranylacetát, uranylnitrát és uranylszulfát oldhatósági viszonyait vizsgáltuk dioktilftalátban, dibutilftalátban, dibutilfoszfátban és tributilfoszfátban. Mindhárom uranylsó esetében a legjobb oldószernek a dibutilfoszfát bizonyult. A tributilfoszfát az uranylnitrátnak kiváló oldószere, viszont a másik két sót csak közepes mértékben oldja. A dioktilftalát és a dibutilftalát közül csak az utóbbinak az uranylnitráttal szembeni oldóképessége jelentősebb, a többi vizsgált eset igen alacsony értéket mutat.

Az irodalomban számos helyen találunk utalást arra vonatkozólag, hogy az uranylnitrát extrakcióját vizes oldatból, megfelelő feltételek mellett szerves extraháló szerekkel [1], [2] végre lehet hajtani. Az Intézetünkben folyó uránium extrakciós vizsgálatokhoz csatlakozva, szükségessé vált néhány uránsó oldhatóságának meghatározása különböző szerves oldószerekben, amelyeket elsősorban magasabb forráspontjuk alapján választottunk ki.

Az oldhatósági vizsgálat tárgyát a következő oldószerként használt szerves észterek és uránvegyületek képezték:

DOF = dioktilftalát	fs = 0,9825	fp = 340 C°	M = 390
DBF = dibutilftalát	fs = 1.0478	fp = 330 C°	M = 278
DBP = dibutilfoszfát	fs = 0,9732	fp = 150 C°-on bomlik	M = 210
TBP = tributilfoszfát	fs = 1,0551	fp = 290 C°	M = 266

Uranylacetát $UO_2/C_2H_3O_2/_2.2H_2O$

Uranylnitrát $UO_2/NO_3/_2.6H_2O$

Uranylszulfát $UO_2SO_4.3H_2O$

Az oldószerek közül a DBP kivételével valamennyi a kereskedelemből beszerzett árú, a DBP pedig házilag készült, extrakciós vizsgálatokra is felhasznált anyag. Az uránsók az uranylszulfát kivételével szintén kereskedésbeli p.a. minőségű anyagok, az uranylszulfát pedig p.a. uranylnitrátból kénsavas füstöléssel [3] és vízből való kristályositással nyert termék.

A vizsgálat céljára a különböző oldószerekkel az oldandó anyagok 25 C°-on telitett oldatát készitettük el, termosztátba helyezett csiszoltdugós üvegedényekben, amelyeket napjában többször is felrázva igyekeztünk az oldódási egyensúlyt mielőbb elérni.

Az alábbi táblázat mutatja az uránsók oldhatóságát a különböző oldószerekben. Az oszlopokban a telitett oldatok koncentrációi láthatók súlyszázalékban, 25 C°-ra vonatkozóan.

T á b l á z a t

Különböző uranylsók oldhatósága szerves észterekben

Oldószer	Uranyl-acetát %	Telítési idő /nap/	Meghatározási módszer	Uranyl-nitrát %	Telítési idő /nap/	Meghatározási módszer	Uranyl-szulfát %	Telítési idő /nap/	Meghatározási módszer
DOF	$8,7.10^{-4}$	5	fluorom.	0,71	10	extrakció gravimetr.	$2,12.10^{-2}$	6	fluorom.
DBF	$5,02.10^{-2}$	26	fluorom.	6,62	9	extrakció gravimetr.	$3,8.10^{-3}$	6	fluorom.
TBP	3,17	14	extrakció gravimetr.	22,09	28	extrakció gravimetr.	3,7	4	extrakció gravimetr.
DBP	20,9	70	extrakció gravimetr.	20,8	20	extrakció gravimetr.	7,8	5	extrakció gravimetr.

Az oldhatóság meghatározásokat úgy végeztük, hogy a táblázatban feltüntetett telitési idők eltelte után a leülepedett szilárd só felett lévő tiszta oldat egy részletének urántartalmát a táblázatban feltüntetett módszerekkel meghatároztuk.

Megjegyzendő, hogy az oldószerek telitésekor az oldandó anyag beadagolása részletekben történt, egy-egy alkalommal csak 30-50 mg oldandó anyagot adva a 10-15 g oldószerhez. Amint észrevettük, hogy a beadagolt uránsó feloldatlanul maradt, további 50 mg anyag hozzáadása után a telitést befejeztük. Igy a jól oldó oldószerek esetében 70 nap, mig a rosszul oldó oldószerek esetében 5-6 nap már elegendő volt, a telitett oldatok 12 havi állás után is változatlanok és korábbi állapotuknak megfelelően bennük sem sókiválás, sem elszineződés nem észlelhető.

Az alábbiakban a felhasznált meghatározási módszereket részletesen ismertetjük.

Az urán extrakciós-gravimetriás meghatározása.

Akkor alkalmazható, ha a telitett oldat sárga vagy zöldessárga szinű, ami annak a jele, hogy oldódott annyi uránsó, amely gravimetriás [4] úton még jól meghatározható.

Tiszta, száraz rázótölcsérbe analitikai mérlegen bemérjük a telitett oldat vizsgálandó mennyiségét, amely a várható urántartalomtól függően 0,5-5 g legyen. CCl_4-al 10 ml-re egészitjük ki és nyomban kirázzuk háromszor egymás után 10-10 ml desztillált vizzel. Rázási idő esetenként 1 perc. Két perces szétválasztási idő után a vizes fázisokat összegyűjtjük és vizfürdőn szárazra pároljuk. Alkohollal [6] felvesszük 20-30 ml-re és 2-3 csepp cc NH_4OH-al lecsapjuk az uránt mint ammóniumdiuranátot /$p_H \sim 8$/.

A felesleges NH_4OH-t vizfürdőn elűzzük, a csapadékot forrón szűrjük, majd kiizzitva mint U_3O_8-ot gravimetriásan mérjük.

Vizes kirázás az uránsókkal telitett DBP esetében nem alkalmazható, mert vizes kirázáskor az urán gyakorlatilag nem lép át a vizes fázisba. Ez a tény arra utal, hogy az uranylsóknak a DBP-al képzett vegyülete [5] vizben gyakorlatilag nem oldódik. Vegyület keletkezésére utal az erős ecet- és salétromsav szag is, amelyet a megfelelő

uránsók DBP-ban való oldásakor tapasztaltunk. Korábbi tapasztalataink [6] szerint tömény HCl az organikus fázisban lévő uránt kihajtja a vizes fázisba. Ennek megfelelően a CCl_4-ban oldott DBP oldatból az uránt 12 n HCl-as kirázással távolitottuk el. Az ilyen kirázásokat szintén háromszor kell megismételni 10-10 ml 12 n HCl-al esetenként 10-15 sec rázási idővel. Akár sósavval, akár vizzel történik az urán extrakciója, a vizsgálandó oldatmennyiséghez mindig hozzá kell adni a CCl_4 szükséges mennyiségét, mert ezáltal kirázás után a szerves fázisnak a víztől, ill. a HCl-től való jó szétválását érjük el, ami egyébként az oldó- és extrahálószerek közel azonos fajsúlya miatt lehetetlen volna.

Fluorometriás uránmeghatározási módszer.

Igen kis mennyiségű, tehát a mi esetünkben a kevéssé oldódó uránsók oldhatóságának meghatározására alkalmas. Ilyenkor a telitett oldat szine nem tér el a tiszta oldószer szinétől, tehát az anyag szemmel láthatólag nem oldódik. Ilyen esetben a sókoncentráció meghatározásának lényege - mint az irodalomból [7] ismeretes - hogy a vizsgálandó oldatból olyan olvadékgyöngyöt készitünk, amely ultraibolya fénnyel megvilágitva, urántartalmától függő fluoreszcenciát mutat.

Esetünkben alkalmazva: a vizsgálandó oldat egy cseppjét /kirázás nélkül/ Pt tegelyben súlyra lemérjük és óvatosan elfüstöljük, vigyázva, hogy meg ne gyulladjon. A kihűlt tégelybe adunk 2-3 ml cc HCl-at és szárazra pároljuk, majd 1 ml telitett NaF-al és 0,1 ml 10 %-os Na_2CO_3-al újra beszáritva, pasztillázzuk. A pasztillákat 4-5 mm átmérőjű lapos Pt tégelykében fluoreszkáló gyönggyé olvasztjuk, pontosan előirt körülmények között. Ezután összehasonlitó standard sorozat segitségével fluorométerrel határozzuk meg a fluoreszkáló gyöngyök urántartalmát.

Végül ez úton is köszönetet mondok *Szalay Sándor* professzor úrnak, az MTA Atommag Kutató Intézet igazgatójának a tudományos irányitásért, amellyel munkám elvégzését lehetővé tette.

Irodalom

[1] *J.M.Fletcher:* Proceedings of the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol.9. New-York 1956. 460.

[2] *H.A.C.McKay:* Proceedings of the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol. 7. New-York 1956. 314-317.

[3] *H.Remy:* Lehrbuch der Anorganischen Chemie, Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig K.G. Leipzig 1955. 195.

[4] *C.I.Rodden:* Analytical Chemistry of the Manhattan Project, McGraw-Hill Book Co. New-York-Toronto-London 1950. 16-17.

[5] *Robert R.Grinstead, K.Glenn Shaw* and *Ray S.Long:* Proceedings *of*

the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol. 8. New-York 1956. 72.

[6] *Ujhelyi Cs.:* Egyetemi Doktori Disszertáció, Debrecen 1959. 35. /kézirat/.

[7] *F.Feigl:* Spot tests I. Inorganic applications, Elsevier Publishing Co. Amsterdam-Houston-London-New-York 1954. 196.

AZ URÁNIUM /VI/ MORINNAL ALKOTOTT KOMPLEXÉNEK ABSZORPCIÓS SPEKTRUMA

Dr. Sámsoni Zoltán

Az urán/VI/ morinnal alkotott komplexének abszorpciós spektrumát vizsgáltuk Zeiss-féle univerzális spektrofotométerrel. A 300-720 nm-es hullámhossztartományban két abszorpciós maximumot találtunk: 360, ill. 495 nm-nél. Gyakorlati mérések céljaira az utóbbi maximum alkalmas. Az urán/VI/ morinos komplex moláris extinkciós koefficiensét 495 nm-nél 12500 ± 200-nak találtuk.

A morinnal /$C_{15}H_{10}O_7$; 3,5,7,2',4' pentahidroxiflavon/ teljesen azonos összetételű, tőle csak szerkezetileg eltérő quercetinnek az U/VI/-al alkotott vörösesbarna szinű komplexéről első izben *Kocsis* [1] tesz említést. *Rodden* [2] a quercetinen kivül megemlékezik a morinról is, mint amely szintén alkalmas az uranyl ion kolorimetriás vizsgálatára, részleteket azonban nem közöl. *Almássy, Nagy* és *Straub* [3] 1954-ben azt tapasztalták, hogy a morin a quercetinnél sokkal stabilabb komplexet alkot az U/VI/-al, másfelől pedig megállapitották azt is, hogy az igy előálló szinreakciónál fellépő fényelnyelés engedelmeskedik a *Lambert-Beer* törvénynek. *Almássy* és *Ujhelyi* [4] e módszert továbbfejlesztették és alkalmazták szénhamuk U tartalmának quantitativ meghatározására.

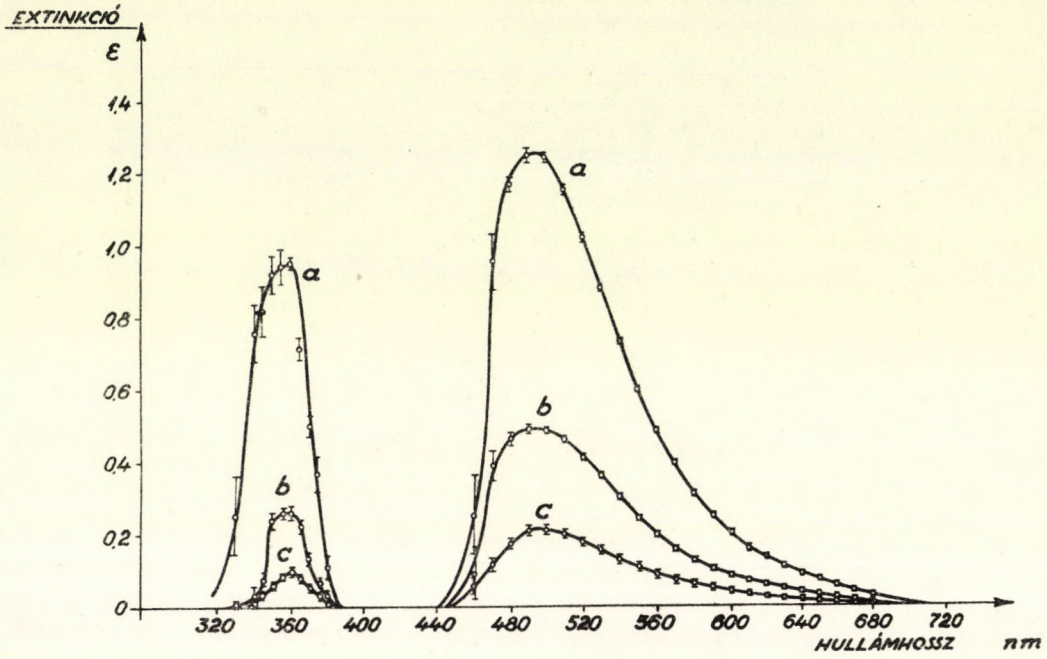
Az *Almássy-Nagy-Straub* által kidolgozott viszonylag egyszerű módszer felhasználásával sok száz U meghatározást végeztünk, eleinte *Pulfrich*-féle fotométeren a szerzők által javasolt S-47 szinszűrő mellett. Mivel az Intézetünk műszerállománya időközben gyarapodott egy *Zeiss*-gyártmányú spektrofotométerrel, ezért további U meghatározásainkat már ezen a készüléken végeztük. A pontosabb mérési lehetőség birtokában azonban célszerűnek láttuk a morinos uránium komplex abszorpciós spektrumának kimérését is.

Ebből a célból három különböző töménységű U/VI/ oldattal végeztünk méréseket, mégpedig: 1/10, 1/25 és 1/50 millimólos U koncentrációjú oldatokkal. A mérési körülmények a következők voltak:

Rétegvastagság:		1 cm
Belépő rés	:	0,05 mm
Kilépő rés	:	0,01 mm
Prizma	:	400 nm /nanométer, 10^{-9} m/ feletti tartományban flintüveg
Prizma	:	400 nm alatti tartományban UV NaCl
Fényforrás	:	normál izzólámpa, ill. hidrogénlámpa
Fotocella	:	Zeiss-MQVS
Hőmérséklet	:	20-21 C°

A mérések eredményeit az 1. ábra tünteti fel. A vakpróba minden esetben az U mentes mérő próba összetételével egyezett meg.

Az *a* jelű görbe az 1/10 millimólos, a *b* jelű az 1/25 millimólos, a *c* jelű pedig az 1/50 millimólos U koncentrációju oldatnak felel meg. Amint ez az ábrán látható, a morinos U komplex két abszorpciós maximummal rendelkezik, mégpedig a látható tartományban kb. 495 nm-nél, az ultraibolya területen pedig kb. 360 nm-es hullámhossznál. A grafikonokból meg-



1. ábra. A morinos urán/VI/ komplex abszorpciós spektruma.

állapitható, hogy a látható szinképterületen fellépő abszorpciós csúcs környékén a morinos U komplex szinintenzitása jól követi a *Beer*-törvényt, viszont az ultraibolya tartományban kimért csúcs esetében ugyanez nem mondható el. E területen méréseink hibahatára is nagyobb volt, és igy az eredmények is nehezebben voltak reprodukálhatók.

A morinos U/VI/ komplex fotometrálására tehát a legalkalmasabb a 490-500 nm közötti hullámhossztérület, pontosabban a 495 nm-es hullámhossz.

A morinos U/VI/ komplex moláris extinkciós koefficiense 495 nm-nél 12500 ± 200-nak adódik.

Irodalom

[1] *E. J. Kocsis:* Mikrochemie 25. 13./1938./

[2] *C. J. Rodden:* Analitical Chemistry of the Manhattan Project. McGraw-Hill Book Co. Inc. New-York-Toronto-London 1950.

[3] *Almássy Gy.-Nagy Z.-Straub J.:* MTA Kém. Tud. Oszt. Közl. 5. 257. /1954/.

[4] *Almássy Gy.-Ujhelyi Cs.:* MTA. Kém. Tud. Oszt. Közl. 8. 47. /1956/

VIZSGÁLATOK EGY SZERVÓBERENDEZÉSSEL

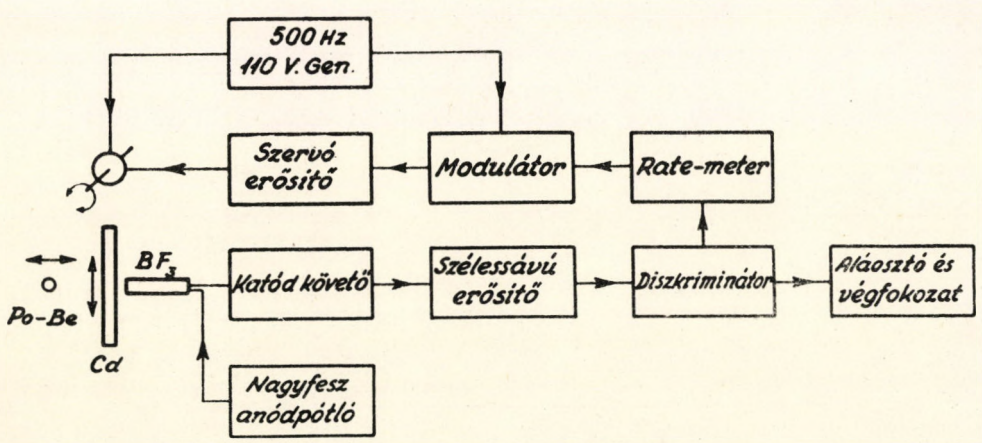
Csánky L. Papp I. Schlenk B.

A dolgozat tárgya egy neutronfluxus változásra érzékeny szervóberendezés és a vele szerzett tapasztalatok leirása. A megépitett berendezés reaktorok és szubkritikus rendszerek finom szabályozásának egy lehetséges megoldása. Ezenkivül előnyösen alkalmazható gyorsitó segitségével végzett, hosszú ideig tartó aktiválásnál, a termikus neutronfluxus stabilizálására.

Az alábbiakban szeretnénk röviden beszámolni egy neutronfluxus változására érzékeny szervóberendezésről, a vele kapcsolatos vizsgálatainkról és tapasztalatainkról.

Egy vizzel telt edény középpontjában 10 Curie erősségű Po-Be neutronforrás, tőle meghatározott távolságra egy BF_3 számlálócső volt elhelyezve, amely a vizben lelassult neutronokat számolta. A fluxus értéke a számlálócső helyén természetesen a neutronforrás és a számlálócső egymástól való távolságának függvényében változik. Feladatunk egy olyan berendezés elkészitése volt, amely a számlálócső helyén a neutronfluxus állandóságát biztositja a forrás - számlálócső közötti távolságtól függetlenül, egy adott távolságintervallumon belül. A fluxus állandóságát a forrás és a számlálócső között függőleges sikban mozgó Cd abszorbens biztositotta, amelyet egy szervómotor mozgatott.

A megépitett berendezés blokksémája az 1. ábrán látható.



1. ábra. A berendezés blokksémája.

A BF_3 számlálócső működéséhez szükséges tápfeszültséget a stabilizált nagyfeszültségű anódpótló szolgáltatja. A számlálócsőről érkező jelek a katódkövető erősitőn keresztül a szélessávú erősitőre jutnak. Az Intézet települése következtében /ipari üzemek, kórház, saját műhely/ a hálózati zavarszint rendkivül magas. Ezért az erősitő megépitésekor fokozott figyelmet forditottunk a zavarszűrésre. Az erősitő erősitése 2,5 %-on belül lineáris 50 V kimenő jelig.

Az erősitő után következő diszkriminátor amplitudó válogatással elhatárolja a neutronok okozta impulzusokat a γ háttértől. A diszkriminátorról a jelek egyrészt a dekatroncsöves aláosztó fokozatra kerülnek, másrészt a ratemeter bemenetére jutnak. Az aláosztó fokozat és a mechanikus számláló segitségével lehetőség adódik a neutron impulzusok egyenkénti leszámolására is.

A ratemeter feladata a neutronfluxussal arányos egyenáramú szint előállitása. 1 Hz-től 50 kHz ismétlődési frekvenciáig 1 %-on belül lineáris. Az alkalmazott méréshatárok 10, 50, 250, 1000, 5000 imp/sec, a végkitéréshez tartozó maximális kimenő feszültség 10 V. Gondot forditottunk arra, hogy a ratemeter kimenő feszültsége független legyen a bejövő jel alakjától, nagyságától. Erre azért volt szükség, mert a diszkriminátorról érkező jelek nagysága és alakja nem állandó.

A ratemetert csillapitó kondenzátor nagyságát, amelytől a részecskék időbeni statisztikus eloszlásának megfelelő ingadozás függ, öt fokozatban lehet változtatni. A kondenzátorok értékei úgy vannak megválasztva, hogy bármelyik méréshatár esetén $t = 0,25$ sec időállandó beállitható legyen.

A modulátor feladata a ratemeter kimenetén lévő egyenfeszültségű szinttel arányos váltakozó feszültség előállitása. Közvetlen lehetőség adódna arra is, hogy egyenáramú szervómotor alkalmazása esetén a ratemeterről levett egyenfeszültséget erősitenénk egyenáramúlag a szervómotor működéséhez szükséges értékre, azonban ez elektrónikus úton nem bizonyulna célszerűnek. Közismert probléma például az egyenáramú erősitők stabilitásának kérdése. További nehézségek adódnának az irányváltozással kapcsolatban. Gépi erősitők alkalmazása esetén /pl. amplidin/ a fenti problémák részben elesnének, azonban az adott teljesitmény követelmény mellett nem érdemes gépi erősitőt használni. Váltóáramu rendszer alkalmazásakor a stabilitási és irányváltási kérdések leegyszerüsödnek.

A modulátor elvi kapcsolása a 2. ábrán látható.

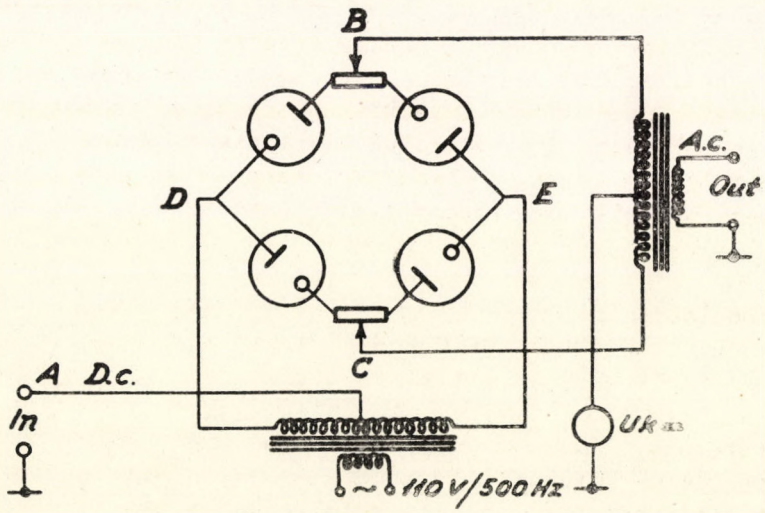
A moduláló feszültség /500 Hz/ hatására váltakozva a felső, ill. az alsó diódapár vezet, ezáltal az *A* pont potenciálja váltakozva hol a *B*, hol a *C* pontnál jelenik meg. Tételezzük fel, hogy a *D* pont pozitiv *E*-hez képest. Ebben az esetben az alsó két dióda vezet, és a *C* pont potenciálja megfelel az *A* pontnak, mivel a potenciométer segitségével a két dióda belső ellenállás különbsége ki van kompenzálva. A következő félperiódusban a felső diódákon folyik az áram, és a *B* ponton jelenik meg az *A* potenciálja. A kimeneten tehát váltófeszültséget kapunk, melynek nagysága arányos, polaritása azonos a bejövő egyenfeszültséggel. Ez utóbbi azt jelenti, hogy a modulátor fázisérzékeny.

A fenti tipusú modulátornak hátránya az, hogy az egyenfeszültség-váltófeszültség átalakitási hatásfok meglehetősen alacsony,

esetünkben 10-20 % szűrés előtt, a beállitástól függően. További hátránynak tekinthető a meglehetősen magas zajszint. A minimálisan szükséges jel/zaj viszony, adott beállitás esetén, a bemenő egyenfeszültség nagyságának emelésével javitható. Ezért volt szükség arra, hogy a ratemeter kimenő feszültségének a nagysága 10 V legyen. Vákuumdiódák esetén a zajszint alacsonyabb, mint kristálydiódák alkalmazásakor, azonban az előbbi esetben nem tapasztaltunk olyan nagymértékü zajszint csökkenést, mint amilyen az irodalom [1] alapján várható volt.

A kimenő váltófeszültség a moduláló feszültséghez képest /500 Hz/ torzitott, elsősorban az alacsonyabb egyenfeszültség értékeknél. A torzitás következtében keletkező harmónikusok a motort csak melegitik, célszerü azokat kiszűrni. A szűréshez nem volt szükség alulátereszto szűrőre, mert a magasabb felharmónikusok - a harmadikat kivéve - csak alacsony feszültségszinten jelentkeztek. Megfelelő eredmény adódott egyszerübb RC szűrő felhasználásával is. A harmadik felharmónikusnak maximális kivezérlésnél is jelentős volt az amplitudója, kiszűrésére egy 1,5 kHz-re hangolt kettős T szolgált a fentebb emlitett RC szűrő mellett. 1,5 kHz-nél a szűrőkörök együttes csillapitása 45 dB. felett volt.

A modulátorban oldottuk meg a szintbeállitás kérdését, tehát azt, hogy a rendszer egy előre beállitott neutronfluxus érték állandóságát biztositsa. Erre a célra egy U_k feszültség-forrás szolgál, melyről a levett egyenfeszültség folyamatosan változtatható. Ha a ratemeterről levett egyenfeszültség azonos U_k-val, a kimeneten nem jelenik meg váltófeszültség. Ha a két feszültség, U_k és U_{Be} között különb-



2. ábra. Modulátor elvi kapcsolási rajza.

ség van, akkor $/U_k - U_{Be}/$-vel arányos hibajelet kapunk a modulátor kimenetén, amelynek fázisa a fenti feszültségkülönbség előjelétől függ.

A modulátor kimenetén kapott váltakozó feszültséget teljesitményerősitő erősiti, melynek kimenetéhez csatlakozik a szervómotor. A teljesitményerősitő erősitése kb. 68 dB, push-pull végfokozattal, maximálisan 70 W hasznos kimenő teljesitménnyel. Az erősitő erősitése 120 V kimenő feszültségig 2,5 %-on belül lineáris, 120 V felett telitésbe megy át. Legnagyobb kivehető feszültség 150 V. Ez biztositja, hogy a szervómotor nem kaphat igen nagy túlfeszültséget. A modulátorban történő szintbeállitás esetén a szervómotor nem kap feszültséget.

Vizsgálatainkhoz 2M1-42, ill. 3M1-42 tipusú FMV gyártmányú szervómotorokat használtunk. A két motor különböző teljesitményű, de azonos rendszerű, 2 fázisú 110 V-os 500 Hz-es. Az 500 periódusú motor alkalmazásának előnye a lényegesen magasabb fordulatszám, mely adott teljesitmény mellett kisebb motorméreteket jelent. Továbbá a forgórész kisebb tehetetlensége gyorsabb irányváltást biztosit. Hátránya viszont, hogy 500 Hz-es áramforrásra is szükség van.

Mivel megfelelő méretü 500 Hz-es motorgenerátor nem áll rendelkezésünkre, ezért Wien-hidas oszcillátorral egybeépitett teljesitményerősitő szolgáltatta a szükséges 110 V 500 Hz-et.

A modulátorral kapcsolatban már utaltunk arra, hogy esetünkben a jel/zaj viszonynak 32 dB felett kellett lennie. Ez feltétlenül szükséges volt, mert az alkalmazott motor /2M1-42/ kb. 3 V segédfázis feszültség esetén kezdett megindulni az adott terhelés mellett. A szervóerősitő erősitését akkorára választottuk, hogy a maximális zajfeszültség hatására a motor még éppen ne induljon meg.

Végül ezúton is köszönetet mondunk *dr. Szalay Sándor* professzor úrnak munkánk támogatásáért, továbbá *Csikai Gyula* tudományos munkatársnak értékes tanácsaiért.

Irodalom

[1] *W. R. Ahrendt:* Servomechanism Practice, p. 83. McGraw-Hill 1954.
[2] *R. Landee, D. Davis, A. Albrecht:* Electronic Designers' Handbook, McGraw-Hill 1957.
[3] *W. Elmore, M. Sands:* Electronics, McGraw-Hill 1949.
[4] *H. Chestnut, R. Mayer:* Servomechanism and Regulating System Design, Chapman and Hall, London 1951.

AZ INTÉZETBŐL 1959-BEN MEGJELENT KÖZLEMÉNYEK BIBLIOGRÁFIÁJA

Az alábbi bibliográfiában beszámolunk az ATOMKI 1959. évi publikációs tevékenységéről. E bibliográfiát kiegészitettük néhány - a Kossuth Lajos Tudományegyetem Kisérleti Fizikai Intézetéből származó - publikációval. Ezek olyan eredményeket közölnek, amelyek eléréséhez az ATOMKI - tudományos irányitással vagy egyéb formában - segitséget adott, ill. amelyeknek szerzői közreműködtek egy - az ATOMKI profiljába tartozó - tudományos téma kidolgozásában. Ilymódon az évi beszámoló csak ezek feltüntetésével nyújt teljes képet az ATOMKI publikációs tevékenységéről.

Önálló tudományos cikkek

1./ *Berényi Dénes:* Egy toroid szektor tipusú koincidencia beta - spektrométer konstruálása és vizsgálata a Nd^{147} bomlási sémáján.
Acta Universitatis Debreceniensis de Ludovico Kossuth Nominatae, 5/1958/187.

2./ *Csikai Gyula*
Daróczy Sándor: Termikus neutronok albedojának vizsgálata.
Magyar Fizikai Folyóirat, 7/1959/507.

3./ *Kertész, L.* et al.: The effect of severe nervous stimulation on pituitary, adrenal and ovarian function.
Acta Endocrinologica, 30/1959/585.

4./ *Kertész László:*
Fazakas Sándor, etc.: A pajzsmirigy jód-aviditásának ingadozásáról.
Magyar Belorvosi Archivum, 11/1959/133.

5./ *Kertész, L.:*
Fazakas, S.:
Petrányi, Gy.: Über die Schwankungen der Jodavidität der Schilddrüse.
Acta Medica Hung. 14/1959/287.

6./ *Kertész László*
Végh László, etc.: A máj nyirokkeringésének izotópos vizsgálata kisérletes krónikus májártalomban.
Kisérletes Orvostudomány, 5/1959/490.

7./ *Kovách Ádám:* A tatabányai szénmedence kutatófurásainak anyagából származó szénminták urántartalmának vizsgálata béta-sugárzásmérés útján.
ATOMKI Közlemények, 1/1959/27.

8./ *Máthé György:* Relativ csatornaszélességü szcintillációs gamma-spektrométer.
Magyar Fizikai Folyóirat, 7/1959/129.

9./ *Máthé György*
Scharbert Tibor: Szcintillációs számláló és spektrométer.
Mérés és Automatika, 7/1959/1.

10./ *Nagy János:* Kisfogyasztásu rádiófrekvenciás ionforrás intézetünk neutrongenerátorához.
Acta Universitatis Debreceniensis de Ludovico Kossuth Nominatae, 4/1957/109.

11./ *Nagy János:* Mérések és tapasztalatok egy mágneses ionforráson.

Acta Universitatis Debreceniensis de Ludovico Kossuth Nominatae, 5/1958/179.

12./ *Schlenk Bálint:* Egyenáramu erősitő gyenge ionizációs áramok méréséhez.
Mérés és Automatika, 7/1959/237.

13./ *Szalay, A.*
Berényi, D.: Some Remarks on the Generation of Nuclear Power by Controlled Fusion Processes.
Acta Physica Hung. 10/1959/39.

14./ *Szalay, A.*
Berényi, D: A Beta-Ray Spectrometer of Toroid-Sector Type.
Acta Physica Hung. 10/1959/57.

15./ *Szalay Sándor*
Berényi Dénes id.: Hasadási termékek alégköri csapadékokban Debrecenben, 1952. és 1957. között.
MTA Mat. és Fiz. Tud. Oszt. Közl. 9/1959/175.

16./ *Szalay, A.*
Berényi, D. Sen.: Fission Product Precipitation from the Atmosphere in Debrecen, Hungary, between 1952. and 1957.
Proc. II. U.N. Internat. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 1958. Vol. 18. Geneva, -, United Nations. p. 570.

17./ *Szalay Sándor*
Szilágyi Mária: Átáramoltató betét folyadék radioaktivitásának mérése GM-számlálócsőhöz.
Magyar Fizikai Folyóirat, 7/1959/419.

18./ *Szilágyi Mária:*
Berényi Dénes
Máthé György: Nd^{147} izotóp készitmény radioaktiv szennyezettségének vizsgálata.
Magyar Fizikai Folyóirat, 7/1959/451.

19./ *Szalay Sándor*
Almássy Gyula, etc.: Magyarország egyes fontosabb kőszénterületeinek átvizsgálása uránium nyomelőfordulás szempontjából.
ATOMKI Közlemények, 1/1959/7.

20./ *Csongor Éva:* Mg mikro-elektrokémiai leválasztása.
Magyar Fizikai Folyóirat, 7/1959/517.

21./ *Fényes, T.:* Alfa-Spectrum of Po^{210}.
Acta Universitatis Debreceniensis de Ludovico Kossuth Nominatae, 4/1957/117.

22./ *Makranczi Béla:* Fotoérzékeny Geiger-Müller számláló készité - sével kapcsolatos tapasztalatok.
Acta Universitatis Debreceniensis de Ludovico Kossuth Nominatae, 4/1957/101.

Referáló cikkek és egyéb tudományos munkák.

23./ *Berecz István:* Korszerű olajdiffuziós szivattyuk épitésével kapcsolatos néhány probléma és az Intézetünkben készült szivattyuk ismertetése.
ATOMKI Közlemények, 1/1959/51.

24./ *Bornemisza Györgyné:* Gyors neutron szórási kisérletek.
Magyar Fizikai Folyóirat, 7/1959/421.

25./ *Koltay Edéné:* Gamma-sugarak és elektronok polarizációs állapotának kisérleti detektálási lehetőségeiről.

ATOMKI Közlemények, 1/1959/31.

26./ *Orbán György*
Erdélyi Lajos: Üres tengelyü ibolyántúli sugárforrás.
Szabadalmi Közlöny, 1959. III. 20. OÁ-183/5.

27./ *Orbán György*
Erdélyi Lajos: Kvarcégő szilárd testek, folyadékok és gázok ibolyántúli fénnyel való besugárzására.
Szabadalmi Közlöny, 1959. III. 20. EE-411/6.

28./ *Szalay Sándor:* A mesterséges radioaktivitás felfedezése és hatása a tudományos kutatás fejlődésére.
Magyar Tudomány, 4/1959/565.
/Megj. a "Fizikai Szemle"-ben./

29./ *Koltay Ede:* Nagyenergiáju részecskegyorsitók uj szerkesztési elve.
Fizikai Szemle, 9/1959/139.

30./ *Koltay Ede:* Erős fókuszálás kisenergiáju ionoptikai rendszerekben.
Fizikai Szemle, 9/1959/182.

31./ *Szalay Sándor*
Csikai Gyula: Radioaktivitás. Jegyzet, Bp. 1959. Felsőokt. Jegyzetellátó Vállalat.

Népszerü cikkek.

1./ *Kovách Ádám:* Ötéves az MTA Atommag Kutató Intézete.
Fizikai Szemle, 9/1959/284.

Tudományos előadások.

1./ *Kertész László*
Medveczky László, etc.: Kisérleti adatok a flavonfestékek strumigén hatásához. II. Vizsgálatok J^{131}-gyel.
Higienikus Konferencia, Bp. 1959. szept.,
Debreceni Orvostud. Egyetem, VII. Tud.Ülése, 1959. nov. 5.

2./ *Kertész László:* Nyitott radioizotóp készitmények orvosi alkalmazásánál felmerülő dózisproblémák.
Radiológus Szakcsoport: "Sugárártalom, sugárvédelem" symposion. Bp. 1959. nov.

3./ *Kertész László*
Medveczky László: Megterhelő idegi ingerek hatása a pajzsmirigy működésére. Vizsgálatok J^{131}-gyel.
Debreceni Orvostud.Egyetem IX.Tud.Ülése,1959. nov. 19.

4./ *Kertész László:* A pajzsmirigy jódanyagcseréjét befolyásoló néhány tényező vizsgálatáról. /co-referátum/
VIII. Magyar-Szovjet Orvosi Konferencia, Bp. 1959. dec.

5./ *Szalay Sándor:* Radioaktiv anyagok a légkörben és természetes vizekben.
Szegedi Vándorgyülés, 1959. aug.
Eötvös Lóránd Fizikai Társulat Debreceni Csoportjának rendezvénye, 1959. okt. 22.

6./ *Szalay Sándor:* A magfizikai ipar szennyező hatása vizkészletünkre.
A Magyar Hidrológiai Társaság Borsodi Csoportja rendezésében, Országos Szennyviz Konferencia, 1959. okt. 10.

7./ *Szalay, A.:* The Role of Humus in the Geochemistry of Uranium.
A Lengyel Tudományos Akadémia Varsói Atommag Kutató Intézetében, 1959. május 14.

8./ *Szalay Sándor:* A neutrinó visszalökő hatásának vizsgálata a He^6 beta-bomlásában.
A Bratislavai Műegyetemen, 1959. jun.

9./ *Orbán György:* A Betatron orvosi, műszaki és atommag fizikai alkalmazásai.
Magyar Elektrotechnikai Egyesület, 1959. márc. 2.

10./ *Fényes Tibor:* A nem gömbszerű atommagok alfa-bomlása.
Szegedi Vándorgyűlés. 1959. aug.

11./ *Nagy János:* Vizsgálatok a *Penning*-féle hidegkatód-ionforráson.
Kossuth Lajos Tud. Egyetem Tud. ülésszaka, 1959. ápr. 14.

Kandidátusi értekezések.
Egyetemi doktori disszertációk.

1./ *Csongor Éva:* Vizsgálatok a Mg^{24}, Mg^{25} és Mg^{26} izotópoknak Po sugárzással történő bombázását kisérő gamma-sugárzásra vonatkozólag. Benyújtott kandidátusi értekezés.

2./ *Fényes Tibor:* Az alfa-bomlás. A Po^{210} alfa-spektruma.
Megvédett kandidátusi értekezés.

3./ *Nagy János:* Néhány könnyű elem alfa-neutrontipusú magátalakulásának gerjesztési függvénye.
Egyetemi doktori értekezés. A doktori cimet megszerezte.

4./ *Szabó Ilona:* Kationok adszorpciója humusz preparátumon.
Benyújtott egyetemi doktori értekezés.

5./ *Ujhelyi Csaba:* U/VI/ extrakciós vizsgálatok di-n butil - foszfáttal.
Egyetemi doktori értekezés. A doktori cimet megszerezte.

6./ *Berényi Dénes:* Egy toroid szektor tipusú koincidencia béta-spektrométer konstruálása és vizsgálatok a Nd^{147} bomlási sémáján.
Egyetemi doktori értekezés. A doktori cimet megszerezte.

INTÉZETI HIREK

1959. évben - az elmúlt évekhez képest - nagymértékben megnőtt az Intézet idegen látogatóinak száma. Számos magyarországi kutatóintézet munkatársain kivül igen sok külföldi vendég látogatta meg rövidebb-hosszabb időre az Atommag Kutató Intézetet, s több külföldi vendégkutató töltött hosszabb időt is Intézetünkben. Igy másfél hónapig tartózkodott az ATOMKI-ben *Vera Panáková*, a bratislavai műegyetem fizikai tanszékének adjunktusa, aki az atommagfizika egyetemi oktatásában alkalmazható kisérleti módszereket, laboratóriumi gyakorlatok céljaira alkalmas méréseket tanulmányozta az ATOMKI-ben, valamint a Kossuth Lajos Tudományegyetem Kisérleti Fizikai Intézetében.

1959. október 17-től november 7-ig *S. Hatvani* vegyész az ATOMKI-ben kidolgozott urán analitikai módszereket tanulmányozta, különös tekintettel a természetes vizekben nyomokban található urán meghatározására alkalmas mikroanalitikai módszerekre. Ugyanekkor *E. Mariani* elektromérnök az urán fluorimetriás analiziséhez szükséges elektronikus berendezéseket, valamint a gamma-spektrometria kisérleti berendezéseit tanulmányozta. *S. Hatvani* és *E. Mariani* mindketten a Szlovák Tudományos Akadémia bratislavai Fizikai Laboratóriumának munkatársai.

Egy hónapot töltött Intézetünkben az elmúlt év decemberében *D. Blanaru* román fizikus, aki a Román Tudományos Akadémia Jassi-ban szervezés alatt álló fizikai kutató intézetének munkatársa. *D. Blanaru* Intézetünkben a csapadék radioaktivitásának meghatározási módszereit, valamint általában a kisérleti atommagfizika vizsgálati módszereit tanulmányozta.

* * *

A rövidebb látogatásra intézetünkbe érkezett külföldi vendégek közül csak néhányat sorolunk fel:

március 2-án *A. H. Breger*, a Szovjet Tudományos Akadémia moszkvai, *Karpov*ról elnevezett Fizikai-Kémiai Kutató Intézetének munkatársa;

március 2-4-ig *dr. E. Bagge* kieli professzor;

április 24-én *Prof. dr. O. F. Schwartz*, a jénai egyetem Fiziológiai Intézetének igazgatója, valamint munkatársa, *H. Volkner* elektromérnök;

május 26-án *J. Blecha* és *J. Haška* mérnökök, a *Tesla* cég prágai Fizikai Kutató Intézetének munkatársai;

junius 26-án látogatta meg az ATOMKI-t a Német Demokratikus Köztársaság Atomenergia Bizottságának Magyarországon tartózkodó nyolctagú, ismert tudósokból álló küldöttsége, *Prof. dr. J. Schnitlmeister* vezetésével. A küldöttség tagjai voltak többek között *dr. C. F. Weiss*, *dr. H. Barwich*, *dr. E. Reser* professzorok;

julius 28-án *Prof. dr. J. Hurvič*, a varsói Műegyetem Fizikai-Kémiai Intézetének igazgatója látogatta meg az Intézetet;

junius 12-én *Prof. dr. W. Macke*, Drezda;

szeptember 25-én *J. Cirák* és *J. Gabris*, a bratislavai Műegyetem elekrotechnikai tanszékének adjunktusai;

október 12-13-án *A. Grimbert*, geológus-mérnök, a francia Atomenergia Bizottság Uránkutató Osztályának munkatársa;

október 29-30-án *R. M. Szuljajev* fizikus, Dubnából;

november 20-án *dr. A. Krohs*, *H. J. Pohl*, *H. W. Francke*, a jénai *VEB Carl Zeiss* Művek fejlesztési osztályának munkatársai, valamint *G. Grünewald*, az NDK budapesti nagykövetsége kereskedelmi osztályának munkatársa;

december 15-én *W. Žuk*, a lublini Marie Sklodowska-Curie Egyetem Fizikai Intézetének tanszékvezető docense;

december 16-án *I. Adamczewski* professzor, a gdanski Műegyetem Fizikai Intézetének vezetője.

* * *

Vendégeink közül többen tartottak előadást Intézetünk kutatói számára. Igy

Prof. *dr. E. Bagge* "Die Trennung von Isotopen mit der Isotopenschleuse" cimmel, március 3-án;

Prof. *dr. W. Macke* "Entwicklungstendenzen der Kernphysik"cimmel, junius 12-én;

R. M. Szuljajev "Nukleonok impulzuseloszlása könnyű magokban" cimmel, október 30-án;

Dr. A. Krohs "Photoelektronische Bauelemente" és "Neuere Untersuchungen an Selenphotoelementen" cimekkel, november 19-én;

H. J. Pohl "Eigenschaften und Anwendung der bisher im VEB Carl Zeiss Jena entwickelten Photovervielfacher und Scintillatoren, Stand der Produktion und Entwicklungsperspektive" cimmel XI.19-én;

W. Žuk "Kernenergie-Niveaus in der Umgebung von $_{82}Pb^{206}$" cimmel, december 15-én.

* * *

Intézetünk tagjai közül ez évben aránylag kevesebben részesültek külföldi kiküldetésben, mint az előző években.

Dr. Szalay Sándor 1959. május 7-16-ig Lengyelországban tartózkodott, ahol krakkói és varsói intézeteket tekintett meg. Varsói tartózkodása során május 14-én előadást tartott a Lengyel Tudományos Akadémia Atommag Kutató Intézetében "The Role of Humus in the Geochemistry of Uranium" cimmel.

1959. junius 16-21-ig Bratislavában tett látogatást *dr. Szalay Sándor*, ahol a Műegyetem Kisérleti Fizikai Intézetében előadást tartott "A neutrino visszalökő hatása a He^6 béta-bomlásában" cimmel. Bratislavai tartózkodása során az ottani Műegyetem intézeteit, valamint a Szlovák Tudományos Akadémia szervezés alatt álló Fizikai Kutató Intézetét tekintette meg.

Kovách Ádám 1959. december 9-13-ig részt vett a Német Tudományos Akadémia és az Institut für Physikalische Stofftrennung által

közösen, Lipcsében rendezett "I. Arbeitstagung über Anwendung stabiler Isotope" c. kollokviumon, a német Tudományos Akadémia vendégeként.

Dr. Berényi Dénes 1959. október 1-én, féléves időtartamra, Moszkvába utazott, ahol vendégkutatóként a moszkvai Lomonoszov Egyetem Fizikai Fakultásának Magspektroszkópiai Tanszékén dolgozik jelenleg is.

* * *

Az 1959. év során is rendszeresen megtartottuk a Kossuth Lajos Tudományegyetem Kisérleti Fizikai, valamint Alkalmazott Fizikai Intézetével közösen rendezett heti referáló délutánjainkat. E heti referáló délutánokon más intézetek munkatársai is részt vehetnek, igy gyakran megjelentek azokon pl. az Orvostudományi Egyetem Fizikai Intézetének, valamint a Tudományegyetem Elméleti Fizikai Intézetének oktatói, s a MTA Heliofizikai Obszervatóriumának munkatársai is.

Az 1959. év során a következő beszámolók hangzottak el:

I. 14. *Scharbert Tibor:* "Mikrohullámu oszcillátorok és erősitők."

I. 21. *Daróczy Sándor:* "Termikus neutronok visszaszórási tényezőjének /albedojának/ vizsgálata."

I. 29. *Dede Kálmán:* "Termikus neutronok diffúziós hosszának mérése vizben."

III. 5. *Csikai Gyuláné:* "BF_3 gázzal töltött proporcionális neutronszámláló."

III. 12. *Angeli István:* "Atommagok tulajdonságainak vizsgálata Coulomb-gerjesztés segitségével."

IV. 29. *Angeli István:* "Laboratóriumi kisérletek az uránnak szénhamuban történő feldúsitására."

VI. 4. *Dr. Dezső Loránt:* "A meteoritekről általában."

IX. 10. *Csikai Gyula:* "Beszámoló a kievi nagyenergiáju részecskék konferenciájáról."

IX. 17. *Dr. Berényi Dénes, Máthé György, Scharbert Tibor:* "Vizsgálatok a Fe^{59} bomlási sémáján."

X. 8. *Fényes Tibor:* "A Po^{210} α-spektruma."

XI. 5. *D. Horváth Éva:* "A radiohidrogeológiai módszer jelentősége az urán geokémiájának vizsgálatában."

XI. 12. *Máthé György:* "Hutchinson-Scarrott rendszerű sokcsatornás amplitudó-analizátor."

XI. 25. *Dr. Sámsoni Zoltán:* "A meteoritek a kozmokémiai kutatás szolgálatában."

XII. 3. *Dr. Kertész László:* "Beszámoló a budapesti nemzetközi radiologus symposion munkájáról."

XII. 21. *Dr. Csongor Éva:* "Vizsgálatok a Mg^{24}, Mg^{25}, Mg^{26} izotópoknak Po-α sugaraival történő bombázását kisérő γ-sugárzásra vonatkozólag."

Kiadja a
Magyar Tudományos Akadémia
Atommag Kutató Intézete
D e b r e c e n.
A kiadásért és szerkesztésért felelős
Szalay Sándor az intézet igazgatója.
Készült az intézet *"Zetaprinton"* tipusu
sokszorosító gépén *"Rotaprint"* eljárással.
Példányszám 300
13/1960.

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

310.565

Atomki Közlemények

II. kötet 1960 2. szám

M.T.A.
ATOMMAG KUTATÓ INTÉZETE
DEBRECEN

Az ATOMKI KÖZLEMÉNYEK-et az MTA Atommag Kutató Intézete (ATOMKI) adja ki. A szerkesztésért és kiadásért felelős: dr. Szalay Sándor egyetemi tanár, az MTA lev. tagja, az intézet igazgatója. Technikai szerkesztő: Berényi Dénes tud. munkatárs, technikai segédszerkesztő: Meszéna György tud. s. munkatárs.
A lap anyagához hozzájárul a Debreceni Kossuth Lajos Tudományegyetem Kísérleti Fizikai Intézete, valamint Alkalmazott Fizikai Intézete is, amely intézetek szoros együttműködésben vannak az ATOMKI-vel. Kéziratot elvben külső szerzőktől is elfogadunk, ha az a lap célkitűzéseinek megfelel.
Az ATOMKI KÖZLEMÉNYEK feladatát a következőkben látjuk:
1. Lehetőleg hű képet ad az ATOMKI munkásságáról, tevékenységéről, fejlődéséről. Az ATOMKI tudományos eredményei közül csak azokat hozza részletesebben, amelyek más helyen, akadémiai, nemzetközi vagy egyéb folyóiratban nem jelentek meg. Az utóbbiakról csak felsorolást, esetleg rövid ismertetést, kivonatot hoz.
Más folyóiratokban megjelent közleményeinkhez egyes esetekben hozunk itt kiegészítő közleményt, ha az alkalmazott kutatási módszer eredetisége folytán külön leközlésre érdemes, és helyszűke miatt a nagyobb folyóiratokban a részletes leírás célszerűtlen lett volna.
2. Elősegíti különösen a fiatal hazai atomkutatók tudományos ismereteinek bővülését azzal, hogy az atommagfizika egyes területeiről összefoglaló, ismertető közleményeket hoz magyar nyelven.
3. Elősegíti a világon folyó atommagkutatás eredményeinek hazai békés alkalmazását más tudományok és az ipar területén olyan összefoglaló, ismeretterjesztő közlemények útján, amelyek bár tudományosan nem eredetiek, de e téren hazánkban — magyar nyelven — hézagpótló szerepet töltenek be.
Idetartozónak tekintjük az izotópok különböző alkalmazásait a tudományokban, az iparban, stb., valamint az atomkorszak bekövetkeztével kapcsolatban felmerülő szükségleteket, problémákat az oktatásban, és így tovább.
Az ATOMKI KÖZLEMÉNYEK évenként több számban jelenik meg. Tudományos intézeteknek, intézményeknek cserepéldányképpen, vagy kérésükre díjtalanul megküldjük, kötelezettség nélkül. Magánszemélyeknek esetenkénti kérésére 1—1 példányt vagy különlenyomatot szívesen küldünk. Ilyen irányú kéréseket az intézet könyvtárszolgálatához kell irányítani (ATOMKI, Debrecen, Bem-tér 18/c. Levélcím: Debrecen 1. Pf. 51. Táviratcím: ATOMKI, Debrecen).

A T O M K I K Ö Z L E M É N Y E K

II. kötet 1960. 2. szám.

TARTALOMJEGYZÉK

TUDOMÁNYOS KÖZLEMÉNYEK oldal

Szalay Sándor - Scherf Emil: Az Eperjes-Tokaji-hegység és előtere vizeinek urán-nyomtartalmáról. 71

Meszéna György: Számitások Bruns sorokkal a természetes vizekben található urán-nyom statisztikai értékeléséhez. 99

Scherf Emil - Meszéna György: Matematikai - statisztikai vizsgálatok a természetes vizek uránban való feldusulásának fizikai feltételeiről. 109

Szalay Sándor - Angeli István: Laboratóriumi kisérletek az uránnak szénhamuban történő előd usitására. 145

Sámsoni Zoltán: Laboratóriumi kisérletek az ajkai szénhamu uránium tartalmának kioldására a gazdaságosság szempontjából. 155

D. Horváth Éva: Uránium tőzegen való adszorpciójának vizsgálata U-nyomokat tartalmazó természetes vizekben. 177

Sámsoni Zoltán: Az uránium, thorium és a vas kimutatása, és az uránium meghatározása rhamnetin segitségével. 185

AZ EPERJES-TOKAJI HEGYSÉG ÉS ELŐTERE VIZEINEK URÁN-NYOMTARTALMA

Szalay Sándor és Scherf Emil

Szerzők geokémiai tanulmánya a Tokaji-hegységben és annak nyugati és déli előterében gyűjtött 341 természetes vizminta urántartalmával foglalkozik. Meghatározása az ATOMKI új javitott mikrokémiai módszerével történt. A vizsgálatokat egyéb fizikai és kémiai állandók helyszini meghatározása egészitette ki.

Az adatok matematikai-statisztikai feldolgozása az anyakőzet szerint 8 csoportban történt: I. riolittufa, II. összes eruptivum /riolittufával/, IV. szarmata üledék, VI. holocén + pleisztocén és VIII. pannon üledék vizei. Az U-koncentráció logaritmusa minden csoportban közel Gauss-eloszlást mutatott. Lényegesebb aszimmetria az eltérő genétika miatt a VI. csoportnál mutatkozott, mely az V. és VII. csoportositásra is kihatott.

Szerzők szerint a vizek uránkoncentrációs összeggörbéi logikus kapcsolatban vannak az anyakőzet szemcseösszetételének Gauss-eloszlásaival. A talajdiszperziókból kioldódó U-mennyiségek arányosak az anyakőzet belső felületével, mely Grassberger szerint számitható. Pl. a VIII. csoport pannon üledékének szemcseösszetételi görbéjére jellemző kis szórás az urán-koncentráció eloszlásában is visszatükröződik.

A talajszerkezet és az átszüremkedő viz U-koncentrációja között felismert összefüggések az un. uranium-background értelmezése szempontjából elvi jelentőségüek. Ezért *Scherf* és *Meszéna* egy következő közleményben azokat számszerűen fogják megadni. Egyelőre megállapitható, hogy a bejárt területen tapasztalt néhány tiz γ/lit nagyságrendű U-dúsulások a vizekben nem uránérc-dúsulásoktól származnak, hanem az anyakőzet finomabb szemcsézettségének megfelelő nagyobb U-background-értékeknek tekintendők.

A. B e v e z e t é s.

A természetes vizek radioaktiv anyag tartalma iránti tudományos érdeklődés olyan régi, mint a radioaktiv anyagok felfedezése. Ennek okát részben a radioaktiv módszerek nagy érzékenységében, részben a radioaktiv anyagok élettani veszélyességében kereshetjük.

Az utóbbi években mind nagyobb érdeklődés mutatkozik a természetes vizek urán-tartalmának meghatározása iránt. A természetes vizekben uránium álta-

lában rendkivül kis mennyiségben fordul elő, és kimutatása azért lehetséges, mert olyan érzékeny mikrokémiai módszerekkel rendelkezünk, amelyekkel egy liter vizben foglalt 0,01 mikrogramm /0,01 γ/ nagyságrendü U-tartalom biztosan meghatározható, és az eredmények igen jól reprodukálhatók. Minthogy az uránium a jelenkor egyik legfontosabb nyersanyaga, sok más módszer mellett néhány év óta a hidrogeokémiai módszert is próbálják az uránium-kutatásban alkalmazni. Kiterjedt arányokban folynak világszerte elemzések a természetes vizek urán-nyomtartalmára vonatkozólag, és a kapott adatok kiértékeléséből próbálnak esetleg iparilag is hasznositható uránelőfordulásokra következtetni. Sajnos, ez sok nehézséggel jár, mert a természetes vizekben található uránium általában nagy részben a földkéreg átlagos és erősen diszpergált uránium-tartalmából oldódik, és nem ismerjük eléggé azt a nagyon sokféle tényezőt, amelyik az oldást befolyásolja. Tudományosan rendkivül érdekes volna megismerni azokat a törvényszerüségeket, amelyek az uránnak a talajvizből való oldódását szabályozzák.

Egyikünk [19], [20], [21], [22], [23] törvényszerüséget állapitott meg az urán geokémiai körforgásában. Kiderült, hogy az urán egyik leggyakoribb dusulási formájában - az organikus anyaghoz kötött urán feldusulásában - a humuszsavak jelentős szerepet játszanak. Ez a feldusulás - a feltevés szerint - természetes vizekben nagy higitásban nyomelemként jelentkező uránból is megtörténhet. Szükségesnek látszott nagyobb arányu anyaggyüjtést végezni a természetben, megvizsgálni források, kutak és talajvizek természetes urániumtartalmát, esetleg ezen az alapon kiindulva megvizsgálni az urán feldusulását a talajok, üledékek humusz-tartalmában, természetes körülmények között. Természetesen, rendkivül kis urán-koncentrációk megismeréséről van szó.

Ismeretes, hogy az óceánok vizében az urántartalom tonnánként 1,5-2 mg körül van. A szárazföldi édes vizekben is leggyakrabban ilyen nagyságrendü urá - nium-tartalommal találkozunk, és az ritkán emelkedik tonnánként 10-50 mg érték fölé. Szerencsére, már régóta ismeretes olyan érzékeny urán-meghatározási módszer, amellyel 10^{-10} gr uránium kimutatható [24], [25].

A módszer alapelvét megtartva, az utóbbi években közzétett solvens extrakciós eredményeket is felhasználva, az Intézetben a módszert egyszerüsitettük és ugyanakkor a szubjektiv észlelés helyett objektiv mérést alkalmazva pontosabbá és megbizhatóbbá tettük [26] /l. később/.

Ilyen vizsgálatok meginditására először *Straub János* professzor kapott megbizást 1955. tavaszán, aki az ATOMKI-nek részfoglalkozásu osztályvezetője volt. *Straub János* 1956-ban váratlanul bekövetkezett sajnálatos haláláig csak kevés mérési adatot bocsátott az Intézet rendelkezésére.

Minthogy közben azonban az is nyilvánvalóvá vált, hogy ilyen vizsgálatok nem választhatók el a viz-mintavételnek geológiai átvizsgálásától, 1957-ben az egész munkaprogram ujbóli felvételét kezdtük meg, megfelelő geológiai körültekintéssel.

Minthogy célunk és feladatunk nem ipari jellegü és értékü előfordulások keresése volt, hanem az oldódás és kiadszorbeálódás tudományos törvényszerüségeinek vizsgálata, a fenti - iparilag hasznositható U-előfordulások szempontjából nem igen biztató - területet választottuk ki, amelyik Debrecenből aránylag rövid uton könnyen megközelithető, és igy a minták begyüjtése nem okozott nagy nehézséget.

Dolgozatunk metodikai részében röviden megemlékezünk azokról az analitikai módszertani javitásokról is, amelyeket az urán mikroanalitikai meghatáro-

zására az ATOMKI laboratóriuma ujabban kidolgozott.

Közleményünk főtárgya azonban az urán elterjedésének geokémiai vizsgálata a hegység és előterének természetes vizeiben és a nyert számanyag matematikai-statisztikai vizsgálata. Az utóbbi révén bizonyosfoku bepillantást nyerünk a vizek utján végbemenő másodlagos jellegü U-feldusulások folyamatába, Munkánk igy a tudományos geokémiai megismerést kivánja előrevinni. *Saukoff A.A.* [15] már 1956-ban kifejtette, hogy a radiohidrogeológiai kutatásnak legnehezebb feladata a munka végén az eredmények értelmezése. Helyesen mutatott rá arra, hogy ebben a tekintetben nem ismerünk általános érvényességü szabályokat. Szükséges, hogy a fizikus és geológus minden egyes esetben gondosan mérlegelje, hogy mekkora az az "urántartalomháttér" /"natural hydrochemical background"/, mely az adott esetben még normálisnak tekinthető, illetőleg milyen nagyságrendü urántartalom /"U-anomália"/ az, amelynek alapján sejteni lehet, hogy a vizsgált viz olyan kőzetből ered, melyben az uránásványok feldusultak.

Saukoff egyuttal arra is figyelmeztetett, hogy ennek a természetes "háttér"-nek számszerü értéke sok tényezőtől függ, igy pl. a viz származási kőzetének minőségétől, a topográfiai helyzettől, az általános és helyi éghajlattól, amint erős befolyása van rá annak a körülménynek is, hogy a viz földalatti utjában találkozott-e adszorpcióra alkalmas, redukáló tulajdonságu savanyu kémhatásu szapropellel, vagy más humuszos-szenes rétegekkel.

Saukoff tájékoztató közleményében e hatások számszerü jellemzésére külön-külön a természetből vett határértékeket nem adott. Általános megjegyzése az, hogy a "background" rendesen az 1.10^{-8} és 5.10^{-5} g/l (=0,01 γ/l - 50 γ/l) érték között szokott lenni a természetes vizekben, olyanformán azonban, hogy egyik esetben egy γ/l backgroundérték már valamilyen urándusulás indikációjának tekinthető, a másikban még nem. Általában véve azonban *Saukoff* szerint uránérctelőfordulásokról szivárgó vizek U-tartalma meg szokta haladni a 10 γ/l értéket és 1000 γ/l érték felé, kivételes esetekben 10000 γ/l értékig is emelkedhetik.

Saukoff ezért szükségesnek tartja, hogy geokémiai és gyakorlati tekintetben érdekes uránlelőhelyek kutatásánál először az egyes kutatási körzetekre nézve a kőzetviszonyoktól és klimatikus viszonyoktól függő "background" megállapittassék. Csak az ezt 10-20-szorosan meghaladó U-tartalmak tekinthetők szerinte komoly U-indikációnak. Ugyanez vonatkozik a vizek rádiumemanáció tartalmára, amelyet különben csak abban az esetben érdemes külön meghatározni, ha a rendestől eltérő U-tartalmat észleltek.

Látjuk, hogy az "uránháttér" fogalma még kissé határozatlan. A tudományos megismerésnek ez a ma még kétségtelenül nem egészen kielégitő állapota inditott bennünket arra, hogy a meghatározott számanyagot megkiséreljük matematikai-statisztikai tekintetben kiértékelni és ezen az alapon a "background" létrejöttének okáról és számszerü nagyságáról mélyebb betekintést kapni. Kivánatos lett volna egy nagyságrenddel nagyobb számadathalmaz. A mi szerény méretü adathalmazunk: összesen 341 U-meghatározás, mely mint látni fogjuk, még hozzá több csoportra szétkülönitendő, előre is valószinüvé tette, hogy a kiértékelésnél több százalékos hibákkal kell számolni. Ugy véljük azonban, hogy az ilyen kevéssé kitaposott uton járva nem szabad elméleti megfontolások alapján tul bátortalannak lenni. Egyébként azok az elvi nehézségek, amelyekkel a természetes vizek igazi anyakőzetének a megállapitásánál meg kell küzdeni, s amelyekről a metodikai részben alább még megemlékezünk, a minták szaporitása révén elméletileg el-

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

érhető nagyobb pontosságot illuzórikussá tették volna.

Munkánk tulajdonképpeni célján kivül igyekeztünk a sikvidéki vizmintagyüjtésnél a talajvizek feltünő chlórtartalmának törésvonalakhoz való kapcsolódására nézve, melyet egyikünk /*Scherf* [16]/ már évekkel ezelőtt megállapitott, ujabb adatokat szerezni, illetőleg a régieket helyesbiteni. Erre azért is szükség volt, mert a priori nem lehetett megitélni, vajjon nem fognak-e a feltételezett törésvonalak csapásán mutatkozni egyes feltünő U-tartalmak. Ugyanezt a célt szolgálták a helyszinen végzett elektromos vezetőképességi mérések a gyüjtött vizekben. Ezek egyrészről gyorsan tájékoztattak a Cl-meghatározásra kiválasztandó vizmintákról, másrészről erősen szulfátos vizek jelenlétét jelezték abban az esetben, ha a Cl-érték kicsiny, a vezetőképesség pedig nagy volt.

Mindjárt itt emlitjük meg, hogy e vizsgálatok azt eredményezték, hogy: sem a Cl-tartalom, sem a vezetőképesség nem mutat összefüggést a vizek urán-tartalmával.

B. Vizsgálati eljárások.

A begyüjtött vizmintákon megvizsgáltuk az U-tartalmat, a Cl-tartalmat, az elektromos vezetőképességet, a p_H-t és a hőmérsékletet.

A követett eljárásokat a következőkben irjuk le:

1. Természetes vizek uránnyom-tartalmának meghatározása fluorimetriával:

A meghatározás azon a jelenségen alapul, hogy uránium nyomokkal aktivált - egyébként igen tiszta - nátriumfluorid olvadékgyöngy ultraibolya fénnyel megvilágitva -sárgászöld fénnyel fluoreszkál. A fluoreszkálás erőssége tág határok között arányos az urán nyom-tartalommal [24], [25]. Ha a meghatározandó urán nyomokat egy miniatür platina tányérkában tiszta nátriumfluoriddal gyönggyé olvasztjuk, és összehasonlitás céljára bemért ismert urán-tartalommal aktivált összehasonlitó nátriumfluorid gyöngysorozatot készitünk, és mind az ismeretlen, mind az ismert standard gyöngyöket ugyanazon ultraibolya fénnyel világitjuk meg, akkor a kibocsátott sárgás-zöld szinü látható fény erőssége tág határok között arányos lévén az urántartalommal, a fényerősség becslésével vagy mérésével az urántartalom meghatározható.

A módszer rendkivül érzékeny, segitségével 10^{-8} gramm uránium még jól meghatározható.

A meghatározásnál figyelembe kell venni azt, hogy a vizben oldott ásványi sók, és különösen a jelenlévő nehéz idegen kationok /pl. Fe^{+++} és Fe^{++}/ erősen gátolják a fluoreszkálást /"killer effect"/.

Az irodalomban emlitett számos organikus oldószer közül, melyek alkalmasak az uránium zavaró anyagok mellől való kivonására /dibutylfoszfát, tributylfoszfát, methylizobutylkleton, tertier alkoholok, stb./ Intézetünkben a tributylfoszfátot /TBP/ alkalmaztuk. A TBP igen tisztán előállitható folyadék, mely 289° C-on forr, tehát szobahőn nem párolog. Vizzel csak igen kis mértékben elegyedik, HNO_3-al szemben kémiailag stabil. Mindezek a tulajdonságai is igen előnyös uránium kivonószerré teszik.

A különféle vizminták p_H-ját 1:1 higitásu HNO_3-al rendszerint már a mintavétel helyén savasra /1-1,2-re/ állitottuk be. Ugyanis a tulságosan lugos

az uránium ionjait, amig megfelelő savkoncentrációju vizben az uránium uranilnitrát /$UO_2/NO_3/_2$/ alakjában oldatban marad. Az uranilnitrát molekulavegyület, $UO_2/NO_3/_2$. 2 TBP alakjában, vagy meghatározott mennyiségü TBP-ben oldva kapcsolódik a TBP-hez. Ez a kapcsolódás azonban csak abban az esetben tekinthető teljes mértékünek, ha a viz nitrát-koncentrációját annyira megnöveljük, hogy az mintegy kiszoritja maga mellől az uranilnitrátot. Ezt a hatást részben a savanyitó HNO_3-al, részben valamilyen jól disszociáló nitráttal érhetjük el.

Az Intézetben végzett vizsgálatok szerint 0,1 n HNO_3 és 6 n-s nitrátkoncentráció beállitása esetén érhető el maximális urán kivonás. Ez 100 ml viz vizsgálatánál 1 ml koncentrált HNO_3 és 50 gr NH_4NO_3 adagolását jelentette. Az igy előkészitett vizet rázótölcsérben TBP-vel összeráztuk. Mivel a TBP viszkozitása elég magas, sürüsége pedig közel egyenlő a vizével /0,973/ - a fázisok elválasztásánál mindkét tulajdonság hátrányos - mint higitószert 0,75 fajsulyu foltbenzint alkalmaztunk. A foltbenzin jól elegyedik a TBP-vel, vizzel viszont csak elenyésző mértékben. Savakkal szemben ellenálló, fajsulya kisebb a vizénél; elválasztásnál a vizes fázis tehát mindig alul helyezkedik el, és a tölcsérből könnyen eltávolitható.

A meghatározásnál 10 ml 7 %-os benzines TBP oldatot ráztunk egy percig 100 ml urán-tartalmu vizzel. Az organikus résztől elválasztott vizes fázist 5 ml tiszta benzinnel még 1 percig ráztuk, hogy az esetleg oldódott csekély mennyiségü TBP-ot a vizből kivonjuk. Az összegyüjtött benzines, TBP-benzines fázisokat 10 ml desztillált vizzel rázótölcsérben háromszor megismételve kiráztuk. A vizsgálatok azt mutatták, hogy háromszori 1-1 perces deszt.vizes kirázás után az U visszament a vizes fázisba, a TBP-os oldatban maximálisan 0,5-0,8 % uránium maradt. /Ez jóval belül esik a meghatározás hibahatárán./

Az összegyüjtött vizes fázisokat platina csészében szárazra pároltuk, és a kirázásoknál átoldódott 0,5 - 1 %-nyi ammóniumnitrátot elfüstöltük. A maradékot kevés cc HCl-al felvéve ujra szárazra pároltuk és 1 ml telitett NaF + 0,1 ml 10 %-os Na_2CO_3 oldatot adtunk hozzá. A kirázások folyamán ugyanis kevés vas és réz is átoldódik az urániummal és ezek a fémek gyengitik a NaF-al összeolvasztott U fluoreszcenciáját, A Na_2CO_3 hatására keletkezett $FeCO_3$, $Fe_2/CO_3/_3$, illetve $CuCO_3$ már nem fejt ki hasonló zavaró hatást. A fölösleges nedvesség elpárologtatása után, a visszamaradt porszerü anyagot apró pasztillákká sajtoljuk, és fujtató lángon /1000-1100° C/ miniatür platina tányérkában összeolvasztottuk.

Az igy elkészitett mintákhoz hasonló eljárással ismert urán-tartalmu standard sorozatot készitettünk, melyek /100 ml viz átlagos urántartalmához igazodva /10^{-5} - 10^{-8} g közötti uránmennyiségeket tartalmaztak. A minták fényerejét erős kvarc-lámpa látható fénytől megszürt ultraibolya fényével megvilágitva, vizuálisan összehasonlitottuk, illetve az Intézetben készitett fotoelektronsokszorozócsöves fluoriméterrel [26] megmértük. A vizuális módon való kiértékelés pontossága ± 30 %, ezt azonban az objektiv fluoriméteres mérés cca ± 10 %-ra csökkenti. 100 gamma/l uránkoncentrációnál magasabb koncentrációk esetén célszerü a meghatározást kevesebb vizzel megismételni, mert a fluorimetriás mérőrendszer ilyen uránmennyiségek esetén már nem kielégitő pontosságu.

2. Cl-meghatározás Mohr szerint:

4,7793 g $AgNO_3$/l vizes oldattal történt, amelyből 1 ml megfelel 0,001 g Cl-ionnak. Indikátorul 1 %-os K_2CrO_4-oldat szolgált. A vizek nem tartalmaztak nor-

mális Na_2CO_3-ot, ezért a titrálás előtti ecetsavval való megsavanyitás az alföldi vizeknél is elmaradhatott.

3. A vizek elektromos vezetőképességének meghatározása.

A természetes vizek elektromos vezetőképességét a hely szinén közvetlenül a begyüjtés után határoztuk meg. Ez igen fontos követelmény, főleg akkor, ha a vezetőképesség számbeli értékét az oldott $Fe/HCO_3/_2$ bomlása lényegesen befolyásolhatja. Az ilyen vizekből álláskor igen gyorsan vashidroxid válik le. Ennek következtében eredetileg 900-1000 Ohm körüli ellenállásértékek már 10-15 perces állásnál megduplázódhatnak. Kloridos-sós vizeknél a kémiai elváltozás az elektromos vezetőképesség változása szempontjából kevésbé veszedelmes. Mindazonáltal Tiszagyulaháza-tipusu sós vizeknél is tetemes változás következhetik be $CaCO_3$-kiválás /CO_2-veszteség/ miatt.

Mérőmüszerül egy az ATOMKI mühelyében szerkesztett /kis hordozható Kohlrausch-hid/ szolgált, mely a terepmunka követelményeinek: kis suly, mérsékelt pontosságu gyors szériamunka lehetősége, nagyobb sótartalmu vizek mérhetősége, mindenben megfelelt. A pipetta-alaku, kb. 100 ml befogadóképességü mérőcella állandó elektromos kapacitásértékét két egymástól 10 cm távolságban beforrasztott sima Pt-elektróda biztositotta. A vizminta felszivása után a pipettát beköszörült alsó csappal lehetett elzárni. A cella elektromos kapacitását *Angeli István* tud. munkatárs 15° C-on 0,01 n KCl-oldattal 2,24 cm^{-1}-nek, 0,1 n KCl-oldattal pedig 2,25 cm^{-1}-nek határozta meg; a számitásokhoz a középértéket: C = = 2,245 cm^{-1} használtuk. A mérődobon leolvasott kompenzáló ellenállás értéke a különböző vizitipusoknál 350 - 3000 Ohm között váltakozott. A mérődobon elérhető beállitási pontosság az ellenállás nagysága szerint 25-50 Ohm volt; ez céljainknak megfelelt. 5000 Ohm fajlagos ellenálláson tul a készülék már nem dolgozott elég pontosan, de az ilyen kis sótartalmak a vizben nem voltak fontosak és csak kivételesen kerültek meghatározásra.

3. A reakcioszám: pH meghatározása

mindig a helyszinen történt, friss vizmintán koloriméteresen *Clark* és *Lubs*-féle szulfonphatalein. indikátoroldatokkal. Ezek az oldatok az átcsapási pont szinárnyalatára voltak lugositva. Megjegyezzük, hogy az irodalomban néha ajánlott "pH-papirok", azaz indikátoroldattal átitatott szürőpapircsikok kevéssé pufferezett természetes vizek pH-jának megállapitására teljesen alkalmatlanok. Több esetben erősen savanyu, pH 4 és 5 közé eső reakciószámokat állapitottunk meg. Ezek reális értékek és valószinüleg szabad kénsav nyomaitól származnak, mely elváltozott kőzetzónák határán fakadó vizekben $Al_2/SO_4/_3$ hidrolizise következtében képződik.

Kétségtelen, hogy e háromfajta helyszini vegyvizsgálaton kivül még érdekes lett volna a szulfáttartalom közelitő gyors meghatározása a terepen nephelometeres módszerrel, valamint a keménységé a modern verzenátos módszerrel. Sajnos erre nem volt időnk és mindössze néhány tájékoztató jellegü szabad CO_2-megmeghatározást végezhettünk törésvonalak közelében fakadó vizeken /pl. Szerencs, Füzér/ n/20 NaOH-oldattal és phenolphtalein-indikátorral.

A vizek hőfokát a terepen normál-hőmérővel mértük, amelyen 0,1 C° még közvetlenül leolvasható volt. Ugyanakkor meghatároztuk a levegő hőmérsékletét is árnyékban mérve.

C. A vizminták begyüjtésénél követett irányelvek.

Munkánk célja általános geokémiai tájékozódás volt. Ezért törekedtünk arra, hogy területünknek lehetőleg minden forrásából vizmintát vegyünk. A hegység belső területén mellőztük a közönséges kutakból való mintavételt, a sik előtéren ellenben ez volt a rendes eset. Folyók és patakok kevert vizéből aránylag kevés mintát vettünk. Ez inkább akkor lett volna fontos, ha a többi mérés helyhez kötött U-dusulást árult volna el.

A bejárt terület nagy volt /kb. 3000 km^2/ és nem tudtunk volna az egész terület vizeinek urántartalmáról helyes képet szerezni, ha gyüjtési munkánkat nem irányitottuk volna bizonyos fokig a földtani adottságok által is. Ez különösen a sikvidéki vizgyüjtésre vonatkozik. A hegység belsejében a források száma nem olyan nagy, hogy felkeresésük automatikusan biztositotta a válogatás nélküli mintavételt. A sikvidéken a helyzet más. Itt pl. a sós vizek fellépése a törésvonalak mentén kis szélességü pásztákhoz van kötve. Ha itt a bejárást nem irányittatjuk a földtani adottságok által, könnyen megeshetett volna, hogy a teljesen véletlenre bizott mintavételből éppen a jellegzetes vizminták maradtak volna ki. Csak arra kellett vigyáznunk és vigyáztunk is, hogy a tektonikus zavarózónákban és az azoktól távol eső vidékeken is egyformán gyüjtsünk. Elhagyott bányatárókból folyó vizeknél azzal a nehézséggel álltunk szemben, hogy ezek rendesen éppen ugy, mint a felszinen folyó vizek, többféle kőzetből táplálkoznak. A müködésben lévő bányák vizeinek eredetét ezzel szemben pontosan ismerjük.

A természetes forrásvizek hegységünkben rendesen egy viszonylag kisebb vizátbocsátásu fekükőzet és egy jobban vizvezető fekükőzet határrétegén jelentkeznek, legtöbbször hidrotermális kőzetelváltozási zónák határán. Ilyenkor nem szenved kétséget, hogy a vizet riolittufaviznek minősithetjük. Bizonytalanabb az eset, ha erősen vizáteresztő lösz és szarmata agyagos iszap határán egy forrás csak gyenge vizeret tár fel. Azonban aligha tévedünk, ha ebben az esetben a jellemző vizösszetételt és az U-tartalmat is inkább a fekü-iszappal hozzuk kapcsolatba. A hegység előterében az Alföldhöz csatlakozó sik vidéken gyakran törésvonalakon felszálló, a fekü pannon vagy szarmata rétegekből felfelé migráló sós viz keveredik a fedő pleisztocén rétegek édes talajvizéhez, anélkül, hogy mennyiségét százalékosan ismernénk. Ezáltal kétségkivül hiba csuszhatott bele gyakoriségi statisztikánkba, amelyben a vizek γ-ban kifejezett U-tartalmát vonatkozásba hoztuk az anyakőzet minőségével. Az igy előálló hibák azonban nem olyan sulyosak, hogy felborithatnánk összes következtetéseinket. Azt hisszük, hogy az ilyen kétes esetekben is sikerült a vizek származásának kérdését a geológiai tapasztalat alapján kielégitő helyességgel megállapitanunk. Ha nem igy volna szétforgácsolódó adathalmazt kaptunk volna, mely semmiféle matematikai elképzelés szerint nem lett volna rendezhető, ami ellenkezik tapasztalatunkkal.

A vizmintavételnél majdnem minden esetben, /kivéve a kutakat/ megmértük a viz hőfokát is. Ennek eltérése a vidék évi középhőmérsékletétől bizonyos fokig arról tájékoztat, hogy a vizsgált viz mélyről fakad-e, vagy csak rövid utat tett-e meg a hegy belsejében. Igy a hegység geológiai szerkezetével

való összehasonlitás révén bizonyos tájékoztatást kapunk arra nézve, hogy milyen kőzetből származtassuk a vizet. A hőfok természetesen nemcsak az eredés mélységéhez igazodik, hanem egyéb tényezőktől, pl. a vizbőségtől is függ.

A vizgyüjtésnél szerzett tapasztalatunk szerint a források zömének hőfoka meghaladja az évi középhőmérsékletet. Sajnos ezt az adatot a legtöbb helyre nézve pontosan nem ismerjük. Mégis állithatjuk: a vizsgált területen a természetes vizek hőfokának ingadozása az egyes évszakokban és az évi középhőfok különbsége a hegység különböző magassági öveiben és az előtérhez viszonyitva, nem olyan nagy, hogy vizsgálatainknál lényeges zavaró befolyást gyakorolhatott volna. A mi esetünkben a "background" számszerü értéke kétségtelenül elsősorban a kőzetminőségtől függ. Ezt az a priori feltevésünket az elemzési számanyag matematika-statisztikai értékelése igazolta.

A vizminták begyüjtésénél a mintákat a helyszinen HNO_3-al tartósitottuk /10 ml 25 %-os HNO_3 1 liter vizmintára/ s igy szállitottuk be hetenkint az ATOMKI laboratáriumába.

A begyüjtött vizek vizsgálati adatait a debreceni ATOMKI adattára őrzi. A dokumentációs anyag teljes közléséről le kellett mondanunk, mert beszámolónk terjedelmét tulságosan megnövelné.

D. A vizminták urántartalmának matematikai-statisztikai kiértékelése az anyakőzet szerint.

Adathalmazunkat először is arra nézve vizsgáltuk meg, hogy a meghatározott Cl^1-értékek, illetőleg a vezetőképességi adatok és a vizek U-tartalma között áll-e fenn törvényszerü kapcsolat. A két változónak koordinátarendszerben való ábrázolása azonban megmutatta, hogy: a vizminták Cl^1-tartalma és elektromos vezetőképessége, másrészről a jelenlévő urántartalom között funkcionális összefüggés nem állapitható meg.

Ezért most a rendelkezésünkre álló számhalmazunk másirányu matematikai-statisztikai feldolgozására határoztuk el magunkat. Azt kivántuk megállapitani, hogy vajjon sikerül-e a meghatározott γ U-tartalmakat olyan szakaszokba csoportositani, hogy ezeknek százalékos gyakorisága matematikailag kifejezhető eloszlásnak feleljen meg és ezek az eloszlások a viz anyakőzete szerint változnak-e meg?

Már az első átnézetes csoportositásnál kitünt, hogy célunk elérésére az eruptiv kőzetekből fakadó vizekre vonatkozó számadatokat külön kell választani az üledékekből eredő vizek adataitól. Behatóbb vizsgálat azután szükségessé tette, hogy a főcsoportokat a kőzetminőség szerint további alcsoportokra bontsuk.

Kiderült, hogy az eruptiv anyakőzetek főcsoportjában a lávakőzeteket: andezitet /tekintet nélkül a különböző válfajokra/, mindenfajta riolitot, a riolitok perlites válfajait, kálitrachitot, dacitot egyetlenegy alcsoporttá lehetett összefoglalni. Ellenben kérdésesnek látszott, hogy az ásványi és kémiai összetétel szerint az eruptiv kőzetekhez számitandó riolittufákat mint forrásvizek anyakőzetét csakugyan egyesiteni lehet-e a láva-kőzetekkel. Ezért ebben a főcsoportban 3 alcsoportra osztottuk a mérési anyagot:

I. Riolittufából eredő vizek urántartalma.

II. Összes eruptivkőzetek /riolittufa nélkül/ vizeinek urántartalma.

III. Összes eruptiv kőzetek /riolittufával/ vizeinek urántartalma.

Az üledékes anyakőzetek főcsoportjában kívánatosnak mutatkozott különbséget tenni a szarmata, pannon, holocén és pleisztocén üledékből előszivárgó vizek között. Miután a vizsgálatnak ebben a stádiumában még nem tudtuk, hogy tulajdonképpen milyen ok az, mely ezeknél az alcsoportoknál az urántartalom különbözőségét előidézi és remélni lehetett, hogy erre éppen a rendelkezésre álló számoknak különböző csoportositása vethet fényt, a következő alcsoportok számitására határoztuk el magunkat:

IV. Szarmata üledékekből fakadó vizek urántartalma.

V. Az összes üledékből fakadó vizek urántartalma.

VI. A holocén és pleisztocén üledékből fakadó vizek urántartalma.

VII. A holocén, pleisztocén és pannon üledékből fakadó vizek urántartalma.

VIII. A pannon üledékből fakadó vizek urántartalma.

/A csoportok felsorolási sorrendje az adatok grafikus ábrázolásánál magától adódó egymásutánhoz igazodik./

Efféle számitásoknál lényeges, de a megindulláskor elég nehezen eldönthető kérdés az, hogy az adatok sokaságát rendező parameter /esetünkben az urántartalom nagysága/ szerint az anyag milyen lépcsőfokozatokba osztandó szét.

Miután a meghatározott urántartalmak szórása elég nagy, t.i. az eruptiv kőzetek /a riolittufát anyaga szerint idesorolva/ az U-tartalom vizeinél: 0-40 γ/l, az üledékekből eredő vizeknél pedig 0-120 γ/l, valószinünek látszott, hogy ebben az esetben is érvényesülni fog *Fechner W.*-nek, a matematikai-statisztika tana megalapitójának az a megfigyelése, hogy természeti tárgyakra vonatkozó erősen szóródó fizikai adatokat gyakran a Gauss-féle exponenciális törvény szerint igen jól lehet összefoglalni, ha az adathalmazt nem maguk az eredeti számértékek szerint, hanem ezeknek a számoknak a logaritmusai szerint rendezzük.

Már nehezebb volt annak a kérdésnek az elvi eldöntése, hogy statisztikai számitásainkhoz a logaritmusos fokozatokat milyen nagyságura vegyük.

A mi esetünkben kétségtelennek látszott, hogy az aránylag kisszámu anyag miatt a logaritmikus fokozatok határait a tulságos elaprózódás elkerülése végett tul szükre nem vehetjük. Másrészről ezeknek a fokozatoknak a határait nem választhattuk tulon tul tágra sem. Ügyelnünk kellett ugyanis arra, hogy minden egyes szerkesztendő gyakorisági görbe számára még elegendő számu kisérleti adat álljon rendelkezésre mind a 8 csoportban ahhoz, hogy a grafikus kiegyenlitést még a kellő biztonsággal lehessen végezni. Ismeretes, hogy a matematikai statisztikusok gyakorlata szerint általában véve kivánatos, hogy minden fokozatba legalább 4 adat jusson.

Előzetes próbák alapján megfelelőnek mutatkozott 0,7-egység fokozatu logaritmusos skála alkalmazása. Igy még a legkisebb egyedszámu csoportban is minden egyes fokozatban elegendő számadat maradt. Minden egyes logaritmikus fokozatunkban a csoportot felfelé határoló számjegy még a csoporthoz tartozik, a szakasz kezdeti számjegye viszont még az előző csoporthoz. Pl. a 0,01-0,04 γ/l U-nak megfelelő csoportban a 0,01 értéket meg nem haladó számadatokat még az előző csoporthoz számitottuk.

A következő 1. sz. táblázat ezt az alaposztást és a hozzátartozó egyedszámot, valamint a százalékos gyakoriságot tünteti fel az eruptiv kőzetekből fakadó vizek urántartalmára nézve. A táblázatban nemcsak a logaritmikus értékeket, hanem az azoknak megfelelő γ/l, vagyis a közvetlen meghatározás eredményét is megadtuk. Természetesen a választott konstans logaritmikus intervallumoknak fokozatosan növekvő aritmetikus intervallumok felelnek meg az eredeti számértékeknél. Feltüntetésükre azért volt szükség, mert az alapadathalmaz számértékeit ezeknek megfelelően osztottuk el a logaritmikus intervallumokba. Minthogy a továbbiakban minden egyes logaritmikus szakaszt annak középértékével helyettesitjük, a táblázatba még további két oszlopot vettünk fel, amelyeknek egyike a középértéket, a másik az ennek megfelelő numerust tünteti fel. A log γ/l középértéket a továbbiakban x-el jelöljük.

Ugyanilyen szempontok szerint állitottuk össze a 2. sz. táblázatot is, amely az üledékes kőzetekből fakadó vizek urántartalmára vonatkozik.

Mind a két táblázatban az egyes /I-VIII./ alcsoportra nézve fel van tüntetve az egyes logaritmikus fokozatokhoz tartozó minták /esetek/ száma és mellette a százalékok, amelyeket ezek az egyes esetek az egész sokaságra vonatkoztatva képviselnek. Ezek a számok "gyakoriság-görbéink" nyers /"talált"/ számadatai. Mellettük találjuk minden egyes csoportban $\Sigma\%$ jelöléssel a gyakoriság-%-ok fokozatos összeadása révén nyert összegszázalékokat, amelyek az un. "összeggörbéink", vagyis a gyakoriság-görbék integrálgörbéinek "talált" számadatai. Minthogy matematikailag az ezekkel az összeggörbékkel való dolgozás kényelmesebb, mint az egyes gyakorisági görbéknek közvetlen matematikai analizise, következő lépésként az 1. sz. ábra rajzát szerkesztettük. Ezen az ábrán az abszcisszán a 0,7-es logaritmikus alaposztás /x = log γ/l/ és mellette az ennek megfelelő γ/l-urán-értékek is fel vannak tüntetve. Az ordinátára az 1. és 2. sz. táblázat $\Sigma\%$-értékei vannak felmérve, amelyeket a következőkben y-al jelölünk.

Az 1. sz. ábrán feltüntettük az 1. és 2. sz. számtáblázat összes "talált", azaz közvetlenül meghatározott számértékeit. A további matematikai analizis előtt indokoltnak láttuk grafikus kiegyenlitést alkalmazni ezeken az adatokon. A kiegyenlitő görbéket a kisérleti pontokat összekötő egyeneseknek a felezőpontjain át fektettük, amikor teljesen folytonos S-alaku integrálgörbéket kaptunk. Az ábrán látható, hogy az ilyen módon végzett kiegyenlitésnél egyes "talált" értékek, mint pl. a IV. csoportban /szarmata üledék vizei/ a 19,3 % érték, vagy a VIII. csoportban /pannon üledék vizei/ a 9,3 % érték, az I. csoportban pedig a 68,4 % érték a kiegyenlitő görbéből kissé jobban kiesnek, mint a többi szám. Azonban itt is csak néhány százalékos eltérésről van szó, mint ez a később közlendő táblázatokból kitünik. Ezek a kis eltérések valószinüleg nem annyira a kémiai meghatározások elkerülhetetlen hibáitól, mint inkább onnan származnak, hogy az illető logaritmikus szakaszba nagyon kevés szám jutott. Ha a statisztikai ingadozás olyan esetben mutatkozik, amikor az illető szakaszban elég nagyszámu érték szerepel, mint pl. az I. csoport 68,4 % értékénél, akkor valami más zavaró körülmény hathatott, amilyent a bevezető részben már emlitettünk, pl. a viz eredetére nézve táplált kétség, egyes területek véletlen sürübb megmintázása, stb. Mindenesetre jellemző, hogy azoknak a csoportoknak az összeggörbéit, amelyekben 100-nál több adatot foglalhattunk össze, sokkal biztosabban és könnyebben lehetett grafikusan kiegyenliteni.

Az ennél a tárgyilagos grafikus kiegyenlitésnél kapott számok általá-

1. sz. Táblázat.

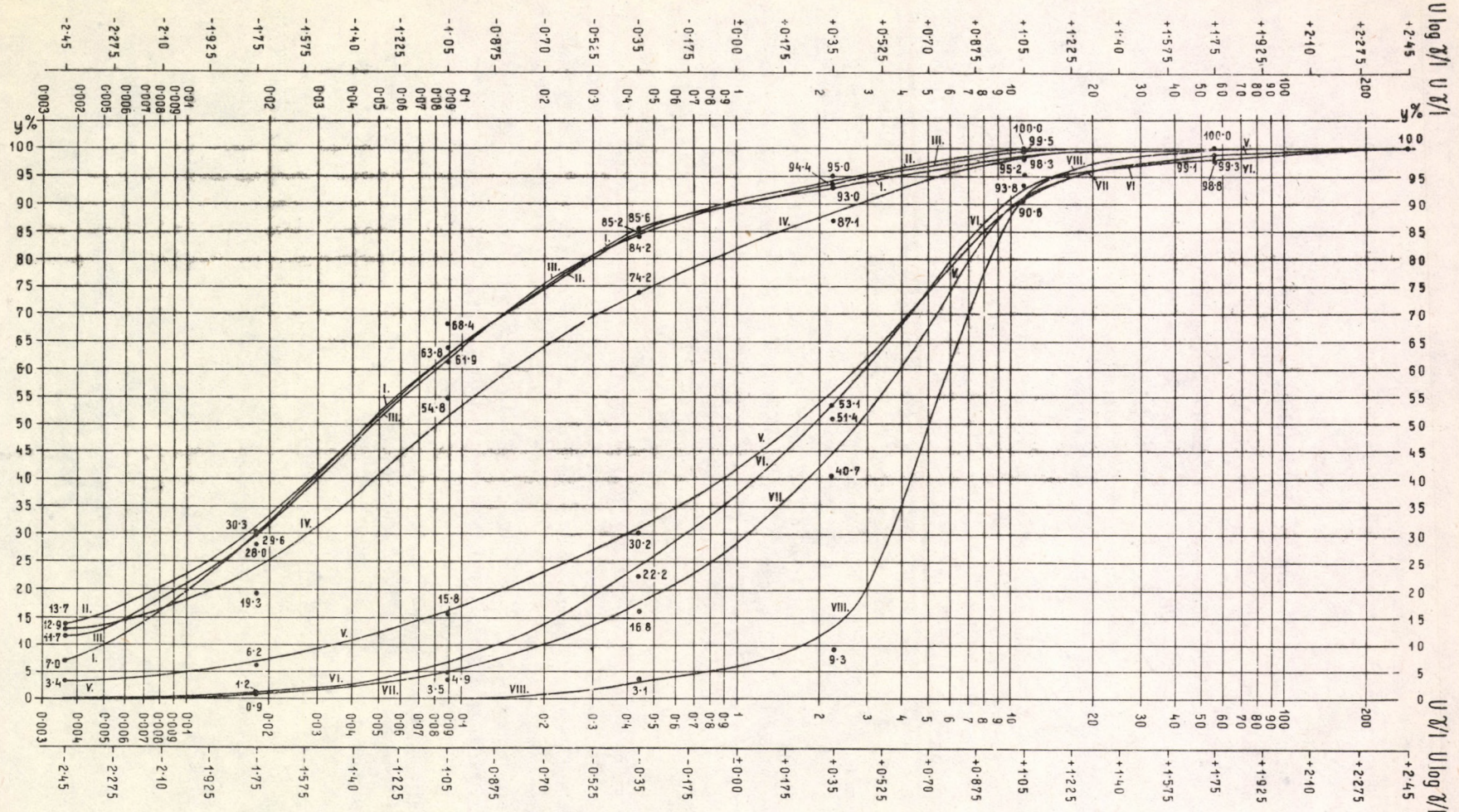
Eruptiv eredetü kőzetekből fakadó vizek urántartalmának gyakoriság eloszlása.
(Az alaposztás egysége: 0,7 log γ/l)

Intervallum határai	Ábrázolt közép-érték	Intervallum logaritmusos határai	Ábráz. közép-érték	I. Riolittufák /egyedül/ vizei			II. Összes eruptivum /riolittufa nélkül/ vizei			III. Összes eruptivum /riolittufával/ vizei		
Urán : γ/liter		Urán : log γ/liter		Esetek száma	%	Σ %	Esetek száma	%	Σ %	Esetek száma	%	Σ %
<0,01 - 0,01	0,0035	</-2,8/ - /-2,1/	-2,45	4	7,0	7,0	19	13,7	13,7	23	11,7	11,7
0,01 - 0,04	0,0178	/-2,1/ - /-1,4/	-1,75	12	21,0	28,0	23	16,6	30,3	35	17,9	29,6
0,04 - 0,2	0,0891	/-1,4/ - /-0,7/	-1,05	23	40,4	68,4	44	31,6	61,9	67	34,2	63,8
0,2 - 1,0	0,4467	/-0,7/ - /±0,0/	-0,35	9	15,8	84,2	33	23,7	85,6	42	21,4	85,2
1,0 - 5,0	2,239	/±0,0/ - /+0,7/	+0,35	5	8,8	93,0	13	9,4	95,0	18	9,2	94,4
5,0 - 25,1	11,22	/+0,7/ - /+1,4/	+1,05	3	5,3	98,3	7	5,0	100,0	10	5,1	99,5
25,1 - 126	56,23	/+1,4/ - /+2,1/	+1,75	1	1,7	100,0	-	-	-	1	0,5	100,0
126 - 630	281,8	/+2,1/ - /+2,8/	+2,45	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Összesen:				57	100,0		139	100,0		196	100,0	

2. sz. Táblázat.

Üledékes kőzetekből fakadó vizek urántartalmának gyakoriság eloszlása.
(Az alaposztás egysége: 0,7 log γ/l)

Intervallum határai	Ábrázolt középérték	Intervallum logaritmusos határai	Ábráz. középérték	IV. Szarmata üledék vizei			V. Összes üledék vizei			VI. Holocén + pleisztocén üledék vizei			VII. Holocén + pleisztocén + pannon üledék vizei			VIII. Pannon üledék vizei		
Urán : γ/liter		Urán: log γ / liter		Esetek száma	%	Σ %	Esetek száma	%	Σ %	Esetek száma	%	Σ %	Esetek száma	%	Σ %	Esetek száma	%	Σ %
<0,01 - 0,01	0,0035	</-2,8/ - /-2,1/	-2,45	4	12,9	12,9	5	3,4	3,4	-	-	-	-	-	-	-	-	-
0,01 - 0,04	0,0178	/-2,1/ - /-1,4/	-1,75	2	6,4	19,3	4	2,8	6,2	1	1,2	1,2	1	0,9	0,9	-	-	-
0,04 - 0,2	0,0891	/-1,4/ - /-0,7/	-1,05	11	35,5	54,8	14	9,6	15,8	3	3,7	4,9	3	2,6	3,5	-	-	-
0,2 - 1,0	0,4467	/-0,7/ - /±0,0/	-0,35	6	19,4	74,2	21	14,4	30,2	14	17,3	22,2	15	13,3	16,8	1	3,1	3,1
1,0 - 5,0	2,239	/±0,0/ - /+0,7/	+0,35	4	12,9	87,1	31	21,2	51,4	25	30,9	53,1	27	23,9	40,7	2	6,2	9,3
5,0 - 25,1	11,22	/+0,7/ - /+1,4/	+1,05	4	12,9	100,0	64	43,08	95,02	34	42,0	95,1	60	53,1	93,8	26	81,3	90,6
25,1 - 126	56,23	/+1,4/ - /+2,1/	+1,75	-	-	-	6	4,1	99,3	3	3,7	98,8	6	5,3	99,1	3	9,4	100,0
126 - 630	281,8	/+2,1/ - /+2,8/	+2,45	-	-	-	1	0,7	100,0	1	1,2	100,0	1	0,9	100,0	-	-	-
Összesen:				31	100,0		146	100,0		81	100,0		113	100,0		32	100,0	



1. ábra. Az eruptiv és üledékes kőzetekből fakadó vizek urántartalmának százalékos összeggörbéi. /Az alaposztás egysége 0,7 log γ/l./.

A fekete pontok a közvetlen elemzéssel kapott /"talált"/ összegszázalékokat jelzik, melyek a grafikus kiegyenlítés alapjául szolgáltak.

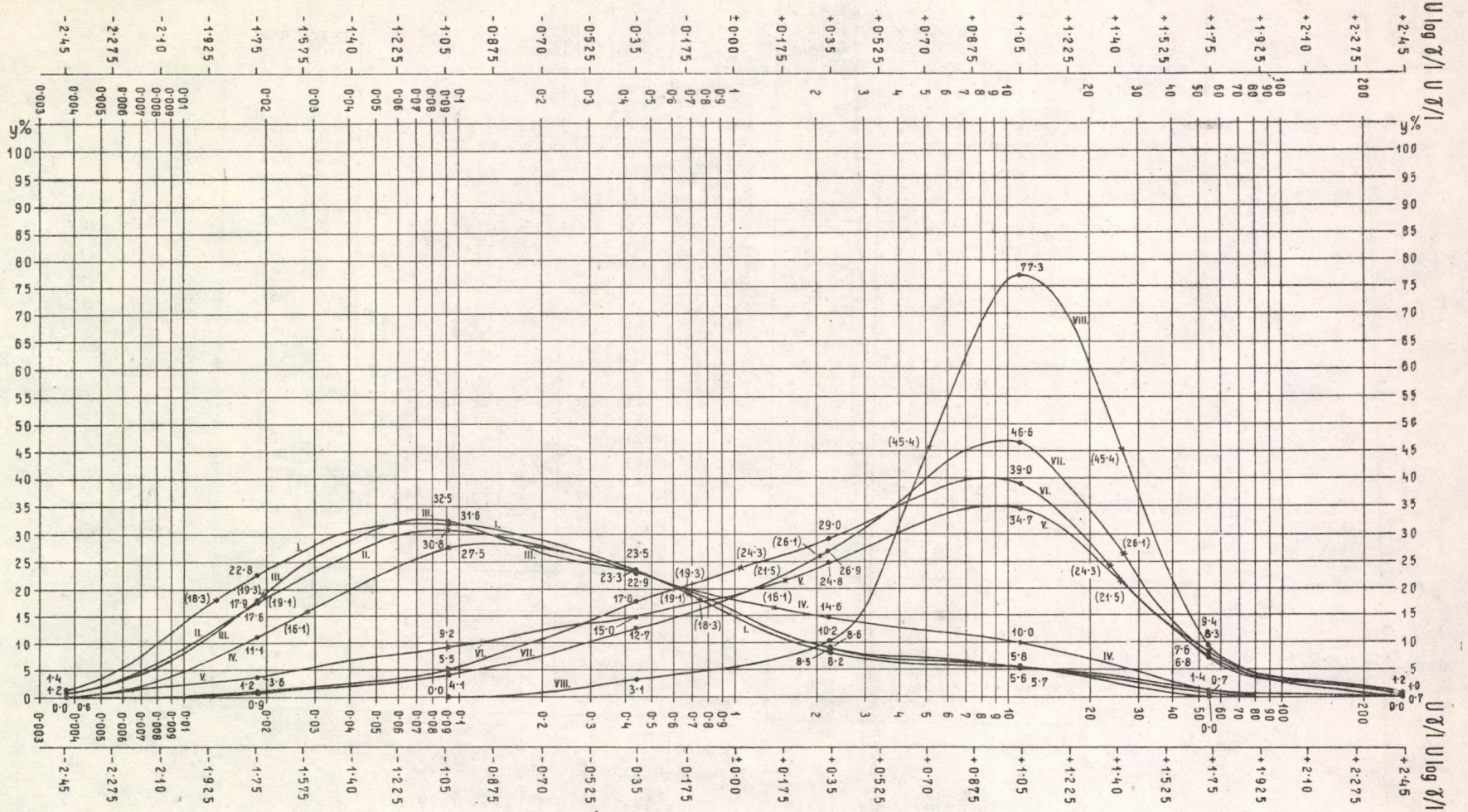
ban véve jobban egyeznek a teoretikus számokkal, mint a mért nyers értékek.

Az 1. sz. ábra összegszázalékgörbéinek alakja eleve azt gyanittatta, hogy azok Gauss-féle valószinüségi eloszlásoknak megfelelő integrálgörbék. Közvetlenül látható az is, hogy, - kivéve az I., II. és III. csoportnak majdnem összeeső összegszázalékgörbéit, - a görbéket jellemző paraméterek meglehetősen különbözők. Eltérő az egyes csoportokban a mérési eredmények viszonylagos szórása, különböznek az un. "centrális" értékek, /50 %-os ordinátához tartozó abszcissza/, és különböző a centrális értéken át szerkeszthető érintő meredeksége is, mely a mérési értékek szórásától függ. A görbék paramétereivel alább még foglalkozunk, azonban már itt emlitjük, hogy minden görbénk bizonyos fokig aszimmetrikus, azaz a középen elhelyezkedő centrális értéktől jobbra-balra eső görbeszakaszok egymásnak nem tükörképei.

Ez a tény a 2. sz. ábra grafikonján még szembeötlőbb. Ezen az ábrán az egymással szomszédos logaritmikus fokozatokra nézve megállapitott gyakoriságszázalékok között fennálló különbségeket tüntettük fel fokozatról fokozatra. Az ábra elvileg abban tér el az 1. sz. grafikontól, hogy ezuttal nem a közvetlenül mért /"nyers"/ adatokból képezhető gyakoriság-százalékdifferenciákat ábrázoltuk, amelyek az 1. és 2. sz. táblázat minden csoportjának második oszlopában szerepelnek, hanem ezek helyett az 1. sz. ábra grafikusan kiegyenlitett összegszázalékgörbéin leolvasható különbségeket használtuk. Ezen az ábrán ugyanis minden egyes logaritmikus abszcisszafokozat középértékének /"ábrázolt középérték"/ a kiegyenlitett összegszázalékgörbéken egy-egy kiegyenlitett értékü összegszázalék-ordináta felel meg. Ha e differenciákat fokozatról-fokozatra ezekből képezzük, akkor kapjuk meg a 2. sz. ábrán feltüntetett "kiegyenlitett gyakoriság-százalékokat". Ha e müveletnél csupán az eredeti logaritmikus alaposztás középértékeire /log x = = log γ/1 urán = -2,45, -1,75, -1,05, -0,35, +0,35, +1,75, +2,45/ szoritkoztunk volna, néhány esetben nehézségbe ütközött volna a gyakoriságszázalékgörbe megszerkesztése. Pl. a VIII. csoportban csak 4 pontunk lett volna erre a célra, a IV. csoport igen lapos maximumu görbéjénél pedig kétséges maradt volna, hogy melyik abszcisszaértékhez tartozik a görbe maximuma. Ezért az eredeti alaposztásnak megfelelő gyakoriságszázalékokat interpolált értékekkel kellett kiegészitenünk. Ez ugy volt lehetséges, hogy az összeggörbékre nézve az 1. sz. ábrán feltüntetett grafikus kiegyenlitést véglegesen helyes alapnak fogadtuk el, azután ennek az ábrának az abszcisszáján az eredeti 0,7 log-egységnyi intervallumokat megnegyedelve uj osztásokhoz jutottunk, amelyek közül az egymástól 0,7 log-egységnyi távolságban fekvő összetartozó párokból képeztük az uj interpolált gyakoriságszázalék-különbségeket.

Az eljárást a 3. és 4. sz. táblázatok értékei mutatják be.

A 3. sz. táblázatban az első két oszlopban meg vannak adva az eredeti alaposztás fokozatainak /aláhuzással kiemelve/ és az interpolált uj fokozatoknak megfelelő x = γ/1, illetőleg log x = log γ/1 urán ábrázolandó szakaszközépértékek. A következő oszlopokban pedig minden egyes vizcsoportra nézve megtaláljuk az interpolált uj logaritmusos fokozatoknak megfelelő összegszázalékkülönbségeket /$\Delta\Sigma$%/, valamint az ezekből fokozatos összegezés utján kapott kiegyenlitett összegszázalékokat /Σ%/, amelyek tehát végeredményben az 1. sz. ábra görbéiről lemért értékek.



2. ábra. Az eruptiv és üledékes kőzetekből fakadó vizek urántartalmának gyakoriságszázalék-görbéi. /Az alaposztás egysége 0,7 log γ/l./

A fekete pontok az alaposztásnak megfelelő fokozatok kiegyenlitett gyakoriságszázalékait jelzik, melyeket az 1. ábra grafikusan kiegyenlitett összegszázalékgörbéiből állapitottunk meg. A keresztjelzés és zárójel közé foglalt százalékszámok a gyakoriság-százalékgörbék inflexiós pontjaira vonatkoznak.

3. sz. Táblázat.

Az eredeti alaposztáshoz tartozó és az interpolált összegszázalékok.
/Az 1 ábra kiegyenlitett összeggörbéiről lemért értékek./
/Az alaposztás egysége 0,7 log γ/l U./

Ábrázolt középérték /szakaszközép/		I. Riolitufák /egyedül/ vizei		II. Összes eruptivum /riolittufa nélkül/ vizei		III. Összes eruptivum /riolittufával/ vizei		IV. Szarmata üledék vizei		V. Összes üledék vizei		VI. Holocén + pleisztocén üledék vizei		VII. Holocén + pleisztocén + pannon üledék vizei		VIII. Pannon üledék vizei	
γ/lit.	log γ/l.	Δ Σ%	Σ%	Δ Σ%	Σ%	Δ Σ%	Σ%	Δ Σ%	Σ%	Δ Σ%	Σ%	Δ Σ%	Σ%	Δ Σ%	Σ%	Δ Σ%	Σ%
0,0035	-2,45	-	7,0	-	13,7	-	11,7	-	12,9	-	3,4	-	0,0	-	0,0	-	0,0
0,0053	-2,275	3,6	10,6	3,6	16,3	1,8	13,5	0,8	13,7	0,1	3,5	0,1	0,1	0,0	0,0	0,0	0,0
0,0079	-2,10	5,3	15,9	4,5	20,8	5,1	18,6	2,4	16,1	0,5	4,0	0,2	0,3	0,0	0,0	0,0	0,0
0,0119	-1,925	6,8	22,7	4,1	24,9	4,7	23,3	3,4	19,5	1,8	5,8	0,5	0,8	0,4	0,4	0,0	0,0
0,0178	-1,75	7,1	29,8	6,4	31,3	6,3	29,6	4,5	24,0	1,2	7,0	0,4	1,2	0,5	0,9	0,0	0,0
0,0266	-1,575	8,0	37,8	7,7	39,0	9,0	38,6	5,7	29,7	1,8	8,8	0,7	1,9	0,6	1,5	0,0	0,0
0,0398	-1,40	8,7	46,5	8,1	47,1	8,9	47,5	6,8	36,5	2,2	11,8	0,9	2,8	0,7	2,2	0,0	0,0
0,0596	-1,225	7,8	54,3	7,9	55,0	8,0	55,5	7,5	44,0	2,5	13,5	1,7	4,5	1,2	3,4	0,0	0,0
0,0891	-1,05	7,1	61,4	7,1	62,1	6,6	62,1	7,5	51,5	2,7	16,2	2,2	6,7	1,6	5,0	0,0	0,0
0,1334	-0,875	7,2	68,6	6,4	68,5	6,1	68,2	6,5	58,0	3,0	19,2	3,3	10,0	2,3	7,3	0,2	0,2
0,2000	-0,70	6,7	75,3	6,3	74,8	5,9	74,1	6,0	64,0	4,1	23,3	3,5	13,5	2,8	10,1	0,6	0,8
0,2985	-0,525	5,3	80,60	5,7	80,5	5,8	79,9	5,4	69,4	3,9	27,2	5,1	18,6	3,5	13,6	1,0	1,8
0,4467	-0,35	4,1	84,7	5,1	85,6	5,1	85,0	4,6	74,0	4,0	31,2	5,9	24,5	4,1	17,7	1,3	3,1
0,6684	-0,175	3,3	88,0	2,6	88,2	3,2	88,2	4,3	78,3	5,0	36,2	6,0	30,5	5,0	22,7	1,5	4,6
1,0000	±0,00	1,8	89,8	2,4	90,6	1,8	90,0	3,7	82,0	5,8	42,0	6,5	37,0	5,6	28,3	1,7	6,3
1,496	+0,175	1,7	91,5	1,9	92,5	1,7	91,7	3,4	85,4	6,5	48,5	8,0	45,0	7,9	36,2	2,7	9,0
2,239	+0,35	1,4	92,9	1,7	94,2	1,8	93,5	3,2	88,6	7,5	56,0	8,5	53,5	8,4	44,6	4,3	13,3
3,350	+0,525	1,7	94,6	1,7	95,9	1,7	95,2	3,0	91,6	8,5	64,5	10,0	63,5	10,7	55,3	12,4	25,7
5,012	+0,70	1,3	95,9	1,6	97,5	1,4	96,6	2,6	94,2	9,6	74,1	10,7	74,2	12,5	67,8	24,3	50,0
7,499	+0,875	1,5	97,4	1,5	99,0	1,4	98,0	2,4	96,6	9,0	83,1	10,6	84,8	13,9	81,7	23,6	73,6
11,22	+1,05	1,2	98,6	1,0	100,0	1,3	99,3	2,0	98,6	7,6	90,7	7,7	92,5	9,5	91,2	17,0	90,6
16,79	+1,225	0,5	99,1	-	-	0,5	99,8	1,0	99,6	4,3	95,0	3,6	96,1	3,8	95,0	5,4	96,0
25,12	+1,40	0,4	99,5	-	-	0,1	99,9	0,4	100,0	1,6	96,6	1,1	97,2	1,6	96,6	2,0	98,0
37,58	+1,575	0,3	99,8	-	-	0,1	100,0	-	-	1,1	97,7	1,8	99,0	1,1	97,7	1,1	99,1
56,23	+1,75	0,2	100,0	-	-	-	-	-	-	1,3	99,0	0,3	99,3	1,1	98,8	0,9	100,0
84,14	+1,925	-	-	-	-	-	-	-	-	0,3	99,3	0,2	99,5	0,5	99,3	-	-
125,9	+2,10	-	-	-	-	-	-	-	-	0,3	99,6	0,5	100,0	0,2	99,5	-	-
188,4	+2,275	-	-	-	-	-	-	-	-	0,3	99,9	-	-	0,3	99,8	-	-
281,8	+2,45	-	-	-	-	-	-	-	-	0,1	100,0	-	-	0,2	100,0	-	-

A 4. sz. táblázat tartalmazza a 3. sz. táblázat alapján a 0,7 log-egységnyi intervallumokra megállapitott eredeti és interpolált gyakoriságszázalékokat /y%/.

Például a 3. sz. táblázat szerint a IV. csoportban /szarmata vizek/:

log x = -1,225 fokozatnak megfelel: 44,0 összegszázalék,
log x = -1,925 " " : 19,5 "

log x-ben 0,7 különbségnek megfelel: 24,5 összegszázalékkülönbség = y gyakoriságszázalék. Ez a szám van a 4. sz. táblázatban a log x = -1,225 fokozati középértéknél felvéve.

Ennél az interpolációs módnál tehát állandó 0,7 log-egységes intervallumokat mintegy végigcsusztattuk az összeggörbéken és igy kaptuk meg az uj interpolált osztások összetartozó párjaiból az összegszázalékok különbségeit a 4. sz. táblázat részére.

Természetesen ezzel az interpolációval a csak kevés tagból álló sorozatok /pl. a VIII. csoport/ gyakoriságszázalék-görbéinek szerkesztési pontosságát nem fokoztuk. Az megmaradt azon a fokon, melyet számára az 1. sz. ábra összeggörbéjének grafikus kiegyenlitése megszabott. Az interpoláció révén azonban a 2. sz. ábra számára annyi uj pontra tettünk szert, hogy összekötésükkel minden nehézség nélkül lehetett az 1. sz. ábra összegszázalékgörbéi menetének pontosan megfelelő gyakoriságszázalékgörbéket szerkeszteni.

A 4. sz. táblázatban éppen ugy, mint a 3. számuban, az eredeti alaposztásoknak megfelelő gyakoriságszázalékértékeket aláhuzással különböztettük meg az interpolált értékektől.

A 2. sz. ábrán az áttekinthetőség kedvéért csak az alaposztásnak megfelelő gyakoriságszázalékokat jelöltük meg pontokkal és százalékszámokkal. Az interpolált értékek számára csak a logaritmikus skálabeosztást tüntettük fel, amelyekhez tartozó y%-okat a 4. sz. táblázatból kell kikeresni. A 2. sz. ábrán azonkivül jeleztük a gyakoriságszázalékgörbék inflexiós pontjait és keresztjellel és zárójel közé zárt százalékszámmal.

Az 1. és 2. sz. ábra grafikonjainak alakja elárulja, hogy feltevésünk, mely szerint az egyes csoportokon belül a megfigyelési anyagot közel Gauss-eloszlásokba lehet elosztani, helyes.

A 2. sz. ábra görbéi: a "gyakoriságí" görbék tipusos harangalaku görbék, melyeket matematikailag az ismert Gauss-féle normális sürüség függvénnyel jól lehet jellemezni. E görbék integrálgörbéi az 1. sz. ábra tipusos S-alaku "összeggörbéi".

Egyikünk */Scherf/* és *Meszéna György* az ATOMKI tud. kutatója együttesen, részletesen megvizsgálta azt a kérdést, hogy kisérleti eloszlásaink mennyire pontosan közelitik meg az ideális Gauss-eloszlást. Ez a vizsgálat kiterjedt arra is, hogy lehet-e *Bruns R.* eljárása /[3, 4.], részletesen tárgyalva *Mises R.* kézikönyvében [12] 250-265. old., v.ö. *Lipps G.F.* munkáját is [11], 89-101. old./ szerint, illetőleg annak *Grassberger H.* osztrák mérnök által megállapitott [6] kényelmes közelitő változata szerint a kisebb eltéréseket kiküszöbölni? Vizsgálatuk eredményét *Scherf* és *Meszéna* számtáblázatokban foglalták össze; azonkivül alkalmazták a *Hazen Allen* amerikai mérnök által javasolt ordinátatranszfor-

4. sz. Táblázat.

Az eredeti alaposztás szerint képzett és annak fokozatai közé interpolált gyakoriságszázalékok /y%/.
/Az alaposztás egysége 0,7 log γ/l U./
/A római csoportszámok jelentése u.az mint a 3.sz.táblázatban./

Ábrázolt középérték /szakaszközép/		I.	II.	III.	IV.	V.	VI.	VII.	VIII.
γ/lit	log γ/lit	Gyakoriságszázalékok							
0,0035	-2,45	1.4	1,2	1,2	0,0	0,6	0,0	0,0	0,0
0,0053	-2,275	5,0	3,0	3,0	1,3	1,2	0,1	0,0	0,0
0,0079	-2,10	10,7	8,5	6,5	3,7	1,8	0,3	0,0	0,0
0,0119	-1,925	12,0	12,0	11,2	6,9	2,7	0,8	0,4	0,0
0,0178	-1,75	22,8	17,6	17,9	11,1	3,6	1,2	0,9	0,0
0,0266	-1,575	27,2	22,7	25,1	16,0	5,3	1,8	1,5	0,0
0,0398	-1,40	30,6	26,3	28,9	20,4	7,0	2,5	2,2	0,0
0,0596	-1,225	31,6	30,1	32,2	24,5	7.7	3,7	3,0	0,0
0,0891	-1,05	31,6	30,8	32,5	27,5	9,2	5,5	4,1	0,0
0,1334	-0,875	30,8	29,5	29,6	28,3	10,4	8,1	5,8	0,2
0,2000	-0,70	28,8	27,7	26,6	27,5	12,3	10,7	7,9	0,8
0,2985	-0,525	26,3	25,5	24,4	25,4	13,7	14,1	10,2	1,8
0,4467	-0,35	23,3	23,5	22,9	22,5	15,0	17,8	12,7	3,1
0,6684	-0,175	19,4	19,7	20,0	20,3	17,0	20,5	15,4	4,4
1,0000	±0,00	14,5	15,8	15,9	18,0	18,7	23,5	18,2	5,5
1,496	+0,175	10,9	12,0	11,8	16,0	21,3	26,4	22,6	7,2
2,239	+0,35	8,2	8,6	8,5	14,6	24,8	29,0	26,9	10,2
3,350	+0,525	6,6	7,7	7,0	13,3	28,3	33,0	32,6	21,1
5,012	+0,70	6,1	6,9	6,6	12,2	32,1	37,2	39,5	43,7
7,499	+0,875	5,9	6,5	6,3	11,2	34,6	39,8	45,5	64,6
11,22	+1,05	5,7	5,8	5,8	10,0	34,7	39,0	46,6	77,3
16,79	+1,225	4,5	4,1	4,6	8,0	30,5	32,6	39,7	70,3
25,12	+1,40	3,6	2,5	3,3	5,8	22,5	23,0	28,8	48,0
37,58	+1,575	2,4	1,0	2,0	3,4	14,6	14,2	16,0	25,5
56,23	+1,75	1,4	0,0	0,7	1,4	8,3	6,8	7,6	9,4
84,14	+1,925	0,9	-	0,2	0,0	4,3	3,4	4,3	4,0
125,9	+2,10	0,5	-	0,1	-	3,0	2,8	2,9	2,0
188,4	+2,275	0,2	-	-	-	2,2	1,0	2,1	0,9
281,8	+2,45	0,0	-	-	-	1,0	0,7	1,2	0,0

mációt /[7], részletesen ismertetve *Rényi Alfréd* könyvében [13], 390. old. után következő grafikon és ennek magyarázószövege, valamint *Weber E.* [20], 112-113. old. és 48. sz. ábra/, melynél a valóságos Gauss-eloszlásoknak egyenes vonal felel meg és az attól való eltérés igen élesen állapitható meg. Nem látjuk célszerünek, hogy jelen bevezető tanulmányunkban az emlitett matematikai kiértékelés részeredményét összefüggéséből kiragadva előre közöljük. Ezért ezen a helyen megelégszünk a kisérleti eredmények félkvantitativ fenomenológiai jellemzésével.

A következőket állapithatjuk meg:

1./ A 2. sz. ábra tanusága szerint az elemzési anyagnak matematikai-statisztikai vizsgálat céljára földtani szemlélet alapján 8 csoportba történt szétválogatása alkalmasnak bizonyult bizonyos jellemző különbségeknek a megállapitására vizek urántartalmában. /Bár később látni fogjuk, hogy az anyakőzet földtani adottságai más tényezőkön keresztül érvényesitik befolyásukat, mint azt a vizsgálatok megindításakor feltételeztük./

2./ A kisérleti eloszlások minden csoportban jól megközelitik a Gauss-féle eloszlást, ha csak az irányadó, vagyis a 10 és 90 % közé eső görberészeket tekintjük. Az eruptiv kőzetekből fakadó vizeknél mindhárom csoportnál /I., II. és III./ kölönösen jó az egyezés. Az üledékes kőzetekből fakadó vizeknél a pannon üledékből eredő vizeknél /VIII. csoport/ hasonlóképpen kiválóan jó az egyezés az irányadó intervallumban. Jól simul a Hazen-egyeneshez a IV. csoport /szarmata üledék vizei/ transzformált összeggörbéje is. Nagyobb és valószinüleg szignifikánsnak tekintendő eltérés mutatkozik a Gauss-eloszlástól az V. csoportnál /összes üledék vizei/ és VI. csoportban /holocén + pleisztocén üledékek vizei/.

3./ Az eruptiv kőzetekből származó vizek /I-III. csoport/ urántartalma, akár különvesszük a riolittufa vizeit /I. csoport/, akár összesitjük /III. csoport/ a különböző lávákból fakadó vizek /II. csoport/ vizsgálati eredményével, közel azonos jellegü, mérsékelt szórásu /szórási tényező σ = 7 - 9/ és csaknem azonos maximális értékü közel szimmetrikus haranggörbék szerint oszlik el. A maximális y = 30-32 % kétségtelenül valahol a log x = -1,05 érték körül, azaz x = 0,09 γ/l U-tartalom körül helyezkedik el.

Az üledékes kőzetekből fakadó vizeknél ellenben lényeges tipuskülönbségek tapasztalhatók. Vannak csoportok, melyek összeg-, illetőleg gyakorisággörbéjükben alig térnek el a Gauss-eloszlástól. Ilyen pl., mint már emlitettük, a VIII. csoport /pannon üledék vizei/ és a IV. csoport /szarmata üledék vizei/. Azonban e két csoport között is mutatkozik alapvető különbség. A VIII. csoportban aránylag kis szórás /σ = 1,9/ mellett jól kifejezett éles maximum mutatkozik az y = 77,3 összegszázaléknál, melynek helye log y = +1,05, azaz x = 11,2 γ/l viz urántartalom körül van. Ez több mint 120-szorosa az eruptiv kőzetekből fakadó forrásvizek maximális urántartalmának. Tudatában vagyunk annak, hogy ezeknek a relativ számoknak a nagysága lényegesen függ a választott logaritmus-intervallumtól is, mely nálunk 0,7 log-egység. Ha 0,5 log-egységet választottunk volna, a különbségek ugyan jobban nivellálódva, de azért megmaradtak volna.

Ezzel ellentétben a szarmata üledékekből fakadó vizeknél /IV. csoport/ a szórás nagy /σ = 12,9/, a gyakorisági haranggörbe viszont egészen lapos, y = 28,3 % maximummal a log y = -0,875 helyen, azaz x = 0,13 γ/l urántartalommal, ami közeljár, - bár érezhetően több - az eruptiv kőzetek vizeinek urántartalmához.

4. Lényegesen eltér az előzőktől az V., VI. és VII. csoport gyakori-

sági görbéinek a képe. Ezek a görbék észrevehető aszimmetriával a nagyobb urántartalmak oldalán meredekebben emelkednek a maximális értékük felé, amint az a 2. sz. ábrán jól látható. Gauss-integrálpapiron való ábrázolásnál ez a tény a görbe erősebb iveltségében jut kifejezésre. A centrális érték körül legnagyobb az eltérés a Hazen-egyenestől. Mindazonáltal ezek az eloszlások még Gauss-eloszlásoknak tekintendők. Miután a kisérletileg megállapitott centrális érték mindhárom csoportnál kisebb az 50 %-osnál /negativ előjelü eltérés/ a görbék középrésze a Hazen-egyenes alá esik. Az aszimmetria jelenségével a következő fejezetben foglalkozunk behatóbban, de már itt megemlitjük, hogy tulajdonképpen mind a három csoportban a VI. csoport /holocén + pleisztocén üledékek vizei/ görbéjének aszimmetrikus jellege érvényesül, mert darabszám szerint ebből gyüjtöttük a legtöbb mintát. A VII. csoportban / holocén + pleisztocén + pannon vizek/ a VIII. csoport szabályos Gauss-görbéje enyhiti kissé az aszimmetriát. A VI. csoportban /holocén + pleisztocén vizek/ a maximális érték y = 39,8 %-al a log x = = +0,875 abszcisszához tartozik, ami x = 7,5 γ/l U-tartalomnak felel meg. A VII. csoport párositásában ez a maximális érték a pannon vizek U-tartalmának hatására y = 46,6 % értékkel a log x = +1,05 abszcissza-értékre tolódik, ami x = 11,2 γ/lU tartalomnak felel meg, éppen ugy, mint a VIII. sz. csoportban, ahol azonban a szórás sokkal kisebb. Az V. csoport párositásában /összes üledék vizei/ természetesen a szarmata vizek teljesen eltérő, a kisebb urántartalmak felé eső maximális és centrális értékszáma és a nagy szórása az eredő görbe szórását és aszimmetriáját a VI. és VII. csoportokkal összehasonlitva növeli.

E. A matematikai-statisztikai vizsgálat eredményeinek értelmezése.

Méréseink helyes értelmezésére a következő két alapkérdésre kell választ keresnünk:

1./ Miért lép fel eloszlásainkban a logaritmus?

2./ Mi a jelentősége egyes mérési csoportjaink logaritmikus eloszlásában határozottan megállapitható aszimmetriának?

Ha erre a két alapkérdésre meg tudunk felelni, reményünk lehet arra, hogy a természetes vizekben esetenként tapasztalható kismérvü uránfeldusulások genetikai problémáját uj világitásba tudjuk helyezni és az "uránium-background" szabatosabb számszerü definiciójára és jelentőségének becslésére is találunk módot.

Ami az első kérdést illeti, el kell döntenünk, hogy vajjon:

a./ a logaritmus fellépése Gauss-eloszlásainkban egy egyelőre még ismeretlen, illetőleg figyelembe nem vett természeti törvényszerüség befolyásának következménye-e, vagy pedig:

b./ jól alkalmazhatósága esetleg nem csupán azzal függ-e össze, hogy a logaritmussal egymástól nagyságrendileg lényegesen különböző mérőszámokat matematikailag könnyebben kezelhető nagyobb egységekké tudunk összefogni akkor is, ha azokat semmiféle logaritmusos természeti törvény nem kapcsolja össze.

Ha az utóbbi lehetőség lenne helyes, ez azt jelentené, hogy Gauss-görbéink, illetőleg az azokat leiró képletek csupán jól alkalmazható "interpolációs" képletek lennének, amilyeneket a mérnöki gyakorlatban pl. a hidraulikában, a hegynyomás elméletében stb. kényszerüségből még ma is sokat használunk s amelyek-

nek fokozatos kiküszöbölése a tudományos kutatás állandó célja.

Azonban nem hisszük, hogy esetünkben valóban csak egy jól simuló interpoláló megközelitést találtunk volna. Ennek ellene szólnak azok a matematikai szabályszerüségek, amelyeket gyakorisági görbéink elemzésénél tapasztaltunk s amelyeknek végső fokon valamely általánosabb mélyebb okának kell lennie, mely valóságos természeti törvénynek felel meg.

Mi tehát feltesszük, hogy vizeink urántartalma logaritmusosan kifejezve azért változik a mondott módon, mert az a végső ok, mely a vizeknek uránban való dusulását szabályozza, maga is az exponenciális törvénynek hódol.

Mi ezt az okot az urán oldódási körülményeinek fizikai feltételeiben látjuk.

Következtetéseink láncolatát azokra az alapvető és elemi fejtegetésekre alapozzuk, amelyekkel *Lipps G.F.* több mint 60 évvel ezelőtt *Fechner G.T.*, a matematikai statisztika, - vagy ahogyan ezt abban az időben még nevezték, - a "kollektivméréstan" hátrahagyott munkáját kiegészitette /[5], 310-320. old. és 351. old./ és amelyek lényegében, bár némileg megváltozott kifejezésmóddal még ma is érvényesek /v.ö. pl. *Rényi A.* [13], 506. old./.

Lipps feltevése értelmében Gauss-féle eloszlásoknak megfelelő halmazok a következőképpen keletkeznek.

Egy eredetileg jelenlévő "a" mennyiségre egymástól függetlenül a véletlen játéka szerint "n" számu erő /általánosabban kifejezve: "hatás", "tényező", "folyamat" stb./ hat, amelynek befolyása alatt az eredeti "a" egy: i, 2i, 3i ..... n.i növekménnyel megnagyobbodik, aszerint, hogy az összes erőkből /tényezőkből stb./ csak 1,2,3 ..... vagy mind az n erő hat. Az "i" növekménynek emellett olyan kis számnak kell lennie, hogy négyzete: i^2 az eloszlásban szereplő véges mennyiségek mellett elhanyagolható kicsinek legyen tekinthető. Ha feltevésünk értelmében minden egyes erőhatás /tényező, folyamat stb./ hatásossá válása a véletlen történések valószinüsége szerint következik be, akkor a keletkező a + i, a + 2i, a + 3i ..... a + n.i mennyiségek eloszlása elegendő idő eltelte után normális Gauss-eloszlás lesz, mely abban az esetben szimmetrikus, ha mindegyik erőhatás /stb./ bekövetkezése szempontjából a valószinüség éppen ½, vagyis egy-egy erőhatás /folyamat stb./ számára éppen olyan valószinü az, hogy bekövetkezik, mint az, hogy elmarad. Ha ellenben valami ok közremüködik, mely ezt az egyforma valószinüséget felboritja, akkor "aszimmetrikus Gauss-eloszlás" keletkezik.

Az ilyen okok fellépési lehetőségéről a következőket mondhatjuk.

A valószinüségszámitás *Rényi A.* definiciója szerint a természetben előforduló véletlen tömegjelenségek törvényszerüségeinek statisztikai megállapitásával foglalkozik. A tapasztalati uton megismert "nagy számok törvénye" szerint egy természetes sokaságot alkotó halmaz egyedeinek bizonyos rendező bélyeg szerinti eloszlása annál jobban megközeliti az elméleti valószinüséget, minél nagyobb számu egyedből állithattuk össze a vizsgált sorozatot. Végesszámu és mintagyüjtési és méréstechnikai okokból rendszerint csak aránylag kisszámu egyedi meghatározásból álló megfigyelési sorozatoknál, mint a mi esetünkben is, ez a feltétel csak bizonyos fokig teljesedik. Ez az oka annak, hogy mérési sorozataink közel járnak ugyan elméleti Gauss-eloszlásokhoz, de azokkal csak kivételesen eshetnek össze. Tapasztalati tény tehát, hogy a Gauss-féle eloszlás által megkövetelt teljes szimmetria helyett a gyakorisági görbéink rendszerint kisebb-nagyobb aszimmetriát mutatnak.

Ezt a tapasztalati tényt már *Fechner* maga is felismerte. Hátrahagyott munkájában /[5], 66-67. old./ a felsorolt okokból származó kismértékü aszimmetriát "lényegtelen", vagy "véletlen" jellegü aszimmetriának nevezte s megkülönböztetett tőle egy "lényeges" aszimmetriát, amelyet már nem az ilyen jelentéktelen véletlen okok, hanem olyan lényeges erők idéznek elő, amelyek a statisztikai sokaságot összetevő egyedeket alakitják. A természetben előforduló eloszlásokban a "lényeges" és a "lényegtelen" aszimmetria mindig keverten mutatkozik. *Fechner* azonban rámutatott arra, hogy abban az esetben, ha "m" jelöli egy eloszlás egyedszámát, akkor a véletlen aszimmetriával összefüggő statisztikai különbségek csak $\sqrt{m}$-el arányosan, a lényeges aszimmetria okozta különbségek ellenben magával m-el egyenes arányban nőnek. Elég nagy "m"-nél tehát a véletlen okok által létrehozott aszimmetria a "lényeges" mellett eltörpül, ami az utóbbinak éppen egyik jellemző kritériuma. Ezek a megállapitások logaritmikus eloszlásokra is érvényesek. Saját eloszlásaink közül az I., II., III., IV. és VIII. sz. csoporté tekinthető *Fechner* értelmében "lényegtelen" aszimmetriájunak, mig az V. sz. csoport eloszlásának és rajta keresztül a VI. és VII. csoport eloszlásának is "lényeges" aszimmetriája van.

A tárgyalt logaritmikus esetek *Lipps* feltevése szerint ha. nló módon, mint a rendes Gauss-eloszlások, de akkor keletkeznek, ha a szóbanforgó erőhatások az eredeti "a"-t nem additiv növekménnyel növelik, hanem azzal összeszorzódnak. Ilyenkor minden a + i, a + 2i, ... a + n.i helyébe a következő szorzatok lépnek: a.i, $a.i^2$, ... $a.i^n$, amelyeknek a Gauss-függvény szerinti eloszlására, szimmetriájára és aszimmetriájára ugyanazok a megfontolások érvényesek, mint az előbbi esetben. Ha az $a.i^n$ általános kifejezést logaritmáljuk, akkor: log a+n.log i alaku növekményhez jutunk, amely azonos alkatu, mint az előző esetben, azonban minden "n" helyébe "log n" és az "i" helyébe "log i" lépett. Ha a folyamatot a valószinüség statisztikai szabályai irányitják, akkor végeredményben egy "logaritmikus Gauss-eloszlásnak" kell keletkeznie. Ez megint csak abban a kivételes esetben lesz szimmetrikus, ha a ható erők, vagy elinditó folyamatok bekövetkezésének, vagy elmaradásának valószinüsége egyaránt $\frac{1}{2}$; minden ellenkező esetben aszimmetrikus eloszlás áll elő.

A vázolt megismerések világánál most már élesebben körülhatárolhatjuk a bennünket érdeklő kérdést:

Elképzelhető-e a különböző geológiai szubsztrátumokban egy a kőzet képződési viszonyaival összefüggő tényezőnek a jelenléte, melynek hatására az átszivárgó vizek különböző mennyiségü uránt vesznek fel még akkor is, ha ez az urán-tartalom eredetileg az összes kőzetekben közel azonos mennyiségben és egyenletes módon elosztva tételezhető fel: /az "uranium-background"-nak definició szerint tulajdonképpen ez az értelme./ Kinálkozik-e emellett természetes magyarázat arra a feltünő tapasztalati tényre, hogy a megállapitott eloszlások logaritmikusak és részben lényegesen aszimmetrikusak?

Ezekre a kérdésekre fenntartás nélkül igen-nel felelhetünk!

Kétségtelen, hogy egyenlő vizmennyiség egyenlő mennyiségü uránásványt tartalmazó kőzetek közül abból old ki több uránt, melynek "belső felülete" nagyobb, mert abban több ponton támadhatja meg az U-ásványszemcséket.* /A fejtegetéseinkben szereplő belső felület viszonyszám: jelenti a térfogategységben jelenlévő szemcsék összes felületét; dimenziója ennek megfelelően $cm^2 : cm^3 = cm^{-1}$./ Nagy

* Maguk a természetes uránásványok vizben aránylag könnyen oldhatók. A méréseinkben jelentkező kis U-koncentrációk az uránásványokat magába záró gazdaásvány /földpát stb./ kis oldékonyságát tükrözik. Az urán oldódásához természetesen először a nehezen oldódó ásványburok oldatbamenése szükséges.

belső felületü kőzetben lassubb a viz szivárgása, tehát ugyanolyan mennyiségü viz jobban dusulhat uránban. A viz szüremkedési sebességére nézve *Kozeny J.* bécsi akadémikus már 32 évvel ezelőtt [9], [10] állitott fel elméleti dedukcióval képletet, melyet *Donat J.* azután homokokra nézve kisérletileg is igazolt és amely azóta is a mérnöki gyakorlat igen sok esetében bevált. E képlet szerint a vizátszüremkedés sebessége forditva arányos a belső felület négyzetével. Ezen a tényezőn kivül a kőzetben rejlő tulajdonságok közül csak a hézagtérfogatarány szerepel még. A szüremkedési sebesség ennek köbével egyenesen arányos. /A "hézagtérfogatarány" a kőzetben jelenlévő üregek térfogatának arányát az összes térfogathoz jelenti és mint két térfogat viszonyszáma $cm^3 : cm^3$ dimenziómentes./ Az oldási folyamat kémiai eredményére vonatkozóan a kioldott uránmennyiség, mint emlitettük, egyenesen arányos a belső felülettel.

Grassberger H. már emlitett szellemes cikkében, melynek jelentőségét az irodalomban idáig még nem eléggé méltányolták, megállapitotta, hogy az üledékes kőzetek belső felülete a Gauss-alaku szemcseösszetételi összeggörbékből a szórás és aszimmetria egyidejü tekintetbevételével számitható. /Az alapadatok kisérleti uton iszapolással határozhatók meg./

Minthogy pedig *Grassberger* ugyanebben a cikkében egy az előbb vázolt *Lipps*-féle gondolatmenettel rokon levezetéssel megállapitja, hogy a viz munkája révén történő kőzetaprózódásnál a keletkező üledék szemcsenagyságának logaritmusa normális eloszlásu kell, hogy legyen, itt kapjuk meg annak a végső okát, hogy a szemcseeloszlás módjától közvetlenül függő belső felület és az ezzel linearisan arányos urántartalmak a szivárgó vizekben miért oszlanak el az előzőekben mondottak szerint.

Ebből tehát az következik, hogy elsősorban finomabb szemcsézettségü iszapokból fakadó vizekben várhatunk bizonyos foku U-feldusulást, magasabb "background"-ot, anélkül, hogy ez uránelőfordulási indikációnak tekinthető volna. Gyakorisági görbéink ezt szépen bizonyitják is, mert a log γ/l értékek maximumai az abszcisszán a kőzetek átlagos szemcsenagyságfinomodásának az irányában tolódnak el. Érdekes, hogy ebben a tekintetben a vulkáni lávák és tufák durva és finom repedéseinek hálózata mint egy durva-kavicsos-homokos üledék hézagrendszere vehető figyelembe, mig a szilárd vulkáni kőzetek maguk, kivéve talán egyes tufákat és hidrotermálisan erősen lebontott zónákat, vizhatlanoknak tekinthetők.

Egyikünk /*Szalay S.* [19]/ humuszelmélete szerint humuszos üledék eltolódásokat idézhet elő a rajta átszivárgó vizek urántartalmában. Adszorpció révén csökkentheti a szemcsefinomságtól származó U-tartalmat, dezadszorpció révén növelheti azt. Az itt szereplő egyensulyok tanulmányozása még a jövő feladata. Egyelőre annyit mondhatunk, hogy a hegység előterében pannon iszapokban észlelt viszonylagos U-dusulások, pl. Megyaszónál 60 γ/l-ig, Alsó-Dobsza /csorgókut a falu É-i végén/ 80 γ/l, délebbre a Taktaközben Tiszaluc 30 γ/l-ig, Taktaharkány 18 γ/l-ig, Taktaszada 30 γ/l-ig, és nyugatabbra Ujcsalánosnál /Templom utca 24./ 55 γ/l stb., még mind jól beilleszkednek a Gauss-görbék menetébe, ezért egyáltalában nem tekinthetők indikációknak hasznositható uránérclelőhelyek felkutatására, ahogyan ezt helyes kémiai elemzések felületes kiértékelése alapján gondolhatnánk.

A Szerencsi-Szigethegység és előtere pannon rétegeinek kora és anyagszármazása még nincs eléggé tisztázva. *Hoffer A.* /[8], 221. old./, aki a hegység-

ről irt monográfiájában elsőként foglalkozott ezzel a kérdéssel, a hegység pannonkoru rétegeit mind alsó-pannonnak tartotta. Törmelékanyagukat a kvarc tultengése miatt a kárpáti flis-zónából a Tarac-völgye mentén lemosottnak vélte. Nézete szerint a terület a felső-pannonban már szárazulat volt. *Rozlozsnik Pál* /[14], a német szöveg 347. old./ később a megyaszói kövületes alsópannon rétegek anyagát szintén a "messze észak"-ról származtatta. Ezeket homokosabb és kavicsos rétegek boritják, amelyek a terület nyirok- és lösz-boritása alól csak helyenként, mint pl. éppen Megyaszó és Ujvilág-puszta között, pásztásan bukkannak fel. *Rozlozsnik* ezeket a rétegeket, - a kövülethiány miatt fenntartással, - már közép- és felső-pannonkoruaknak gondolta. E nézethez csatlakozott utóbb *Sümeghy J.* is [18]. Kétségtelen, hogy a nagyobb U-tartalmak a vizekben ezen a vidéken az alsópannon rétegekhez vannak kötve, de nem azért, mert ezeknek az anyaga U-ban dusabb vidékekről származna, hanem azért, mert anyaguk finomabb szemcsézetü, iszaposabb, mint a felső-pannonkoru rétegeké s igy megállapitásunk szerint nagyobb értékü "background"-ot adnak.

Vizsgálatunk megindulásakor mi is helytelenül jártunk el, amikor az elemzéseknek csoportokba való összevonásakor mint osztályozó szempontot a földtani kort és származást helyeztük előtérbe. Segitségünkre jött, hogy egyes esetekben földtani kor és származás szerint ugyanazokat a mintákat kell egy csoportban egyesiteni, mint a szemcseszerkezet alapján, tehát a helyes válogatási elv szerint. Igy történt ez pl. a VIII. csoportnál. A területünkön előforduló pannon üledék mind finomszemü és emellett eléggé hasonló és homogén összetételü. Ezért kaptunk a VIII. csoportban kisszórásu, nagymaximumu, rendes alaku, Gauss-görbét, amely a matematikai értelmezésnél is jó szolgálatot tett. Ezzel szemben egészen hibás volt a IV. csoport cimében "szarmata üledék vizei" kifejezésre jutó válogatási elv. A szarmata üledékek ugyanis a kavicstól kezdve a finomszemü iszapos homokig a különböző finomságu szemcseeloszlásoknak nagy skáláját foglalják magukban. Ez az urántartalmak gyakorisági görbéjében abban tükröződik vissza, hogy a szórás szokatlanul nagy. Lapos maximuma onnan származik, hogy a legtöbb vizet adó szarmata üledék homokos jellegü, váltakozó iszaptartalommal. A VI. csoport "lényeges" aszimmetriája, mely az V. és VII. csoportban is erősen érezteti hatását, valószinüleg onnan származik, hogy a holocén és pleisztocén rétegek egy része eolikus eredetü lösz, vagy átmosott, esetleg kémiailag elbontott eolikus kőzet /a nyirok egy része/. A szél elkülönitő munkája erősen különbözik a vizétől, meredek emelkedésü szemcseösszetételi összeggörbéket eredményez. Egyrészt szél által, másrészt viz által apritott és osztályozott üledékanyag mesterséges párositása VI. sz. csoportunkban okozhatja a VI. csoport aszimmetrikus összetett görbe-jellegét.

Az előzőekben a természetes vizek urántartalmának kialakulásáról inkább csak kvalitativ fenomenológiai képet adtunk, a kérdés matematikai elemzését kerültük, nert *Scherf* és *Neszéna* erről külön közleményben számolnak be [1]. Itt csak annyit emlitünk, hogy nekik sikerült a vizek anyakőzetének belső szerkezetét, ahogyan azt *Grassberger* vizsgálatai nyomán két parameterrel t.i. a szemcsézettségi eloszlás centrális értékével és szórásával jellemezni tudjuk, kvantitativ kapcsolatba hozni a kőzeteken átszivárgó viz urántartalmának a mennyiségével. Ez első pillanatra meglepő eredmény, mert *Grassberger* urán-tartalmakat nem határozott meg, mi meg elemzett vizeink anyakőzetének szerkezetét nem ismerjük, és tényleges mechanikai elemzéssel különben is csak a viz utjának utólsó állomásán,

a forrásnál szálban lévő kőzetre nézve tudnánk megállapitani. A kapcsolatot a kétféle szemlélet között a belső felület értékszáma adja meg, amelyről az előzőkben már szó volt s amelynek nagyságát saját kisérleti csoportjainknál elég szük határok között becsülhettük meg.

F. Ujabb adatok a sósvizek és törésvonalak kapcsolatához.

Scherf [16] már több mint egy évtizeddel ezelőtt megállapitotta, hogy a Tokaji- és Szerencsi-hegység sikvidéki előterében a talajvizek kirivó sótartalma többé-kevésbé egyenes lefutásu törésekhez van kötve.

Ezt a megfigyelését *Stegena Lajos* és *Szebényi Lajos* megerősitették [17] és az általuk előre kijelölt helyeken még több erősen sósvizü kutat irtak le Reje-tanya körül, a Nagy-Kaproson és a hajdunánási határban. Ezért munkánknál a helyszini vizsgálatok közé a Cl^I-ion meghatározását is felvettük. Habár ezek az adatok nem szolgáltattak uj szempontokat az urán geokémiájához, érdekes módon egészitik ki a régi megállapitásokat és ezért a főeredményeket röviden itt is ismertetjük.

A munka diszpoziciójánál abból a palãogeográfiai tényből indultunk ki, hogy a mélyebb altalajban feltételezhető szarmata-, esetleg pannonkoru sós iszapok az eruptiv hegységet szegélyszerüen övezik. Ezért a törésvonalak közül nem mindegyik keresztezi őket. *Scherf* 1947. évi számozása szerint /i.m. 200. old. 5. ábra/ elsősorban a XV., XVI. és XVII. sz. ÉNy-DK-i, továbbá a VII. és VIII. sz. KÉK-NyDNy-i, valamint a XXII. és XXI. sz. É-D irányu töréseken számithattunk Cl-szaporulatokra a talajvizben felmigráló sós viz által. Különösen érdekesnek látszott a törések kereszteződési pontjainak megvizsgálása azokon a helyeken, ahol az i.m. 226. oldala szerint sós gócoknak kell lenniök, de vizsgálat még eddig nem történt. Erre most legalább részben alkalom nyilt. Az eredmény tökéletesen megfelelt a várakozásnak.

A legérdekesebb talán egy uj, 298°-118° csapásu sósvizü törésvonal megállapitása, amelyet a következő kijelölés ad meg: Alsódobsza - Ujvilágpuszta - Taktaszada /legsósabb kut Kossuth-u. 9. a község É-i részében/ - Prügy /község közepe/ - Báj - Csobaj /községtől kissé É-ra/ - Tiszatardos /legsósabb kut a legmagasabb dombtetőn a község ÉNy-i részében/ - Tiszaeszlár /vasutállomástól D-re/, Tiszatardoson a jelzett kutnál ezt a törést keresztezi a már régebben kijelölt VII. számu, mely a következő irányt követi 56° felé: Tiszagyulaháza /sóskut/ - Tárnokhát - Kis Borockás - Kapzsalapos sós kutjai Rejetanyától K-re - Tiszatardos - Tiszaladány /falu közepe/ - Tiszanagyfalu. Itt a legsósabb kutat a Töltésköz 36. sz. ház udvarán, 40 m-re a köz és a Kossuth -u. sarkától, közel a Tiszához találtuk: 0,84 g Cl^I /= 1,39 g NaCl/. A tiszatardosi emlitett kutban: 1,20 g Cl^I /= 1,98 NaCl/. Magában véve nem nagy sótartalmak, de igen jellemzőek, mert közel a Tisza. Tiszatardoson az igen mély kutat azért ásták a nagy parti düne tetején, mert ott édes vizet vártak, ehelyett a töréskeresztezésen sós viz szál fel. Nem messze innen É-ra a Kolokányos-laposon viszont édesvizü kut van, tehát nem mélyedésben összegyülő sóról van szó. Lehet, hogy ez a sós viz a felső szarmatakor legfelső részében a pannonhoz való átmenetben rövid ideig tartó száraz időszakban képződött sós iszapokból /a beszáradt szarmata beltenger maradványaiból/ száll fel, ami a legujabb florisztikai kutatás szerint is

lehetséges /*Andreánszky G.* [2]/.

Tiszavasváritól /Büdszentmihálytól/ K-re sikerült a várt helyen, t.i. a Fejér-sziken /Paula-ligettől É-ra/ a X., XV. és XXII. sz. törés keresztezésén az előrejósolt sós-gócot megtalálni. A Fejérszik érdekes háromszögalakját is ez a három törés alakitja ki. A XXII. törés a várt 10°-190° csapás helyett 9°-189° csapással a várt helyen jelentkezett. A XV. sz. törés a várt 124°-304° irány helyett 108°-288° iránnyal látszik Kincses-pusztán keresztül Tiszavasváritól É-ra lévő "Egyházerdő" vasuti megállónál mutatkozó sós vizek felé huzódni. /A X. törést nem követhettük/, Tiszavasvári ÉNy-i végén, az öntöző főcsatornán tul, a régi görög-katólikus temető É-i sarka közelében egy a Tiszavasvári-Tiszadob földut töltésétől É-ra eső laposon ma már betemetett sós kut van. Vizét az 1945. évi sóinség idején főzésre használták. Kálvinházpusztán /azelőtt "Szomjastanya"/ a sós kutak innen 274° felé esnek, talán egy a XV. és XVI. törés közé interpolálható törésen, mely a Kapzsalapos felé csap. A Kálvinházpuszta sós kutjainak a vizét is főzésre használták az inség idején, ma azonban a sósabbikban is csak 1,37 g Cl^I /= 2,25 g NaCl/ van jelen.

Hely hiánya miatt sajnos a sósvizkutatás szempontjából érdekes többi megfigyelésünkre e tanulmány keretében nem térhetünk ki.

Összefoglalás

1./ E tanulmány tudományos geokémiai szempontból foglalkozik az Eperjes-Tokaji-hegység eruptiv kőzeteiben fakadó forrásvizek és a hegység nyugati és déli sikvidéki előterén előforduló talaj- és forrásvizek uránnyomtartalmával.

A megjelölt területen összesen 341 uránium-meghatározás történt a párhuzamos elemzéseket nem számitva, az ATOMKI-ban kidolgozott javitott mikrokémiai módszer szerint. Ezenkivül a terepen majdnem minden forrásvizen hőfok- és reakciószám /pH/-meghatározások történtek és a sikvidéken a kutvizek egy részén Cl^I-ion és elektromos vezetőképességi meghatározások is. A két utóbbinak az volt a célja, hogy tájékoztasson a törésvonalakon sejthető sósviz felfelé migrálásáról s ennek esetleges kapcsolatáról U-feldusulással.

2./ A Cl^I-ion mennyisége, valamint a vezetőképességi számok és az U-tartalmak között semmi korrelációt nem lehetett megállapitani. Az U-tartalmak matematikai-statisztikai feldolgozása az anyakőzetviszonyok figyelembevételével ellenben sikeres volt. Az uj megállapitások a téma keretét meghaladva, elvi jelentőségüek az un. "urán-háttér" /"uranium-background"/ értelmezése és értékelése szempontjából.

3./ A nyers adathalmaz feldolgozása anyakőzet szerint kisérletképpen 8 csoportban történt. Ebből 3 csoport az eruptiv kőzetekből fakadó vizek U-tartalmára vonatkozott a következő felosztás szerint:

I. riolittufából /egyedül/ fakadó vizek,
II. összes eruptivum vizei /riolittufa nélkul/.
III. összes eruptivum vizei /riolittufával együtt/;
a másik 5 csoport az üledékes kőzetekből fakadó vizre vonatkozott:

IV. szarmata üledékek vizei,

V. az összes üledékek vizei,
VI. a holocén + pleisztocén üledékek vizei,
VII. a holocén + pleisztocén + pannon üledékek vizei,
VIII. a pannon üledékek vizei.

Ez a csoportositás csakugyan alkalmasnak bizonyult lényeges különbségek kimutatására az egyes csoportok vizei urántartalmának statisztikai eloszlásában, habár később kiderült, hogy az osztályozási elvben a földtani kor és származás számbavétele tulságosan érvényesült. Az igy megállapitott csoportok mindegyikében a viz urántartalom logaritmusa nagyjából Gauss-féle eloszlások szerint oszlott el, kivéve a VI. csoport vizeit, melyben az eloszlás lényegesen aszimmetrikus. A VI. csoport erős számszerü befolyásánál fogva a VII. és V. csoportok eloszlása is kissé aszimmetrikus.

4./ Valamely kőzetből kioldódó uránmennyiség egyébként azonos körülmények között arányos az anyakőzet belső felületével, amelynek számszerü függését a talajok belső szerkezetétől *Grassberger H.* mutatta ki. Minthogy a kőzetek /elsősorban üledékek/ szemcseösszetétele genetikai körülmények hatása miatt "logaritmikus Gauss-eloszlásnak" felel meg, a kioldott U-mennyiségnek is ezt az eloszlást kell leképeznie. Ezzel függ össze, hogy a finomszemü, a szemcseösszetételben csak kis szórást mutató alsópannon üledékek vizeiben az urán-eloszlás is hasonló jellegü /VIII. csoportunk/. Ebben az esetben a geológiai osztályozási elv használhatónak bizonyult az uránkoncentrációk szempontjából is, nem ugy a IV. csoportnál, ahol az összefoglalt szarmata üledék nagy szemcseösszetételi szórása /kavicstól a homokig/ okozta, hogy a megfelelő uráneloszlási görbe is extrém szórásu.

5./ E bevezető közlemény a felismert összefüggéseket talajszerkezet és szüremkedő viz urán-tartalma között tudatosan nem tárgyalja számszerüen is. Ez *Scherf* és *Meszéna* következő közleménye számára van fenntartva.

6./ A bejárt területen Megyaszó vidékén és a Taktaközben megfigyelt néhányszor tiz γ/l nagyságrendü U-dusulások a vizekben nem jelentenek uránásványkoncentrációkat a vizet adó rétegekben, hanem az üledék finom szemcsézettségének megfelelő megnövekedett "background"-értéknek tekintendők. Hasonlóképpen nincsen gyakorlati jelentősége egy a Tedeji fürdő egyik nem szivott forrásaknájában stagnáló vizen észlelt 130 γ/l U-koncentrációnak sem.

7./ A munka folyamán be lehetett bizonyitani Tiszavasvári környékén néhány előrejelzett sósvizgóc valóságos létezését. Azonkivül uj, töréshez kötött sósvizes vonulatot figyeltünk meg Alsódobsza - Ujvilágpuszta - Taktaszada - Prügy - Báj - Csobaj - Tiszatardos - Tiszaeszlár vonalban, mely annak ellenére, hogy a Tisza a közelében vonul el, mégis feltünő sótartalmat mutat.

A vizminták begyüjtésénél és a terepen végzett méréseknél nagy segitségünkre voltak *Ács Miklós, Angeli István* és *Kovách Ádám* kartársaink, az ATOMKI tud. munkatársai.

A mikrokémiai uránmeghatározásokat *Horváth Éva* tud. s.munkatárs és *Halász Tiborné* önálló laboráns végezték.

Meszéna György, az ATOMKI tud. munkatársa matematikai tanácsadással és lektorálással volt segitségünkre.

I r o d a l o m

[1] *Scherf E. - Meszéna Gy.:* ATOMKI Közlemények *2,* 1960. 109. old.

[2] *Andreánszky G.:* Die Flora der sarmatischen Stufe in Ungarn. Budapest, 1959. Akadémiai Kiadó.

[3] *Bruns H.:* Wundts Philosophische Studien. *14,* 1898. 347. old.

[4] *Bruns H.:* Wahrscheinlichkeitsrechnung und Kollektivmasslehre. Leipzig, 1906.

[5] *Fechner G.Th.:* Kollektivmasslehre. Im Auftrage der kön. Sächsischen Gesellschaft der Wissenschaften herausgeg. v. G.F.Lipps, Leipzig.

[6] *Grassberger H.:* Die Wasserwirtschaft /Wien/ *26,* 1933. 235.

[7] *Hazen Allen:* Soc. of Civ. Engineers *77,* 1914. 1539.

[8] *Hoffer A.:* Tisia, I., 1937. 2.f. Debrecen.

[9] *Kozeny J.:* Hydraulik, ihre Grundlagen und praktische Anwendung. Wien, Springer, 1953.

[10] *Kozeny J.:* Sitz.Ber.s.Akad.d.Wiss. Wien Abt.II.a. *136,* 1927. 271-306.

[11] *Lipps G.F.:* Die psychischen Massmethoden. /Die Wissenschaft. Samml. naturwiss. u. math. Monographien. Heft 10.

[12] *Mises v.R.:* Wahrscheinlichkeitsrechnung und ihre Anwendung in der Statistik und theoretischen Physik. Leipzig-Wien, Deuticke, 1931.

[13] *Rényi A.:* Valószinüségszámitás. Tankönyvkiadó, Budapest, 1954.

[14] *Rozlozsnik P.:* Földt. Int. Évi Jel. az 1929-1932 évekről, Budapest, 1937. 329-331. old.

[15] *Saukoff A.A.:* Proceed. of the Internat. Confer. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, held in Geneva 8. Aug. - 20. Aug. 1955. *6,* 1956. 756.

[16] *Scherf E.:* A szabolcsmegyei sósvizek geológiai, hidrológiai és chemiai viszonyai. Jel. a Jöved. Mélykut. 1947/48.

[17] *Stegena L. - Szebényi L.:* /Jelentés az 1947. évről./ Jel. a Jöv.Mélykut. 1947-1948. évi munkálatairól. Magy. Pénzügymin. 1948. 234-248. old.

[18] *Sümeghy J.:* Földt. Int. Évi Jel. az 1933-1935. évekről. II. rész. Budapest, 1939. 485-502. old.

[19] *Szalay S.:* Magy. Tud. Akad. Müszaki Oszt. Közl. *5.* köt. 1952. 3. sz.

[20] *Szalay S.:* Acta Geologica Hung. Tom. 2. 1954. pp 299-311.

[21] *Szalay S.:* Magy. Tud. Akad. Mat. és Fiz. Oszt. Közl. *4.* köt. 1954. pp 327-342.

[22] *Szalay S.:* Acta Phys. Hung. *8,* 1957. 25-36.

[23] *Szalay S.:* II. United Nations Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 1958. Vol. *2,* pp 182-186.

[24] *Nichols E.L. - Slattery M.K.:* J.Opt. Soc. Amer. *12,* 1926. p. 449.
Nichols E.L. - Slattery M.K.: J.Opt. Soc. Amer. *19,* 1929. p. 175.

[25] *Föyn, Karlik B. - Petterson, Rona E.:* Nature, *143,* 1939. pp 275-276.

[26] *Máthé Gy. - Szalay S.:* Magy. Fiz. Folyóirat *5,* 1957. pp 247-250.

[27] *Weber Erna:* Grundriss der biologischen Statistik für Naturwissenschaftle, Landwirte und Mediziner. 3.Aufl. Jena, Fischer, 1957.

SZÁMITÁSOK BRUNS SOROKKAL A TERMÉSZETES VIZEKBEN TALÁLHATÓ URÁN-NYOMOK STATISZTIKAI ÉRTÉKELÉSÉHEZ

Meszéna György

A megelőző cikk [1] felhasználásával az alábbiakban képezzük két jellegzetes eloszlású adathalmaz Bruns sorát. Alkalmazásuk egy következő elemző közlemény egyszerűbb közelitő formuláját indokolja.- Ezen kivül a λ^2-eljárással megvizsgáljuk az eredeti és a Bruns sorral korrigált eloszlásoknak a normális eloszláshoz való viszonyát.

1.§.

A tapasztalat szerint a természetes vizek aktivitásából a környezet viszonyaira való következtetés, óvatosságot igényel. E közlemény célja az, hogy felhasználva a *Szalay-Scherf* cikk mérési adatait, ismert matematikai módszerek alkalmazásával adatokat szolgáltasson egy következő, az urán koncentrációnak és a talaj belső felületének a kapcsolatát kutató, részletes statisztikai elemzéshez [2].

Ami a felhasznált eljárásokat illeti, a következők előrebocsátása látszik szükségesnek. A különböző szemcseösszetételü talajfajták belső felület adatainak egy részét, a vonatkozó irodalomból vett olyan formulák alapján fogjuk számolni, melyek egy-egy alkalmasan felirt Bruns sor első el nem tünő tagját tartalmazzák [3]. A felhasznált közelités alátámasztására látszott célszerünek két jellemző adatcsoport kiválasztásával a számolás következetes végigvitele az egyes sorok hét, illetve öt tagig történő kiszámitásával.- Közvetlenül az elmondottakhoz csatlakozva, az eredeti mért adatokból készitett, illetve a Bruns sorokkal korrigált eloszlásoknak egymástól való eltérését a χ^2-módszerrel vizsgáljuk meg, ez lényegében a normális eloszláshoz való viszony megállapitásával kapcsolatos [4].

Ami a kapott eredményeket illeti, a hét, illetve öt tagig felirt Bruns sor a későbbiekben történő számolásban nem hoz céljainkat számottevően érintő

változást az első el nem tünő tag megtartásához viszonyitva, tehát az esetek jelentős részében az öt, illetve hét tag alkalmazását jelentő részletes számitások mellőzhetők. Másrészt megállapithatjuk, hogy eloszlásaink nagyobb részét a Bruns sor első öt, illetve hét tagja igen jól közeliti meg, azonban néhány esetben még igy is számottevő eltérés mutatkozik.

2.§.

Valamely gyakoriság eloszlás Bruns sorba fejtésének gondolatmenete a következő [4]: az adott lépcsős függvényt egy célszerüen választott alapfüggvény szerint sorba fejtjük ugy, hogy az alapfüggvénytől mért eltérés, az alapfüggvény deriváltjai, és alkalmasan számitott koefficiensek szorzatainak az összegezéséből állitható elő. Ha a $V\,/x/$ lépcsős függvényt az $N\,/x/$ alapfüggvény szerint fejtjük sorba:

$$V\,/x/ - N\,/x/ = c_0.\ N'/x/ + c_1.N''\,/x/ + c_2.\ N'''/x/ + \ldots \qquad /1/$$

A c_ν együtthatókra az elméletből adódó általános formula:

$$c_\nu = \frac{1}{2^{\nu+1}/\nu+1/!} \sum_{\kappa=1}^{k} u_\kappa.\ p_{\nu+1}/a_\kappa/ \qquad /2/$$

ahol a lépcsősfüggvény ugrásait az a_κ ugráshelyeken u_κ-val, az alap - ként választott Gauss függvény deriválásakor adódó, és a Hermite polinomoktól csak kevéssé különböző kifejezéseket pedig p_ν-vel jelöljük.- A numerikus számitás elvégzéséhez célszerü az eljárást táblázatosan berendezni. Egy ilyen jól használható összeállitást a következőkben a számolás során végig kisérhetünk.

Átalakitás után az együtthatók számitásra jól alkalmas kifejezése:

$$c_{\nu-1} = \frac{1}{\nu!\,(\sqrt{2})^\nu} \sum_{l=0}^{\nu} a_{\nu l}(\lambda).\ \mu_l \qquad /3/$$

ahol $\lambda = \frac{\alpha}{\sigma}$; és $\mu_\nu = \frac{M_\nu^o}{\sigma^\nu}$; az $a_{\nu l}(\lambda)$ kifejezések pedig táblázatosan vannak összeállitva.

3.§.

a/Kiindulásul tehát a Hegyalja természetes forrás és kut vizeiből vett minták alapján adódó eloszlások lépcsős összeg függvényei szolgálnak.- Tekintsük például az eruptiv kőzetekből fakadó vizekre vonatkozó mérési adatokat. Jelentse a_κ a log γ/l-ben adott koncentrációk intervallum határait, m pedig a megfelelő gyakoriságokat: a $V/x/$-et meghatározó mennyiségek, tehát az alapadatok táblázata a következő:

1. Táblázat.

1	a_κ	-2,45	-1,75	-1,05	-0,35	+0,35	+1,15	+1,75	+2,45
2	m_κ	23	35	67	42	18	10	1	-
3	$\frac{m_\kappa}{m} = u_\kappa$	0,12	0,18	0,34	0,21	0,09	0,05	0,01	-
4	$\frac{a_\kappa - \alpha}{\sigma\sqrt{2}} = a'_\kappa$	-1,15	-0,62	-0,09	0,45	0,98	1,51	2,04	2,57

A számolás további menetét a táblázatok szemléltetik:

$$m = \sum_{\kappa=1}^{8} m_\kappa = 196; \quad \alpha = \sum_{\kappa=1}^{8} \frac{a_\kappa \cdot m_\kappa}{m} = -0,94; \quad \sigma^2 = \sum_{\kappa=1}^{8} u_\kappa \cdot (a_\kappa - \alpha)^2 = 0,8543$$

Az alapintervallumok hossza: transzformálás előtt: 0,70;
transzformálás után: 0,53

2. Táblázat.

Az $a_{\nu l}(\lambda)$ kifejezések számításához:

ν	$\Sigma a_\kappa^\nu \cdot m_\kappa$	$\frac{1}{m}\Sigma a_\kappa \cdot m_\kappa = M_\nu^0$	σ^ν	$\mu_\nu = \frac{M_\nu^0}{\sigma^\nu}$	$\lambda^\nu = (\frac{\alpha}{\sigma})^\nu$	ν
1	-184,10	-0,9393	0,9242	-1,0163	-1,0217	1
2	340,55	1,7375	0,8543	2,0338	1,0439	2
3	-587,65	-2,9982	0,7895	-3,7975	-1,0665	3
4	1260,14	6,4292	0,7296	8,8119	1,0896	4
5	-2660,62	-13,5745	0,6743	-20,1213	-1,1132	5
6	6110,38	31,1754	0,6231	50,0326	1,1373	6
7	-13974,97	-71,3008	0,5758	-123,8291	-1,1619	7
8	33135,93	169,0608	0,5321	317,7230	1,1871	8

3. Táblázat.

$a_{\nu l}(\lambda)$ **táblázatos számitása:**

ν	3	4	5	6	7	8
$l=0$	$-2\lambda^3$	$-3(\lambda^4+1)$	$-4\lambda^3(\lambda^2-5)$	$-5\lambda^4(\lambda^2-9)+30$	$-6\lambda^2(\lambda^4-14\lambda^2+35)$	$-7\lambda^4(\lambda^4-20\lambda^2+90)-315$
2	3λ	$6\lambda^2$	$10\lambda(\lambda^2-3)$	$15\lambda^2(\lambda^2-6)$	$21\lambda(\lambda^4-10\lambda^2+15)$	$28\lambda^2(\lambda^4-15\lambda^2+45)$
3	-1	-4λ	$-10(\lambda^2-1)$	$-20\lambda(\lambda^2-3)$	$-35(\lambda^4-6\lambda^2+3)$	$-56\lambda(\lambda^4-10\lambda^2+15)$
4		1	5λ	$15(\lambda^2-1)$	$35\lambda(\lambda^2-3)$	$70(\lambda^4-6\lambda^2+3)$
5			-1	-6λ	$-21(\lambda^2 1)$	$-56\lambda(\lambda^2-3)$
6				1	7λ	$28(\lambda^2-1)$
7					-1	-8λ
8						1

4. Táblázat.

$a_{\nu l}(\lambda)\mu_l$ **táblázata:**

ν	3	4	5	6	7	8
$l=0$	+2,1330	-6,2688	-16,8767	+73,3448	+137,4185	-850,5175
2	-3,0651	+6,2634	+19,9854	-77,6051	-121,2375	+889,4767
3	1	+4,0868	-0,4390	-39,9709	+76,0830	+323,3002
4	-	+1	-5,1085	+0,6585	+69,9491	-152,1660
5	-	-	-1	+6,1302	-0,9219	-111,9186
6	-	-	-	+1	-7,1519	+1,2292
7	-	-	-	-	-1	+8,1736
8	-	-	-	-	-	+1

5. Táblázat.

ν	3	4	5	6	7	8
$l=0$	+2,1330	-6,2688	-16,8767	+73,3448	+137,4185	-850,5175
2	-6,2338	+12,7385	+40,6463	-157,8332	-246,5728	+1809,0177
3	+3,7975	-15,5196	+1,6671	+151,7894	-288,9252	-1227,7325
4	-	+8,8119	-45,0155	+5,8026	+616,3844	-1340,8715
5	-	-	+20,1213	-123,3476	+18,5498	+2251,9477
6	-	-	-	+50,0326	-357,8281	+61,5001
7	-	-	-	-	+123,8291	-1012,1295
8	-	-	-	-	-	+317,7230
Össz.	-0,3033	-0,2380	-0,5423	-0,2114	+2,8557	+8,9375

Az együtthatók számitása ezután a táblázat utólsó sorában lévő összegeket felhasználva, az $\frac{1}{\nu!(\sqrt{2})^{\nu}}$ faktorok figyelembevételével könnyen elvégezhető.

Felhasználásukkal hét tagig kiirható az eloszlás Bruns sora:

$$B(x) = \phi(x) + \frac{1}{\sqrt{\pi}} e^{-x^2} [-0,01787\ p_2(x) - 0,002479\ p_3(x) + 0,000789\ p_4(x) \qquad /4/$$
$$- 0,0000367\ p_5(x) + 0,00005008\ p_6(x) + 0,0000138\ p_7(x)] .$$

"Hermite" polinomok:

$$p_2(x) = 4x^2 - 2$$

$$p_3(x) = 8x^3 + 12x$$

$$p_4(x) = 16x^4 - 48x^2 + 12$$

$$p_5(x) = -32x^5 + 160x^3 - 120x$$

$$p_6(x) = 64x^6 - 480x^4 + 720x^2 - 120$$

$$p_7(x) = -128x^7 + 1344x^5 + 1680x$$

A következő táblázatok az ábrázoláshoz, ill. az ötödik tagig menő korrekciók megállapitásához tartoznak:

6. Táblázat.

Értéktáblázat $B(x)$ ábrázolásához.

x	$\sqrt{2}.x$	$\varphi(\sqrt{2}.x)$	$\frac{1}{\sqrt{\pi}}.e^{-x^2}$ / $\sqrt{2}.\varphi(\sqrt{2}.x)$
-1,15	-1,6269	0,1074	0,1519
-0,62	-0,8768	0,2709	0,3831
-0,09	-0,1272	0,3956	0,5594
0,45	0,6363	0,3251	0,4597
0,98	1,3859	0,1539	0,2176
1,51	2,1354	0,0149	0,0202
2,04	2,8849	0,0069	0,0089
2,57	3,6345	0,0006	0,0008

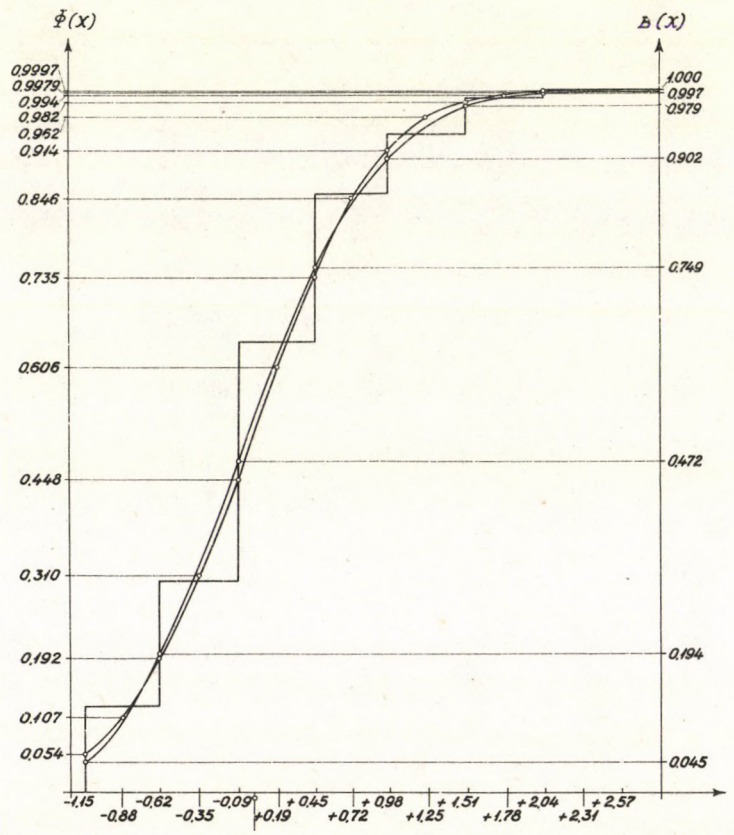
7. Táblázat.

$\phi(x) = \phi^x(\sqrt{2x})$

x	$\sqrt{2x}$	$\phi(x)$
-1,15	-1,61	0,0537
-0,62	-0,87	0,1922
-0,09	-0,13	0,4483
+0,45	0,63	0,7357
++0,98	1,37	0,9147
+1,51	2,11	0,9829
+2,04	2,86	0,9979
+2,57	3,60	0,9997

$\phi(-x) = 1 - \phi(x)$

$\phi(x) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-u^2} du + \frac{1}{2}$



1. ábra. Eruptiv kőzetekből fakadó vizek urántartalmának statisztikus vizsgálata; szignifikáns eltérések keresése Bruns sorral.

8. Táblázat.

x	$\phi(x)$	$\frac{1}{\sqrt{2\pi}}e^{-x^2}$	$p_2(x)$	$-0,0179$ p_2	$p_3(x)$	$-0,00248$ p_3	$p_4(x)$	$0,000759$ p_4	$p_5(x)$	$-0,0000367$ p_5	Korrekció	$B(x)$
-1,15	0,0537	0,1519	+3,2900	-0,0589	-1,6336	+0,0041	-23,1976	-0,0185	-40,9696	+0,0150	-0,0089	0,0448
-0,62	0,1922	0,3831	-0,4624	+0,008277	-5,5336	+0,0137	-4,0880	-0,0032	+39,2000	-0,0143	+0,0017	0,1939
-0,09	0,4483	0,5594	-1,9676	+0,0352	-1,0744	+0,0027	-11,6123	+0,0092	+10,6835	-0,0039	+0,0242	0,4725
0,45	0,7357	0,4597	-1,1900	+0,0213	+4,3068	-0,0107	+2,9344	+0,0023	-40,0128	+0,0147	+0,0138	0,7495
0,98	0,9147	0,2176	+1,8416	-0,0330	+4,2303	-0,0105	-19,3424	-0,0153	+4,0704	-0,0015	-0,0131	0,9016
1,51	0,9829	0,0202	+7,1204	-0,1276	-9,4232	+0,0234	-14,2640	-0,0113	+118,4576	-0,0435	-0,0032	0,9797
2,04	0,9979	0,0089	+14,6464	-0,2622	-43,4376	+0,1077	+89,3439	+0,0705	-17,0175	+0,0062	-0,0007	0,9972
2,57	0,9997	0,0008	+24,4196	-0 4371	-104,9568	+0,2603	+392,9568	+0,3100	-1180,1440	+0,4331	+0,0003	1

Ha az egyébként vizsgált talajfajták és vizminták közül egy erősebb a priori aszimmetriát tartalmazó csoportot, pl. az üledékes kőzetek esetét tekintjük, a normálistól való eltérés már számottevőbb. Magyarázatával más helyen részletesen foglalkozunk [1], [2].

Alapadatok:

9. Táblázat.

Abszc.	-2,45	-1,75	-1,05	-0,35	+0,35	+1,05	+1,75	+2,45
m_κ gyak.	5	4	14	21	31	64	6	1
m_κ/m	0,04	0,03	0,10	0,14	0,21	0,43	0,04	0,01
$\frac{a_\kappa - \alpha}{\sigma\sqrt{2}}$	-1,91	-1,43	-0,95	-0,47	0,01	0,49	0,97	1,45

Alaposztás 0,70

Transzformált osztás: 0,48

$m = 146$

Közép: $\alpha = \frac{\sum_{\kappa=1}^{8} a_\kappa \cdot m_\kappa}{146} = \underline{+0,34;}$ $\qquad \sigma^2 = M_2^0 - \alpha^2;$

Szórás: $\sigma^2 = \sum_{\kappa=1}^{8} \frac{m_\kappa}{m} (a_\kappa - \alpha)^2 = \underline{1,04;}$ $\sigma^2 = \Sigma p_n (x_n - \alpha)^2;$

A Bruns sor tekintett szelete:

$$B(x) = \phi(x) + \frac{1}{\pi} e^{-x^2} [0,05481\ p_2(x) + 0,001747\ p_3(x) - 0,005359\ p_4(x) + 0,0000845\ p_5(x)] \qquad /5/$$

A számitásokat és az ábrázolást elvégezve korrekciók általában a második tizedesben szerepelnek.

b/ Jelölje k a vizsgált adathalmazon belül az intervallumok számát, m_k a gyakoriságot, q_k a megfelelő valószinüséget, legyen: $m = m_1 + m_2 + \ldots + m_k$; valamint ha elfogadjuk azt a konvenciót, hogy az empirikus és teoretikus eloszlások közötti akkor van illeszkedés, ha:

$$\chi^2 = \sum_{l=1}^{k} \frac{m_l^2}{m \cdot q_l} - m$$

a $(k-1) \pm 0,674.\sqrt{2.(k-1)}$ határok közé esik [4], akkor saját eloszlásainknál a következő számszerü eredményeket kapjuk!

Az eruptiv kőzetekre vonatkozó eloszlásnál:

$$4,48 < \chi^2 \text{ elméleti } < 9,52$$

a nyers adatok alapján: $\chi^2 = 2,90$

Bruns sorral korrigálva: $\chi^2 = 4,41$

Üledékes kőzeteknél:

$$3,66 < X^2 \text{ elméleti } < 8,34$$

a nyers adatok alapján:	$X^2 = 18,39$
Bruns sorral korrigálva:	$X^2 = 12,52$

I r o d a l o m

[1] *Szalay S. - Scherf E.:* ATOMKI Közlemények *2*/1960/. 71. old.

[2] *Scherf E. - Meszéna Gy.:* ATOMKI Közlemények *2*/1960/. 109. old.

[3] *H. Grassberger:* Die Wasserwirtschaft. *17-19*/1933/235.

[4] *R. v. Mises:* Vorlesungen aus dem Gebiete der angewandten Mathematik. Fraz Deuticke, Leipzig und Wien, 1931.

MATEMATIKAI-STATISZTIKAI VIZSGÁLATOK A TERMÉSZETES VIZEK URÁNBAN VALÓ FELDUSULÁSÁNAK FIZIKAI FELTÉTELEIRŐL

Scherf Emil és Meszéna György

A tapasztalat tanusága szerint, a talajban szivárgó vizekben található urán koncentráció és a vizsgált anyag szemcsézettségéből adódó hatásos belső felület (m^2/m^3) között, szoros kapcsolat figyelhető meg. Ennek az összefüggésnek a számszerü vizsgálatát, az "uranium-background" fogalmának további finomitását, valamint a vonatkozó irodalom áttekintését tartalmazza az alábbi közlemény.

A. Bevezetés.

A Tokaji-hegység egész területére kiterjedő első geokémiai tanulmányban egyikünk *Szalay Sándor* akadémikussal a természetes vizek uránnyom-tartalmát vizsgálta [1]. A munka eredménye a következőkben foglalható össze:

a./ A vizek uránnyomtartalma γ/l-egységekben megadva földtani szempontok szerint 8 csoportba volt eloszthatő. A csoportokon belül az uráneloszlás részben szimmetrikus, részben aszimmetrikus alaku, általában a normális eloszlással jól közelithető eloszlás.

b./ Az U-tartalmak eloszlása logaritmikus, ami annak a jelenségnek a következménye, hogy a viz munkája következtében történő kőzetelaprózódásnál a keletkező üledék szemcsenagyság logaritmusának az eloszlása Gauss-eloszlásnak felel meg, amint azt *Grassberger H.* osztrák mérnök már negyedszázaddal ezelőtt megállapitotta [2]. A kioldott uránmennyiség ugyanis egyenesen arányos az oldó vizzel érintkező kőzet-szemcséken alakuló összes belső felülettel. Ebből következik, hogy az oldódó U-mennyiség eloszlása is leképezi a szemcseeloszlás logaritmikus eloszlását.

c./ Az uránásványok gyakorlati felkutatásánál is fontos un. "urán-háttér /"uranium-background"/ definiciója szerint tulajdonképpen egy bizonyos terület kőzeteiben közel azonos mennyiségben egyenletesen elosztva képzelt uránnyomtartalom oldódásából származó U-tartalmat jelent a vizekben. Az előbb felsorolt okokból az U-nyomoknak az anyakőzetekben való ilyen ideálisan egyenletes eloszlá-

sánál, a rajtuk átszivárgó vizek különböző mennyiségü uránt oldhatnak fel a belső felület különböző nagysága szerint. Finomabb szemcsézettségü, azaz nagyobb belső felülettel biró kőzetekben szivárgó vizekben várhatunk elsősorban bizonyos viszonylagos U-feldusulást, magasabb "back-ground"-ot anélkül, hogy ez még uránásványok valóságos feldusulását jelezné.

A bevezető közlemény [1] a számszerü kisérleti eredményekből levonható következtetéseket csak általánosságban tárgyalta.

Mostani második tanulmányunk célja a kisérletileg megállapitott urántartalom-eloszlások részletes matematikai-statisztikai vizsgálata a két fizikai paraméter: uránoldódás és anyakőzet belső felülete között sejtett funkcionális összefüggés számszerü felderitésére.

Ezáltal az "uranium-background" fogalmának mindmáig kissé határozatlan megállapitása is szabatosabbá tehető.

B. A vizmintákban meghatározott urán-tartalmak részletes matematikai-statisztikai kiértékelése az anyakőzet minősége szerint.

Az ebben a fejezetben követett tárgyalási módhoz a következő megjegyzéseket kell füznünk.

1./ Az alábbi cikkünk az első bevezető közlemény közvetlen folytatásának tekintendő, mely azzal elválaszthatatlan egységet képez. Ennek megfelelően, ismétlések elkerülésére, kérjük az Olvasót, hogy a mérési anyag csoportositása és előkészitése dolgában nézze át az [1] közlemény "D" fejezetét. Ezzel kapcsolatban mostani cikkünkben a számtáblázatok számozása /az 5. sz.-tól kezdődően/ és az ábrák számozása /a 3. sz. ábrától kezdödően/ is folytatólagos.

Az első közleményben már kifejezésre jutott, hogy a 2. sz. rajzon feltüntetett "gyakoriságszázalék-görbék" közel "harang-alaku" görbék, melyeket matematikailag a Gauss-féle valószinüségi eloszlásokra vonatkozó kifejezésekkel jól lehet jellemezni. Ez vonatkozik e görbék integrálgörbéire is. /[1]-ben 1.sz. ábra./

Tudvalevőleg a Gauss-féle függvényt, illetőleg annak integrálfunkcióját általános alakjukban a következőképpen irhatjuk:

$$\text{Sürüség függvény: } f(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{/x-\mu/^2}{2\sigma^2}} \qquad /1/$$

$$\text{Eloszlás függvény: } F(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{x} e^{-\frac{/t-\mu/^2}{2\sigma^2}} dt \qquad /2/$$

ahol: σ = az eloszlás szórása,

μ = egy-egy csoporton belül, megfelelően számitott középérték.

Erre vonatkozólag szeretnénk megjegyezni a következőket:

Szimmetrikus esetekben, μ mint az összes mérések számtani közepe, egyuttal az eloszlás legvalószinübb középértéke is. Aszimmetrikus esetekben, mint

amilyenek a mi összes vizvizsgálati csoportjaink is, már nem a számtani közép a legvalószinübb középérték, hanem ennek helyébe az un. "sürüségi középérték" lép. Ez x-nek, illetőleg $\log x$-nek az a számértéke, mely az egész eloszlási sorozatban a legtöbbször fordul elő, amely köré tehát a mért x /illetőleg $\log x$/ - értékek sürüsödnek. Ezt a középértékfajtát d-vel szokás jelölni és a fenti képletekben ez a mértékszám lép a μ helyébe. A d azonban csak körülményes számitással és csupán kis pontossággal határozható meg. Azonkivül az eloszlásra kevésbé jellemző szélső értékek d számszerü nagyságát még eléggé befolyásolják. Ezért gyakorlati, különösen pedig közelitésszámba menő számitásoknál harmadik fajta középérték használata terjedt el, mely nagyságra nézve a számtani és a sürüségi középérték közé esik. Ez az un. "centrális", vagy a ma szokásos szóhasználat szerint: "medián"-középérték. A következőkben ennek megfelelően m betüvel jelöljük. Jelenti azt az x /illetőleg $\log x$/-értéket, mely az eloszlási sorozat közepén áll, s igy tőle jobbra-balra ugyanannyi darabszámu /nem nagyságu!/ egyes mérés áll. Az m értéke tehát egyenlő az 50 % gyakoriság-ordinátának megfelelő abszcissza-értékkel. Ennek a középérték-fajtának nagy előnye a könnyü meghatározhatóság és az a tény, hogy nagyságát lényegesen csak a vele szomszédos értékek, az eloszlás végén jelentkező szélsőséges értékek pedig alig befolyásolják. Ezért eloszlásaink kiértékelésénél, *Grassberger H.* osztrák mérnök eljárása [2] szerint mi is ezt a fajta középértéket fogjuk használni.

A vázolt összefüggések alkalmazásával most már szigoru számszerü alapon vizsgálhatjuk azt az érdekes kérdést, hogy az első közlemény [1] szerint felállitott vizsgálati csoportjainkban az urántartalom logaritmusa mennyire közeliti meg a Gauss-eloszlást? Mennyiségileg is alátámasztódik-e az első közleményben még csak inkább munkahipotéziskent felállitott nézet, hogy az anyakőzet fizikai szerkezete és a benne köröző vizek urántartalma között szoros, eddig még nem ismert törvényszerü összefüggés áll fenn?

Legegyszerübb módszerként kinálkozott, minden csoportra nézve a tapasztalatilag megállapitott medián-középértékkel és szórással szabályos Gauss-eloszlást számitani és azt a 2. ábrán a kisérletileg megállapitott és interpolált értékek görbéjével együtt feltüntetni. Azonban kitünt, hogy ily módon eljárva némelyik csoportnál egymáshoz annyira simuló görbéket kapnánk, hogy rajzuk áttekinthetetlen módon összefolyt volna. Azért *Hazen Allen* mérnök ábrázolási módjához folyamodtunk [3]; /részletesen ismertetve *Rényi A.* kézikönyvében [4], v.ö. a 390. old. után következő grafikonmellékletet és annak magyarázatát, továbbá *Weber E.* munkájában [5], 112-113. old. és 48. sz. ábra./ *Hazen* koordinátarendszerében az abszcisszát változatlan alaposztásával tartja meg, az összegszázalékok ordinátaskáláját pedig ugy transzformálja, hogy többé nem egyenletes osztásu, hanem uj osztása egy $\sigma = 1$ szárásu és 0 középértékü[1], vagyis a "standard"-Gauss-féle függvény inverz függvénye ordinátáinak felel meg, melyek az irodalomban kiszámitva rendelkezésre állnak. Az ábrázolási mód érzékenységét egyrészt kb. 10 %-on alul, másrészt 90 %-on felül reálisan csak lényegesen nagyobb számu minta esetében lehetett volna kihasználni. A 3-5. sz. ábrákon a görbék meghosszabbitása ezeken az y %-értékeken tul csak a teljesség kedvéért történt.

[1] *Hazen* azonban egyúttal az abszcisszán a középértéket a nulláról az 50 %-os ordinátának megfelelő abszcissza értékre tolja el.

A Hazen-féle koordinátarendszerben az: $u = \frac{x - \mu}{\sigma}$

összefüggés linearitása miatt nemcsak a $\sigma = 1$, hanem minden más szórásu Gauss eloszlás is, függetlenül a használt középértékfajtától, egyenes képét adja. A kis szórásu görbék mint meredeken emelkedő egyenesek, a nagyobb σ-val birók pedig, mint lankásabban emelkedő egyenesek haladnak a kezdőponttól a végpont felé.

A 3-5. sz. ábrákon jeleztük:

1./ A Hazen-féle egyenest, mely az előzőek szerint a normális eloszlás összeggörbéjének felel meg. Az egyenes megszerkesztésére az $y = 15,87$ % és $y = 84,13$ % ordinátának megfelelő $log\ x$ abszcissza-értékek szolgáltak. Ezeket a 3-5. sz. ábrák abszcissza-tengelyén is jeleztük. E pontok kiváltságos szerepét az szabja meg, hogy az $y = 15,87$ % ordináta a standard-Gauss görbe $u = -1,0$ számértékének, az $y = 84,13$ % ordináta pedig az $u = +1,0$ értéknek felel meg. A Hazen-féle transzformációnál az $y = 50$ %-nak megfelelő $log\ m$ is a Hazen-egyenesen fekszik, a fent jelzett kitüntetett pontokat összekötő egyenesnek éppen a felezőpontján. Ezt is feltüntettük a grafikonokban, a csoport római számát, mint indexet irva az m mellé.

2./ Éppen ugy, mint a 2. sz. ábrán [1], folytonos vonallal összekötött fekete pontok jelzik a kisérletileg talált, illetőleg interpolációval megállapitott y gyakoriságszázalékokat. Ezeket az értékszámokat a /első közleményben/ közölt módon az 1. sz. ábra [1] grafikusan kiegyenlitett összegszázalékaiból vezettük le. Mint a 2. sz. ábrán [1], itt is aláhuzott %-számokkal különböztettük meg az eredeti fokozatoknak megfelelő Σ%-okat az interpolációs Σ%-értékektől.

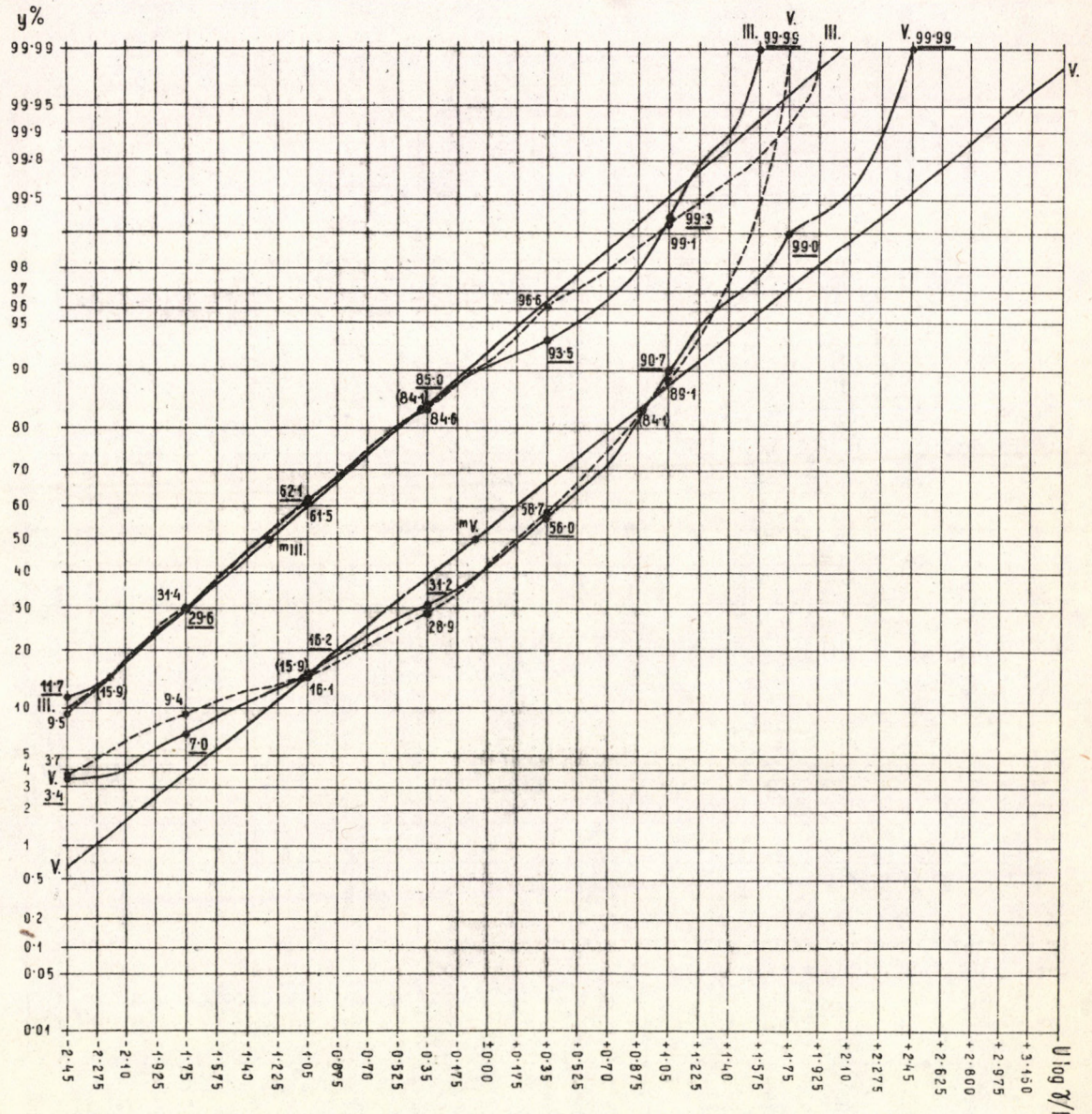
3./ A grafikonokon látható szaggatott vonalu görbék egy *Grassberger H.* [2] osztrák mérnök eljárása szerint végzett számitás eredményét tüntetik fel, mellyel "aszimmetriás Gauss-eloszlások" összegszázalék-értékeit közelitő pontossággal le lehet vezetni.

A 3. sz. ábra a III. és V. vizvizsgálati csoport értékeit, a 4. sz. ábra az I. és VI. csoport értékeit, az 5. sz. ábra pedig a IV. és VIII. csoport elemzéseinek eredményét érzékelteti Hazen-ábrázolásában. A választott párositásnak nincsen más oka, mint az, hogy igyekeztünk egy-egy ábránkon olyan görbéket feltüntetni, amelyeknek menete egymástól lehetőleg eltér és igy a rajzon nem zavarják egymást.

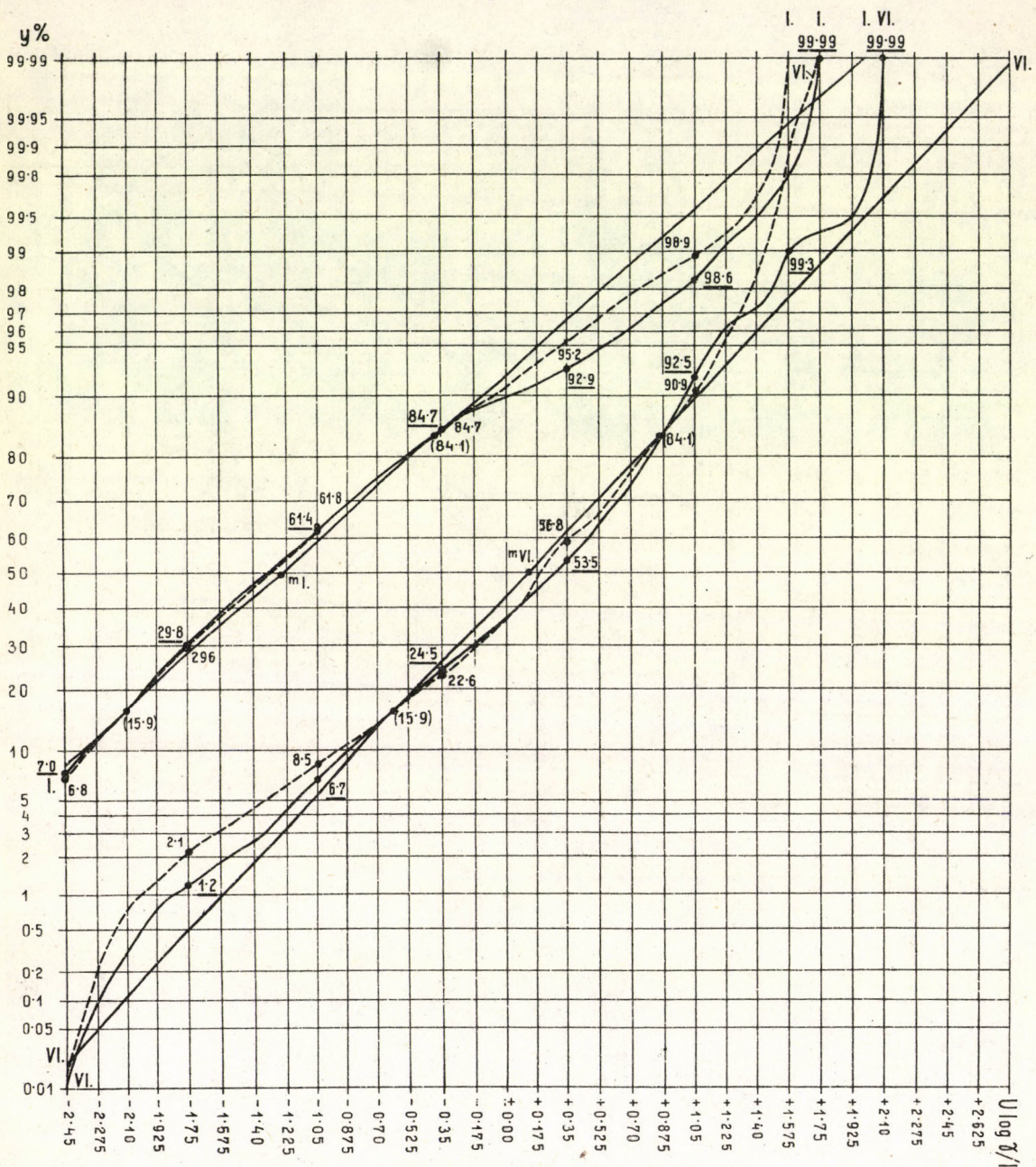
A II. vizcsoport elemzési eredményeit nem tartottuk szükségesnek Gauss-papiron is ábrázolni, mert ez a görbe szorosan együtthalad az I. és III. csoport görbéivel [1].

Hasonlóképpen nem látszott érdemesnek a VII. csoport /holocén + pleisztocén + pannon rétegek vizeinek kevert csoportja/ adatait Gauss-papiron feltüntetni. E csoport gyakoriságszázalékgörbéje igen közel azonos menetü az V. csoportéval /összes üledék vizei/ és az aszimmetriájára vonatkozó megfontolásainkhoz nem volt szükség a Hazen-féle ábrázolási módra.

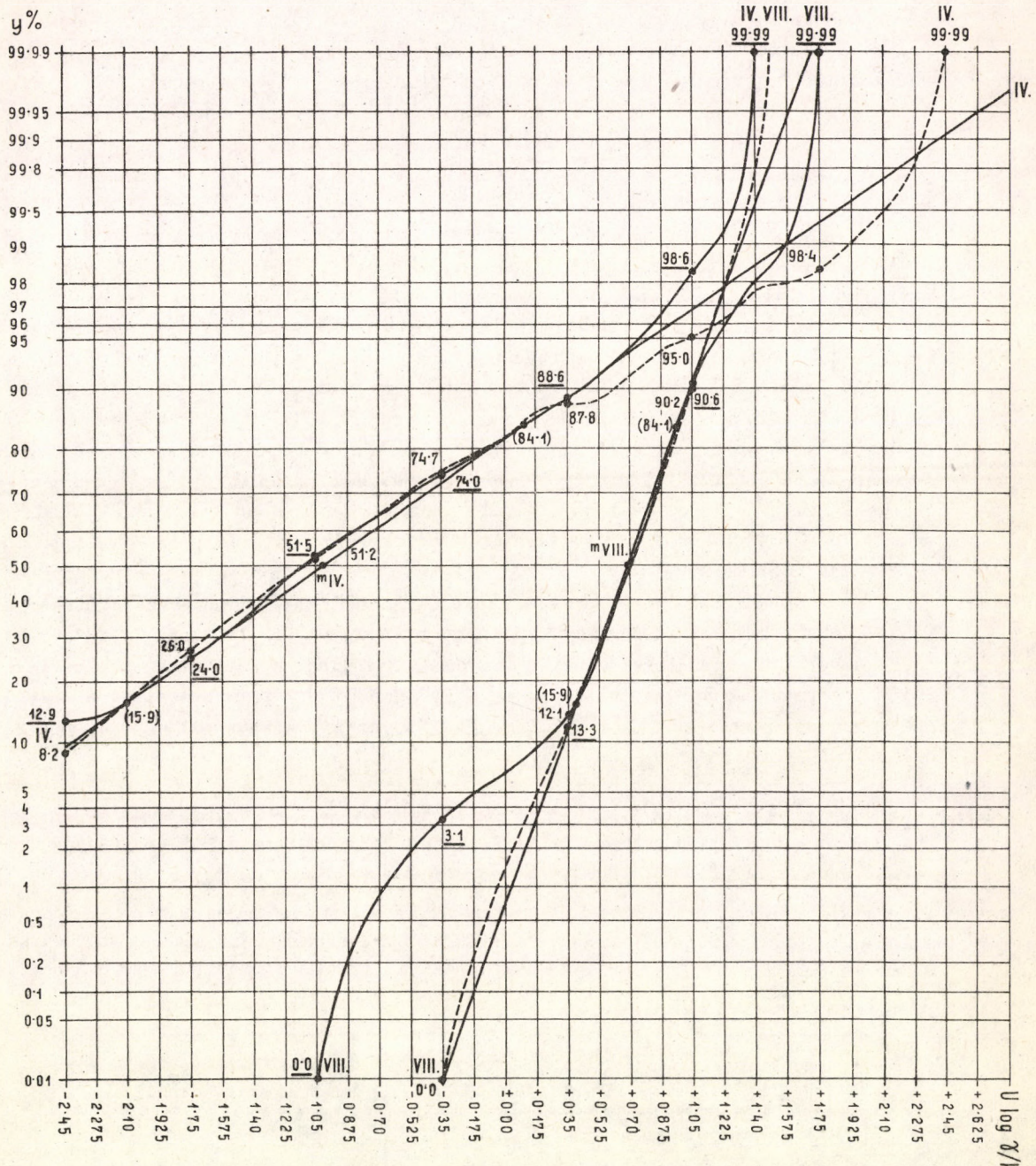
A kisérleti anyagnak Gauss-papiron való ábrázolása természetesen nem hozott semmiféle változást abban a félkvantitativ matematikai-statisztikai kiértékelésben és magyarázatában, melyet *Scherf* és *Szalay* már az első közlemény D. és E. fejezetében adtak. A Gauss-papiron azonban az irányadó intervallumban /$y = 15,87$ és $84,13$ gyakoriságszázalék között/ még határozottabban tünik ki az I., III.,



3. ábra. A III. csoport /anyakőzet: összes eruptivum, riolittufával együtt/ és V.csoport /anyakőzet: összes üledék/ vizeinek urántartalma Gauss-hálózatban.



4. ábra. Az I. csoport /anyakőzet: riolittufa/ és VI. csoport /anyakőzet: holocén + pleisztocén üledék együtt/ vizeinek urántartalma Gauss-hálózatban.



5. ábra. A IV. csoport /anyakőzet: szarmata üledék/ és VIII. csoport /anyakőzet: pannon üledék/ vizeinek urántartalma Gauss-hálózatban.

IV. és VIII. csoport eloszlásainak közel szimmetrikus és normális volta, mint a 2. sz. ábrán[2] [1]. Ezzel szemben az V. és VI. csoport gyakoriságszázalékgörbéinek lényeges aszimmetriája a Gauss-hálózatban való ábrázolásnál a kisérleti adatok görbéjének iveltségében mutatkozik. A Hazen-egyenestől való eltérés a medián érték /"m"/ táján a legnagyobb, az y = 15,87 és y = 84,13 gyakoriságszázalékoknál pedig nulla, mert a Hazen-egyenes szerkesztésére éppen ezeket a kisérleti pontokat használtuk. Minthogy az V. és VI. eloszlás kisérletileg megállapitott centrális értéke kisebb az y = 50 %-os gyakoriságnál az eloszlásoknak megfelelő görbék középső része a Hazen-egyenes alá esik és feléje homoruan ivelt.

Felmerül a kérdés, hogyan közelithetők meg a "lényeges" aszimmetriát mutató görbék számitással?

Az erre vonatkozó kisérletek még abba az időbe nyulnak vissza, mikor a valószinüségszámitás alapjait lerakták. *Fechner* elődje ezekben a vizsgálatokban: *Quetelet L. A.* [6] még azon a nézeten volt, hogy lényegesen aszimmetrikus görbéknél is a számtani középérték a legvalószinübb középérték. *Fechner* ezt munkájában [7] helyesbitette, kimutatva azt, hogy ilyen esetben a Gauss-függvényben szereplő számtani középértéket a "sürüségi" középértékkel kell helyettesiteni, amelyről az előzőekben már volt szó és "d"-vel jelöltük. Ez a középérték az aszimmetrikus gyakoriságszázalékgörbét egy emelkedő és egy leszálló ágra osztja. *Fechner* feltevése szerint mindegyik ágban a sürüségi középtől való eltérés Gauss-féle valószinüségi eloszlást követ, mely azonban a két ágban különböző; /különböző σ/. Kétségtelen, hogy aszimmetrikus görbéinket /V., VI. és VII./ ilyen módon számitással jól megközelithetnénk. Kisérletet erre nézve azonban nem végeztünk.

*Fechner*nek ez a kisérlete, hogy aszimmetrikus eloszlásokat "kétrészes Gauss-görbék"-kel számitson, a gyakorlatban nem terjedt el. Ennek az az oka, hogy a szakemberek a matematikai statisztika rohamos fejlődése, teljesen uj eloszlásfajták felfedezése idején tul merevnek találták a *Fechner*-féle számitási módszernek a Gauss-függvényhez való kötöttségét. Hangoztatták, nem arra van szükség,

---

[2] Az I., II., III., IV. és VIII. vizcsoport *Fechner G. T.* [7] értelmében vett "lényegtelen /véletlen/" aszimmetriájának és az V., VI. és VII. csoport "lényeges" aszimmetriájának fellépéséről és magyarázatáról lásd [1] E. fejezetét.

Ott már kifejezésre jutott, hogy az V. csoportban egyesitett heterogén vizadatok aszimmetriájában tulajdonképpen a VI. csoport aszimmetriája érvényesül, mert abból volt darabszámra és %-os mennyiségre nézve a legtöbb minta, a következő összeállitás szerint.

Vizfajta	Minták darabszáma	Minták %-a
Holocén-pleisztocén /VI. csoport/	82	56,5
Pannon /VIII. csoport/	31	21,2
Szarmata /IV. csoport/	29	20,2
Egyéb /permokarbon, krist.kőzet, stb./	3	2,1
Összesen:	145	100 %

hogy egy megfigyelt adott eloszlást valamely rögzitett Gauss-eloszláshoz több-kevesebb szerencsével illesszünk, hanem olyan módszert kell keresni, mely lehetővé teszi, hogy közvetlenül a megfigyelési anyagból kényszer nélkül megállapitsuk, melyik eloszlástipust közeliti meg legjobban.

Ugyanezen okból *Pearson K.* amerikai matematikusnak kétoldalasan aszimptotikusan az abszcisszához közeledő aszimmetrikus gyakoriságszázalékgörbék számára felállitott egyenlete [8] sem terjedt el a használatban.

Hasonló problémákat ma már sok szempontból igen célszerüen az MTA Matematikai Kutató Intézetében *Medgyessy Pál* által kidolgozott "Gauss-görbe analizissel" lehetne tárgyalni [29].

Az elméletileg kitüzött célt még jól közelitette meg *Bruns H.* eljárása [9] /részletesen tárgyalva *Mises R.* kézikönyvében [10]/. /v.ö. *Lipps G.F.* [11]./

Mérnökök már régen iparkodtak a természetben előforduló közel Gauss-tipusu eloszlások számitására egyszerübben kezelhető közelitő megoldásokat találni. Ilyen pl. a *Goodrich* által [12] Amerikában felállitott számitásra kényelmes logaritmusos közelités. /Ismertetve *Reinhold F.* által: [13]./ Az eljáráshoz simuló speciális koordinátarendszerben aszimmetrikus görbéket is lehet egyenesre transzformálni.

Mi az aszimmetrikus görbéink számitására, - tekintet nélkül az aszimmetria fokára - szintén egy kényelmes közelitő eljárást alkalmaztunk, mely *Grassberger H.* [2] osztrák vizépitő mérnöktől származik. Ennél a Bruns-sor korrektura tagjai közül a normális Gauss-eloszlásból számitott y% javitására csupán a normális kifejtésü Bruns-sor első tagját veszi *Grassberger* figyelembe. A 8 vizcsoportra nézve a tényleges meghatározások és számitások részletes, táblázatos feldolgozását a számanyag igen nagy terjedelme miatt nem közöljük, egyébként mindez lényegében 3-5. sz. ábra grafikonjainak felel meg.

Az 5. sz. táblázat összefoglalóan mutatja be, hogy a grafikus kiegyenlitéssel és az egyes számitási eljárásokkal milyen pontossággal közelitettük meg az eloszlások közvetlen meghatározott értékeit.

Ebből a táblázatból kitünik, hogy a munka elején alkalmazott grafikus kiegyenlités és a *Grassberger* szerint végzett korrektura valóban csökkentette az eltéréseket a meghatározott és a számitott %-ok között. Ez még világosabban kitünt volna, ha a táblázatba csupán a nagyobb aszimmetriát mutató V., VI. és VII. csoportra vonatkozó számokat vettük volna fel, hiszen a többi eloszlás még a Gauss-függvénnyel is jól megközelithető.

Kiegészitésképpen bemutatunk két összehasonlitó táblázatot /6. és 7. sz./, amelyben az aligaszimmetriás III. vizcsoporton /összes eruptivum riolit - tufával/ és az erősen aszimmetriás V. csoporton /összes üledék vizei/ a 7-ik, ill. 5-ik differenciálhányadosig vitt Bruns-sorral végzett számitások eredménye szembe van állitva a nyers kisérleti értékekkel, valamint a Gauss-függvénnyel és a Grassberger-féle közelitéssel számitott értékekkel.

A táblázatok némileg kedvezőtlenebb képet adnak a kibővitett Bruns-sorral végzett szabatosabb és a Grassberger-féle módon végrehajtott közelitő számitás egyezéséről, mint amilyen a valóság. Az elsőfajta számitásnál ugyanis az uránkoncentrációk nyers kisérleti értékei, a második fajtánál pedig a kiegyenlitett értékek szolgáltak alapul. Azonkivül a Bruns-féle számitásban használt σ nem azonos a Grassberger-közelitésben szereplő σ-val. A táblázatok utólsó oszlopaiban mutatkozó eltérések elsősorban innen származnak.

5. Táblázat.

A különböző módon számított és az empirikusan talált nyers, illetőleg kiegyenlitett összegszázalékok, valamint a gyakoriságszázalékok között fennálló eltérések.

Eltérés nagysága %	Esetek %-ában az összegszázalékoknál:					Esetek %-ában a gyakoriságszázalékoknál:				
	Kiegyenlitett -talált	Grassberger szerint számitott - talált	Grassberger szerint számitott -kiegyenlitett	Gauss szerint számitott -talált	Gauss szerint számitott -kiegyenlitett	Kiegyenlitett -talált	Grassberger szerint számitott - talált	Grassberger szerint számitott -kiegyenlitett	Gauss szerint számitott -talált	Gauss szerint számitott -kiegyenlitett
	52 eset	51 eset	52 eset	55 eset	55 eset	53 eset	55 eset	55 eset	56 eset	56 eset
0 - 0,5	57 %	35 %	40 %	26 %	24 %	34 %	15 %	18 %	7 %	7 %
0,5 - 1,0	12 % } 81 %	12 % } 57 %	16 % } 75 %	22 % } 64 %	27 % } 69 %	19 % } 68 %	9 % } 38 %	15 % } 49 %	16 % } 43 %	29 % } 47 %
1,0 - 2,0	12 %	10 %	19 %	16 %	18 %	15 %	14 %	16 %	20 %	11 %
2,0 - 3,0	6 %	13 %	15 %	7 %	9 %	10 %	14 %	27 %	18 %	28 %
3,0 - 5.0	11 % } 19 %	20 % } 43 %	10 % } 25 %	13 % } 36 %	15 % } 31 %	13 % } 32 %	24 % } 62 %	20 % } 51 %	14 % } 57 %	16 % } 53 %
>5.0	2 %	10 %	0 %	16 %	7 %	9 %	24 %	4 %	25 %	57 %
Összesen	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %

6. Táblázat.

Összehasonlító számitás a III. csoport /anyakőzet: összes eruptivum riolittufával/ vizeinek összegszázalékaira Bruns-sorral és a Grassberger-féle közelitéssel.

Felrakási érték log γ/lit U a vizben	Összegszázalékok: %				Összegszázalékkülönbség: Σ %		
	Talált /nyers/ érték	Gauss szerint számitott	Grassberger szerint számitott	Bruns szerint számitott	Grassberger számitott -talált	Bruns számitott -talált	Grassberger számitott -Bruns számitott
- 2,45	11,7	10,1	9,5	9,3	- 2,2	- 2,4	+ 0,2
- 1,75	29,6	30,7	31,4	31,2	+ 1,8	+ 1,6	+ 0,2
- 1,05	63,8	60,6	61,5	62,4	- 2,3	- 1,4	- 0,9
- 0,35	85,2	85,0	84,6	86,2	- 0,6	+ 1,0	- 1,6
+ 0,35	94,4	96,6	96,6	95,2	+ 2,2	+ 0,8	+ 1,4
+ 1,05	99,5	99,5	99,1	99,2	- 0,4	- 0,3	- 0,08
+ 1,75	100,0	99,96=100	100,0	99,98=100	-	+ 0,02	+ 0,02
+ 2,45	-	-	-	-	-	-	-

7. Táblázat.

Összehasonlító táblázat az V. csoport /anyakőzet: összes üledék/ vizeinek összegszázalékaira Bruns-sorral és a Grassberger-féle közelitéssel.

Felrakási érték log γ/lit U a vizben	Összegszázalékok: %				Összegszázalékkülönbség: Σ %		
	Talált /nyers/ érték	Gauss szerint számitott	Grassberger szerint számitott	Bruns szerint számitott	Grassberger számitott -talált	Bruns számitott -talált	Grassberger számitott -Bruns számitott
- 2,45	3,4	0,8	3,7	1,8	+ 0,3	- 1,6	+ 1,9
- 1,75	6,2	4,6	9,4	7,9	+ 3,2	+ 1,7	+ 1,5
- 1,05	15,8	16,5	16,1	19,5	+ 0,3	+ 3,7	- 3,4
- 0,35	30,2	37,0	28,9	31,0	- 1,3	+ 0,8	- 2,1
+ 0,35	51,4	67,2	58,7	57,0	+ 7,3	+ 5,6	+ 1,7
+ 1,05	95,2	87,6	89,1	84,6	- 6,1	- 10,6	+ 4,5
+ 1,75	99,3	96,9	100,0	97,0	+ 0,7	- 2,3	+ 3,0
+ 2,45	100,0	99,5	-	102,0=100	-	-	-

Az összehasonlitás azonban mindenesetre azt bizonyitja, hogy a könnyen és gyorsan elvégezhető Grassberger-féle számitást fokozottabb pontossági követelményeknél is nyugodtan használhatjuk a több tagu Bruns-sorral való nehézkes és hosszadalmas munka helyett.

C. A matematikai-statisztikai vizsgálat eredményének mennyiségi értelmezése.

Az első közleményben [1] egyikünk általánosságban megjelölte azt az összefüggést, amelynek a természetes vizek urán-koncentrációja és az anyakőzet szemcseszerkezeti felépitése között az oldás fizikai folyamatán keresztül szükségképpen fenn kell állnia. Ezt az összefüggést közelebbről idáig még senki sem kutatta.

Saját munkánk értelmezésénél az elvi nehézség természetesen az, hogy saját kisérleti számértékeink a tanulmányozandó összefüggésnek csak az egyik változójára nézve, t.i. az uránkoncentrációkra nézve vannak. Segitségünkre jön azonban az a tény, hogy az oldási folyamatot szabályozó tényezők másik csoportját, t.i. a szivárgó viz utját és sebességét az anyakőzet szerkezetének függvényeként, e kérdés fontos mezőgazdasági és mérnöki vonatkozásai miatt már majdnem négy évtizeddel ezelőtt mind elméletileg, mind kisérletileg igen alaposan tanulmányozták. Ezeket az eredményeket tehát deduktiv módon közvetlen kapcsolatba hozhattuk saját kisérleti eredményeinkkel.

Előljáróban a fejtegetéseinkben szereplő fizikai fogalmak definicióját, betűjelzéseit és dimenzióit adjuk a CGS- és egy célszerüen választott gyakorlati müszaki rendszerben /8. sz. táblázat/.

Ez nemcsak a használt fizikai fogalmak szabatos és félreérthetetlen rögzitése céljából szükséges, hanem azért is, mert különböző szerzők a vizmozgásra vonatkozó lényegileg azonos, de különböző alaku képletekben ugyanazt a betűjelzést, pl. a szokásos "c" betüt nem azonos értelmü konstansokra alkalmazták. Az is előfordul, hogy ugyanez a szerző különböző időben irt cikkeiben az ugyanabban a törvényben szereplő tényezőket eltérő módon vonja össze egyetlen állandóba, anélkül, hogy ez a betűjelzésben feltünően kifejezésre jutna. 8. sz. táblázatunk tehát egyuttal megkönnyiti az alapvető irodalomban való tájékozódást[3].

Fejtegetéseink középpontjában fontos fizikai fogalom áll, melyet *Krüger*

---

[3] Az alapvető irodalomban néhány szövegezési és sajtó hiba is előfordul. Az ilyenekre szükség esetén külön figyelmeztetünk.

Saját betűjelzéseinknél lehetőleg az alapvető munkák /*Kozeny*, *Grassberger* és *Donat* cikkeinek/ jelzéseihez alkalmazkodtunk. Ettől az elvtől néha el kellett térnünk. Az osztrák kutatók pl. a "belső felület" fizikai fogalmát mindig a német "Oberfläche" szó kezdőbetűjével jelölik. Mi ehelyett a nemzetközibb latin szó: "superficies" kezdőbetűjét, "*S*"-et használjuk. A γ-betű saját munkánkban az uránkoncentrációt jelöli mikrogrammban. Ezért a Kozeny-képletekben a fajsúly jelölésére ρ helyett ρ_f-et irunk. A hézagtérfogatot *Kozeny* hol μ-vel, hol p-vel jelöli. Az utóbbit használja *Donat* is. Mi a μ jelnél maradtunk, mert p-vel a fizikában inkább nyomást szoktak jelölni.

A "B" fejezetben az ott közölt Gauss-görbék egyenleteiben néhány betűt a fentitől eltérő értelemben használtunk, ami azonban tévedésre nem adhat alkalmat.

8. Táblázat.

Fizikai paraméterek dimenziói és jelzései.

A. Fizikai alap-parameterek.		
A parameter megnevezése és jelzése	[CGS]-dimenziója	A munkában használt gyakorlati dimenziója
Hosszegység /centiméter/: cm	[cm]	[méter]
Tömegegység /gramm/: g	[g]	γ=[10.$^{-6}$g]/mikrogramm/
Időegység /secundum/: sec	[sec]	[———]
Felületegység: cm^2	[cm^2]	[méter^2]
Térfogategység: cm^3	[cm^3]	[méter^3] és [liter]
Abszolut sürüség: ρ	$\frac{g}{cm^3}$	[———]
Fajsuly: (ρgrav)ρ_f	$\frac{g}{cm^2 . sec^2}$	[———]
Hatásos szemcseátmérő: d	[cm]	[mm] /milliméter/
Statisztikus eloszlások szórása: σ	[—]	[———]
Koncentráció /uránra/: m	$\left[\frac{g}{cm^3}\right]$	$\frac{\gamma}{lit} = \left[10^{-9} . \frac{g}{cm^3}\right]$
Dinamikus viszkozitás: η	$\left[\frac{g}{cm. sec}\right]$	[———]
Kinematikus viszkozitás: $\nu = \frac{\eta}{\rho}$	$\left[\frac{cm^2}{sec}\right]$	[———]
Fluiditás: $\frac{1}{\nu}$	$\left[\frac{sec}{cm^2}\right]$	[———]
Hézagarányszám = $\frac{\text{Hézagtérfogat}}{\text{Össztérfogat}} : \left[\frac{cm^3}{cm^3}\right] = \mu$	[—]	[———]
Hidraulikus esés = $\frac{\text{Nyomáskülönbség}}{\text{Szürőréteghossz}} : \left[\frac{cm}{cm}\right] = J$	[—]	[———]
Szivárgó viz sebessége: u	$\left[\frac{cm}{sec}\right]$	[———]
Vizáteresztési tényező /=szivárgó viz sebessége J = 1 hidraulikus esésnél/: k	$\left[\frac{cm}{sec}\right]$	[———]

B. Fontosabb levezetett fizikai parameterek.

A parameter megnevezése és jelzése	[CGS]-dimenziója	A munkában használt gyakorlati dimenziója
Hatásos belső felület = $\left[\frac{cm^2}{cm^3}\right]$ = $\frac{\text{Talajdiszperzió szemcséinek összfelülete}}{\text{Talajdiszperzió térfogategysége}}$: S	$\left[\frac{1}{cm}\right]$	$\left[\frac{1}{méter}\right]$
Gauss-eloszlásnak tekintett sulyszerinti szemcseeloszlási összeggörbék /medián-/ centrális értéke: M	$[cm]$	$[mm]$ /milliméter/
A talajdiszperziók belső felületének a szemcseeloszlás centrális értékétül függő része: $S_1 = \frac{1}{M}$	$\left[\frac{1}{cm}\right]$	$\left[\frac{1}{méter}\right]$ és $\left[\frac{1}{mm}\right]$
A szemcseeloszlási görbe aszimmetriájának mértéke : az összeggörbe centrális értékének /M-nek/ megfelelő gyakoriság százalékok eltérése az 50 %-tól /az egység hányadaként megadva/: Δ_0		
A Kozeny-törvény különböző alakjában szereplő forma-állandók: c_1, c_2, c_3		
Az uránra vonatkoztatott fajlagos oldékonysági együttható: $\frac{\text{uránkoncentráció}}{\text{hatásos belső felület}}$ $K = \frac{m}{S}$	$\left[\frac{g}{cm^2}\right]$	$\left[\frac{\gamma}{lit}.m^2\right] = \left[10^{-7}.\frac{g}{cm^2}\right] = \left[10^{-3}.\frac{g}{m^2}\right]$
A Grassberger-képletben szereplő formatényező: $A = a/1-\mu/$		
A Grassberger-képletben szereplő formaállandó: a		
A hézagarányszámtól /μ/, vizáteresztési tényezőtől /k/ és a hatásos szemcseátmérőtől/d/ függő állandó a Donat-féle képletekben: β		$[cm^{-1}.sec^{-1}]$
$/\beta = k.\frac{/1-\mu/^2}{\mu^3}.\frac{1}{d^2} = \frac{\rho_f}{\eta}.\frac{1}{c_3}.\frac{1}{36/1-\mu/^2}/$		
A belső felület /S/ négyzetével és a vizáteresztési tényezővel /k/ arányos együttható, mely a talajszemcséken bekövetkező uránoldódás sebességét jellemzi: b		$\left[\frac{1}{cm.sec}\right] = \left[\left(\frac{1}{cm}\right)^2.\frac{cm}{sec}\right]$
$/b = k.S^2 = \frac{\rho_f}{\eta}.c_2.\mu^3 = \frac{\rho_f}{\eta}.\frac{1}{c_3}.\frac{1}{36/1-\mu/^2} = \frac{k}{K}.m^2/$		
A szivárgó vizben keletkező uránkoncentráció négyzetével /m^2/ és a vizáteresztési tényezővel /k/ egyenesen arányos együttható, mely a vizben történő uránkoncentrálódás sebességét jellemzi. q		$\left[\frac{g^2}{cm^5.sec}\right] = \left[\left(\frac{g}{cm^3}\right)^2.\frac{cm}{sec}\right]$
$/q = b.K^2 = k.m^2 = \frac{\rho_f}{\eta}.c_2.\mu^3.K^2/$		

E. [14] vezetett be először a talajvizmozgás kutatásába. Ez a továbbiakban "S"-el jelölt arányszám a vizet tartalmazó réteg egységnyi térfogatában jelenlévő szemcsék összes felületét jelenti. Dimenziója a CGS-rendszerben $[cm^2/cm^3] = [1/cm]$. Minthogy *S* a talajszemcsék átmérőjének kisebbedésekor igen nagy értékre nő, a műszaki gyakorlatban inkább az [1/méter] dimenzióval szokták használni s részben mi is ezt a szokást követjük.

Az *S* értékszám minden olyan kémiai és fizikai folyamatnál döntő szerepet játszik, amely az anyag belső diszperziós fokától függ. Ilyen folyamat pl. a cement /beton/ hidraulikus megkeményedése /lekötése/, ilyen a vizmozgás sebessége az ipari szürőtechnikában és ilyen a bennünket érdeklő fizikai és kémiai folyamat is: az oldóhatást kifejtő viz szivárgásának sebessége az anyakőzetben és ezzel kapcsolatban jellemző uránkoncentrációk kialakulása a szivárgó vizben. Az *S* értékszámot e hatásai miatt: hatásos /aktiv/ belső felületnek szokták nevezni az irodalomban[4].

Céljainkra nem szükséges, hogy az *S* értékszám kisérleti és elméleti meghatározására kigondolt különböző módszereket részletesen tárgyaljuk. Később látni fogjuk, hogy *S* elsősorban a szemcsenagyság függvénye, mely az *S* értéket szabályozó második legfontosabb tényezővel, a szemcsék közti hézagtérfogattal is szoros összefüggésben áll. Ezért időrendileg is a kisérleti kutatómunka elsősorban ennek a függvénykapcsolatnak a számszerü megállapitására irányult. A mérési eredmények értelmezése a különböző szerzőknél abban különbözik, hogy milyen elméleti fizikai elgondolás szerint kisérelték meg a természetes talajoknak különböző átmérőjü szemcsékből változó keverékarányban felépitett rendszerét egy-egy esetben olyan monodiszperz elméleti eloszlással helyettesiteni, amelyben egyetlen egy"hatásos szemcseátmérő"szerepel[5]. Az összes mérési eredményekből kitünt, hogy a talajok diszperziójában a finomabb szemcsék százalékos aránya nagyobb mértékben befolyásolja a viz szürődésének a sebességét, mint a durvább szemcséké. Triviálisan kifejezve: a finomabb szemcsék eltömik a durvább szemcsék között fennmaradó hézagokat, még pedig ezeknek térbeli elhelyeződése szerint változó mértékben.

Kezdetben még az volt a nézet, hogy a természetes talajok szemcseösszetételi összeggörbéinek alakja[6] minden előforduló esetben annyira hasonló, hogy sikerül olyan két konvencionális összegszázalékértéket megadni, mely minden esetben alkalmas a "finom" és a "durva" frakcióösszegek szétválasztására egy-

---

[4] Hangsúlyozzuk, hogy a fent definiált *S* értékszámmal nem azonos a talajdiszperziókra nézve *Zunker F.* által [15] felállitott másik fizikai fogalom, a: "fajlagos belső felület". /V. ö. *Zunker F.* [15], *Densch A.* [16] és *Donat J.* [17]/. E szám ugyanis azt jelenti, hogy egy adott szürőréteg szemcséinek összfelülete hányszorta nagyobb, vagy kisebb, mint 1 mm Ø gömböcskékből állónak képzelt homogén és ugyanolyan súlyú elméleti szürőréteg szemcséinek összfelülete.

[5] A kutatómunka fejlődéséről részletes tájékoztatást nyújtanak *Forchhammer Ph.* [18] és *Donat J.* [17] munkái.

[6] Ezek hasonlitanak az [1] közlemény 1. sz. ábráján feltüntetett koncentráció összeggörbékhez.

részt a szemcsenagyság, másrészt a szemcseegyenlőtlenség tekintetében. Csakhamar kitünt, hogy nemcsak ez az egyszerü eljárás nem kielégitő, hanem ezen tulmenően még egyéb tényezőket is figyelembe kell venni a szivárgás tüneményének számszerü vizsgálatánál.

Fordulópontot jelentett a kutatásban az 1927. év, amikor *Kozeny J.* bécsi akadémikus-professzor nemcsak a "hatásos szemcseátmérő" számitására adott a tényleges szemcseeloszlási görbékhez jobban simuló előirást, hanem az egész vizszivárgási jelenséget szabatos fizikai megvilágitásba helyezte.

Kozeny ebben az alapvető munkában [19] számbavette mindazt a tényezőt, melytől a szivárgó viz által legyőzendő ellenállásnak és ezen keresztül a szivárgás sebességének függnie kell. Ezek közül a szivárgó vizet befogadó geológiai szubsztrátumban rejlő belső tényezők a következők:

1./ A hatásos szemcseátmérő, és

2./ a szemcsék között fennálló hézagtérfogat, mely két tényezőről már az eddigiekben szó esett és amelyek együttesen tulajdonképpen a szilárd és a folyékony fázis között fennálló határfelület tulajdonságát, vagyis azt a fizikai fogalmat jellemzik, amelyet fent "S" betüvel jelöltünk. Ezekhez csatlakozik még mint szintén a szivárgásban rejlő tényező;

3./ a szemcsék alakjának befolyása, amelyre *Kozeny*ig nem voltak figyelemmel.

Nem a szubsztrátumban rejlő, szivárgást befolyásoló külső tényező;

4./ az elszivárgó viz hőfoka, azáltal, hogy a viz fajsulyát és viszkozitását megváltoztatja és

5./ a vizet a szürőrétegen átsajtoló nyomás, melyet a "hidraulikus esés" dimenziómentes hányadosával pótolhatunk[7].

Kozeny felismerte, hogy a felsorolt tényezők és a viz szivárgási sebessége között külön-külön fennálló funkcionális összefüggések csak egyféle módon kombinálhatók egyetlen összetett függvénnyé ugy, hogy emellett a dimenzióhelyesség az összetett egyenlet két oldalán is megmaradjon. Igy vezette le teljesen elméleti uton *Kozeny* az ő szivárgási törvényét, amelynek tehát meghatározott szabatos fizikai értelme van.

Kozeny törvényének először a következő alakot adta /amelyet azonban a 8. sz. táblázatunknak megfelelően megváltoztatott betüjelzésekkel közlünk/:

$$u = \frac{\rho f}{\eta} \cdot c_1 \frac{l_s}{l_w} \cdot \frac{\mu^3}{S^2} \cdot J \quad cm/sec \qquad /3/$$

A törvénynek ezt az eredeti alakját a következőkben "Kozeny I." jelzéssel különböztetjük meg.

/3/ mutatja, hogy a *Kozeny*-képlet tulajdonképpen a régi jól ismert *Darcy*-képlet:

$$u = k \cdot J \qquad /4/$$

[7] *Kozeny* összes levezetése tulajdonképpen arra az esetre érvényes, amikor a szivárgó viz lamináris mozgása feltételezhető. A természetben előforduló kis J nyomásgradienseknél, de ugy látszik a kisérleti ellenőrzés lényegesen nagyobb J-értékeinél is a feltétel érvényesül.

tökéletesitett alakja, amelyben a "k" vizáteresztési tényező már szabatos fizikai értelmezést kapott. T.i.:

$$k = \frac{\rho_f}{\eta} \cdot c_1 \frac{l_s}{l_w} \cdot \frac{\mu^3}{S^2} \qquad /5/$$

A Kozeny-törvény tehát megadja a "k" vizáteresztési tényezőt, ha az un. "hidraulikus esés" $J = 1$. Ez az összefüggés módot nyujt, mint alább látni fogjuk, a Kozeny-törvény kisérleti ellenőrzésére.

A Kozeny-képlet első fogalmazásában /3/ egy csupán a talajszemcsék alakjától függő állandó szerepel, melyet *Kozeny* először puszta "c"-vel [19], később pedig részben "c_1"-el jelölt meg [20, 21], ahogyan azt /3/-ben mi is tettük. E dimenziómentes hányados azt az ellenállási többletet méri, mely előáll, amikor a lamináris an mozgó vizfonál egy-egy talajszemcsét megkerül. Nagyságát a legnagyobb szemcsekeresztmetszet kerülete osztva a keresztmetszet területével, másszóval a szemcse "hidraulikus sugarának" a reciprok értéke adja meg. Egyszerü alaku szemcsekeresztmetszetekre könnyen kiszámitható; /kör, négyzet, egyenlőoldalu háromszög, elnyult szalagok, v.ö. [19, 20]. Részletekre nézve *Kozeny* eredeti munkáira kell utalnunk; c_1 számszerü értékeit azonban a később következő 9.sz. táblázatunkba vettük fel.

A Kozeny I.-képletben /3/ a c_1-formaállandó mellett még egy l_s/l_w-hányados is szerepel. Dimenziómentes. Benne l_s egy-egy áramló vizrészecskének azt az elméleti uthosszát jelenti, melyet egyenes áramvonal mentén, csupa hengeralaku pórusból álló képzeletbeli talajban az időegységben megtenne, l_w pedig azt az uthosszat, melyet a különböző alaku hézagok szövevényéből álló valóságos talajban az utjában álló talajszemcsék megkerülésére ténylegesen kénytelen megtenni.

l_w mindig nagyobb szám l_s-nél és ezért a hányados értéke mindig kisebb 1-nél. Ezt *Kozeny* már első elméleti munkájában [19] leszögezte. A hányados számértékét a talajban előforduló különböző és szabálytalan alaku hézagokat maguk között bezáró részecskékre nézve azonban akkor még nem tudta megállapitani. *Donat* kisérleti munkája [17], melynek alapján ez lehetséges, csak két évvel később történt meg. Az l_s/l_w-hányados nagyságára még egyszerü esetben is pusztán elméleti uton bajosan lehet következtetni[8]. Ezzel szemben a $c_1 \cdot l_s/l_w$ szorzat számértéke az alább emlitendő Donat-féle kisérletekből közvetlenül adódik[9].

8/ Gömbalakú szemcsékre vonatkozólag maga *Kozeny* végzett ilyen kisérletet még 1927-ben [20]. Ő az emlitett hányados reciprok értékét: $l_w/l_s = \pi/2 = 1{,}5708$-nak számitja ilyen esetben. Ebből: $l_s/l_w = 2/\pi = 0{,}6366$ következne. *Kozeny* a végzett kisérleti munkát úgy értékeli, mintha az l_w/l_s számára *2*, illetőleg l_s/l_w számára *0,5* körül mozgó értékekre vezetett volna és ezért további fejtegetéseiben ezeket a kerek számértékeket használja. *Kozeny* a hányadost, mint a J hidraulikus esést kisebbitő tényezőt vette számitásba, ami a fizikai folyamatnak valóban meg is felel. Mi ezzel szemben a formaállandóval egyesitjük, ami megengedhető, mert a Kozeny-képletben a tényezők szorzatban szerepelnek.

9/ *Zunker F.* egy 1930-ból származó beszámolóban [15] sajnos ezt a lehetőséget nem vette figyelembe, noha akkor a Donat-féle kisérleti adathalmaz már rendelkezésre állt. *Zunker* a Kozeny-féle legelső cikk [19] alapján csak az előzőkben c_1-el jelzett formaállandót emliti. Ez azonban egymagában gyakorlati számitásokra nem alkalmas.

Mielőtt azonban e kérdésre rátérnénk, bemutatjuk a Kozeny-törvény többi alakját, ahogy azt szerző és munkatársai későbbi munkákban használták:[10]

Kozeny II. képlet: $$u = \frac{\rho_f}{\eta} \cdot c_2 \cdot \mu^3 \cdot \frac{1}{S^2} \cdot J \ cm/sec \qquad /6/$$

Kozeny III. képlet: $$u = \frac{\rho_f}{\eta} \cdot \frac{1}{c_3} \cdot \frac{\mu^3}{(1-\mu)^2 S^2} \cdot J \ cm/sec \qquad /7/$$

Természetesen $J = 1$ helyettesitésénél ezek a képletek is "u" helyett a "k" vizáteresztési tényező sebességi értékét adják.

A képletekben szereplő különböző értelmezésü formaállandók egymás között és az l_S/l_W-hányados értékével a következő módon függnek össze:

$$c_1 = c_2 \cdot l_W/l_S \qquad /8/$$

$$c_2 c_3 = 1/(1-\mu)^2 \qquad /9/$$

A képletekből adódó Kozeny konstans különböző alakjait a 9. táblázatban foglaltuk össze.

A /3/, /6/ és /7/ sz. Kozeny-képlet olyanformán is átalakitható, hogy benne S helyett a *Kozeny* szerint meghatározott[11] "hatásos szemcsenagyság" : d szerepeljen.

---

[10] Az eredeti cikkekben a különböző értelmezésű c-formaállandók nincsenek indexszámokkal megkülönböztetve.

[11] Már emlitettük, hogy *Kozeny* alapvető munkájában a hatásos szemcseátmérő meghatározására uj módszert javasolt. Ez abban áll, hogy a talajt /általánosságban a szűrőréteget/ alkotó, különböző átmérőjű szemcsékből álló keveréket a szemcseeloszlási összeggörbe alakja szerint, célszerűen megválasztott frakciókra osztja. Ha a választott frakciókat elhatároló szemcseátmérők: d_n és d_{n+1}, az ezen átmérők közé eső szemcsékkel biró un. "irányadó" frakció közepes szemcseátmérőjét pedig $d_{n,\,n+1}$-el jelöljük, továbbá ennek az irányadó frakciónak súlyarányát az egész talajdiszperzióban a Δ_n betű jelzi, akkor *Kozeny* javaslata szerint /eredetileg három frakcióra/ a képletekben használandó "hatásos szemcseátmérő":

$$1/d_{n,\,n+1} = \frac{1}{3}\left[\frac{1}{d_n} + \frac{2}{d_n + d_{n+1}} + \frac{1}{d_{n+1}}\right] \quad \text{és} \quad 1/d = \Sigma\, \Delta_n/d_n,$$

ahol d a keresett érték.

A fentieknek megfelelő görbe jobban simul az összeggörbéhez, mint a régebben használt lineáris felbontás két frakcióra.

9. Táblázat.

A különböző alaku Kozeny-képletekben szereplő állandók számértékei.

β	c_1	c_2	c_3	$\frac{l_s}{l_w}$
75	0,60	0,099	27,919	0,1650
180	0,56	0,239	11,633	0,4267
250	0,55	0,332	8,376	0,6036
280	0,54	0,371	7,478	0,6870
400	0,50	0,531	5,235	≈ 1

Erre az átalakitásra *Kozeny* a következő összefüggést használta:[12]

$$1/S^2 = d^2/36(1-\mu)^2 \qquad /10/$$

$1/S^2$ értékét /10/ szerint /7/-be helyettesitve a Kozeny-törvényt mint a hatásos szemcseátmérőnek, d-nek, funkcióját a következő alakban kapjuk:

---

[12] Az egyenlet a következőképpen adódik:

Gömbalakúnak feltételezett egy részecskének a térfogata szorozva az egységnyi térfogatban foglalt összes részecskék számával /"n"-el/, egyenlő az egységnyi térfogat és abban előforduló hézagok össztérfogatának a különbségével:

$$n.\pi.d^3/6 = 1-\mu.$$

Ugyanakkor egy részecske felülete szorozva a részecskék számával egyenlő a hatásos belső felülettel, mely parametert "S"-el jelöltük:

$$n.\pi.d^2 = S.$$

A két egyenletből következik, hogy:

$$n.\pi.d^3/6 = n.\pi.d^2.d./6 = S.d/6 = 1-\mu.$$

Ebből: $$1/S^2 = d^2/36(1-\mu)^2 \qquad /10/$$

Kozeny I. képlet: $$u = \frac{\rho_f}{\eta} \cdot c_1 \frac{l_s}{l_w} \frac{\mu^3}{36/1-\mu/^2} \cdot d^2 \cdot J \qquad /11a/$$

Kozeny II. képlet: $$u = \frac{\rho_f}{\eta} c_2 \frac{\mu^3}{36/1-\mu/^2} \cdot d^2 \cdot J \qquad /11b/$$

Kozeny III. képlet: $$u = \frac{\rho_f}{\eta} \cdot \frac{1}{c_3} \cdot \frac{1}{36/1-\mu/^2} \cdot \frac{\mu^3}{/1-\mu/^2} \cdot d^2 \cdot J \qquad /11c/$$

Természetesen ebben az alakban is $J = 1$ esés esetére a képletek a "k" vízáteresztési tényezőt adják. Ezt a tényt használta fel *Donat J.* [17] a *Kozeny* által deduktiv módon előbb levezetett és közölt szivárgási törvény első kisérleti igazolására. Kisérleteit a bécsi *Hochschule für Bodenkultur* laboratóriumában 1927-28-ban végezte. Alapul a /11c/ egyenlet szolgált, melyben az állandók egy részét:

$$\beta = \frac{\rho_f}{\eta} \cdot \frac{1}{c^3} \cdot \frac{1}{36/1-\mu/^2} \qquad /12/$$

szerint a "β"-tényezővé összefoglalhatjuk. Ezen az alapon a /11c/ egyenlet a k vízáteresztési tényezőre vonatkozólag igy irható:

$$k = \beta \cdot \frac{\mu^3}{/1-\mu/^2} \cdot d^2 \qquad /13/$$

A 9. sz. táblázatban a különböző értelmezésü Kozeny-konstansok mellett β számértékeit is megadjuk.

Saját céljainkra a Kozeny II képlet a /6/ alakban legalkalmasabb.

1933-ban jelent meg *Grassberger H.* osztrák mérnök tanulmánya a talajok /üledékes kőzetek/ belső felépitéséről és ennek genétikai körülményeiről [2], amelynek fontos megállapitásaira azonban sajnos a szakkörök nem figyeltek fel eléggé. Az első közlemény szerzői [1] erre a munkára alapozták következtetéseiket.

A korábbi kutatók, - *Kozeny* is - az S értékének a megállapitásánál a "hatásos szemcseátmérő" fikciójával dolgoztak. *Grassberger* ezzel szemben [2], deduktiv módon S értékét a szemcseösszetételi összeggörbe egészéből, matematikai statisztikai analizissel vezette le. S értéke nála mint a szemcsenagyság gyakoriságszázalékai medián értékének és a görbe szórásának, valamint aszimmetriájának függvénye adódik.

Ismét mellőzve a levezetés részleteit, csak *Grassberger* végeredményeit iktatjuk ide /de saját betüjelzéseinkkel/:

Szimmetrikus eloszlásnak megfelelő összeggörbénél:

$$S = a(1-\mu) \cdot (1/M)\sigma^{0,5 \ln\sigma} \qquad /14/$$

illetőleg aszimmetrikus görbénél:

$$S = a/1-\mu/ \,.\, (1/M) \,.\, \sigma^{0,5\ ln\sigma}\ /1+\Delta_0\sqrt{\pi}ln^4\sigma/ \qquad /15/$$

/Δ_0 értelmezésére vonatkozólag: lásd a 8. sz. táblázatot./

Grassberger /14/ és /15/ képletében csak az $1/M$-hányadosnak van dimenziója: [1/cm], mely ugyanakkora, mint a baloldalon álló S-é. Ezért $1/M$ a hatásos belső felület azon részének tekinthető, mely csupán a szemcsenagyságok eloszlásától függ, legyen:

$$S_1 = 1/M \qquad /16/$$

$$S_2 = A.1/M \qquad /16a/$$

Ha még a következő összevonásokat eszközöljük:

$a/1-\mu/ = A$; $\sigma^{0,5\ ln\sigma} = U$; és $/1+\Delta_0\sqrt{\pi}ln^4\sigma/ = V$, akkor *Grassberger* képletei a következő alakot öltik:

Szimmetrikus görbénél: $S = A.S_1.U$ és /17/

aszimmetrikus görbénél: $S = A.S_1.U.V.$ /18/

Az A-val jelölt tényező a talajdiszperzió szemcsealakjának és hézagarányszámának együttes befolyását veszi számításba, tehát a Grassberger-képletben kb. azt a szerepet játssza, mint a Kozeny-képletekben a: $c_1.l_s/l_w$, illetőleg c_2 és c_3.

Az U-val jelölt szorzó-tényező csupán a szórási értéktől függő szám, hasonlóképpen a V is, mely a Δ_0-értéktől és a σ-szórás magasabb hatványából képzett Bruns-féle korrekturatagként a talajdiszperzió "Gauss-eloszlásának" esetleges aszimmetriáját veszi figyelembe[18].

/16a/ logaritmált alakban:

$$log\ S_2 = log\ 1/M + log\ A, \text{ill.} \qquad /19/$$

$$log\ S_2 = log\ S_1 + log\ A \qquad /19a/$$

Ha derékszögű koordinátarendszerben az abszcisszára a $log\ 1/M$, az ordi-

[18]/ Minthogy a V korrekturatag a normál kifejtésű Bruns-soroknak mindössze az első el nem tűnő tagig bezárólag történt kifejtése útján állott elő [1a, 2] csak addig megbizható, mig értéke <2. Ez olyan követelmény, mely természetes talajoknál és üledékeknél általában teljesül.

nátára pedig a $\log A$. S_1-értékeket felrakjuk a /19/ összefüggést 45°-os szög alatt emelkedő egyenes ábrázolja. 6. sz. ábránkon ez az egyenes a $\log 1/M = 0$ /azaz: $M = 1$/ abszcissza értékről és a ($\log A$) kezdeti ordinátaértékről indul. A kezdőpontot azért választottuk igy, mert a grafikonban ábrázolt összes talajdiszperzióknál *Grassberger* eljáráshoz hasonlóan az α-formaállandót 6-nak, a hézagarány-számot pedig 40 %-nak /$\mu = 0,4$/ vettük.

J e l m a g y a r á z a t

Aláhúzott logaritmusok és sorszámok az összes belső felületre /$\log S$/ vonatkoznak.

Arabs sorszámok és pont-jelek /pl. 4·/ *Grassberger* diszperzióinak számai.

Római sorszámok és keresztjelek /pl. IV$^+$/ *Scherf* és *Meszéna* diszperzióinak számai.

Aláhuzatlan logaritmusok és sorszámok a belső felületnek a szemcseeloszlás mediánértékétől függő hányadára vonatkoznak.

Arabs sorszámok és pont-jelek /pl. 4· / *Grassberger* diszperzióira vonatkoznak.

Római sorszámok és keresztjelek /pl. IV$^+$/ *Scherf* és *Meszéna* diszperzióira vonatkoznak.

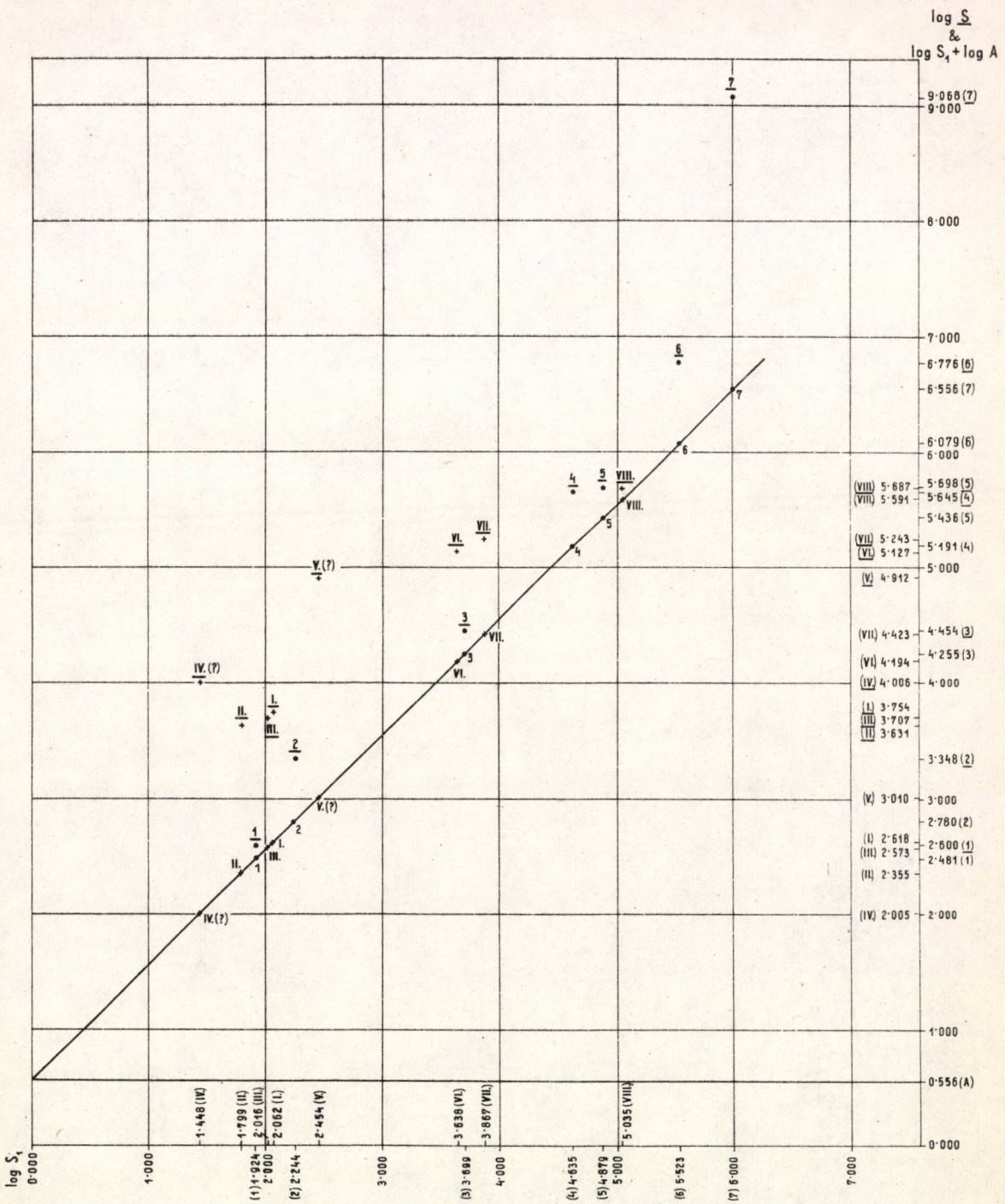
S és S_1 a rajzon 1/méter értékkel szerepel.

Grassberger idézett cikkében [2] képletéből néhány jellemző alkatu talajdiszperzióra nézve maga is számitott S-értékeket. Ezek azonban nyilvánvalóan logarléccel meghatározott közelitő számok, melyek csak azt a célt szolgálták, hogy bemutassák, milyen hatalmas mértékben nő S számértéke a szemcseanyag finomodásával és kisebb mértékben a talajdiszperzió szórásának a növekedésével is. Nekünk a helyes grafikus ábrázoláshoz pontos számokra volt szükségünk, melyeket a /17/ és /18/ összefüggésekből a *Grassberger* által megadott alap-paraméterekkel számitottunk. Az egész számanyagot a 10. sz. táblázat tartalmazza, amelybe kiegészitésképpen felvettük a /6/ sz. Kozeny II. képlettel számitott "k" vizáteresztési tényezőket is: /*Grassberger* maga ilyeneket nem számitott./ A /6/ képlet abban az esetben, ha a:

$$b = \frac{\rho f}{\eta} \cdot c_2 \cdot \mu^3 [cm^{-1} \cdot sec^{-1}] \qquad /20/$$

összevonást alkalmazzuk, a:

$$k = b \cdot \frac{I}{S^2} [cm\ sec^{-1}] \qquad /21/$$



6. ábra. Különböző természetes és számitott talajdiszperziók hatásos összes belső felületének logaritmusa /*log S*/ és a szemcseeloszlás mediánértékétől /*M*-től/ függő belső felületi hányad logaritmusa mint *log 1/M* függvénye. /V.ö. a "Jelmagyarázat"-ot./

10. Táblázat.

Grassberger H. által közölt tipusos talajdiszperziók szemcseszerkezeti paramétereinek és a belőlük számitott hatásos belső felület, valamint a belső felület tényezőinek számértéke.

Sorszám	Anyag megjelölése	σ	$\frac{\Delta_o\%}{100}$	M /Dim.: [mm]/	$\frac{1}{M}$ /Dim.: $\left[\frac{1}{mm}\right]$/	$S_1 = \frac{1}{M} \cdot 10^3$ /Dim.: $\left[\frac{1}{méter}\right]$/	A	U	V	$A.U.V$	$S = S_1.A.U.V$ /Dim.: $\left[\frac{1}{méter}\right]$/	Grassberger közelitő értéke S-re /Dim.: $\left[\frac{1}{méter}\right]$/	Számitott viztáteresztési tényező: k /Dim.: [cm.sec^{-1}]/
1.	Kotort durva Duna-hordalék Bécsnél	2,1	0	11,9	0,08403	84,034	3,600	1,317	1,000	4,741	398,372	400	158,70
2.	Kavicshordalék kavicszátonyról Bécsnél	3,5	+0,14	5,7	0,17544	175,439	3,600	2,192	1,611	12,713	2230,331	2300	3,22
3.	Folyóvizi homok, Chisopec /Mass. U.S.A./	3,6	0	0,20	5,00000	5000,000	3,600	1,579	1,000	5,683	28413,732	30000	$1,98.10^{-2}$
4.	Vályog a Feldbach-Gleichenberg vasut bevágásából /Stájerország, Ausztria/	3,32	+0,105	0,0232	43,10345	43103,45	3,600	2,054	1,386	10,249	440783,889	450000	$8,20.10^{-5}$
5.	Vályog a Feldbach-Gleichenberg vasut bevágásából /Stájerország, Ausztria/	3,0	0	0,0132	75,75758	75757,58	3,600	1,828	1,000	6,582	498671,250	-	$6,44.10^{-5}$
6.	Agyag, Bruck /a Lajta mellett/, Alsó-ausztria	6,0	0	0,003	330,33333	333333,33	3,600	4,978	1,000	17,924	5974632,89	6000000	$4,49.10^{-7}$
7.	Nehéz iszapos agyag földcsuszamlásból, Saltkällan, Bohuslän-nél/Svédország/	30,0	0	0,001	1000,00000	1000000,00	3,600	325,080	1,000	1170,311	1170311050	1000000000	$1,17.10^{-9}$

alakba megy át[14].

Az ismertetett kutatási eredmények alapján mostmár megkisérelhetjük a tulajdonképpeni probléma megoldását: milyen törvényszerüségek szerint szaporodik fel a talajdiszperzión át szivárgó viz uránban azoknak az uránásványoknak a feloldása révén, amelyeket a talajszemcsék zárványaként közelitőleg egyenletesen elosztva képzelünk. /Uránásványok valóságos dusulásának esete fejtegetéseink körén kivül esik./

Gondolatmenetünk a következő:

Scherf és *Szalay* az első közleményben [1] már arra a megállapitásra jutottak, hogy az "urán-háttér"-nek megfelelő U-tartalom logaritmusa a vizekben Gauss-eloszlásnak felel meg, mely a talajdiszperzió logaritmikus szemcsenagyság-eloszlását leképezi. Nyilt kérdés maradt akkor, hogy milyen kvantitativ összefüggésben áll az igy leképzett eloszlás medián értéke és szórása a szemcseeloszlás Gauss-görbéjének megfelelő paramétereivel.

Ebben a vonatkozásban különös figyelmet érdemel a VIII. vizcsoport urántartalom-eloszlása. Kitünően simul egy határozott, jól jellemzett kis szórásu Gauss-görbéhez. Ez kétségtelenül összefügg azzal a földtani tapasztalattal, hogy ezeknek a vizeknek az anyakőzete, a pannon homokos iszap, széles területen azonos szerkezetü homogén üledék, melynek összetételében az egyes szemcsenagyságok nem nagyon szóródnak.

Ha feltesszük, hogy a vizek U-koncentrációjának kialakulása az oldódás tüneményén keresztül függ össze a geológiai szubsztrátum belső felületével, S-el, akkor a gyanitható legegyszerübb kvantitativ összefüggést a két folyamat között a következő egyenlettel fejezhetjük ki:

$$m = K.S \qquad /22/$$

---

[14] A vizminták begyüjtésénél végzett mérések szerint a Tokaji-hegység természetes forrásvizei hőfokának számtani közepe: 10,6 C°, melytől általában csak 1-2 C°, szélsőséges esetben is csak 3 C° eltérés mutatkozott. Ezért a viz hőfokát a "k" tájékoztató numerikus számításánál /10. Táblázat./ kereken 10 C°-kal vehettük figyelembe; a /6/, illetőleg /20/ és /21/ képletek felhasználásánál még a következőket kellett tekintetbe venni: a viz abszolut sürüségét 10 C°-on: 0,99973 g/cm³-nak vettük, a viz dinamikus viszkozitása:

$\eta_{10°} = 0{,}013014$ [g cm^{-1}sec^{-1}]. A Kozeny-c_2-tényező = 0,332. A pórusszám /*Grassberger*hez hasonlóan önkényesen megválasztva/ átlagban: 0,4.

Ezekkel a numerikus értékekkel számolva:

$$b = \frac{0{,}99973.0{,}332./0{,}4/^3.981}{0{,}013014} = 1601{,}25 \text{ [cm.}^{-1}\text{sec}^{-1}\text{]} \qquad \text{és:}$$

$$k = \frac{10^4.b}{S^2} = 10^4.\frac{1}{S^2}.1601{,}25 \text{ [cm sec}^{-1}\text{]}.$$

Legyen szabad egyúttal arra a hasonlóságra figyelmeztetni, mely a fentiek szerint átalakitott /21/ képlet: $k = 1601{,}25.1/S^2$ [cm sec^{-1}] és *Krüger E.* [14] adataiból *Forcheimer* átszámitása szerint következő: $k = 1667.\mu/S^2$ [cm sec^{-1}] képlet között fennáll, ahol az 1667 tényezőnek szintén [cm^{-1} sec^{-1}] a dimenziója.

ahol:

	Dimenziók: CGS	gyakorlati
m = az U-koncentráció eloszlásának mediánértéke:	$g.cm^{-3}$	$\gamma.lit^{-1}$
S = /mint eddig/ a hatásos belső felület:	cm^{-1}	$méter^{-1}$
K = oldékonysági arányossági tényező:	$g.cm^{-2}$	$g\ méter^{-2}$

K tehát a belső felület egységéről oldódó uránmennyiséget, vagyis fajlagos uránoldékonyságot jelent, természetesen a zárványként bezárt uránásványra vonatkoztatva.

Ámbár a K állandó nagyságáról egyelőre semmit sem tudunk, mégis kétségtelen, hogy m-nek az S-el ilyen jellegü egyszerü lineáris összefüggésben kell állnia, az összefüggés nem lehet négyzetes, vagy valamely más hatvány szerinti sem.

Ennek az állitásnak a helyességéről csak a K állandó kisérletezéssel való approximációjával győződhetünk meg, mert a viz kilométeres földalatti utján átjárt rétegek belső felületének a nagyságáról természetesen nem tudhatunk semmit.

Feltesszük a kérdést: lehet-e olyan legvalószinübb értéket találni a K állandó számára, mely az összes vizcsoportunkra nézve jól kielégiti az

$$m = K.S \qquad /22/$$

feltételt?

A legvalószinübb K-érték kritériumát a következőképpen próbáljuk megállapitani. Tapasztalataink szerint a belső felület kialakitásában a szemcsézettség középértékének van jelentősebb szerepe. Ehhez társult az a már más helyen is emlitett megfigyelés, hogy a tárgyalásunk alapját képező kisérleti adatcsoportokban a mért koncentrációk szórása szorosan igazodott a tekintett csoportban lévő talajfajták szemcsézettségének szórásához. Ezért kézenfekvőnek látszott további meggondolásainkban megegyező szórások feltételezésével dolgozni.

Feltehetjük továbbá, hogy azokra a talaj- /kőzet-/ diszperziókra nézve, melyekből vizsgált vizeink fakadnak, a szemcsék alakja, gömbölyödöttsége és ennélfogva a közöttük fennálló hézagtérfogatok is közelitőleg a *Grassberger*-féle tipus-diszperziókéhoz hasonlithatók. Ez azt a feltevést jelenti, hogy *Kozeny* és *Donat* egyenleteiben a $\beta = 250$, értékkel, *Grassberger*nél pedig $A = \alpha/1-\mu/ = 6./1-0,4/= 3,6$ számértékkel számitható[15].

---

[15]/ β, d és μ a vizek természetes szivárgási útjára nézve meg nem mérhető. *Donat* közlése [17] alapján a következő hibák becsülhetők: $\beta = 250 \pm 30$ és $\mu = 0,40 \pm 0,05$, ami [13] szerint k-ra, illetőleg [12] és [9] szerint c_2-re csak csekély befolyást gyakorol.- *Grassberger* α-ja nemcsak gömb-, hanem kocka-alakra is 6 és csak hosszirányban erősen megnyúlt szemcsékre nézve csökken észrevehetően, amelyet a μ egyidejű megnövekedése részben kompenzál. Szigoruan véve A minden talajdiszperzióra nézve kissé más, ami 6. ábránkban az S_1-egyenes indulópontját az ordinátán kevéssé emelné, vagy sülyesztené.

A következő 11. sz. táblázatban megadjuk azokat az S-értékeket, melyek a K állandó különböző nagyságu /$0,400.10^{-5}$-$2,600.10^{-5}$/ felvételénél a /22/ egyenlettel a kisérletileg meghatározott uránkoncentrációkból (γ/lit) adódnak[16].

11. Táblázat.

Az $S = \frac{m}{K}$ ... /22/ egyenlet alapján a vizek anyakőzetének diszperziójára nézve számitott hatásos belső felületi S értékek a meghatározott uránkoncentrációk mediánértékeiből /m/ szabadon választott K fajlagos oldékonysági együtthatóval számitva.

K	I.	II.	III.	IV.	V.	VI.	VII.	VIII.
$0,400.10^{-5}$	14189	10681	12735	25368	204343	334572	437411	1216578
$0,500.10^{-5}$	11351	8545	10188	20295	163474	267655	349929	973262
$0,600.10^{-5}$	9460	7120	8490	16912	136229	223049	291608	811054
$0,700.10^{-5}$	8108	6103	7277	14496	116772	191183	249948	695185
$0,800.10^{-5}$	7095	5340	6368	12684	102172	167286	218706	608289
$0,900.10^{-5}$	6306	4747	5660	11275	90820	148700	194406	540705
$1,000.10^{-5}$	5676	4272	5094	10147	81737	133829	174965	486631
$1,100.10^{-5}$	5160	3884	4631	9225	74307	121664	159060	442395
$1,200.10^{-5}$	4730	3560	4245	8456	68114	111525	145842	405527
$1,300.10^{-5}$	4266	3286	3919	7806	62875	102946	134589	374335
$1,400.10^{-5}$	4052	3052	3639	7248	58384	95592	124974	347592
$1,500.10^{-5}$	3784	2848	3396	6765	54492	89220	116643	324423
$1,600.10^{-5}$	3547	2670	3184	6342	51086	83643	109353	304145
$1,700.10^{-5}$	3339	2513	2997	5969	48081	78723	102920	286253
$1,800.10^{-5}$	3153	2374	2830	5637	45410	74350	97203	270352
$1,900.10^{-5}$	2987	2249	2681	5341	43020	70437	92087	256124
$2,000.10^{-5}$	2838	2136	2547	5073	40869	66914	87482	243316

[16] Számitásainknál az $S = \frac{m}{K}$... /22/ egyenletben az m uránkoncentrációeloszlási mediánérték az első közlemény grafikonjaihoz igazodva a γ/lit = [10^{-3}.g.méter^{-3}] gyakorlati dimenzióval szerepel, S-et pedig *Grassberger*hez hasonlóan [méter^{-1}] gyakorlati dimenzióval kivántuk megkapni.

A táblázat adatai alapján most már megadhatjuk a választ az előbb felvetett kérdésre:

Igenis, van olyan K-érték, mely a /22/ egyenlet követelését minden vizcsoportunkra nézve jól kielégiti. Abszolut értékét meglehetősen szük hibahatárral a $K = 0,900.10^{-5}$ és $1,100.10^{-5}$ [g.méter^{-2}] közé esőnek becsülhetjük, középértékben: $K = 1,00.10^{-5}$ [g.méter^{-2}]-nek. A megadottnál kisebb K-értékeket választva, a szóbanforgó anyakőzet-diszperziók petrográfiai jellegéhez nem illő, tul nagy S-számokat kapnánk, nagyobb K-értékeknél pedig azok tul kicsinyek lennének.

Ez a tény legjobban akkor tünik fel, ha mint a 12. sz. táblázatban történt, a /17/ és /18/ egyenletek alapján a különböző K-értékekhez tartozó S-értékekből számitjuk az $S_1 = 1/M$, illetőleg $\log S_1 = \log 1/M$ értékeket és ezek közül a legvalószinübbeket a 6. sz. ábra $\log S_1$ -egyenesére felrakjuk. A 12. sz. táblázatban a számitást öt K-értékére végeztük el, melyek a $0,400.10^{-5}$ és $1,600.10^{-5}$ g.méter^{-2} értékhatárok között fekszenek. A 6. sz. ábrán az áttekinthetőség kedvéért csupán a legvalószinübb $K = 1,000.10^{-5}$ értékkel számitott $\log S_1$-eket tüntettük fel mind a nyolc vizcsoportra nézve. Ezek a számok erőltetés nélkül illeszkednek a *Grassberger*-féle tipusos szemcsenagysági eloszlások megfelelő $\log S_1$ - számai közé. /A 6.sz. ábrán a Grassberger-eloszlásokhoz tartozó $\log S_1$-számok pontokkal és arabs számokkal, saját számitott $\log S_1$ - értékeink pedig + jelzéssel és a vizcsoport római számával vannak jelölve. /A 12. sz. táblázatban az utólsó oszlopban megadtuk az $1/M$-nek megfelelő M-eket, vagyis a szemcsenagyság eloszlási görbék mediánértékeit /a szokás szerint milliméter dimenzióban/[17]. Látjuk, hogy mind a nyolc csoportnál tényleg a $K = 1,000.10^{-5}$ [g.méter^{-2}] fajlagos oldékonysági együttható vezet elfogadható nagyságu M-értékekre.

A számitott M-értékekhez még a következőket kell megjegyeznünk.

Az I., II. és III. csoportban az elég nagy szórás nem okoz tulságosan nagy hibát. A számitott M valószinüleg kissé nagy. Ebben az esetben azonban nem annyira a szórástól függő U és V, mint inkább az A formaállandó viszonylagosan tul nagy értékének tulajdonitható a csekély hiba előidézése. Az A állandót ugyanis *Grassberger* eljárásához hasonlóan az összes csoportoknál az $A = \alpha/1-\mu/ = 6/1-0,4/ = 3,6$ értékkel vettük számitásba, holott az I., II. és III. csoportnál már nem is gömbalaku elemekből egyesszemstrukturában álló diszperziókról van szó, hanem kisebb-nagyobb hasadékok révén felaprózódott szilárd kőzetdarabok halmazáról. Az abszolut értékben kicsi S miatt azonban A pontatlansága lényegtelen. A legtöbb bizalmat természetesen a VIII. csoport M-értéke érdemli, mert itt a szórás kicsiny és az eloszlás majdnem ideálisan szimmetrikus. Ez annak a földtani ténynek felel meg, hogy a felsőpannon vizvezető homokos iszapjai az egész gyüjtési terület széles körzetében hasonló mechanikai összetételüek. A VI. és VII. csoport M-értékei türhető pontosságuaknak látszanak. Az V.csoport M-számai ellenben valószinüleg azért megbizhatatlanok, mert itt nem egységes genetikáju üledékekből fakadó vizek elemzéseit, hanem részben levegőből, részben vizből ülepe-

[17] A 12. sz. táblázatban a IV. és V. vizcsoportra vonatkozó M és $\log M$ értékeket zárójelbe foglaltuk, annak jelzésére, hogy ezek a számok megbizhatatlanok. Mindkét csoportban a szórás igen nagy, jeléül annak, hogy túlságosan heterogén anyag van bennük összefoglalva, ezért a V is messze túllépi a megengedhető 2 értéket.

12. Táblázat.

Az I-VIII. sz. vizcsoportok uránkoncentrációeloszlásaiból különböző K fajlagos oldékonysági együtthatókkal számitott S, S_1 és M-értékek.

No.	σ	$\frac{\Delta_o\%}{100}$	A	U	V	$A.U.V$	K	$S = \frac{m}{K}$	$S_1 = \frac{l}{M} \cdot \left[\frac{l}{\text{méter}}\right]$	M milliméter
I.	7,277	+0,033	3,600	7,167	1,908	49,213	$0,400.10^{-5}$	14819	288,317	3,468
							$0,800.10^{-5}$	7095	144,158	6,937
							$1,000.10^{-5}$	5675	115,327	8,671
							$1,200.10^{-5}$	4730	96,106	10,405
							$1,600.10^{-5}$	3547	72,079	13,874
II.	9,129	-0,015	3,600	11,533	1,636	67,917	$0,400.10^{-5}$	1086	157,261	6,359
							$0,800.10^{-5}$	5340	78,630	12,718
							$1,000.10^{-5}$	4272	62,904	15,897
							$1,200.10^{-5}$	3560	52,420	19,077
							$1,600.10^{-5}$	2670	39,315	25,436
III.	8,009	+0,017	3,600	8,710	1,565	49.061	$0,400.10^{-5}$	12795	259,567	3,853
							$0,800.10^{-5}$	6368	129,784	7,705
							$1,000.10^{-5}$	5094	103,827	9,631
							$1,200.10^{-5}$	4245	86,523	11,558
							$1,600.10^{-5}$	3181	64,892	15,410
IV.	12,910	+0,037	3,600	26,357	3,808	361,310	$0,400.10^{-5}$	25368	70,212	/14,243/
							$0,800.10^{-5}$	12684	35,105	/28,485/
							$1,000.10^{-5}$	10147	28,085	/35,606/
							$1,200.10^{-5}$	8456	23,404	/42,728/
							$1,600.10^{-5}$	6342	17,553	/56,970/
V.	9,616	-0,111	3,600	12,956	6,164	287,495	$0,400.10^{-5}$	204343	710,755	/1,407/
							$0,800.10^{-5}$	102172	355,378	/2,814/
							$1,000.10^{-5}$	81737	284,302	/3,517/
							$1,200.10^{-5}$	68114	236,914	/4,221/
							$1,600.10^{-5}$	51086	177,689	/5,628/
VI.	5,485	-0,068	3,600	4,256	2,011	30,818	$0,400.10^{-5}$	334752	10856,255	0,092
							$0,800.10^{-5}$	167286	5428,127	0,184
							$1,000.10^{-5}$	133829	4342,502	0,230
							$1,200.10^{-5}$	121664	3618,762	0,276
							$1,600.10^{-5}$	83643	2714,064	0,217
VII.	4,641	-0,105	3,600	3,248	2,033	23,771	$0,400.10^{-5}$	437411	18500,941	0,054
							$0,800.10^{-5}$	218706	9200,470	0,109
							$1,000.10^{-5}$	174965	7360,376	0,136
							$1,200.10^{-5}$	145842	6133,664	0,163
							$1,600.10^{-5}$	109353	4600,235	0,217
VIII.	1,923	-0,020	3,600	1,239	1,007	4,488	$0,400.10^{-5}$	1216578	271094,063	0,0037
							$0,800.10^{-5}$	608289	135547,031	0,0074
							$1,000.10^{-5}$	486631	108437,625	0,0092
							$1,200.10^{-5}$	405527	90364,939	0,011
							$1,600.10^{-5}$	304145	67773,516	0,015

dett anyakőzetü vizek elemzéseit kevertük össze. Mindez fokozott mértékben alátámasztja feltételeinket.

Ezek az eredmények tehát még inkább megerősitik gondolatmenetünk láncolatát, hiszen vizsgálatunknál eddig ismeretlen elvi összefüggések felderitéséről volt szó, nem csupán arról, hogy a vizsgált vidéken az egyes üledéktipusokra szabatos "uran-background" - értékeket állapitsunk meg.

Következtatésünket, hogy $K = 1,000.10^{-5}$ g.méter^{-2} átlagos fajlagos oldékonysági együtthatóval számolhatunk az urán oldódásra nézve a:

$$k = b \cdot \frac{l}{S^2} \; [cm\ sec^{-1}] \qquad /21/$$

egyenlet alapján is ellenőrizhettük. Ha ebbe az egyenletbe a $b = 1601,25$ értéket /v.ö. a 14. sz. lábjegyzet/ és sorra a 11. táblázat szerint különböző K-értékek alapján számitott S-értékeket helyettesitjük, a 13. sz. táblázat-ban összefoglalt vizáteresztési tényezőket kapjuk.

A 13. sz. táblázatból, - ha talán valamivel kevésbé élesen is, mint az M számitásánál, - szintén kitünik a $K = 1,000.10^{-5}$ [g méter^{-2}] fajlagos oldékonysági tényező használhatósága az összes vizcsoportban.

Ezzel a kitüzött feladatot tulajdonképpen megoldottuk. Annak ellenére, hogy *Grassberger* nem határozott meg urántartalmakat, mi meg az U-meghatározásokat nem tudtuk a geológiai szubsztrátum mechanikai elemzésével kiegésziteni, csoportositási elvünk pedig részben egyéb szempontokat is tartalmazott, mégis be tudtuk bizonyitani, hogy az U-koncentrációk eloszlása egyszerü lineáris arányban áll az anyakőzet diszperziójának aktiv belső felületével. Az arányossági tényezőnek, K-nak pedig konkrét fizikai értelmezést tudtunk adni.

Fejtegetéseinket még néhány gondolattal szeretnénk kiegésziteni.

/22/ alapegyenletünk nem tartalmazza a sebességi paramétert. Az egyenlet csupán a geológiai szubsztrátum minőségétől függő befolyásról tájékoztat. Pedig kétségtelen, hogy az uránfeldusulás a szivárgó vizben lényegesen attól a sebességtől is függ, amellyel ez a szivárgás a belső felületet mossa. A következőkben tehát megvizsgáljuk egy adott uránleadó képességü S belső felülettel rendelkező talajdiszperzió viselkedését különböző sebességü vizszivárgással szemben. Az egyszerüség kedvéért az egységnyi J hidraulikus esésre vonatkozó sebességgel, azaz a k [cm sec^{-1}] vizáteresztési tényezővel dolgozunk.

Ha a $k = b.l/S^2$... /21/ alaku *Kozeny* képletbe az

$S = m/K$... /22/ kifejezés szerint S-t helyettesitjük, megkapjuk a kivánt sebességi összefüggést:

$k = b.K^2/m^2$... /23/; és ha még megállapodunk abban, hogy ebben a képletben

$q = b.K^2$ ... /24/ legyen, a következő általános alaku kifejezésre jutunk:

$k = q/m^2$... /25/.

13. Táblázat.

A különböző K fajlagos oldékonysági tényezőkhöz tartozó S-értékekből számított k vizáteresztési tényezők.

$\beta = 250$; $c_2 = 0,332$; $\rho_{10^\circ} = 0,99973$ [g.cm^{-3}]; $\eta_{10^\circ} = 0,013014$ [g.cm^{-1}sec^{-1}]; $\mu = 0,4$; $b = 1601,25$ [cm^{-1}.sec^{-1}]

K	I.	II.	III.	IV.	V.	VI.	VII.	VIII.
$0,400.10^{-5}$	$7,95.10^{-2}$	$1,40.10^{-1}$	$9,87.10^{-2}$	$2,49.10^{-2}$	$3,83.10^{-4}$	$1,43.10^{-4}$	$8,64.10^{-5}$	$1,08.10^{-5}$
$0,600.10^{-5}$	$1,79.10^{-1}$	$3,16.10^{-1}$	$2,22.10^{-1}$	$5,60.10^{-2}$	$8,63.10^{-4}$	$3,22.10^{-4}$	$1,88.10^{-4}$	$2,43.10^{-5}$
$0,800.10^{-5}$	$3,81.10^{-1}$	$2,85.10^{-1}$	$3,95.10^{-1}$	$9,95.10^{-2}$	$1,53.10^{-3}$	$5,72.10^{-4}$	$3,35.10^{-4}$	$4,43.10^{-5}$
$0,900.10^{-5}$	$4,03.10^{-1}$	$7,11.10^{-1}$	$5,00.10^{-1}$	$1,26.10^{-1}$	$1,94.10^{-3}$	$7,24.10^{-4}$	$4,24.10^{-4}$	$5,48.10^{-5}$
$1,000.10^{-5}$	$4,97.10^{-1}$	$8,77.10^{-1}$	$6,17.10^{-1}$	$1,56.10^{-1}$	$2,40.10^{-3}$	$8,94.10^{-4}$	$3,06.10^{-4}$	$6,76.10^{-5}$
$1,100.10^{-5}$	$6,01.10^{-1}$	1,06	$7,47.10^{-1}$	$1,88.10^{-1}$	$2,90.10^{-3}$	$1,29.10^{-3}$	$6,33.10^{-3}$	$8,18.10^{-5}$
$1,200.10^{-5}$	$7,05.10^{-1}$	1,26	$8,89.10^{-1}$	$2,24.10^{-1}$	$3,45.10^{-3}$	$1,08.10^{-3}$	$7,53.10^{-4}$	$9,74.10^{-5}$
$1,400.10^{-5}$	$9,74.10^{-1}$	1,72	1,21	$3,05.10^{-1}$	$4,70.10^{-3}$	$1,75.10^{-3}$	$1,02.10^{-3}$	$1,32.10^{-4}$
$1,600.10^{-5}$	1,27	2,25	1,58	$3,98.10^{-1}$	$6,14.10^{-3}$	$2,29.10^{-3}$	$1,34.10^{-3}$	$1,73.10^{-4}$

Vagyis: egyébként normális és egyenletesen elosztott urántartalommal biró talajdiszperziók kilugozódásánál a keletkező uránkoncentráció /background/ négyzete forditva arányos a k vizáteresztési tényezővel jellemzett szivárgási sebességgel.

A $q = b.K^2 = k.m^2$ egyenlőségekből következik, hogy

$$b = m^2 . k/K^2 \qquad /26/$$

Ezekben az összefüggésekben nincsen olyan elvileg uj megismerés, mely a /21/ és /22/ kiindulási egyenletekben már meg nem volna. Azonban mégis alkalmasak arra, hogy az urándusulás fizikai folyamatának fázisait szemléltetőbbé tegyék.

A /24/ és a /20/ egyenlet kombinációjából a következő összefüggést nyerjük:

$$q = b.K^2 = \frac{\rho_f}{\eta} . c_2 . \mu^3 . K^2 \qquad /27/$$

amiből:

$$K^2 = q . \frac{\eta}{\rho_f} . \frac{1}{c_2} . \frac{1}{\mu^3} \qquad /28/$$

$$K = \sqrt{q . \frac{\eta}{\rho_f} . \frac{1}{c_2} . \frac{1}{\mu^3}} \qquad /29/$$

és /25/ alapján:

$$K = m \sqrt{\frac{k\,\eta}{c_2 \mu^3 \rho_f}} \qquad /30/$$

Sajnos ezek az összefüggések inkább csak elméleti fontosságuak, mert a forrásviz földalatti utjában különböző szemcseösszetételü és áteresztőképességü vizvezető rétegeken haladhat át, és nincsen módunkban ezeknek integrálértékét megállapitani. A forrásvizek földalatti utjának hosszáról és megtételéhez szükséges időről alig rendelkezünk néhány adattal. *Schaad E.* [23] Svájcban laza üledékből fakadó vizek számára csak 1 ½ évre becsülte ezt szélső esetben. A mi VIII. csoportunk homokos iszapjaiban, amint azt a k értékeiből is meg lehet itélni, évekig, sőt talán évtizedekig szivároghat a viz, mig valamely kutban, vagy gyenge természetes szivárgásban napvilágra kerül. Abban az esetben, ha a viz teljesen stagnál, az U-background abnormálisan nagy értékeket érhet el, mint azt pl. Tedely régi fürdőjének /Tiszavasvári közelében/ használaton kivül álló forrásaknájában tapasztaltuk /150 γ/liter/. Természetesen az ilyen feldusulásnak semmiféle gyakorlati jelentősége nincs és hasonló beszámitás alá esnek azok a néhány tiz γ-ás U-koncentrációk is, melyeket *Szalay* professzor és munkatársai régebben a Taktaközén és Biharban a Kőrösök törmelékkupján, mi pedig a megyaszói pannon üledékben szivárgó vizekben megállapitottunk.

Azt hisszük, hogy azokat az eredményeket, melyekre az előzőekben félig induktiv, félig deduktiv módon jutottunk, nehezebben lehetett volna laboratóriumban végzett lugozási kisérletekkel megállapitani. Valószinünek látszik, hogy erre a célra a rendkivül érzékeny és megbizható mai mikrokémiai U-kimutatási módszert még egy nagyságrenddel kellene érzékenyebbé tenni. Ha pedig a laboratóriumban a természetben szereplő igen hosszu lugozási időket a kilugozandó diszperzió nagyobb rétegvastagságával óhajtanánk pótolni, még $k = 10^{-3}$-10^{-4} nagyságrendü vizáteresztőképességü anyagok esetében is valószinüleg nagy J esésnek megfelelő nyomást kellene alkalmaznunk. Ebben az esetben pedig kétségesnek látszik, vajjon az átpréselt viz mozgása megmarad-e laminárisnak, azaz a *Donat*-féle kisérleti parameterek érvényben maradnak-e? Erre nézve még csak kevés adat áll rendelkezésre. *Tiller F.M.* [24] a texasi *Beaumont State College of Technology*-ban azt állapitotta meg, hogy ipari szürőanyagok esetében a *Kozeny*-törvény még 7 kg/cm^2 nyomásnál is érvényes volt.

D. Z á r ó s z ó .

Fejtegetéseinket nem zárhatjuk le anélkül, hogy röviden rá ne mutassunk az eredmények általánosabb hidrogeológiai és talajtani jelentőségére is.

Régóta ismeretes pl. hogy a pannon és egyes miocén /különösen a helvét/ rétegekből fakadó gyengehozamu vizeink nagy keménységüek. A jelenséget habozás nélkül az anyakőzet tengeri származásával szokták magyarázni. Kétségtelen, hogy ez valóban oka lehet bizonyos könnyen oldható sóknak, mint pl. a halogén elemek sói viszonylagos felszaporodásának. A nagy keménységet ilyen módon azonban csak erőltetve lehet magyarázni. Sokkal valószinübb, hogy a kationok viszonylagos összekoncentrálódását a talajvizben a rétegek iszaposssága okozza, éppen ugy, ahogyan ezt az urán esetében láttuk. Feltehető, hogy nemcsak az U, hanem a többi kioldott kation koncentrációja is négyzetes arányban emelkedik a vizben, ha a vizáteresztési k-tényező lineárisan csökken. Az uránon kivül más nyomelemeknél is hasonló koncentrálódási törvényszerüség tételezhető fel a talajvizben, ami növénytermelési szempontból érdemel figyelmet.

A természetben lejátszódó oldódási folyamatoknál két összetevő-partner kölcsönhatása érvényesül. Az egyik a szivárgó viz, a másik pedig a viztől átmosott talaj-, általánosabban a geológiai szubsztrátum.

Mi az előzőkben adott problémánkból kifolyólag az oldódási folyamatnak azzal a fázisával foglalkoztunk, mely a szüremkedő viz összetételének /speciális esetünkben az urán-koncentrációnak/ a megváltozásában nyilvánul meg. Ki tudtuk mutatni, hogy az szigoru fizikai törvényszerüségek szerint, a talajdiszperzió belső mechanikai összetételét jellemző két paramétertől, S-től, ill. k-tól függ. Ez a tény lysiméteres kisérleteknél bekövetkező tápanyagkilugozás szempontjából és esetleg mütrágyák alkalmazásánál szükséges őrlési finomság megitélésénél is érdekelheti a gyakorlati talajkutatót.

A talajon átszüremkedő viz összetételének változására természetesen az általunk vizsgált fizikai sajátságokon kivül a talajszubsztrátum vegyi tulajdonságai is befolyással vannak. Ezek a hatások képleteinkben a K állandó abszolut

nagyságában rejtőzködnek. Az a tény, hogy számitásainknál *K* jó megközelitéssel állandónak volt tekinthető, azt jelenti, hogy az "uran-background"-ot okozó uránásvány eloszlás is közelitőleg állandó. Az "U-background" számértékeiben való mérsékelt ingadozás az évi középhőfoknak a "*b*" együtthatóban szereplő fizikai állandókra való hatásával, a nagyobb kiugró értékek a "*k*" és "*S*"-értékek megfelelő változásaival magyarázhatók.

Vizsgálataink tárgya az eddigiekben magának a szivárgó viz összetételének megváltozása volt. A talajszelvények genétikai kialakulásával foglalkozó kutatót ellenben elsősorban azok a kilugozási elváltozások érdeklik, melyeket a szivárgó viz utjában okozott. Ezek éppen ugy függvényei az *S* és *k* fizikai állandóknak és a *K*-ban foglalt kémiai viszonyoknak, mint az átszivárgott viz, a : "perkolátum". Táblázataink kitünően mutatják, hogy milyen óriási lefékező hatással van a kilugozásra a szemszerkezet finomodása. Erre egyikünk már évekkel ezelőtt rámutatott [25], amikor is megállapitotta, hogy az ilyen hatások révén olyan "talajklima" keletkezhet, mely lényegesen eltérhet a külső légköri klimától Igy azután a talaj vizáteresztési fokához képest olyan talajtipusok keletkezhetnek egymás szomszédságában, melyeket az orthodox talajtani szemlélet egymástól klimatikusan, teljesen eltérő vidékek szülöttjének hajlandó elismerni, mint pl. a tsernozjom, a barna erdei talaj és a podzol. Nem csoda tehát, hogy *Schaufelberger P.* a délamerikai Kolumbiába származott svájci talajkutató az összes talajtulajdonságok közül éppen a vizáteresztőképességet, az általában előforduló vizhatlan rétegek magassági elhelyezkedéséttette meg uj talajszisztematikájában [26] az osztályozás alapjának. Kétségtelen, hogy az ő "kilugozási tényezői", melyeket a báziseloszlás alapján számit, számszerü összefüggésbe hozhatók volnának a talaj fizikai szerkezetét jellemző *k* és *S* paraméterekkel, valamint a kémiai sajátosságokat meghatározó *K*-val is. Ilymódon eredményeinknek jelentősége lehet a talajok természetes rendszerének a megállapitására irányuló törekvések szempontjából is.

Ennek a kérdésnek részletes tárgyalása messze meghaladná munkánk keretét. Azonban mégsem mulaszthatjuk el, hogy legalább néhány szóval rá ne mutassunk a szikes talajok szokásos nomenklaturájában lappangó genétikai felfogás és a mi eredményeink tökéletes ellentétére. Nemcsak a hazai, hanem a külföldi irodalomban is beszélnek sós-szikes "szoloncsák" talajokról és sótlan, az abszorpciós komplexusban azonban több-kevesebb nátriumot tartalmazó "szolonec", vagy "kilugozott" szik talajokról. Az utóbbiak állitólag "kilugozás"-sal keletkeznének az előbbiekből. Tulajdonképpen csak egy modern talajtani munka van, melynek szerzője *Franz H.* [27], ezt a hibás elnevezést kerüli. Az ilyen sómentes alkálitalajok nagy mennyiségü abszorbeált vizet tartalmaznak, mely az erősen hidratizált Na-ionok vizburkaként tapad a legfinomabb talajszemcsékre. *Kozeny* az ilyen természetü talajokra nézve a képletekben a μ^3-t a $/\mu - \mu_o/^3$ kifejezéssel helyettesiti, ahol μ_o jelenti az abszorpciós vizburkok által csökkentett hézagarányszámot, $\mu - \mu_o$ tehát jellemző a szabad vizszivárgás számára az eredeti hézagtérfogatból még fennmaradó térfogatra. Az un. "kilugozott" szikesekben μ_o közel ugyanakkora mint μ, tehát $\mu - \mu_o$ közel 0 és pedig annál inkább, minél közelebb esik az altalaj szódáttermelő pleisztocénje a felszinhez, azaz mentől vékonyabb a pleisztocént boritó, eredettől fogva savanyu holocén iszap [25]. Teljességgel érthetetlen, hogy miképpen lehet egy talajszelvényben, amelyben $k = 10^{-9}$ nagyságrendü, vagy még kisebb, amelybe tehát a viz alig tud behatolni, a viz "kilugozó" hatásáról beszélni. Ennek a hamis képzeteket előidéző kifejezésnek a

talajtani irodalomból el kellene tünnie.

A Kozeny-törvény számos müszaki és talajtani vonatkozása miatt kutatótársainkat véltük szolgálni, amikor az előzőkben a törvényre vonatkozó szétszórt irodalmat egységes képbe foglaltuk, a különböző képletalakokban szereplő konstansokat indexszámokkal egymástól megkülönböztettük és számszerü viszonyukat tisztáztuk.

Felhasználjuk az alkalmat, hogy *Kozeny József* bécsi ny. egyetemi tanárnak, az Osztrák Tudományos Akadémia levelező tagjának köszönetet mondjunk azért a lekötelező szivességért, mellyel rendelkezésünkre állt, amikor munkánk során az egyik felhasznált irodalmi közleményben lévő értelemzavaró hibát kellett kiküszöbölnünk. Örömmel üdvözöljük elhatározását, hogy "Hidraulika" c. kitünő kézikönyve uj kiadásában törvénye deduktiv levezetését és *Donat* későbbi kisérleti igazolását uj, az eddiginél bővebb foglalatban megirja. Meg vagyunk győződve, hogy a mai napig sem a hidraulikában, sem mezőgazdasági és talajtani vonatkozásban a kutatás még nem meritette ki mindazt a lehetőséget, mely a törvény alkalmazásában a szivárgás fizikai folyamatával összefüggő jelenségekre kinálkozik.

*Dr. Szalay Sándor*nak, az ATOMKI igazgatójának hálásan köszönjük azt a szives készségét, mellyel közös munkánk minden akadályát elháritotta és azt minden vonatkozásban támogatta.

I r o d a l o m

[1] *Szalay S. - Scherf E.:* ATOMKI Közlemények *2,* 1960. 71. old.

[1a] *Meszéna Gy.:* ATOMKI Közlemények *2,* 1960. 99. old.

[2] *Grassberger H.:* Die Wasserwirtschaft /Wien/ *26,* 1933. 235-246. old.

[3] *Hazen A.:* Transactions of the Americ. Soc. of Civil Engineers 77, 1914. 1539.

[4] *Rényi A.:* Valószinüségszámitás. Tankönyvkiadó Budapest /1954/.

[5] *Weber E.:* Grundriss der biologischen Statistik. 3. Aufl. G. Fischer, Jena /1957/.

[6] *Quetelet L. A.:* Letters sur la theorie des probabilités. /1846/.
Quetelet L. A.: Sur l'home et le developpement de ces facultés ou essai de physique sociale. Paris /1835/. Németül: Dorn: Sammlung sozial- wissenschaftl. Meister. Bd. *19.* u. *20.* Meister, Jena, 1914, 1921.

[7] *Fechner G. Th.:* Kollektivmasslehre. Engelmann, Leipzig, 1897.

[8] *Pearson K.:* Philos. Transact. Roy. Soc. London. 186. A. 1895. 359. old.

[9] *Bruns H.:* Wahrscheinlichkeitsrechnung und Kollektivmasslehre. Leipzig, 1906.

[10] *Mises R.:* Wahrscheinlichkeitsrechnung und ihre Anwendung in der Statistik und theoretischen Physik, Deuticke, Leipzig-Wien, 1931. /V. ö. 250-265. old./

[11] *Lipps G. F.:* Die psychischen Massmethoden. Die Wissenschaft. Heft 10. Vieweg, Brunschweig, 1906.

[12] *Goodrich :* Proceed. of the Amer. Society of Civ. Engineers. *52,* 1926. 1063. old.

[13] *Reinhold Fr.:* Die Wasserwirtschaft /Wien/, *26,* 1933. 167-170, 191-193, 201-204.

[14] *Krüger E.:* Int. Mitteil. f. Bodenkunde, *8,* 1918. 105-122. old.

[15] *Zunker F.:* Das Verhalten des Bodens zum Wasser. Hdb. d. Bodenlehre, Bp. VI. Springer, 1930. 66-220. old. /V. ö. 153. old./

[16] *Densch A.:* Der mechanische Aufbau des Bodens. Hdb. d. Bodenlehre. Bd. VI. Springer, 1930. 1-66. old./

[17] *Donat J.:* Wasserkraft und Wasserwirtschaft /München/ 1929. 225-229. old.

[18] *Forchheimer Ph.:* Hydraulik. 3. Aufl. Leipzig-Berlin. Teubner. 1930.

[19] *Kozeny J.:* Sitzber. Akad. Wiss, Wien Math.-Naturw. Kl. Abt. II. a. Bd. *136,* 1927. 271-306. old. /V. ö. 236. old./

[20] *Kozeny J.:* Wasserkraft u. Wasserwirtschaft /München/ *22,* Jahrg. /1927. 67-70, 86-88, 103-104, 120-122, 146-148. /V. ö. 69. old./

[21] *Kozeny J.:* Zeitschr. f. Pflanzenernähr., Düng, u. Bodenkunde, *28,* 1933. 54-66. old. /V. ö. 55. old./

[22] *Grassberger H.:* Die Wasserwirtschaft /Wien/, *26,* 1933. 241-242. old.

[23] *Schaad E.:* Wasserkraft u. Wasserwirtschaft. /München/. *22,* 1927.

[24] *Tiller F. M.:* Chem. Engineering Progness. Vol. *49,* No. 9. 467. old.

[25] *Scherf E.:* Ann. Inst. Reg. Hung. Geologici. XXIX. Budapest, 1930.

[26] *Schaufelberger P.:* Neues Jahrb. f. Geol. etc. Mh. 1959. 392-416. old.
Schaufelberger P.: Schweiz. Mineral. u. Petrogr. Mitteil. Bd. *39,* 1959. 133-150. old./

[27] *Franz H.:* Feldbodenkunde. Verlag Fromme, Wien, 1960.

[28] *Scherf E.:* Földt. Int. Évi. Jel. 1925-1928-ról. Budapest, 1935. 265-301. old.

[29] *Medgyesy P.:* Alk. Mat. Int. Közl. *2,* 1953. 165.

LABORATÓRIUMI KISÉRLETEK AZ URÁNNAK SZÉNHAMUBAN TÖRTÉNŐ ELŐDUSITÁSÁRA

Szalay Sándor, Angeli István

Megvizsgáltuk, hogy milyen fizikai eljárásokkal lehet urántartalmú szenek hamujának uránkoncentrációját növelni a költségesebb kémiai kivonás előtt. Elsősorban a fajsúly szerinti szénosztályozás /szénmosás/ és a különböző aktivitású széndarabok kiválogatása vezet eredményre /kb. 2-3-szoros dúsulás/, de esetleg hasznos lehet a porszén-tüzelés útján nyert pernye mágneses szétválasztása is. Ezeknek az elődúsító módszereknek ipari méretekben történő alkalmazása azonban jelenleg nem látszik kifizetődőnek.

B e v e z e t é s.

Egyes dunántuli szeneink tudományos szempontból érdekes, de iparilag nem jelentékeny mennyiségü U-t tartalmaznak, kb. 60 gramm U/tonna szén átlagos koncentrációval [1]. A szén elégetése alkalmával a benne lévő U a hamuban marad vissza. Igy a hamu olyan U-ércnek tekinthető, amelynél elmarad az egyébként jelentékeny kibányászási és apritási költség, mert a modern hőerőmüvekben szokásos porszén-tüzelési technika a beadagolt szén felőrlését ugyis megköveteli.

Az igy nyert hamu U-koncentrációja azonban még mindig kicsi, kb. 120-150 g U/t. Célszerü volt tehát néhány laboratóriumi vizsgálatot elvégezni arra vonatkozólag, hogy milyen eljárásokkal lehetne emelni az U-koncentrációt vegyi beavatkozás nélkül. Meg kell azonban jegyeznünk, hogy az U-koncentráció növelése gyakran elég jelentékeny mennyiségü U elvesztésével jár a meddőben maradó U miatt. Ezért az egyes eljárások esetleges gyakorlati megvalósitása alkalmával a gazdaságosság elérése érdekében mindig bizonyos kompromisszumra van szükség.

Az egyes dusitó eljárások részletes ismertetése előtt röviden vázoljuk az U-meghatározások módjait:

a./ A szén béta-aktivitásának közvetlen mérése végablakos G.M.-csővel;

b./ A hamu béta-aktivitásának mérése végablakos G.M.-csővel és a szén hamutartalmának /H/ meghatározása;

c./ A hamu U-koncentrációjának /U_H/ kémiai meghatározása és egyidejü hamutartalommeghatározás.

Jelölések:

U_{Sz} = a szén U-koncentrációja $\frac{\text{gramm urán}}{\text{tonna szén}}$ egységekben;

U_H = a hamu U-koncentrációja $\frac{\text{gramm urán}}{\text{tonna hamu}}$ egységekben;

H = a szén hamutartalma $\frac{\text{elégetés utáni termék sulya}}{\text{szénminta sulya elégetés előtt}}$ .100 % egységekben.

A fenti három mennyiség között a következő összefüggés áll fenn:

$$U_{Sz} = U_H \cdot H/100$$

A G.M. csöves mérések esetében egy ismert U-koncentrációju hamuból készült preparátumot alkalmaztunk standard gyanánt. Az aktivitásmérések hibája általában nem haladta meg az 5-10 %-ot; sok esetben azonban csak 1-2 % volt, és csak néhány igen kis aktivitásu mintánál tett ki 50-100 %-ot.

A hamutartalom meghatározásánál elkövetett hiba általában 5 % alatt volt, sőt egyes esetekben 1 %-nál is pontosabbak a hamuértékek. / A kémiai U - meghatározásokat és az 1 %-os pontosságu hamutartalom meghatározásokat *Sámsoni Zoltán* vezetésével az Intézet Analitikai Csoportja végezte./

A következő előd usitási módszerekkel próbálkoztunk:

1./ Nagyobb rádióaktivitásu széndarabok kiválogatása az aktivitás mérése alapján;
2./ Fajsuly szerinti szénosztályozás /szénmosás/;
3./ Erőművek pernyéjének mágneses szeparálása;
4./ Erőművek pernyéjének szemnagyság szerinti szétválasztása.

1. Aktivitáseloszlás dunántuli rádióaktiv szenekben. A különböző aktivitásu szénfrakciók átlagos hamutartalma és a hamu uránkoncentrációja.

Ha a szénben az U-koncentráció erősen ingadozó, akkor radiometriás vizsgálat alapján kiválogathatjuk a magas U-tartalmu széndarabokat,/esetleg szenes csilléket, vagy szállitószalagon futó széncsomókat/ azért, hogy a nagy aktivitásu szenet külön kazánban elfütve magas koncentrációju hamut nyerjünk. Az ilyen előd usitási eljárás alkalmazhatóságának feltétele az U-koncentráció statisztikus eloszlásának megvizsgálása.

Ezért vizsgálatokat végeztünk arra vonatkozóan, hogy radioaktiv szenek U-tartalma hogyan oszlik meg statisztikailag az egyes szénminták között. Találomra kiragadva 50-50 széndarabot /kb. 100-600 g-os minták/ tatabányai, alsócsingeri és padragi - helyszini G.M.-csöves mérések alapján kiválasztott - radioaktiv szenekből, egyenként meghatároztuk azok U-koncentrációját, illetve egyenkénti elégetés után a hamutartalmat és a hamu U-koncentrációját. A helyszini mérések módját az [1] közlemény részletesen ismerteti.

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKAD... KÖNYVTÁRA

A statisztikai megoszlásra kapott eredményt az 1., 2., 3., és 4. ábrák mutatják; a különböző eredetü szénfajták szerint különválasztott ábrázolás is nagyjából hasonló eredményre vezetett. Abszcisszának mindenütt a szén U_{Sz} U-koncentrációját, illetve a vele arányos A /aktivitás/ mennyiséget vettük fel ugy, hogy az éppen az átlagos $U_{Sz,o}$ = 82 g U/t sz. koncentráció esetében lesz egyenlő eggyel, vagyis $A = U_{Sz}/U_{Sz,o}$.

Az 1. ábra ordinátája a relativ gyakoriságot mutatja, éspedig az a integrális görbe az adott A-nál nagyobb aktivitásu széndarabok előfordulási gyakoriságát, mig a b görbe az illető A-hoz tartozó, $\Delta A = 0,5$ hosszuságu aktivitás-intervallumban fellelhető széndarabok differenciális gyakoriságát adja meg.

A b görbét a következőképpen nyertük: az A tengelyt $A = 0$ kezdőponttal $\Delta A = 0,5$ hosszúságú intervallumokra osztva felrajzoltuk az ezen intervallumokba eső széndarabok százalékos számát /pontozott vonallal rajzolt histogramm/, majd az intervallumhosszúságot változatlanul hagyva, de kezdőpontnak $A = 0,25$-öt választva rajzoltuk fel ugyanezt a mennyiséget /szaggatott vonalú histogramm/. A lépcsőkön kis kör jelzi az illető intervallumon belüli aktivitás-átlagot. Ez sok esetben közel esik az intervallum közepéhez. Ezeket folytonos vonallal összekötve, illetve megközelitve kapjuk a b görbét, amely elég jó felvilágositást ad az előfordulási gyakoriságra vonatkozóan. Igy kiküszöbölődik a histogramm-ábrázolás egyik önkényes paramétere: a kezdőpont megválasztás /"kiegyenlitett ábrázolás"/.

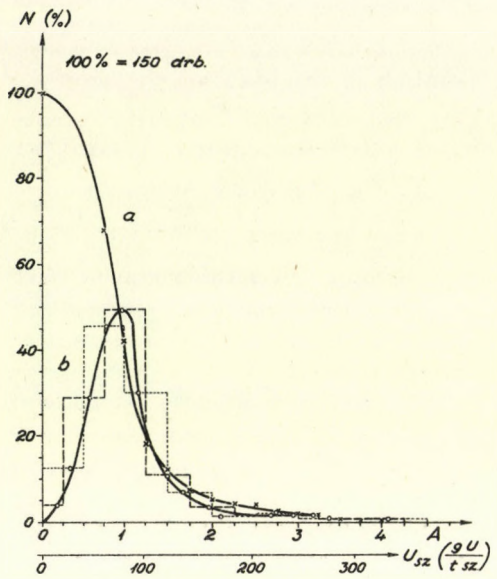
Látható az 1. ábra b görbéjéről, hogy - bár kis mennyiségben - előfordulnak az átlagosnál 3-4-szer aktivabb széndarabok is, és hogy nagyon kevés az igen kis aktivitásuak száma.

Az egyes minták külön-külön történt elégetése során nyert hamu U-koncentrációját a 2. ábra a és b görbéivel ábrázoltuk. Az a görbe az adott A érték feletti aktivitásu szénmennyiség hamujának U-koncentrációját mutatja. Ez $A = 0$-nál éri el a vizsgált teljes szénmennyiségre vonatkozó $U_{H,o} = 184$ g U/t h. értéket. A b görbe itt is, mintegy "differenciagörbéje" az a-nak. /$\Delta A = 0,5$ intervallumhosszra vonatkozólag./ Megszerkesztése hasonló módon történt, mint az 1. ábra esetében. Jól látható, hogy az $U_H = U_H(U_{Sz})$ összefüggés nem lineáris, hanem az iránytangens a nagyobb A értékek felé egyre nagyobb lesz, vagyis a hamu U-koncentrációja erősebben növekszik, mint a széné. Ennek az a magyarázata, hogy A növekedtével a hamutartalom általában csökkenést mutat /lásd a 3. ábrát/, tehát a nagy aktivitásu széndarabok elégetése során az U a hamuban jobban bedusul, mint a kisebb aktivitásuak esetében.

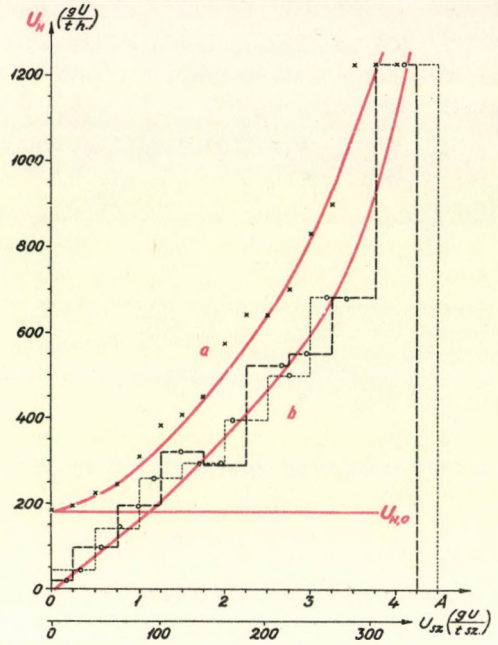
A 4. ábra K_U /uránkihozatal/ ordinátáján azt ábrázoltuk, hogy egy meghatározott szénfrakcióban az összes uránmennyiségnek hány százaléka található.

Az elmondottak alapján az ábrákról leolvasható pl., hogy különválasztva az átlagosnál legalább kétszer aktivabb széndarabokat ($A=2$; $U_{Sz}=164$ g U/t sz.) a teljes szénmennyiségnek 5,3 %-a jön ki /1. ábra/, ebben azonban bent van az összes urániumnak 15 %-a /4. ábra/, amely a szén elégetése után kb. $U_H=560$ g U/t h. -ra növekedett koncentrációval /2. ábra/ a hamuban marad vissza. A hamu eredeti U-tartalma csak $U_{H,o} = 184$ g U/t h. volt.

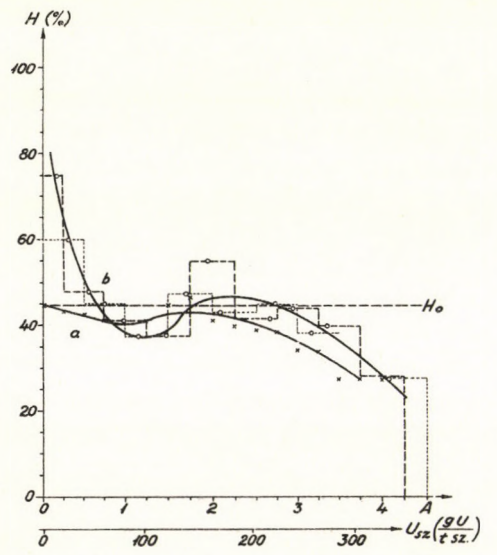
Figyelemre méltó a hamutartalom 3. ábra b görbéjének az $A = 1,0$ és 1,5 értékek között észrevehető minimuma. Ugy látszik, mintha egy az aktivitás és hamutartalom összefüggését mutató monoton fogyó függvényre egy másik is szuperponálód-



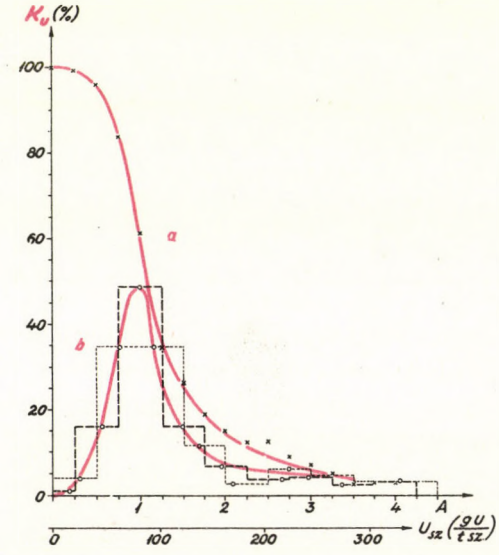
1. ábra. A különböző aktivitású széndarabok relativ gyakorisága.



2. ábra. A különböző aktivitású szénfrakciók hamujának uránkoncentrációja.



3. ábra. A különböző aktivitású szénfrakciók hamutartalma.



4. ábra. A különböző aktivitású szénfrakciók által hordozott viszonylagos uránmennyiség /uránkihozatal/.

nék, amely szerint a *nagyon kis hamutartalmú* széndarabok kevéssé aktivak. Ezt a feltevést támasztja alá a következő tény is:

Fajsuly szerinti szénszeparáció alkalmával a legkönnyebb, tehát legkisebb hamutartalmu darabok hamujának U-tartalma általában nem növekszik a hamucsökkenésnek megfelelő mértékben, sőt néha bizonyos mértékü visszaesést is mutat. Részletesebben lásd a szénmosásról szóló 2. rész 7. ábráját.

2. Fajsuly szerinti szénszeparálás /szénmosás/ hatása a hamu U-koncentrációjára.

A szén elégetése alkalmával két azonos eredetü és azonos U-koncentrációju szénminta közül annak a hamuja lesz U-ban dusabb, amelyiknek kisebb a hamutartalma. Célszerü tehát a kis hamutartalmu széndarabokat különválasztani a többitől. Ezt fajsuly szerinti szétválasztással oldhatjuk meg, mert általában - ugyanabban a széntelepben - a kisebb fajsuly kisebb hamutartalommal jár együtt [2], [3].

A szénmosási kisérletek során követett eljárásunk lényegében abból állt, hogy meghatározott fajsulyu kalciumklorid /$CaCl_2$/-oldatot készitve, a vizsgálandó szenet lemérés után beleöntöttük, összekevertük, majd az egyensulyi állapot beállta után a felszinen uszó, tehát az oldat fajsulyánál könnyebb darabokat leszedtük és visszamértük. Az alkalmazott oldatok fajsulya 1,00-1,45 között változott; az egyes kisérletekben felhasznált oldat mennyisége 3-300 liter volt, az elválasztásra kerülő szénmennyiségtől függően.

A szénmosás eredményét az un. "mosási görbékből" itélhetjük meg [2], amelyeket a következőképpen nyertünk. Különböző fajsulyu oldatokkal több részre választva a szenet, meghatároztuk az egyes termékek sulyát és hamutartalmát. Ezek alapján tüntettük fel a következő görbéket /5a. és 6a. ábra/:

abszcissza:

s: szén-sulykihozatal %-ban;

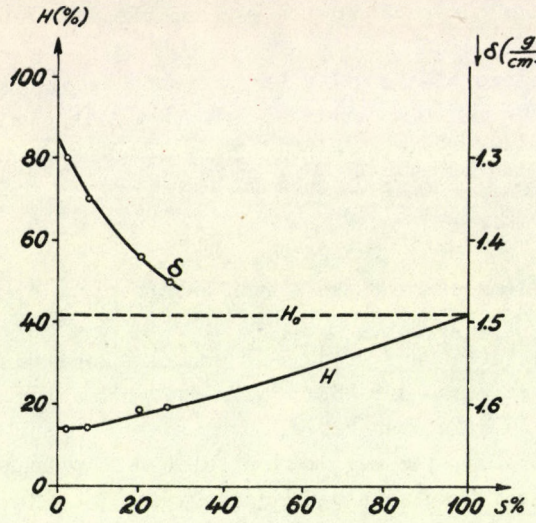
ordináták:

δ: a szeparáló oldat δ fajsulyának és az illető fajsulynál könnyebb termék s sulyszázalékának összefüggése;

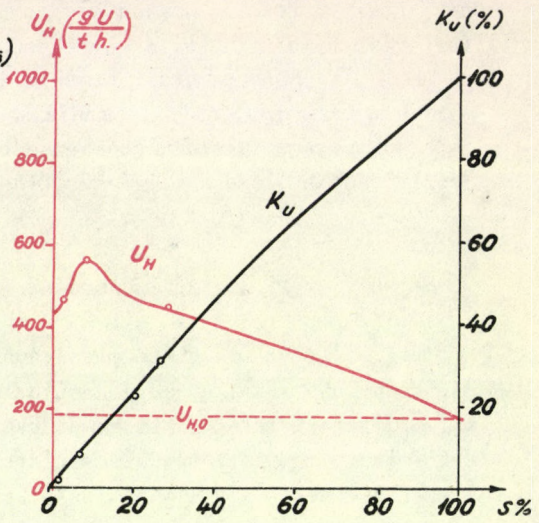
H: a mosott szén átlagos hamutartalmának görbéje, tehát a 0 %-s % intervallumba eső frakció hamutartalma. /H_o: a kiindulási, mosatlan szén hamutartalma./

A mosási görbék mellett felrajzoltuk a mosott szén hamujának átlagos U koncentrációját /U_H/ és az U-kihozatalt /K_U/ is, mint s % függvényét. A kiinduláshoz felhasznált szeparálatlan szén átlagos hamu, ill. a hamu átlagos U-koncentrációját az s = 100 %-hoz tartozó pontok adják. Az 5. ábra görbéiről leolvasható pl., hogy δ = 1,42 fajsulynál kijött a szénnek 20 %-a és vele az U-nak 22 %-a, az igy kapott termék hamutartalma 18,5 %-ra csökkent a kiindulási 41,5 %-kal szemben, a hamu U - tartalma pedig 460 g U/t h. - ra emelkedett a kezdeti 184 g U/t h.-val szemben.

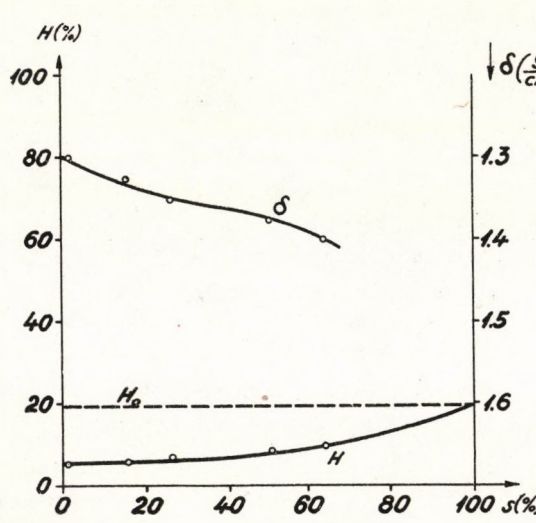
Az 5. ábra egy átlagos padragi szén esetére vonatkozik, mig a 6. ábra a kisérletek során elért optimális esetet mutatja 10.000 g U/t h., tehát 1 %



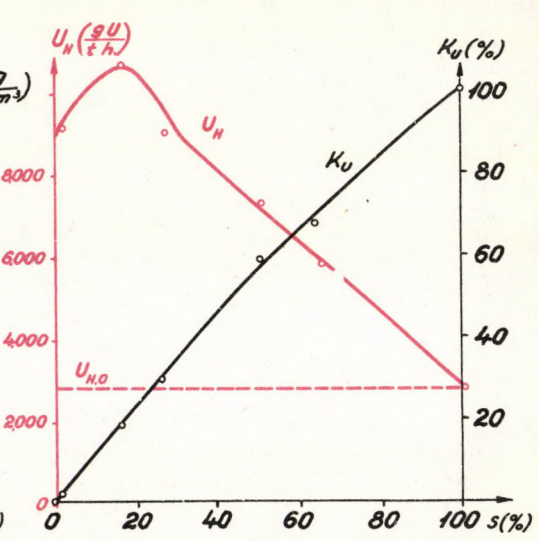
5a. ábra. Mosási görbék.



5b. ábra. U -koncentrációs és U -kihozatali görbék. /Átlagos aktiv szén esete./



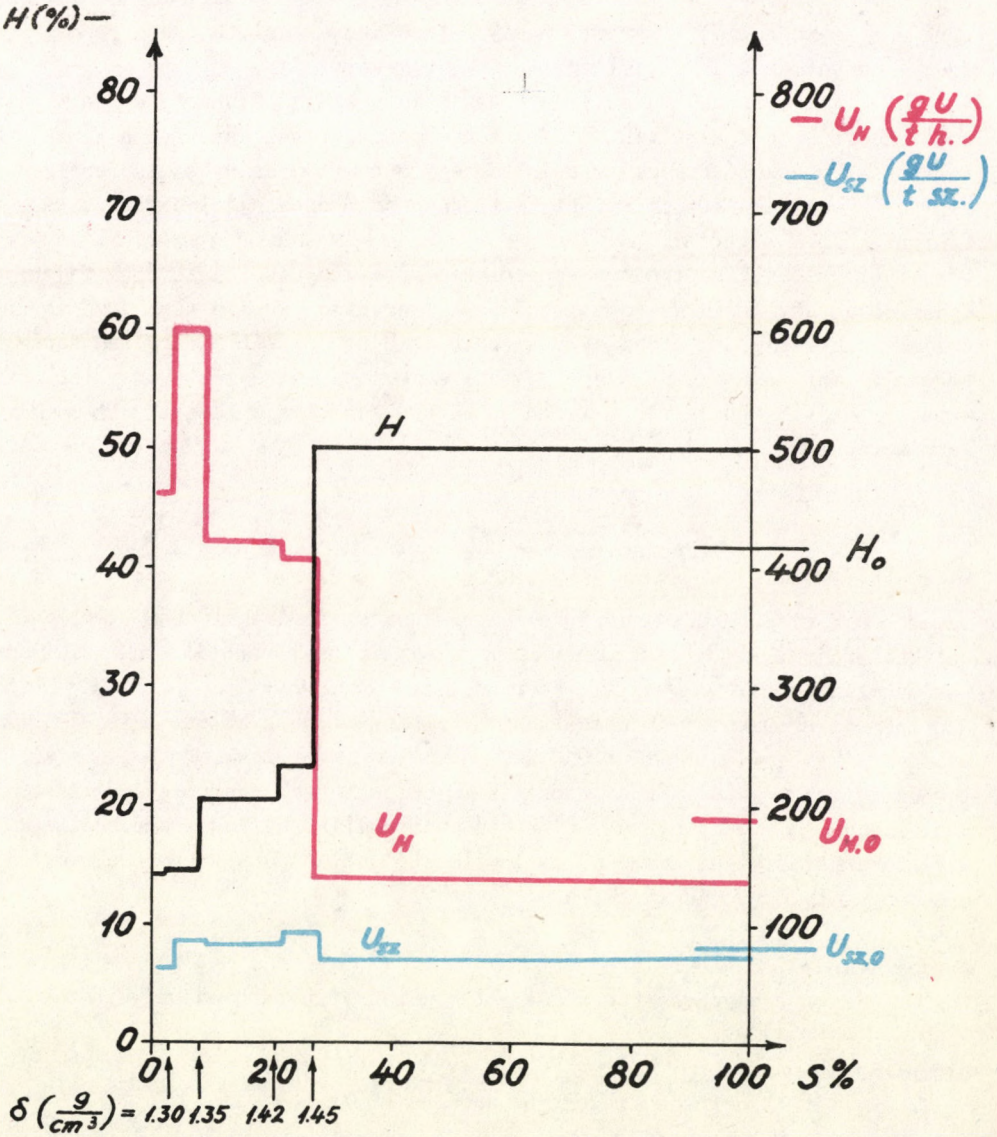
6a. ábra. Mosási görbék.



6b. ábra. U -koncentrációs és U -kihozatali görbék. /Optimális eset./

feletti maximális U-koncentrációval. Ez utóbbinál a kiindulási szén ugyancsak padragi származásu, amelynek hamujában az U-koncentráció kb. 600 g U/t h.volt. A három éven keresztül szabadban tárolt szén egy része már erősen elporladt; a megmaradt darabok közül kézi válogatással kiszedtük azokat, amelyek fényes, fekete, réteges szerkezetüek voltak, ezeket 3-7,5 mm szemnagyságura apritottuk, és az igy nyert terméket választottuk el a 6a. ábráról leolvasható fajsulyértékeknél.

A kisérletek során bebizonyosodott, hogy a mosás *minden esetben* a hamu U-koncentrációjának megnövekedésére vezet, bár ez a kb. 2-3-szoros növekedés nem felel meg pontosan a hamutartalom csökkenése alapján megjósolható értéknek. Tehát már a különböző fajsulyu szénfrakcióknak is különböző az U-koncentrációja! Jól látható ez a 7. ábrán, amelyen 3-30 mm szemnagyságu padragi szén fajsulyfrakciói-



7. ábra. Padragi aktiv szén fajsúlyfrakcióinak U-koncentrációja /kék/, hamutartalma /fekete/ és a frakciók hamujának U-koncentrációja /piros/.

nak U-koncentrációja mellett /kék histogramm/ feltüntettük a hamunak az U-koncentrációját is /piros histogramm/. Abszcisszának ugyan nem közvetlenül a fajsulyt, hanem a vele monoton változó szénsulykihozatalt választottuk, de tájékoztatásul külön feltüntettük az egyes intervallumok határpontjaihoz tartozó fajsulyértékeket.

A legkisebb és legnagyobb fajsulyu /tehát hamutartalmu/ szénfrakció az átlagosnál kisebb U-koncentrációval rendelkezik, mig a közbülső három frakció aktivabb az átlagosnál. Hasonló tapasztalatról már az 1. részben is említést tettünk.

Fenti jelenség kielégitő magyarázatához részletes szénkémiai vizsgálatokra lenne szükség. Ezek elvégzését nem tekintettük feladatunknak. Hadd említsünk meg azonban egy feltevést, amely - legalábbis kvalitative - megmagyarázza a szén U-tartalmának ilyen jellegü fajsulyfüggését:

A legkisebb fajsulyu széndarabokban a kis hamutartalmu un. "bituminites" elegyrészek dominálnak [3]; ezek nem rendelkeznek különösebb kémiai aktivitással. A következő fajsulyfrakciókban egyre nagyobb arányban szerepelnek a "huminitek", amelyek viszont kitüntetett adszorpcióképességgel birnak és sok nehézfémiont tudnak megkötni, pl. U-t is /lásd: [1], valamint *Szalay Sándor* és munkatársai humuszsav-adszorpcióval foglalkozó közleményeit. /A további fajsulynövekedés során növekszik az "oxinitek" és a szervetlen anyagu hamuképző ásványi anyagok mennyisége; ez utóbbiak veszik át az U hordozását a nagy hamutartalmu daraboknál. Ezt támasztja alá egy régebbi szénmintán elvégzett vizsgálat, amely azt mutatta, hogy a "huminites maximum" után csökkenő, majd lassan ujra emelkedő szakasz következik.

3. Mágneses pernye-szeparáció.

Porszéntüzelésü erőmüvek pernyéinek szemcséi különböző kémiai összetételüknél fogva, különböző mágneses permeabilitással rendelkeznek. Elsősorban a vastartalom okozza a szemcsék ferromágneses tulajdonságát. Eddigi vizsgálatok szerint [4] a humuszsavak nemcsak az U-t, hanem többek között a ferri-iont is adszorbeálják, igy feltehető volt, hogy ferromágneses szemcseválogatással U-dusuláshoz is lehet jutni. Erős inhomogén mágneses térrel a pernye a szokásos ásványtani szeparációs eljárással különböző permeabilitásu frakciókra bontható. Ilyen kisérleteket az Ajkai Erőmü pernyeleválasztójából kapott pernyékkel végeztünk, az eredmény a 8. és 9. ábrán látható.

Abszcissza:

s_H: a mágneses térerősséggel monoton változó hamu-sulykihozatal %-ban.

Ordináták:

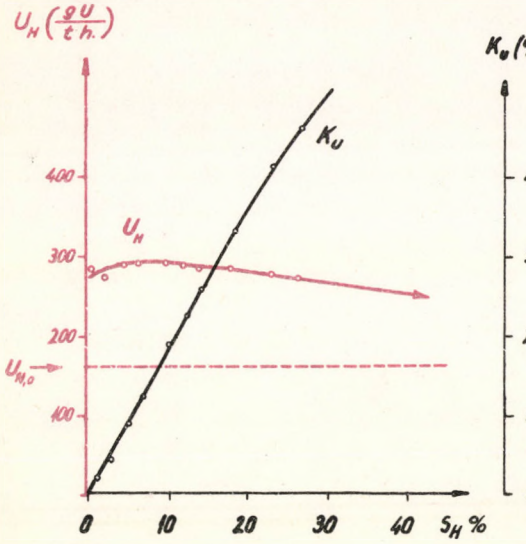
U_H: a mágneses frakció U-tartalma g U/t h.-ban;

K_U: U-kihozatal %-ban;

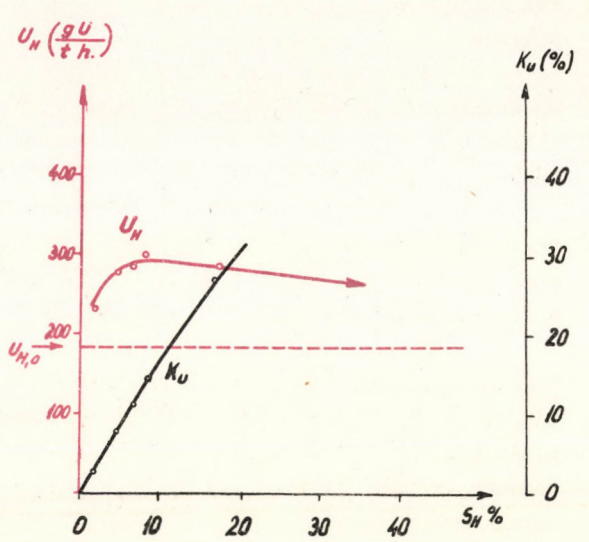
$U_{H,O}$: a kiindulásul szolgáló pernye U-koncentrációja.

A 8. ábra 1953-ban ismeretlen, de Ajka környéki eredetü szén eltüzelése során nyert pernyére vonatkozik. A 9. ábra 1957-ben Alsócsingerből származó és

G.M.-csöves mérés alapján aktivnak észlelt szén eltüzelése utján kapott pernye szeparációs adatait tartalmazza. Amint látjuk a szeparáció kb. 1,6 - 1,8-szoros U-dusulásra vezet a mágneses frakciókban, kivéve egy kis kezdeti szakaszt. /Tehát nem a legmágnesesebb szemek a legaktivabbak!/



8. ábra. Ajkai pernye mágneses frakcióinak U-koncentrációja. /1953/



9. ábra. Ajkai pernye mágneses frakcióinak U-koncentrációja. /1957/

4. Szemnagyság szerinti szétválasztás.

Szitasorozattal /60-200 μ/ különböző szemnagyságu frakciókra bontottuk az ajkai pernyét, valamint annak mágneses és nem mágneses frakcióját. Azt az eredményt kaptuk, hogy a kis szemnagyságu frakciók mind a három esetben kb. 1,3-szor aktivabbak voltak az átlagosnál. Részletesebb vizsgálatokat ezen a téren *Sámsoni Zoltán* végzett [5].

Összefoglalás.

A megvizsgált dusitó módszerek közül az aktivitás szerinti osztályozás és a fajsuly szerinti szénszeparáció mindig eredményes volt, sőt az esetek legnagyobb részében a mágneses, illetve szemnagyság szerinti pernyeszeparáció is U-dusulásra vezetett.

Azonban, a rentabilitás határát 0,1 % U-koncentrációnak véve, ezt az U_H értéket - szeneink jelenlegi U-koncentrációja mellett - csak igen csekély U-kihozatal esetén érhetjük el, ezért az ipari méretekben történő alkalmazás egyelőre nem látszik gazdaságosnak.

Ezuton köszönetet mondunk *Sámsoni Zoltán* tudományos munkatársnak és az *Intézet Analitikai Csoportjának* az U-analizisek és a pontos hamutartalom meghatározások elvégzéséért és *Veress Zoltánné* önálló laboránsnak a dusitó eljárások kikisérletezése során nyujtott segitségéért.

I r o d a l o m

[1] *Szalay S. - Almássy Gy. - Pesty L. - Lovas I.:* Magyarország egyes fontosabb kőszénterületeinek átvizsgálása uránium nyomelőfordulás szempontjából. ATOMKI Közlemények *1*, 1.sz. 7. old. /1959/.

[2] *Tarján G.:* Szénelőkészitéstan. /1955. Tankonyvkiadó/ 7. és 10. old.

[3] *Szádeczky-Kardoss E.:* Szénkőzettan. /1952. Akadémiai Kiadó/ 43. és 86. old.

[4] *Szabó Ilona:* Kationok adszorpciója humusz preparátumon. MTA III. Oszt. Közl. VIII. köt. 393. old. 1958.

[5] *Sámsoni Z.:* Laboratóriumi kisérletek az ajkai szénhamu uránium - tartalmának kioldására a gazdaságosság szempontjából. Megj. alatt. ATOMKI Közl. II. köt. 155. old.

LABORATÓRIUMI KISÉRLETEK AZ AJKAI SZÉNHAMU URÁNIUM TARTALMÁNAK KIOLDÁSÁRA A GAZDASÁGOSSÁG SZEMPONTJÁBÓL

Dr. Sámsoni Zoltán

Az ajkai szénmedence két különböző helyéről származó, részben vagontételben való kiválasztással, részben kisebb tételben fajsúly szerinti szeparációval carbonium-ra és urániumra elődúsitott szénminták hamuiból U kioldási vizsgálatokat végeztünk szódával és kénsavval. Megállapitottuk, hogy a szódás kioldási módszer az ajkai szénhamu esetén nem alkalmazható, viszont kénsav segitségével 90 %-on felüli U kihozatal vált lehetségessé. Megvizsgáltuk továbbá a kénsavas módszer optimális viszonyait és azt találtuk, hogy megfelelő elődúsitás alkalmazása esetén a súlyegységnyi U kioldásához közelitőleg 3 nagyságrenddel nagyobb kénsavfogyasztás tartozik. Tájékoztató jellegű próbákat végeztünk közvetlenül a szénből való U kioldásra is és azt találtuk, hogy szódás módszerrel az elődúsitott szénből /1,42 fajsúly alatti szénfrakció/ 90 %-on felüli kihozatal volt lehetséges, mig kénsavval 70 % körül, sósavval pedig 50 % körüli extrakció volt elérhető.

B e v e z e t é s

A II. Világháboru után az egész világon hatalmas méretü kutató munka kezdődött uj uránium és thórium érctelepek felfedezésére. E kutató munkát azok az államok végezték a legintenzivebben, melyeknek területén a konvencionális energiaforrások amugy is viszonylag bőségesen rendelkezésre állanak. Igy pl. az USA 1952-53 években félezer geológust foglalkoztatott ilyen irányu kutatással, többet, mint az olajkutatás kivételével az összes többi ásvány- és érckutatásnál együttvéve [1]. A hagyományos energiahordozókban közismerten szegény Magyarországon is parancsoló szükségszerüség volt ilyen irányu kutató munka megindítása. Ezen a téren az uttörő munkát *Szalay Sándor* és *Földvári Aladár* professzorok végezték 1947-től kezdődően [2-11]. Kutatásaik során kimutatták a Mecsek és Velencei hegység gránitjaiban az U és Th bizonyos mértékü feldusulását, majd egész sor dunántuli szénmezőben felfedeztek urániumot. A széntelepek uránium tartalma több

helyen a gránitok U tartalmánál jóval nagyobbnak bizonyult. E felfedezést követően *Szalay* professzor vezetésével részletes kutató munka indult meg Intézetünkben a hazai szenek U tartalmával kapcsolatos elméleti és gyakorlati problémák tisztázására.- Jelen dolgozat ennek a komplex kutató munka eredményének egy részletét kívánja ismertetni, nevezetesen az Ajka környéki szénmedence egyes telepeiből származó szén U tartalmának gazdaságos kioldási feltételeit tárgyalja. Több más U tartalmu dunántuli széntelep közül a felső kréta koru ajkai szénre azért esett a választás, mert egyfelől a szénbányákban végzett helyszini GM csöves γ-sugárzás mérés, valamint a szénminták százainak kémiai vizsgálata alapján *Szalay* és munkatársai ugy találták, hogy az ajkai szénmedence több telepében mutatkozik viszonylag magasabb U tartalom [12].

A szenek U tartalmának felhasználását két figyelemreméltó tényező igen előnyösen befolyásolja. Ezek: 1/ A szenet, - kivéve a földalatti elgázositás esetét - mindenképpen ki kell bányászni ahhoz, hogy tüzelőszerkezetekben, vagy más felhasználási helyen hasznosithatóvá váljék. Ily módon a szénnel együtt a felszinre hozott urániumot már nem terhelik a kibányászás költségei, sőt elmaradnak az őrlés gyakran tetemes költségei is, mivel a modern hőerőmü technikában a szenet csaknem kizárólag porszén alakjában tüzelik el és igy a képződött hamu is poralaku. 2/ A szén eltüzelése során az U tartalom a hamuban visszamarad, tehát lényegileg az U a szén hamutartalmával forditott arányban bekoncentrálódik. Az igy elérhető dusulás ideális esetben 8-10-szeres is lehet.

A viszonylag alacsony U tartalom miatt szükséges az U-nak a szénben, majd a hamuban való további dusitása, mivel az U kioldása csak egy bizonyos minimális koncentrációnál válik rentábilissá./Ez az alsó értékhatár jelenleg, korszerü nagyüzemi feldolgozás esetén világviszonylatban 0,05 - 0,1 % körül mozog./ A lehető maximális kihozatali aránynak és a gazdaságossági szempontoknak helyes mérlegelésével levezetett előzetes fizikai dusitás segitségével az U tartalom tekintélyes koncentrálása érhető el, amellyel már a gazdaságos kinyerés lehetősége reális közelségbe kerül.

A szakirodalomban nagy bőséggel találhatók részletes ismertetések a különféle tipusu U ércek feltárásáról és hidrometallurgiájáról, de a széntelepek U tartalmának kinyerésével kapcsolatban ugyszólván alig akad közlemény. Ennek egyik magyarázata az, hogy a szenekben és lignitekben az U-ot, mint nyomelemet alig több, mint egy évtizede fedezte fel *Szalay* és *Földvári*, másfelől pedig a többi U előfordulásához viszonyitva legtöbbször csak jóval kisebb koncentrációban található a szén- és lignittelepekben. Az U és Th ércek utáni kiterjedt kutatások eredményei között az utóbbi években első sorban az Egyesült Államokban több közlemény jelent meg, amelyek urániumtartalmu lignitekről, szenes palákról és ritkábban U tartalmu szenekről számolnak be [14-21]. E fosszíliák a legtöbb esetben a geológiai harmadkorból származnak és csak ritkábban fordulnak elő idősebb, U tartalmu szénbázisu képződmények. E lignitek, szenes palák, vagy szenek U tartalma a közlések szerint 10-1000g/t, sőt egyes esetekben e feletti értéket is mutat. Figyelembevéve azt a körülményt, hogy egyes telepeknél a rendelkezésreálló készlet több, mint 100 millió t, igy az U készlet is több 10.000 tra tehető [21, 27].

A mi általunk vizsgálat tárgyává tett felső kréta koru ajkai szén fütőértéke az egyes telepektől függően 2500-3900 kcal/kg, hamutartalma 15-45 %, nedvességtartalma pedig 15-30 % között változik. Ezekből az adatokból is látható,

hogy nem egységes minőségü szénterületről van szó, hanem, viszonylag még rövid távolságokon belül is, mind függőleges, mind horizontális kiterjedésben erősen változó összetételü telepekkel állunk szemben. Az itteni U készletnek éppen a szén változó minősége és változó U koncentrációja miatt csak egy bizonyos hányadát volna lehetséges gazdaságosan kinyerni. Mivel még ilyen körülmények között is akkora U készlettel számolhatunk, amely korszerü reaktortechnológiai eljárások alkalmazásával sok 100 millió tonna szénnel egyenértékü energiamennyiséget képvisel, feltétlenül érdemes a ma még hulladékba kerülő érték megmentésével és hasznositásával legalább laboratóriumi szinten foglalkozni.

K i s é r l e t i r é s z.

A laboratóriumi kisérletek alapjául szolgáló szénmintákat két különböző időpontban, a szénmedence két különböző helyéről más-más módszer segitségével vettük. Az első mintát 1957 áprilisában az Ajkai Erőmünél gyüjtöttük, ahol az Erőmühöz beérkező szénszállitmányokat GM csöves γ-sugárzásméréssel több napon át folyamatosan ellenőriztük és a legnagyobb aktivitásunak mutatkozó, zömmel alsócsingeri szenet tartalmazó 10 vagont külön kiüritve, külön tüzeltettük el. Az eltüzelt szén hamujának egy részét begyüjtöttük és ebből végeztük kisérleteinket, beleértve a dusitási kisérleteket is [13]. /Továbbiakban: I. sz. begyüjtés./ A második mintát 1958. októberében az ajkai medence bányáiban, előzetes tájékozódó GM csöves aktivitás mérések után, az akkor legnagyobb aktivitást mutató padragi szénbánya IV. szintjéből gyüjtöttük be. /Továbbiakban: II. sz. begyüjtés./ A begyüjtött 15 t szenet *Szalay* professzor elgondolása alapján *Angeli* [13] fajsuly szerint szétválasztotta és az ily módon nyert, aránylag magas U-tartalmat mutató, 1,42-nél kisebb fajsulyu un. " könnyü frakció " hamujából végeztük a kioldási vizsgálatokat. Az un. "könnyü frakció" *Angeli* szerint a teljes szénmennyiségnek mintegy 20 %-át reprezentálja [13].

Az I. begyüjtésből származó szénhamut az Intézetben tervezett és készitett mágneses szeparátorral két részre bontottuk. A mágneses rész, mely az egész hamumennyiségnek kb. 10-12 %-át képviseli, kb. kétszer olyan magas U tartalmu, mint a kevésbé mágneses frakció.- /A II. begyüjtés hamujánál is próbálkoztunk mágneses dusitással. A könnyü frakciónak kb. 20 %-a volt az erősebben mágneses rész, de az U feldusulása szempontjából ennél számitásbavehető eltolódás nem állott be, sőt egyes méréseknél a kevésbé mágneses részben találtunk magasabb U tartalmat./

Az I. és II. begyüjtésből származó hamuminták analizisének adatait tünteti fel az 1. sz. táblázat.

1. sz. Táblázat.

Az ajkai /I./ és a padragi /II./ szénhamuk összetételének vizsgálata.

A szén jellemzői és a hamu alkatrészei	I. begyüjtés			II. begyüjtés		
	1.	2.	3.	4.	5.	6.
	Eredeti hamu minta	Mágneses hamu minta	Nem mágneses h. minta	Eredeti szén, ill. h. minta	Könnyü /d<1,42/ frakció	Nehéz /d>1,42/ frakció
Fütőérték kcal/kg	-	-	-	2939	4655	2131
Hamutart. %	-	-	-	38,18	16,60	47,20
U_3O_8 szénre g/t	-	-	-	93	107	59
U_3O_8 hamura g/t	220	342	170	242	645	126
SiO_2 %	12,41	15,21	10,62	23,46	24,55	21,79
TiO_2 %	1,16	0,94	1,40	1,12	1,01	1,28
Fe_2O_3 %	7,11	36,01	4,20	9,10	17,05	7,05
Al_2O_3 %	9,67	15,14	10,11	18,45	20,42	15,96
CaO %	58,44	26,12	62,26	24,60	15,53	33,69
MgO %	1,50	1,49	1,50	4,50	2,78	5,33
SO_3 %	9,24	4,62	9,70	17,02	17,80	13,95
K_2O %	0,58	0,82	-	0,75	1,04	0,54

A táblázatban szénre vonatkoztatva megadott mérési eredmények /fütőérték, hamutartalom, a szén U_3O_8 tartalma/ 5,20 % nedvességtartalmu, légszáraz szénre vonatkoznak. A táblázatból kitünik, hogy a vizsgálataink tárgyát képező mindkét hamufajta /2. és 5. oszlop/ viszonylag sok bázikus jellegü savfogyasztó komponenst tartalmaz, mindenek előtt CaO-ot. Ez a körülmény nyomatékosan indokolta azt a törekvést, hogy a hamu U tartalmának kioldását az ilyen esetekben előnyösen alkalmazható szódás eljárással kiséreljük meg.

S z ó d á s k i o l d á s i k i s é r l e t e k.

Néhány irodalmi adat beszámol arról, hogy nyers lignitből, szénhamuból jó hatásfokkal nyerték ki az U tartalmat szódás kioldással. Igy pl. *Bunji* közli [29], hogy 150-500 g/t U-t tartalmazó szénhamuból Na_2CO_3-$NaHCO_3$ elegyével 130-150 C°-on, 12 at oxigén nyomással, 4 óra alatt laboratóriumi miliőben 85-93 %-os U kihozatal volt biztositható. *Jovanović* és *Pacović* beszámolnak [31] 800 g/t urániumot tartalmazó szénből nyert hamuval végzett szódás kioldási kisérleteikről. Adataik szerint 90 % feletti extrakciót értek el 200-250 g/l Na_2CO_3

+ 80 g/l $NaHCO_3$ oldatnak 180 C°-on való 6 órás behatásával. Oxigén tulnyomás jótékony hatását nem észlelték. *Schwien* nyers lignitből karbonátos módszerrel 92 %-os U kihozatalt ért el [27].

Az ajkai szénmedencéből származó szénnel ilyen irányu kisérleteket már *Almássy* is végzett [32] és ezek azt mutatták, hogy ez a szénhamu a szódás eljárással szemben igen ellenállónak mutatkozik. A mi célunk ennek alapján az volt, hogy lehetőleg mindenre kiterjedő vizsgálatsorozatokkal döntsük el véglegesen e módszer alkalmazhatóságának kérdését. Ennek keretében az I. begyüjtésből származó mágneses ajkai szénhamuval több száz mérést, a II. begyüjtésből származó padragi könnyü szénhamuval pedig kb. félszáz mérést végeztünk, melyek során a következő paraméterek változtatásával próbálkoztunk a megoldáshoz jutni:

1. Az alkalmazott reagens összetételének változtatása.

A Na_2CO_3 koncentrációt 30-150 g/l között, mennyiségét 75-3000 g/kg hamu határok között változtattuk. A $NaHCO_3$ koncentrációja 30-90 g/l, alkalmazott mennyisége pedig 75-1800 g/kg hamu volt. E két alapreagenst külön-külön is használtuk, de legtöbbször a kettő különböző arányu elegyével folytak a kisérletek. A két alapreagens mellett még más olyan vegyszerek hatását is kipróbáltuk, amelyeket egyes irodalmi források ajánlanak [33], [34], [35], [38], [39]. Ilyen próbákat a következő vegyszerekkel végeztünk: $KMnO_4$, MnO_2, $NaClO_3$, $/NH_4/_2S_2O_8$, pörkölés NaCl-al V_2O_5 jelenlétében és e nélkül, pörkölés $NaHSO_4$-el, Cu^{2+} és Mn^{2+} ion katalizátorként. Ezek hatását a legtöbb esetben egyenkint vizsgáltuk, de néhány esetben a felsoroltak közül egyidejüleg kettőt is alkalmaztunk.

2. A kioldás hőmérséklete.

A kisérletek 20-140 C° közötti intervallumban folytak.

3. Nyomás alkalmazása.

Több, mint 100 esetben végeztünk kisérleteket 2-6 at oxigén nyomás mellett.

4. A kioldás időtartama.

A hidegen végzett próbák időtartama 6-380 óra volt, a melegen végzett kisérleteké pedig 1/2-6 óra volt.

5. Meleg levegő befuvás alkalmazása.

Közel 100 esetben légköri nyomás mellett forralva a zagyot, az oxidáló hatás fenntartása érdekében meleg levegőt fuvattunk a reakciókeverékbe.

Arra a kisérleti tényre támaszkodva, hogy az alacsonyabb CaO tartalmu hamuból az uránium kioldás jobb, próbákat végeztünk az I. begyüjtésből származó hamu magas CaO tartalmának vizes kimosás utján való lecsökkentésére. Ebből a célból kimértük a minimális vizmennyiséggel maximálisan kioldható CaO mennyiségét a mágneses hamunál és ennek néhány, szemnagyság szerint elválasztott frakciójánál. *Angeli* ugyanis megemliti [13], hogy az I. begyüjtésből származó hamuminta szemnagyság szerinti szétválasztásakor az U kismértékben dusul a legkisebb szemcseméretü frakcióban.

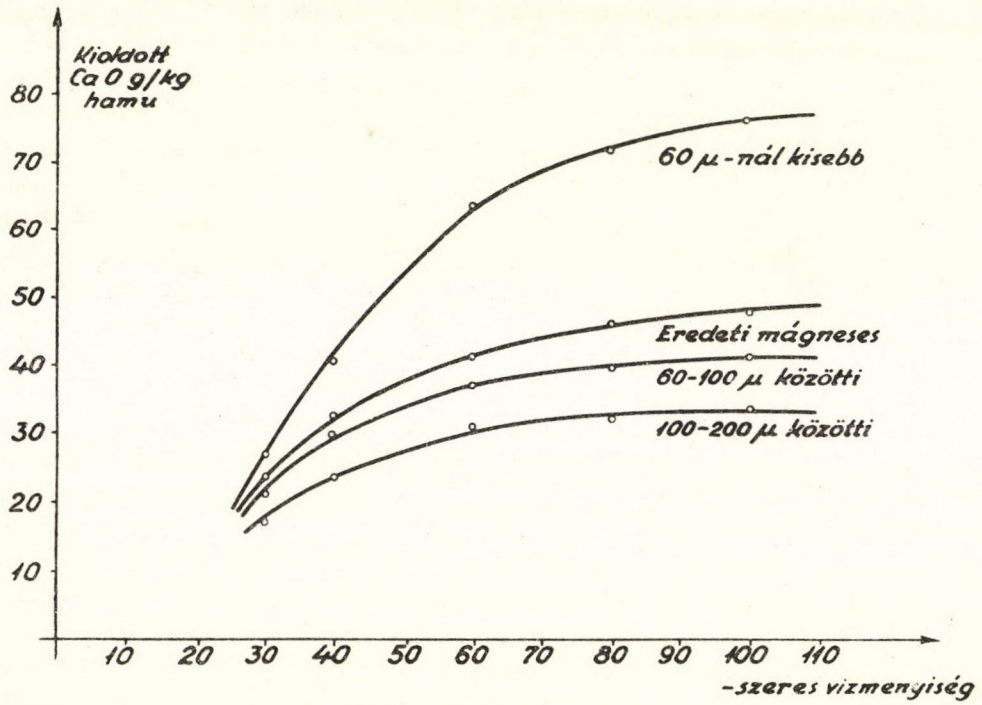
A vizes kimosás méréseinek eredményeit tünteti fel az 1. sz. ábra. Az ábrából látható, hogy majdnem mindegyik esetben a 100-szoros vizmennyiségnél beáll a maximális CaO kioldódás, ezért a vizes kimosásokkal végzett kisérleteknél minden esetben 100-szoros vizmennyiséget alkalmaztunk.

A vizzel mosott és nem mosott hamuminták különböző szitálási frakcióinak megoszlását, ezek U tartalmát, valamint az I. begyüjtésnél a leglényegesebb összetevők sulyviszonyait tünteti fel a 2. sz. táblázat.

2. sz. Táblázat.

Az ajkai mágneses hamu /I/ és a padragi könnyü szénfrakció hamujának /II/ szemnagyság szerinti megoszlása és főbb összetevőinek vizsgálata.

Hamuféleség	Nyert termék / Eredeti hamu sulyviszonya %	1 t nyert termék U tartalma g	1 t nyert termék legfontosabb összetevői %			
			CaO	SiO_2	Fe_2O_3	Al_2O_3
I.begyüjtés						
Mágneses mosatlan	100	285	26,1	15,2	36,0	15,1
Mágneses mosott	92	304	18,0	17,9	39,8	17,7
<60 μ mosatlan	52	325	27,9	12,6	38,0	13,5
<60 μ mosott	48	335	17,6	14,0	43,5	15,3
60 -100 μ mosatlan	21	298	21,9	19,0	31,8	19,2
60 -100 μ mosott	20	305	17,1	19,9	34,6	21,5
100-200 μ mosatlan	20	228	20,2	20,8	25,9	21,9
100-200 μ mosott	19	231	17,7	23,3	29,2	23,1
>200 μ mosatlan	7	114	-	-	-	-
II. begyüjtés						
Könnyü frakció	100	545	15,5	24,6	17,0	20,4
<60 μ	26	578	-	-	-	-
60-100 μ	21	620	-	-	-	-
100-200 μ	35	535	-	-	-	-
>200 μ	18	475	-	-	-	-



1. ábra. Calciumoxid kioldás az I. mintából különböző vizmennyiségek függvényében.

A kioldott U meghatározása céljából a mintákat a reagáltatási idő letelte után forró vizzel alaposan kimostuk és az oldatot salétromsavval közömbösitettük, majd szárazra pároltuk. A HNO_3-as bepárlás megismétlése után az U elválasztását a kiséró ionoktól salétromsavas közegből NH_4NO_3, valamint $Fe/NO_3/_3$ jelenlétében éteres kirázással végeztük. A mennyiségi meghatározást az *Almássy-Nagy-Straub* féle morinos eljárással [37] végeztük, Pulfrich fotométerrel S-47 szinszürővel.

Az előzőekben ismertetett szódás kioldási kisérletek eredményei nem voltak kielégitőek. A maximális U kioldás a 42 %-ot nem haladta meg. A legmagasabb kioldási eredmények /35-42 %/ kisérleti körülményei nem voltak egyöntetüek, csak abban egyeztek meg, hogy valamennyi 4-6 órán át 100 C°-on volt forralva a reagenssel. A négy legmagasabb kihozatalt mutató hamuminta 100 μ alatti szemcseméretü volt és előzetesen vizes kimosáson esett át. Viszonylag magasabb kioldás volt elérhető egyik esetben kizárólag Na_2CO_3 alkalmazásával, máskor csak $NaHCO_3$ hatására, ismét más esetben a kettő elegyével kaptunk hasonló eredményeket. A szódás kioldás kisérleti eredményeiből az alábbi következtetéseket lehet levonni:

1. A hidegen végzett próbák /pállasztás/, bármilyen hosszu is volt ezeknél a behatási idő, teljesen eredménytelenek voltak.

2. A melegen kezelt minták némi U kioldást mutattak, de a reagens összetétele és a kioldási hatásfok között jól definiálható, egyértelmü összefüggés nem volt megállapitható.

3. Az idézett irodalmi adatokban ajánlott vegyszerek, közbeiktatott sós pörkölés, levegőbefuvás alkalmazásának ugyszólván semmi hatása nem mutatkozott.

4. Csekély mértékü előnyös hatást eredményezett a hamu előzetes vizes kimosása utján elért CaO tartalom csökkenése.

A kisérleteket nem terjesztettük ki 4 at és 140 C° feletti tartományokra, de semmi jel nem mutat arra, hogy megalapozott reményeink lehetnének ezen a téren a nyomás és hőmérséklet további fokozásával. A gyenge kioldási eredmények nem irhatók teljesen a magas CaO tartalom rovására, mint ezt *Almássy* állitja [32] - bár a CaO mennyiségének csökkentése előnyösnek bizonyult. *Jovanović* és *Pacović* a már idézett közleményükben arról számolnak be, hogy aránylag szintén magas, 23,6 % CaO tartalmu hamuból, szódás eljárással 80-90 %-os U kihozatalt értek el. Mivel az oxidáló szerek alkalmazása semmi javulást nem eredményezett, ez azt látszik igazolni, hogy az U tartalom már eredetileg is nem IV. vegyértékü - tehát a szódás kioldás szempontjából előnytelen - alakban volt jelen, hiszen a szén előzetes elégetése alkalmával az esetleges alacsonyabb vegyértékü U könnyen feloxidálódhat VI. vegyértékü alakra. *Jovanović* és *Pacović* kisérleti adatai is összhangban állanak ezzel, amikor megállapitják, hogy a reakció alatt az autoklávba bevezetett oxigén semmilyen előnyös hatást nem gyakorolt az U kioldásra.

Legvalószinübb az a feltevés, hogy esetünkben a szénhamu U tartalma valamilyen komplex uranilszilikát ásvány formájában van jelen, amely a szén elégetésének alkalmával képződik. E feltételezett komplex uranilszilikát ásványból az általunk alkalmazott kisérleti körülmények között az U csak kis mértékben képes oldatba jutni, melyet még a sok CaO jelenléte tovább hátráltat.

Az a hipotézis, hogy a szódás feltárás számára hátrányos, feltételezett uranilszilikát komplex csak a szén elégetésekor jön létre, összhangban áll a *Szalay* féle, többszörösen beigazolt humuszadszorpciós elmélettel [5], [8],

[10], [40], [41], [42], vagyis, hogy az U tartalom legnagyobb részben a szén szerves alapanyagaihoz, huminitjeihez van kötve, és ezt látszik igazolni az a körülmény is, hogy közvetlenül a szénből szódás módszerrel sokkal jobb U kioldást sikerült elérni, mint ugyanazon szén hamujából. /Lásd bővebben a 169 oldalon./

A fenti eredmények értékelése alapján arra a végkövetkeztetésre kellett jutnunk, hogy a szódás eljárás az ajkai szénmedencéből származó szénhamuk esetében nem jelentheti az U kinyerés ésszerü és gazdaságos módszerét.

S a v a s k i o l d á s i k i s é r l e t e k.

A szódás kioldás utjának járhatatlansága miatt a feladat kizárólag a savas feltárás utján volt megoldható. A savfogyasztó komponensek nagy százalékaránya miatt az előre várható viszonylag magas savfogyasztásra tekintettel csakis a legolcsóbb sav, a kénsav alkalmazása jöhetett tekintetbe.

/Egy irodalmi utalás [36] alapján, tájékozódás céljából végeztünk néhány mérést kénessavval is, egy esetleges ipari méretü hasznositás gondolatával, szem előtt tartva a magyar szenek magas éghető kén tartalmát. Igy pl. egy erőműnél a nagytömegü, egyhelyben tüzeléskor állandóan nagy mennyiségü kéndioxid távozik el a füstgázokkal kihasználatlanul. Az U kioldás szempontjából figyelemre érdemes eredményeket /60 % felett/ csak 5 %-nál nagyobb töménységü kénessavval értünk el. Mivel ilyen töménységü kénessav gyári füstgázokból már gazdaságosan nem volna előállitható, másfelől pedig a kéndioxid kinyerése korszerü, nagybani kivitelezés mellett kénsav, vagy ammóniumszulfát alakjában történik, ezért a kénessavas kioldás behatóbb vizsgálatától eltekintettünk./

A hamuminták kénsavas feltárásánál a kioldás körülményeit a következő feltételek mellett vizsgáltuk:

1. A kénsav mennyiségének és koncentrációjának változtatása és ezek hatása a kioldott U mennyiségére, valamint a savfogyasztásra. A kénsav mennyiségét 0,33 ml/g hamu-tól 8,00 ml/g hamu, illetve 50 mg/g hamu-tól 2800 mg/g hamu határértékek között változtattuk.

2. A hőmérséklet változtatásának hatása. A vizsgálatokat 20 C°-on és 100 C°-on végeztük.

3. A kezelési időtartam változtatásának hatása.

A kioldások időtartama 2-65 óra között változott.

4. Az I. begyüjtés mágneses frakciójából vizsgáltuk meg a szemcseméret szerint szétbontott részminták és a vizes kimosással csökkentett CaO tartalmu hamufrakciók viselkedését a fenti tényezők hatására.

A kisérletek során először a hőmérséklet szerepét sikerült tisztázni. A mérési adatok azt mutatták, hogy esetünkben a magasabb hőmérséklet /100 C°/ alkalmazásának számitásba vehető szerepe nincs, mivel közel azonos U kioldási eredményeket kaptunk a 2 órás 100 C°-on végzett próbáknál és a 4-6 órás 20 C°-on végzett kisérleteknél. A különbség tehát mindössze az volt, hogy ugyanazon U kioldási arány eléréséhez hideg uton közelitőleg 2-3-szor oly hosszu kezelési idő volt szükséges, mint 100 C° hőmérséklet mellett.

A kioldás időtartamának vizsgálata során azt találtuk, hogy a hidegen

végzett 6 órai kezelési idő alatt az U kioldás eléri a maximális értékét.

E körülmények tisztázása után az összes többi vizsgálatot 20 C°-on, 6-20 órás reagáltatási időtartammal végeztük. A 6 óránál magasabb kezelési időt csak a vizsgálatokkal kapcsolatos munkafolyamatok jobb beosztása miatt alkalmaztuk.

A reagáltatási idő letelte után a mintákat forró vizzel lugoztuk ki, majd egy aliquot részből a savfogyasztást, a másik részből a kioldott U-t határoztuk meg. Az U-nak a kisérő ionoktól való elválasztása és mennyiségi meghatározása ugyanugy történt, ahogyan azt a szódás kioldási kisérleteknél leirtuk, pusztán azzal a különbséggel, hogy a későbbi vizsgálatainknál Zeiss-féle spektrofotométert alkalmaztunk, 495 nm hullámhossznál.

A savas kioldás körülményeinek behatóbb megismerésére és főleg a savas oldatból való U visszanyerés érdekében szükséges volt a kioldáskor nyert savas oldat összetételének megismerése. Ebből a célból mindkét hamu mintánál néhány vizsgálatot végeztünk, amelyeknek átlag eredményeit a 3. sz. táblázatban foglaltuk össze. A feltüntetett eredményeket a következő feltételek mellett nyertük: 1 g hamura 20 C°-on 16 órán át 3 ml 500 g/l töménységü kénsavat hagytunk reagálni.

3. sz. Táblázat.

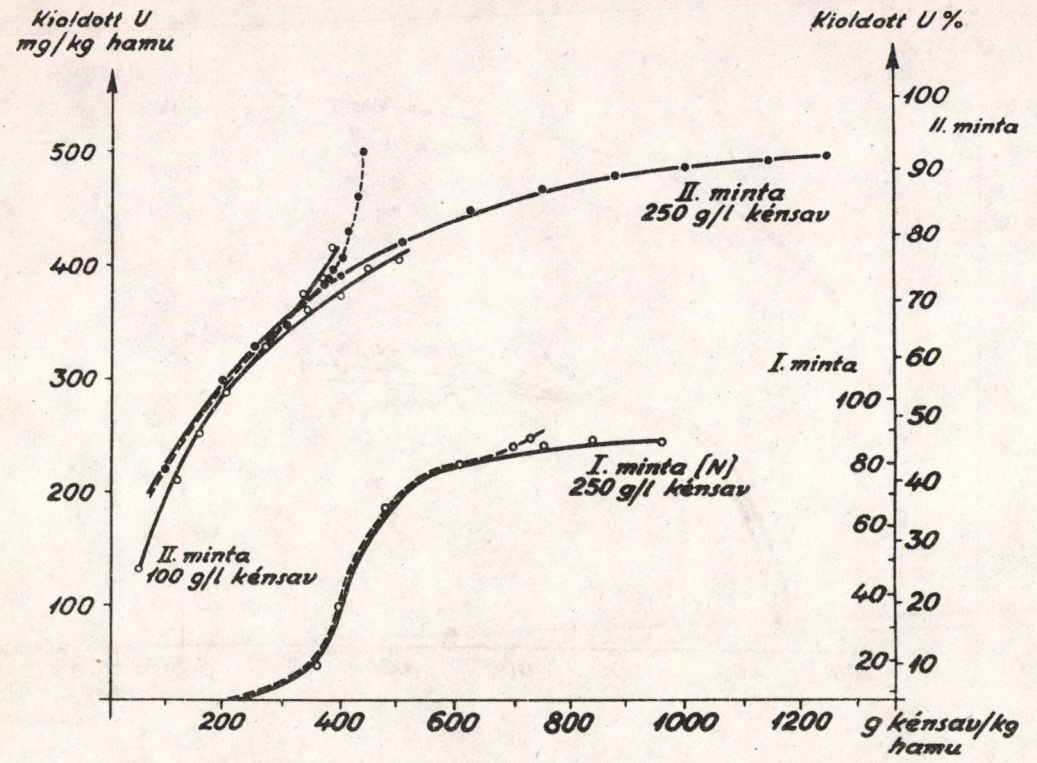
Az ajkai mágneses hamuból /I./ és a padragi könnyü szénfrakció hamujából /II./ nyert kénsavas oldat összetételének vizsgálata.

Hamufajta	U kioldás μ g/g	1 g hamuból kioldott alkatrész mennyisége mg-ban											
		szulfátok alakjában						oxidok alakjában					
		SiO_2	$FeSO_4$	$Al_2(SO_4)_3$	$CaSO_4$	$MgSO_4$	Összes	SiO_2	FeO	Al_2O_3	CaO	MgO	Összes
I. sz. minta mágneses nem mosott	262	4	130	124	56	37	351	4	61	37	23	12	137
I. sz. minta mágneses mosott	273	6	200	94	62	50	412	6	95	28	25	17	171
I. sz. minta mágneses nem mosott < 60 μ	298	6	108	193	60	50	417	6	51	57	25	17	156
I. sz. minta mágneses mosott < 60 μ	308	7	78	191	44	57	377	7	37	57	18	19	138
II. sz. minta könnyü frakció	515	51	23	326	119	52	571	51	11	97	49	18	226

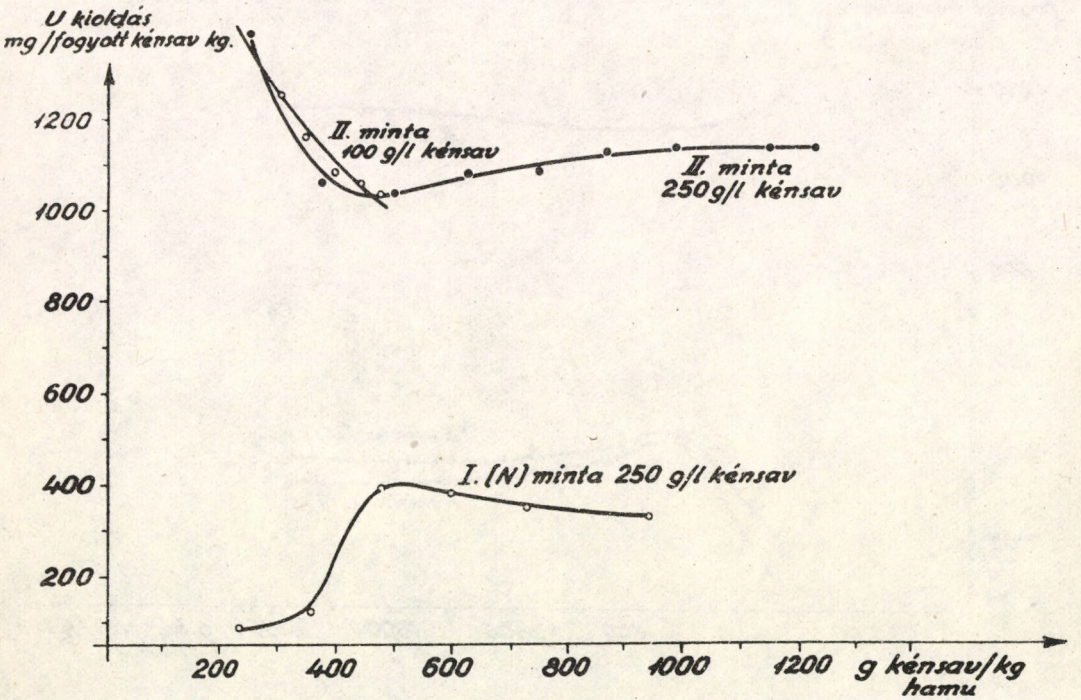
Amint a táblázat adataiból látható, a savas feltárás utján elérhetjük a 90 % körüli U kihozatalt, de az U mellett oldatba jutó kisérő anyagok mennyisége igen tetemes, közelitőleg 3 nagyságrenddel nagyobb. Ez a körülmény az U elválasztását és visszanyerését laboratóriumi méretekben nem teszi különleges feladattá, de az ipari méretekben történő esetleges megvalósitás komoly és részletekbe menő további tanulmányozást tesz szükségessé.

A kénsavas kioldási kisérletek mérési adatait a 2-15. sz. ábrákon tüntettük fel. Ezek az ábrák három csoportra oszlanak. Az első csoport /2., 4., 6. és 8. ábra/ a kisérleteknél alkalmazott és a fogyasztott kénsav mennyiségének függvényében tünteti fel az U kioldást. Ezeken az ábrákon a beadagolt kénsavhoz tartozó görbék folyamatos vonallal, a fogyasztott kénsavhoz tartozó görbék pedig szaggatott vonallal vannak feltüntetve. Az I. sz. begyüjtés mintáihoz tartozó görbéknél az /N/ jelzés azt jelenti, hogy nem mosott mágneses hamuról van szó, az /M/ jelzés pedig mosott mágneses hamura vonatkozik. A beadagolt és az elíogyott kénsav görbéi minden esetben egy darabig együtt haladnak, jeléül annak, hogy a teljes beadott savmennyiség elfogy, majd a fogyasztott sav görbéje a legtöbb esetben többé-kevésbé hirtelen és meredeken emelkedik, jelezve ezzel a savelhasználás csökkenő ütemét és egy végértékre való beállását, Az ábrákból látható, hogy mindkét hamumintánál már higabb sav /250 g/l H_2SO_4/ alkalmazásánál is 90 % körül U kihozatal biztositható. Ennek a kihozatalnak a biztositására mindkét hamuminta esetén 800-1000 g H_2SO_4-re van szükség hamu kg-onkint. A hamuminták eredeti U tartalmuknak megfelelően az I. sz minta 260-270 mg U/kg hamu kihozatalával szemben, a II. hamunál ez az érték 510-520 mg U/kg hamu. A fajlagos kénsavfogyasztás ugyanakkor a II. sz. mintánál alacsonyabb. Igy a fajlagos U kihozatalt ábrázoló második ábrasorozatnál /3., 5., 7. és 9. sz. ábrák/ látható, hogy az 1 kg elhasznált kénsavra az I. minta 90 % körüli U kihozatalánál 350-380 mg kioldott U jut, addig a II. mintánál ugyancsak 90 %-os kinyerésnél 1100-1150 mg az U kihozatal.

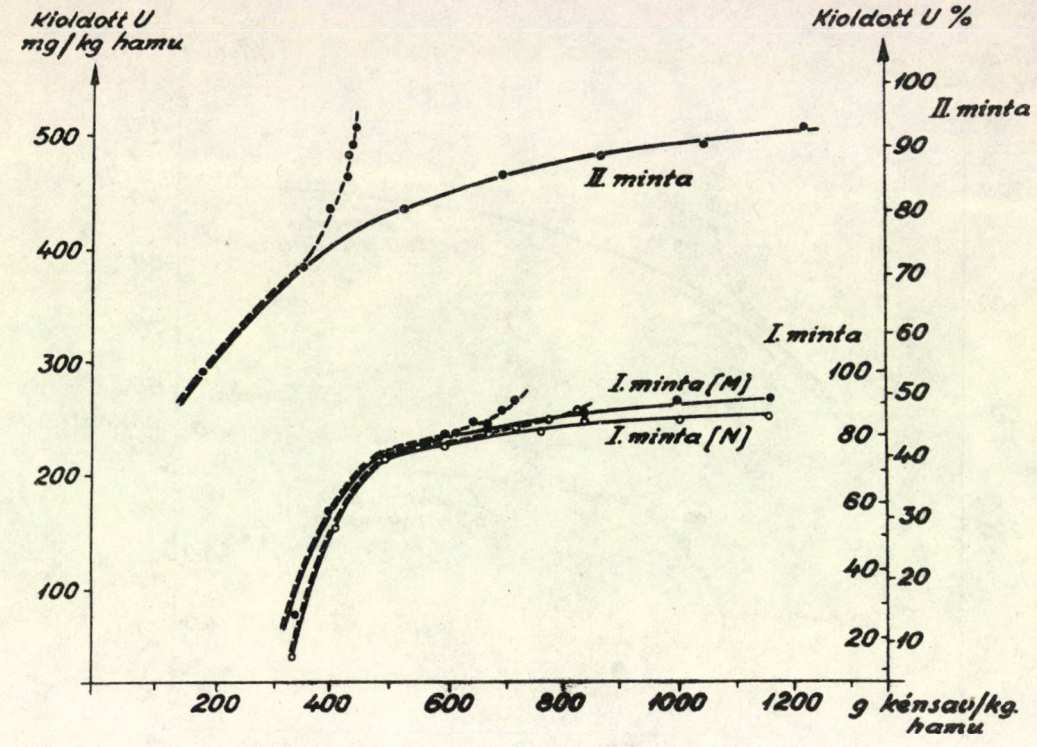
Az I. és II. minták szóbanforgó görbéinek látszálagos ellenkező irányu lefutásához meg kell jegyezni, hogy e látszólagos ellentét onnan ered, hogy a II. mintánál már igen csekély savmennyiség hozzáadásakor gyorsan megindul az U kioldódás, tehát a fajlagos U kioldás görbéje az origóból kiindulva hirtelen magas értéket vesz fel /amely természetesen nem egyezik meg a legnagyobb U kihozatallal/ - majd a további savmennyiség hozzáadására az U kioldás lassubb továbbhaladása mellett sokkal rohamosabban jutnak oldatba a kisérő alkatrészek, tehát a savfogyasztás gyorsabbá válik, igy a görbe egy maximum elérése után /amely egyik ábrán sincs feltüntetve/ meredeken csökkenő tendenciáju, mig végül egy alig észlelhető minimumpont elérése után beáll az egyensulyi állapot és a görbe nagyjából vizszintes alakot öit.- Az előbb emlitett kiugró maximum nyoma az I. mintánál is megfigyelhető, csak jóval ellapitottabb formában. Ennek oka az, hogy az I. mintánál a kis savmennyiségek hozzáadása nyomán az U kioldódás még nem indul meg a sok savfogyasztó, de U-t nem tartalmazó alkatrész gyors oldódása miatt. Az urán ium kioldódásához egy bizonyos savtöbbletre van szükség és erőteljesebb U kioldás csak további savmennyiségek hozzáadása nyomán indul meg. Az I. sz. mintánál észlelhető maximumok sem vágnak össze természetesen a legnagyobb U kihozatal értékeivel, bár közelebb állanak ehhez, mint a II. sz. minta esetében. Ezek az emlitett maximumok csupán azt jelzik, hogy melyik pont az, amelynél a kénsav-hamu aránya a kioldás hatásfoka szempontjából a legjobb.



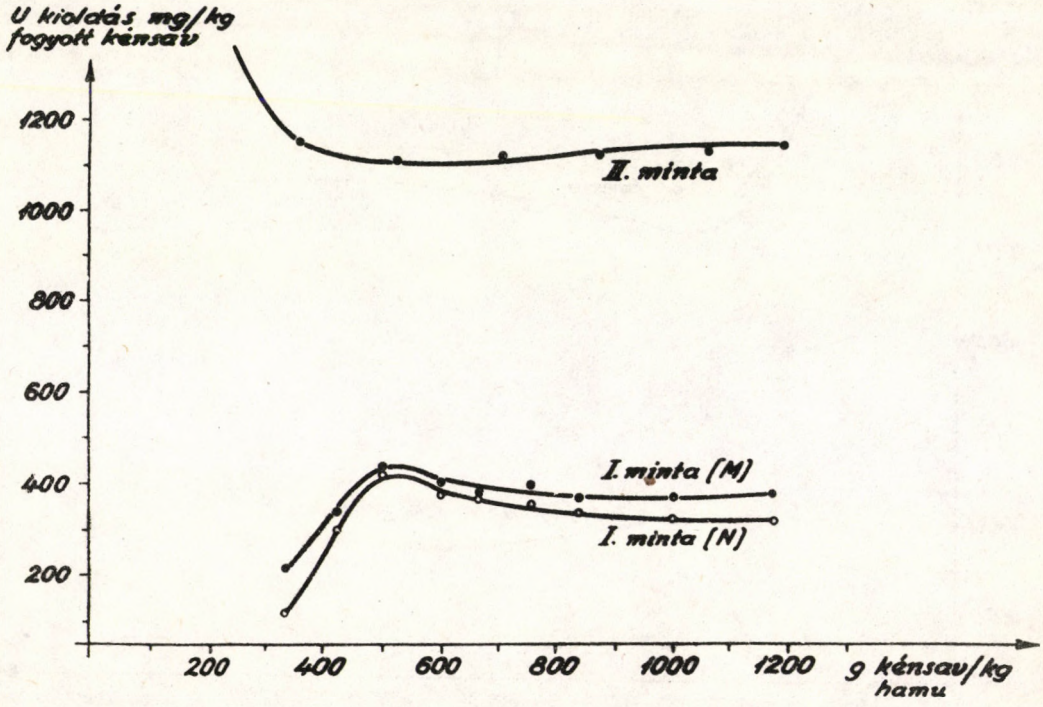
2. ábra. Urán kioldás a beadagolt és a fogyasztott kénsav függvényében, 100 g/l és 250 g/l kénsavkoncentrációnál.



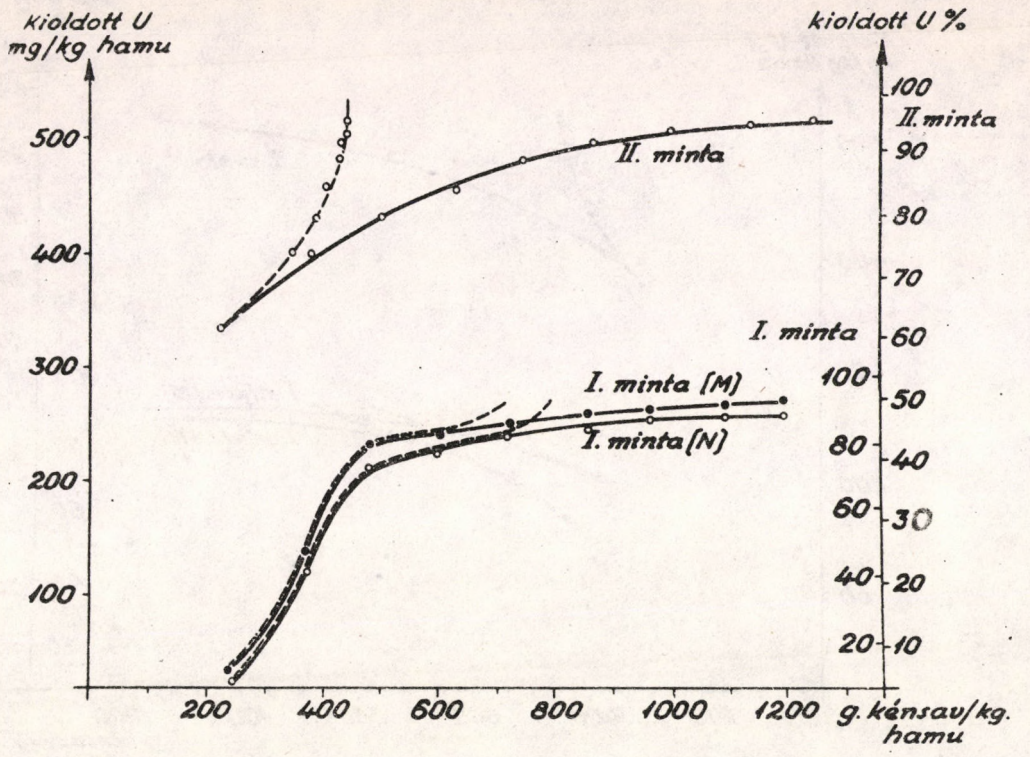
3. ábra. Fajlagos U kioldás a beadagolt kénsav függvényében, 100 g/l és 250 g/l kénsavkoncentrációnál.



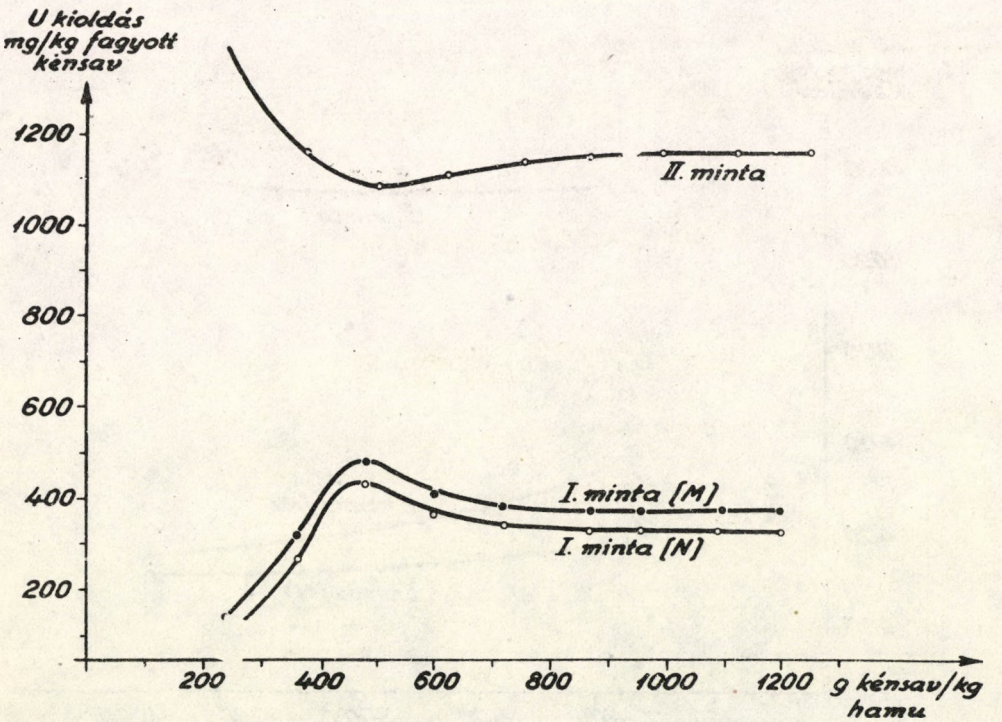
4. ábra. Urán kioldás a beadagolt és fogyasztott kénsav függvényében, 350 g/l kénsavkoncentráció esetén.



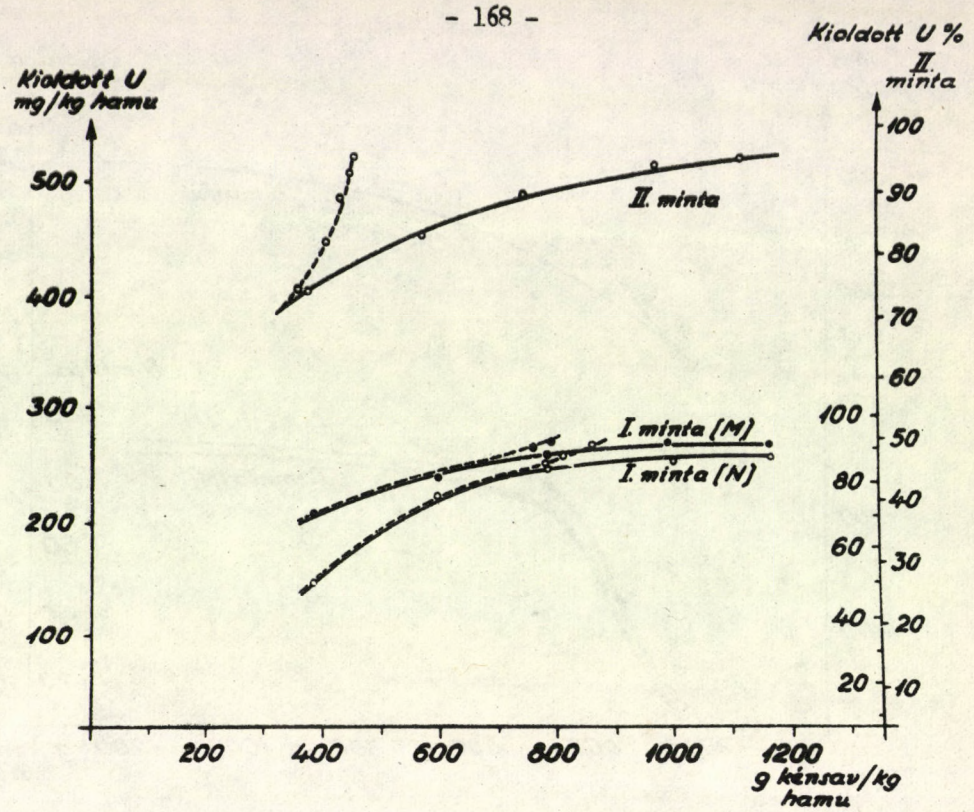
5. ábra. Fajlagos U kioldás a beadagolt kénsav függvényében 350 g/l kénsavkoncentrációnál.



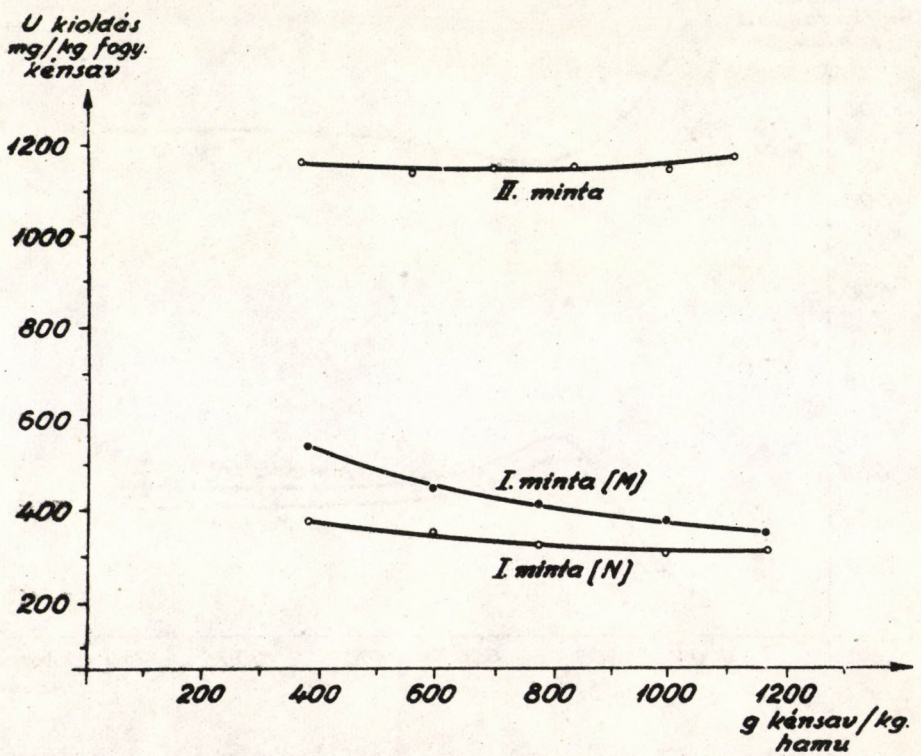
6. ábra. Urán kioldás a beadagolt és fogyasztott kénsav függvényében, 500 g/l kénsavkoncentráció esetén.



7. ábra. Fajlagos U kioldás a beadagolt kénsav függvényében 500 g/l kénsavkoncentrációnál.



8. ábra. Urán kioldás a beadagolt és fogyasztott kénsav függvényében, 750 g/l kénsavkoncentrációnál.



9. ábra. Fajlagos U kioldás a beadagolt kénsav függvényében 750 g/l kénsavkoncentrációnál.

A két görbesorozatnak a lefutása tehát tulajdonképpen hasonló, csak a II. sorozatnál a görbe legeleje a meredeken felszálló ággal és a maximummal nincs feltüntetve - mivel erre a szakaszra a gyakorlat szempontjából ugy sincs szükség, hanem csak a leszálló ág vége az ellaposodó résszel, amely analóg az I. sz. sorozat görbéinek kis maximumai utáni, csökkenő, ellaposodó szakaszaival.

A harmadik ábrasorozat /10-15. sz. ábrák/ az U kioldásának és az alkalmazott savkoncentrációnak összefüggéseit tünteti fel. Ezekből kitünik, hogy a savtöménységnek növelése csak kis mértékben, bizonyos határig előnyös, de ezentul már gyakorlati értéke nincs. A hamu: savtérfogat arányra legelőnyösebbnek látszik az 1:2,5 arány. Az alkalmazott tényleges H_2SO_4 tartalomra nézve pedig a savtöménységtől első közelitésben függetlenül az 1000 g H_2SO_4/kg hamu látszik ideálisnak.- E két viszonyszám egybevetéséből az tünik ki, hogy esetünkben elfogadható eredmények nyerhetők hamu kg-onként 400 g/l töménységü kénsavból 2,5 liter alaklmazásával.

Az optimális kioldási körülmények között fennálló viszonyokat a savköltségtényezőkkel együtt tünteti fel a 4. sz. táblázat.

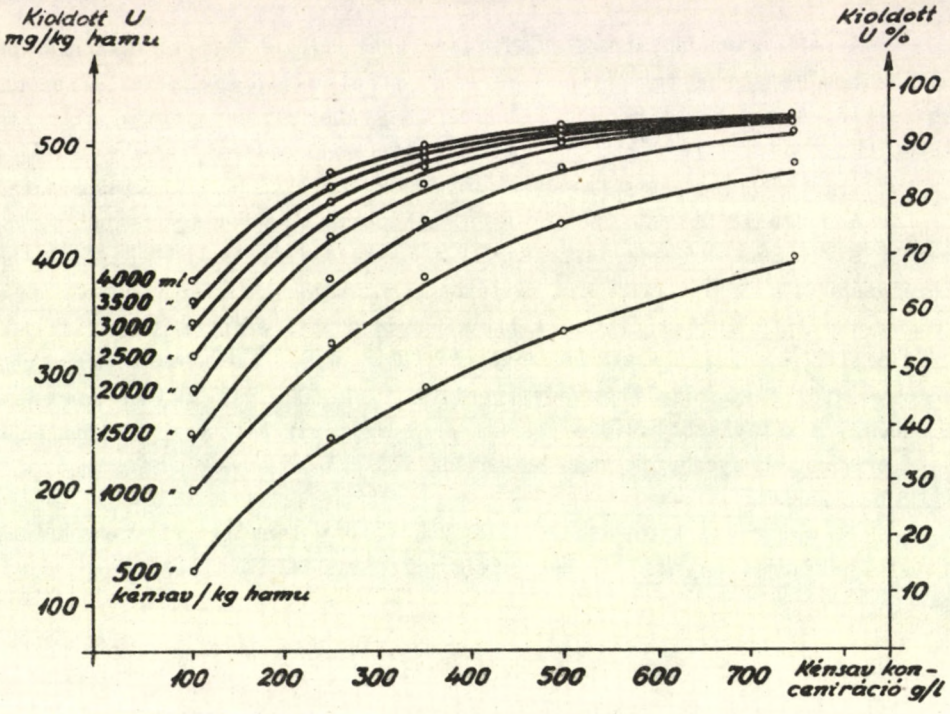
4. sz. Táblázat.

Az ajkai és padragi szénhamuk optimális U kioldási körülményei.

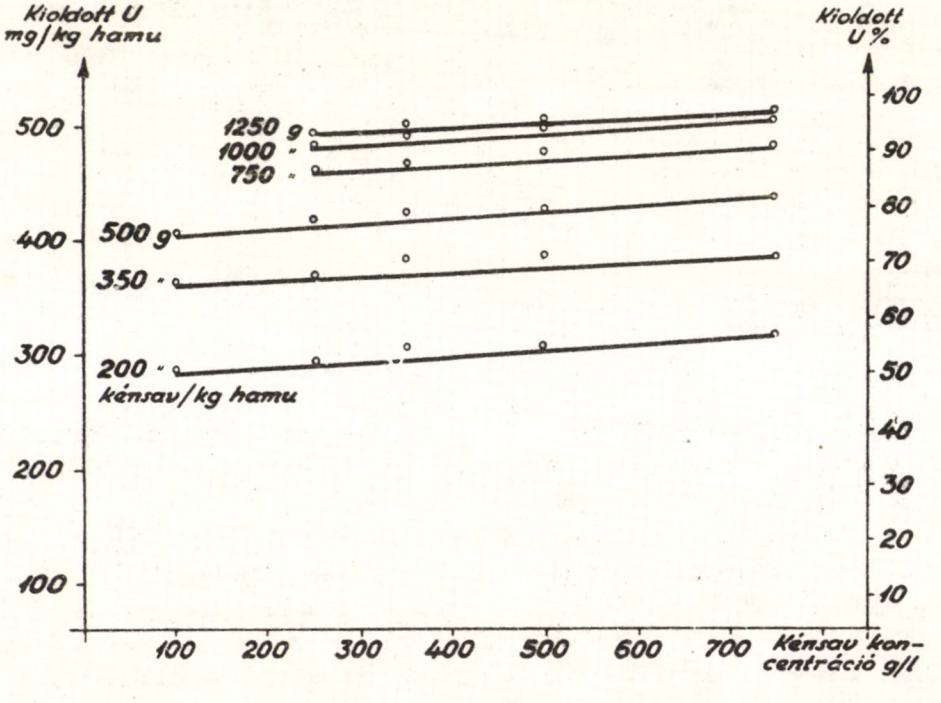
Hamufajta	1 t hamuból kinyert U g	U kioldás %	Fogyasztott kénsav kg/t hamu	1 kg kioldott U kénsavfogyasztása kg	1 kg kioldott U kénsav költsége Ft
I./N/ minta	262	86	825	3140	3705.-
I./M/ minta	270	89	740	2740	3233.-
II. minta	515	94	435	860	1015.-

A vegyszerköltség alakulása azt az egyébként is nyilvánvaló irányelvet huzza alá, hogy egy racionális mértékü előkészitás hatványozott mértékben csökkenti a kémiai kinyerés költségeit.

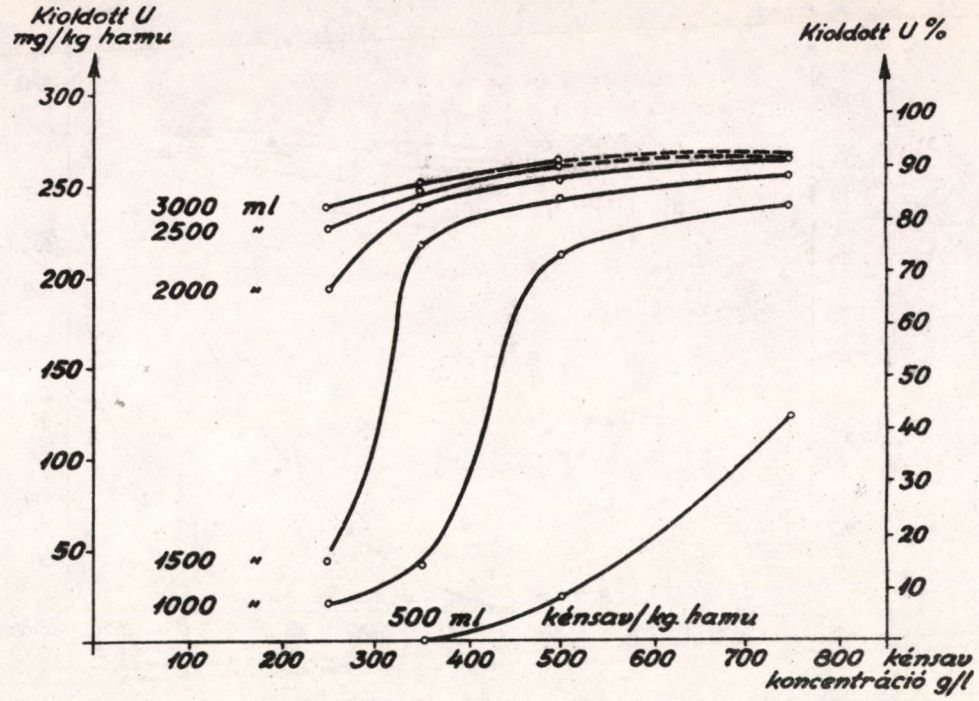
Néhány tájékozódó jellegü mérést végeztünk a II. begyüjtés eredeti szénmintájával és könnyü szénfrakciójával annak megvizsgálására, hogy közvetlenül a szénből történő U kioldásnak milyen lehetőségei vannak. Ebből a célból mindkét emlitett szénféleségen szódás, kénsavas és sósavas kioldási próbákat végeztünk. A reagáltatási idő minden esetben 24 óra volt, a savas próbákat hidegen a szódás mintákat pedig 24 órai állás után 1 óra hosszat enyhén melegitettük. Az igy nyert eredményeket foglalja össze az 5. sz. táblázat.



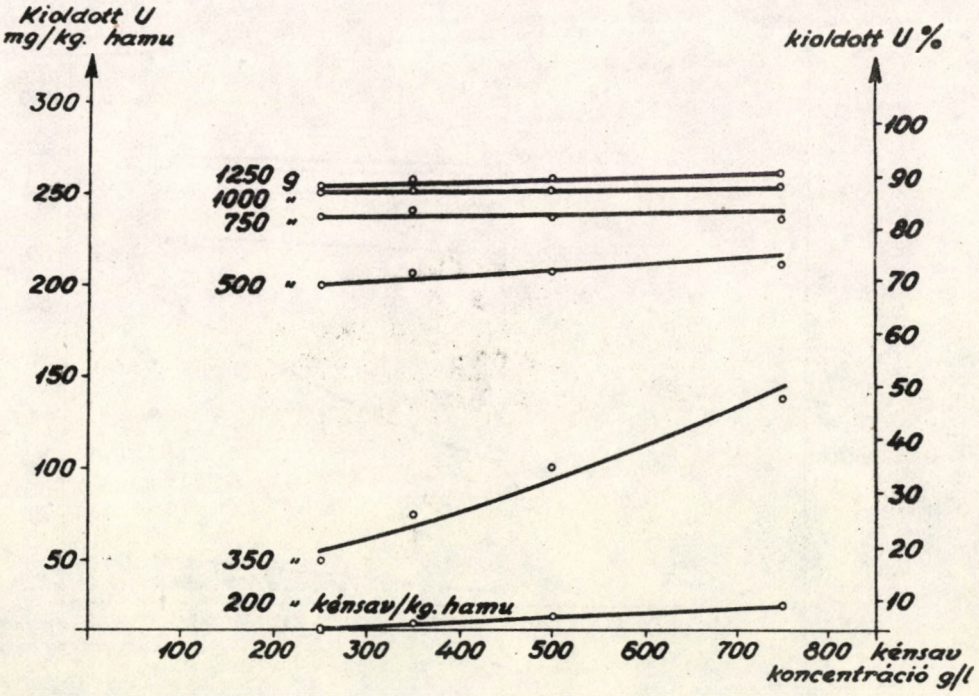
10. ábra. Urán kioldás a savkoncentráció függvényében a II. minta esetén.



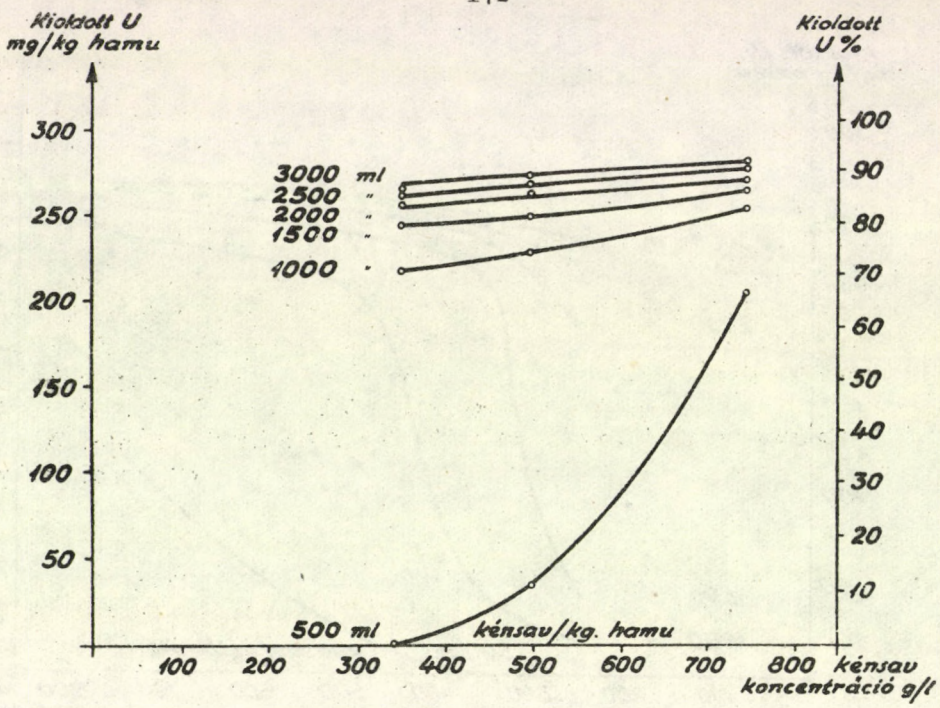
11. ábra. Urán kioldás a kénsavkoncentráció függvényében a II. minta esetében.



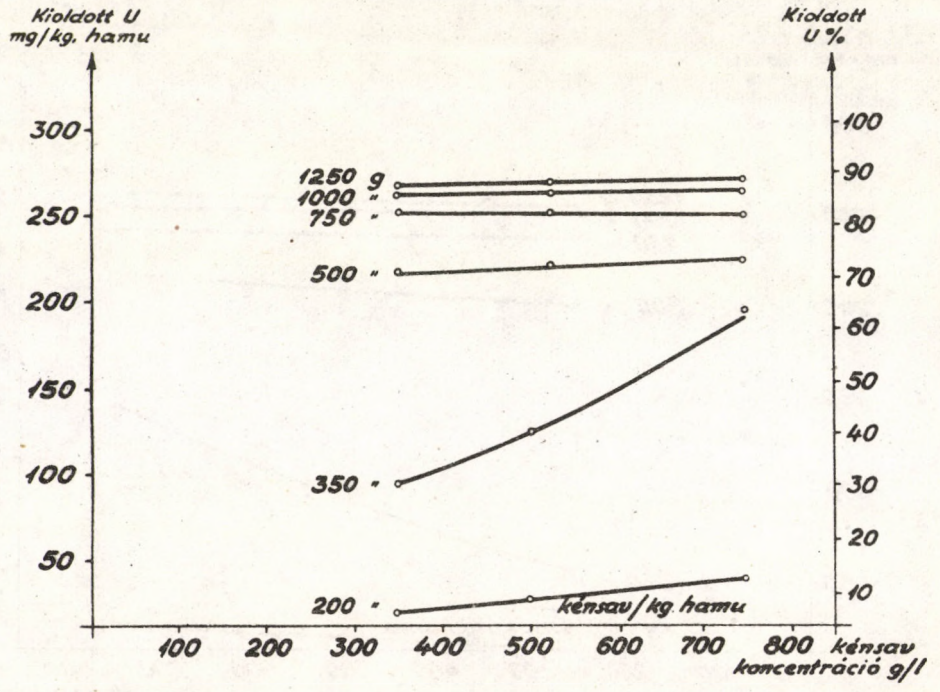
12. ábra. Urán kioldás a savkoncentráció függvényében az I./N/ minta esetében.



13. ábra. Urán kioldás a kénsavkoncentráció függvényében az I./N/ minta esetében.



14. ábra. Urán kioldás a savkoncentráció függvényében az I./M/ minta esetében.



15. ábra. Urán kioldás a kénsavkoncentráció függvényében az I./M/ minta esetében.

5. sz. Táblázat.

A padragi szénhamu U kioldási viszonyai, lugos és savas kezelés esetén.

Szénfajta	Szódás kioldás			Kénsavas kioldás			Sósavas kioldás		
	Uránium kioldás		szóda fogy.	Uránium kioldás		kénsav fogy.	Uránium kioldás		sósav fogy.
	mg/kg szén	%	g/kg	mg/kg szén	%	g/kg	mg/kg szén	%	g/kg
II. begyüjt. eredeti sz.	62	78	90	47	60	240	35	44	288
II. begyüjt. könnyü fr.	90	99	87	68	75	105	48	53	148

E táblázatból kitünik, hogy közvetlenül a szénből történő U kioldás ugy szódás, mint savas eljárással lehetséges, de a szódás eljárással jobb hatásfokkal és alacsonyabb vegyszerfogyasztás mellett megy a müvelet. E körülmény esetleg behatóbb tanulmányozást is igényelhet.

Összefoglalás

Összefoglalólag megállapitható, hogy az általunk megvizsgált két Ajka környéki bányából származó szénminta hamuinak összetétele olyan, hogy az U kioldásra a szódás eljárás volna célszerüen alkalmazható. E módszer azonban egyik esetben sem jöhet számitásba, mivel a kihozatal igy alig lépi tul a 40 %-ot. Ennek okát elsősorban abban látjuk, hogy a szén elégetésekor az U tartalom javarésze valamilyen komplex uranilszilikát vegyületté alakul át, amely szódában csak igen gyengén oldódik. Az a körülmény, hogy a kiindulási szénből viszont közvetlen szódás kioldással 90 %-on felüli kihozatalt értünk el, azt látszik igazolni, hogy a feltételezett uranilszilikát komplex a szén elégetésekor jön létre. További hátrányt jelent még a hamuk magas CaO tartalma is a szódaoldhatatlan Ca-uranilkarbonát képződésének lehetősége miatt. Ezt igazolják a jobb kioldási eredményeket mutató csökkentett CaO tartalmu mintákkal végzett kisérletek. A hamuminták kénsavas feltárása eredményesnek mutatkozott, mivel ily módon 90 %-on felüli kihozatalt értünk el. Megállapitottuk a kénsavas kioldás ideális esetének paramétereit és ennek során ugy találtuk, hogy a kénsav-fogyasztás a kioldott U-hoz viszonyitva közelitőleg 1000-szeres mennyiségü és ennek megfelelően az oldatba jutó kisérő alkatrészek mennyisége kb 3 nagyságrenddel nagyobb a kioldott U-nál. Az aránylag alacsony kiindulási U koncentráció miatt és a sok savemésztő komponens jelenléte következtében a savfogyasztás viszonylag magas és ezért j e l e n l e g nem látszik realizálhatónak a feladat ipari méretü gazdaságos megvalósitása.

Befejezésül köszönetemet fejezem ki *Szalay Sándor* professzor urnak, aki e témára felhivta figyelmemet és a munka során érdeklődésével és tanácsaival hathatósan támogatott. Köszönettel tartozom továbbá *Halász Tiborné, dr. Szabó Józsefné, dr. Nagy Béláné* és *dr. Gunda Béláné* munkatársaimnak, a sok száz analizis lelkiismeretes elvégzéséért.

Irodalom.

[1] *W.E. McKelvey:* Nuclear Science Abstracts /Továbbiakban: NSA/ 7, 4124.1953.
[2] *Szalay S.:* M.Áll.Földt.Int. Évi Jel. *10.* 5. 1948.
[3] *Földvári A.:* M.Áll.Földt.Int. Évi Jel. *10.* 35. 1948.
[4] *Szalay S. - Földvári A.:* MTA Mat. és Term.Tud.Oszt.Közl. *1.* 60. 1951.
[5] *Szalay S.:* MTA Müsz.Tud.Oszt.Közl. *5,* 167. 1952.
[6] *Földvári A.:* MTA Müsz.Tud.Oszt.Közl. *5,* 11. 1952.
[7] *Földvári A.:* Acta Geol.Hung. *1,* 37. 1952.
[8] *Szalay S.:* Acta Geol.Hung. *2,* 299. 1954.
[9] *Szalay, A.:* Nature. *162,* 454. 1948.
[10] *Szalay S.:* MTA III.Oszt.Közl. *4,* 327. 1954.
[11] *Szalay S.:* Magyar Kém.Lapja *9,* 7. 1956.
[12] *Szalay S.:* ATOMKI Közlemények *1,* 1. 1959.
[13] *Angeli I.:* ATOMKI Közlemények *2,* 1. 1960.
[14] *E.Wilbert White:* NSA *13,* 703. 1959.
[15] *G.F.Becraft:* NSA *12,* 10600. 1958.
[16] *T.M.Kehn:* NSA *11,* 11189. 1957.
[17] *D.C.Duncan:* NSA *8,* 1565. 1954.
[18] *S.W.Welch:* NSA *8,* 4042. 1954.
[19] *J.E.Snider:* NSA *8,* 4272. 1954.
[20] *J.E.Snider:* NSA *8,* 4273. 1954.
[21] *N.M.Denson et al.:* NSA 9, 2263. 1955.
[22] *R.J.Woody et al.:* NSA *11,* 10480. 1957.
[23] *I.A.Breger et al.:* NSA *9,* 5002. 1955.
[24] *I.A.Breger et al.:* NSA *9,* 7337, 1955.
[25] *R.A.Ewing et al.:* NSA *10,* 10741. 1956.
[26] *K.B.Brown et al.:* NSA *10,* 5566. 1956.
[27] *I.F.Schwien:* NSA *12,* 11369. 1958.
[28] *E.P.Beroni - H.L.Bauer:* NSA *12,* 11435. 1958.
[29] *B.Bunji:* International Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy. Geneva. 1955. Vol. *8,* p. 108-110.
[30] *F.Z.Pollara et al.:* Proceedings of the Second UN Int. Conf. on the Peaceful Uses of At. En. Geneva 1958. Vol. *3,* p. 229.
[31] *M.Jovanović - N.Pacović:* Proceedings of the II.-nd UN Int.Conf.on the Peaceful Uses of At. En. Geneva 1958. Vol. *3. p.* 346.
[32] *Almássy Gy.:* Magy. Kém. Lapja *12,* 1.sz. 23. 1957.
[33] *K.Pinkas:* Report of the Polish Academy of Sciences Institute of Nuclear Researches. No. 15/IV. 1958.
[34] *L.A.McClaine et al.:* Int. Conf. on the Peaceful Uses of At.En.Geneva 1955. Vol. *8,* p. 26-37.

[35] *F. M. Stephens jr. - R. D. MacDonald:* Int. Conf. on the Peaceful Uses of At. En. Geneva 1955. Vol. *8,* p. 18-25.

[36] *J. Katz - E. Rabinovich:* The Chemistry of Uranium. National Nuclear Energy Series. VIII. 5. McGraw Hill Book Co. Inc. New-York. 1951.

[37] *Almássy Gy. - Nagy Z. - Straub J.:* MTA Kém. Tud. Oszt. Közl. *5,* 257. 1954.

[38] *J. A. Butler:* Engineering and Mining Journal *152,* p. 56. 1951.

[39] *R. G. Beverly - W. D. Charles:* Proceedings of the II.-nd UN Int. Conf. on the P. U. of a. E. Geneva 1958. Vol. *3,* p. 326.

[40] *Szalay, A.:* Acta Physica Hung. *8,* 25. 1957.

[41] *Szalay, A.:* Proceedings of the II.-nd UN Conf. Int. on the P. U. of A. E. Geneva 1958. Vol. *2.* p. 182-185.

[42] *D. Horváth É.:* ATOMKI Közlemények *2,* 1. 1960. 177. old.

URÁNIUM TŐZEGEN VALÓ ADSZORPCIÓJÁNAK VIZSGÁLATA U-NYOMOKAT TARTALMAZÓ TERMÉSZETES VIZEKBEN

D. Horváth Éva

Adszorpciós kisérleteket végeztünk, előzetesen standardizált tőzegmintákkal, Debrecen és Komádi környékének, valamint a Taktaköz vidékének kutvizeiben. Kisérleteink során az urán tőzegen való adszorpciójának az egyensulyi állandóját, az un. "dúsitási faktort" átlagosan $2\text{-}3{,}5.10^3$ értékünek találtuk.

Szalay Sándor már régebben felállitott és kisérletekkel alátámasztott egy geokémiai hipotézist, mely szerint az egyes barnaszenekben, és egyéb biolitokban észlelhető magasabb uránium-koncentráció ugy jön létre, hogy a biolitok humuszsavtartalma adszorbeálja a természetes vizekben jelenlevő urán jelentős részét. Kimutatta, hogy a geológiailag fiatalabb koru szenek, a tőzeg, és egyéb biolitok valóban erősen adszorbeálják az uránt, még igen hig vizes oldataiból is. *Dr. Szalaynak* és munkatársainak vizsgálatai, melyek az uránium tőzeg, és humuszsavpreparátumokon való adszorpciójának a kiértékelését célozták, valóban kielégitő bizonyitékokat szolgáltattak az előbbi hipotézis igazolására [1], [2], [3]. Az egyensulyi állapotban abszorbeálódott urán mennyiségét, az oldat egyensulyi koncentrációjának függvényében ábrázolva Langmuir tipusu adszorpciós izotermákat nyertek. Az izotermák matematikai kiértékelését a Langmuir féle adszorpciós elmélet segitségével hajtották végre [3], [4], [5]. Az ilymódon számitott adszorpciós egyensulyi állandó, az un. "dusitási faktor" nagyságrendileg 10^4 értékü volt. Ismeretes viszont, hogy jó közelitésben ugyanezek a koncentrációviszonyok állapithatók meg, a különféle, urániumban feldusult biolitok, és a természetes vizek urániumtartalma között is [5]. A biolitokban észlelhető urán-dusulást tehát valóban az uránium humuszsavon való adszorpciójának a törvényszerüségei szabályozzák.

A *Szalay* féle laboratóriumi adszorpciós kisérletek óta nagyon sok geológiai észlelést találtak, melyek az uránium biolitokban való feldusulásra vonatkozó hipotézist messzemenően alátámasztják [8]. Többek között D. Vine és munkatársai napjainkban fellépő nagy uránium-dusulást figyeltek meg természetes vizek alatt humifikálódott növényi részeken. Az uránium koncentráció a 0,07 %-ot is elérte, ugyanakkor nem volt rádióaktiv bomlási egyensulyban az ioniummal, és más

bomlási termékeivel, ami legfőbb bizonyitéka annak, hogy az uránium kiadszorbeálódása egészen ujkeletü.

Az e közleményben tárgyalt vizsgálatok elinditásakor ezeket a tényeket még nem ismertük az uránium adszorpciójára vonatkozó hipotézis még nem volt általánosan elfogadva, sőt akadtak ellenzői is. Ugy tünt fel, hogy hiányzik még egy láncszem a logikus bizonyitékok láncolatából. Kivánatos volt megvizsgálni, hogy a természetes vizekben, természetes uton jelenlévő uránium-tartalom, a vizek esetleges természetes tőzegtartalmán, vagy a mesterségesen behelyezett uránmentes tőzegmintán is feldusul-e hasonlóan a laboratóriumi kisérletekhez. Az alábbiakban ismertetett kisérletek célja, hogy a döntő bizonyitékok láncolatával laboratóriumilag már igazolt tényeket, ilyen természetes vizekben végzett kisérletekkel is alátámassza.

K i s é r l e t e k l e i r á s a.

Dr. Szalay Sándor és *dr. Scherf Emil* már régebben végeztek Keletmagyarország bizonyos vidékein a természetes vizek urániumtartalmára vonatkozó vizsgálatokat [6], igy többszáz természetes viz és kutviz minta urániumtartalma ismeretes volt előttünk. A kisérletek számára a legkedvezőbb körülményeket, aránylag számottevő urántartalommal rendelkező, savanyu, mocsaras vizekben való adszorbeáltatással lehetett volna megteremteni. Mivel azonban azokon a vidékeken, ahol vizsgálatainkat végeztük, ilyen, megfelelő urántartalommal rendelkező, elmocsarasodott területet csak két helyen sikerült találnunk, a kisérletek helyei többnyire 5-6 m. mélységü, nyitott, ásott kutak voltak.

A kutakban, illetve természetes vizekben a következő módon standarizált zalaszentmihályi tőzegmintákat helyeztük el. A "nyers" tőzeget először bőven átmostuk csapvizzel, majd desztillált vizzel, hogy a homokos, agyagos, ásványi szennyeződéseket eltávolitsuk belőle. A tőzeg bitumentartalmát benzolos, a gyantás alkatrészeket alkoholos átmosással távolitottuk el. Az ilyen módon kezelt tőzeg humuszsavtartalma cca 21 %, maximális adszorpciós kapacitása N = 0,99 maequv. U/gr volt. Ilyen tőzegmintákból 3-5 gr-nyi mennyiséget ritkaszövésü nylonzacskóba helyeztünk, és müanyagfonallal engedtünk le a kutak vizébe.

Az adszorpciós egyensuly kialakulásához 7-8 nap teljesen elegendő volt, ezért ennyi idő letelte után, a tőzegmintákat a kutakból kiemeltük. A száritott, és gondosan lemért sulyu tőzegről az urániumot 0,1 n sósavas átmosással nyertük vissza.* Mivel a sósavas oldatba az urániumon kivül még más zavaró anyagok is kerülnek a tőzegről /elsősorban vas és kalcium ionok/, azonkivül a sósav a tőzeg fulvósavtartalmának jelentős részét kioldja, célszerü az urániumot, a vizek uránanalizisénél már sikerrel alkalmazott tributyl-foszfátos kirázással elválasztani a zavaró elemektől.**

---

* Az 1 cm. átmérőjü üvegcsőbe helyezett, 1-2 gr-nyi tőzeget 250-300 ml. 0,1 n sósavval átmosva, az adszorbeálódott urán gyakorlatilag teljesen felszabadul.

** Az eljárás röviden a következő: a sósavas kioldásnál nyert uranylklorid oldat szárazra párolva, pár csepp cc. salétromsav, és 100 ml desztviz hozzáadásával, hig uranylnitrát oldattá alakitható át. Ha az oldat nitrátkoncentrációja, valamilyen jól disszociáló só, pl. ammoniumnitrát hozzáadása folytán megnő, 10 %-os benzines tributylfoszfát oldattal összerázva, az uranyl ion kiszorul a vizes fázisból, és a tributylfoszfátos fázisban komplex alakjában kötődik. A tributylfoszfátos komplexet tartalmazó oldatot deszt. vizzel rázva, az uranyl ion ismét a vizes fázisba vándorol, és most már minden zavaró kisérő ion nélkül, fluorimetriásan meghatározható.

Az ilymódon tisztitott vizes uranylnitrát oldatból olyan mennyiség kerül tovább analizisre, melynek urántartalma feltehetően a 0,5 - 1 γ-nyi értékek között van. Ez a koncentrációtartomány felel meg ugyanis legjobban a továbbiakban alkalmazott fluorimetriás mérőmódszer mérési határainak.*** Az uranylnitrát száraz maradékát platinacsészében nátriumfluoriddal gyönggyé olvasztva, az urántartalom az Intézetben szerkesztett, fényelektromos sokszorozócsöves fluoriméter segitségével meghatározható [7]. Összehasonlitó standardként, 0,5-10 γ-nyi urántartalmu, az előbbiekben közölttel megegyező módon készitett nátriumfluoridgyöngy mintákat használtunk.

A kisérletek során nyert adatok kiértékelése.

A különböző vidékeken végrehajtott kisérletek eredményeit összesitve a következő táblázatban foglaltuk össze. A kisérleteknél szereplő természetes vizekből vett minták urántartalmát és p_H-ját a tőzegminták behelyezése előtt és után, külön-külön megmértük. Ezek az adatok szintén fel vannak a táblázatban tüntetve.

Mint a táblázatból látható, a dusitási faktor értéke átlagosan 2-3000 között van. Ez az érték nagyságrendileg jól összeegyeztethető a laboratóriumi vizsgálatok során talált $N_\infty a = 10^4$ egyensulyi állandóval. Természetesen csak bizonyos megközelitő pontosságot lehet kivánni állandóan használatban lévő kutakban végzett vizsgálatok esetén, ahol az adszorpciót külső tényezők zavarják. Hibaforrást jelenthet még az a körülmény is, hogy a 6-8 p_H-ju vizekben való egy heti áztatás alatt a humuszsav jelentős része, átlagosan 50-60 %-a kioldódik. Mivel pedig a tőzeg adszorpcióképessége majdnem teljes egészében humuszsavtartalmának tulajdonitható, könnyü megmagyarázni a 6-8 p_H-ju vizekben huzamosabb ideig való adszorbeáltatásnál fellépő adszorpciós-kapacitás csökkenést./Elsősorban ezért lett volna előnyös alacsonyabb p_H-ju vizekben végezni a kisérleteket./

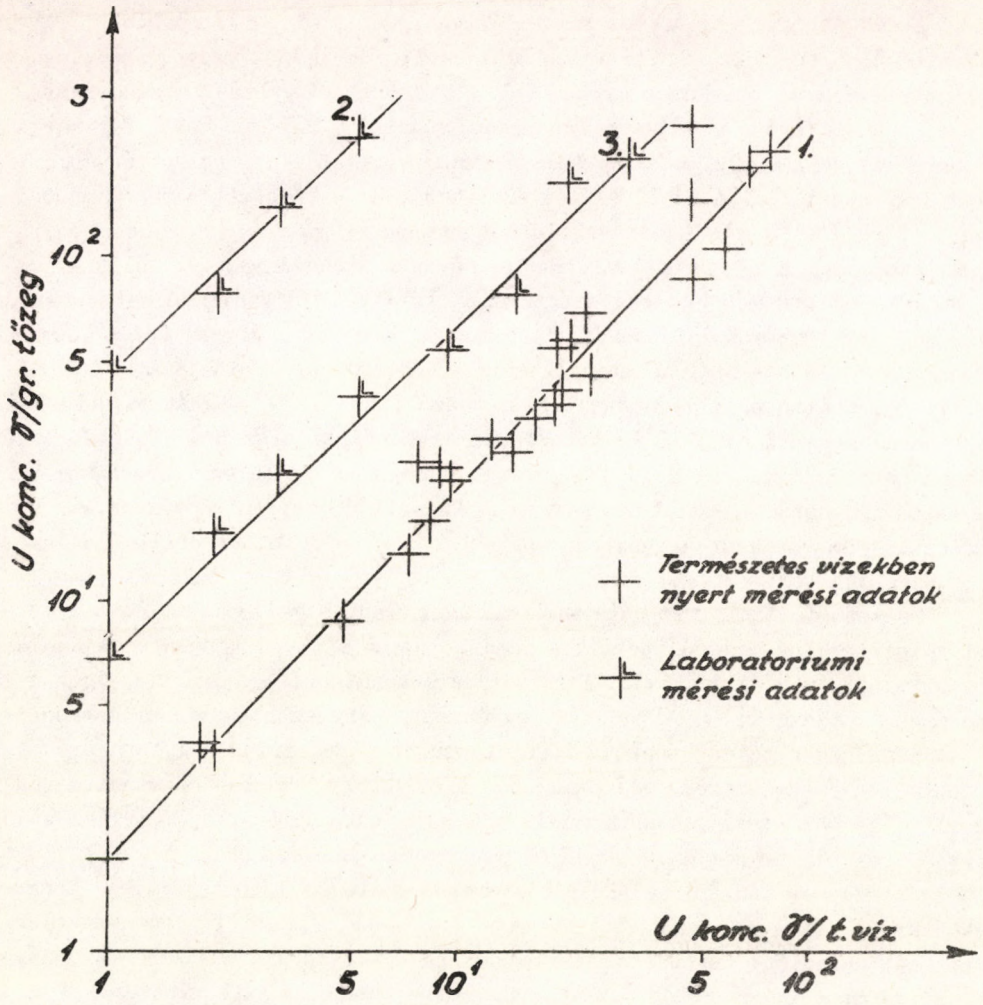
Az ellenőrző laboratóriumi kisérletek megerősitették azt a föltevést, hogy a humuszsavtartalom döntően befolyásolja az adszorpció mértékét. A kisérleteknél alkalmazott, standardizált zalaszentmihályi tőzeg 21-25 %-nyi humuszsavtartalma 1 heti szabadvizben való áztatás eredményeként 10-11 %-ra csökkent.**** Uranylnitrát oldatból laboratóriumilag meghatároztuk ugyanezen 21 %-humuszsavtartalmu standardizált tőzeg, majd azonos kisérleti körülmények között ugyanilyen, de 10 % humuszsavtartalmu tőzeg adszorpciós izotermáját. Az utóbbi dusitási tényezője valóban jóval alacsonyabb volt, mint a 21 %-nyi humuszsavat tartalmazó tőzegmintáé.

*** Az alkáli fémek uránnyomokkal aktivált fluoridjainak olvadéka, ultraibolya fény hatására sárgászöld fénnyel világit. Tapasztalat szerint, már igen kis mennyiségü /0,1 γ-nyi/ urán hatására világit az ilyen olvadék.

**** A tőzegből a humuszsavat 1 %-os nátrium hidroxiddal kioldottuk, majd az oldatot p_H^3 értékig visszasavanyitva, a kicsapódott humuszsavat súlyméréssel meghatároztuk.

I. Táblázat.

Sorsz.	Viz p_H-ja	Viz U tartalma γ/l kisérlet		Tőzeg U tartalma γ/g	Dusitási faktor
		előtt	után		
Debrecen- környék természetes vizeiben végzett adszorpciós kisérletek összefoglaló eredményei:					
1.	8,0	8,0	7,0	26,7	3400
2.	7,8	20,0	16,0	38,2	2100
3.	8,0	10,0	8,0	23,0	2500
4.	7,6	10,0	7,0	24,9	2930
5.	8,1	15,3	11,5	28,0	2000
6.	7,9	4,9	4,8	9,6	2000
7.	8,2	2,0	2,0	3,9	1900
8.	7,8	2,0	1,8	4,0	2100
9.	7,0	1,0	1,0	1,9	1900
Komádi- környék természetes vizeiben végzett adszorpciós kisérletek összefoglaló eredményei:					
10.	6,9	22,5	21,1	70,0	3180
11.	7,0	20,5	20,0	59,0	2950
12.	6,5	18,2	18,0	57,0	3000
13.	6,6	23,4	22,8	46,0	2000
14.	7,3	21,0	19,0	42,0	2100
15.	6,9	8,4	7,6	17,6	2200
16.	7,1	17,2	17,0	34,6	2000
17.	6,8	12,5	11,8	30,0	2500
18.	6,8	17,2	6,8	14,0	2000
19.	7,0	12,0	12,0	30,0	2500
Taktaköz-vidék természetes vizeiben végzett kisérletek összefoglaló eredményei:					
20.	7,8	45,0	40,0	250,0	5500
21.	7,5	50,0	40,0	90,0	2000
22.	7,6	80,0	70,0	210,0	2800
23.	8,0	65,0	65,0	180,0	2770
24.	7,9	50,0	35,0	150,0	3200
25.	7,5	55,0	55,0	110,0	2000



1. ábra. Az egyenesek az uránium tőzegadszorpciós izotermáinak 1-100 γ/l koncentrációtartományban mért adatait ábrázolják.

Az 1. ábra 1. számu egyenese, az I. táblázatban feltüntetett, természetes vizekben történt mérések adatait ábrázolja. A 2. és 3. számu egyenes egy 20 %, illetve 10 % humuszsavtartalommal rendelkező zalaszentmihályi tőzeg adszorpciós izotermájának a laboratóriumban felvett kezdeti szakasza. Az egyenesek meghatározásánál az uranyl ionnak $p_H = 3$ értéknél végbemenő adszorpcióját vizsgáltuk olyan oldatokból, melyeknek urániumkoncentrációja a kutvizekével megegyező volt. A táblázatból viszont látható, hogy a kisérleteknél szereplő vizek p_H-ja mindég 6,5 - 8 értékü volt. Mivel pedig az oldat hidrogénion koncentrációja erősen befolyásolja az urán humuszsavon való adszorpciójánál végbemenő ioncserélő folyamatot, a kedvezőbb $p_H = 3$ értéknél a dusitási tényező jóval magasabbnak adódott /annak ellenére, hogy a 3. és 1. számu egyenessel ábrázolt tőzegminták humuszsavkoncentrációja lehetőleg egyező, 10-10 % volt/.

Érdekesen kiegészitették még kisérleteinket azok a vizsgálatok, melyeket közvetlenül a természtes, álló vizekből kiemelt, korhadó növényi maradványok uránkoncentrációjára vonatkozóan végeztünk. Az egyik, 40 γ/liter uránkoncentrációju mocsárvizből nyert növényi maradvány urántartalma 2 γ/gr. volt, egy másik, 1 γ/lit. uránkoncentrációju mocsárvizből származó vizsgálati anyag esetén is, 2 γ/gr volt az urántartalom. A dusitási tényező, tehát az első esetben 50, a második esetben 2 10^3 volt. Az első, magasabb urántartalmu természetes vizben ugyanis, egészen fiatal, még alig korhadásnak induló növényi maradványokat találtunk, melyek a humifikációnak még kezdeti stádiumában lehettek. Ugyanitt elhelyeztünk, egy általunk előkészitett, standardizált zalaszentmihályi tőzegmintát tartalmazó nylonzacskót is. Az egy heti abszorbeáltatás eredményét az I. táblázat 23. pontja tünteti fel. Látható, hogy a dusitási tényező itt 2,7 10^3, tehát majdnem két nagyságrenddel nagyobb az 5 10^1 értéknél. Ez érthető is, hiszen a kisérleteinknél alkalmazott zalaszentmihályi tőzeg magas humuszsavtartalommal rendelkezik. Az 1 γ /lit. uránkoncentrációju mocsárvizből kiemelt növényi maradványok már előrehaladottabb tőzegesedési állapotban voltak, ennek megfelelően dusitási tényezőjük is magasabb volt.

Összefoglalásul, vizsgálataink eredményeként megállapithatjuk a következőket: Kisérleteink megerősitették a humusz jelentőségével kapcsolatos *Szalay* féle hipotézist, az urán geokémiai feldusulására vonatkozólag. Aránylag igen kis uránium-tartalom esetén /1-80 γ/lit./, egyébként, bányászható uránium szempontjából teljesen reménytelen, inaktiv területeken, a tőzegminták a laboratóriumihoz hasonló, több ezerszeres, álló vizekből kihalászott, korhadó növényi maradványok vizsgálata esetén. A tőzegminták az adszorpciós egyensuly beállása után ugyanolyan, sőt olykor magasabb uránium koncentrációt mutattak, mint amilyen a szenekben és szerves tengeri palákban közismert. 60-200 gr./tonna érték. Vizsgálataink szerint ilyen koncentrációju uránfeldusulások, fosszilis, humuszsavtartalmu növényi maradványokat tartalmazó üledékekben, olyan kis uránkoncentrációju /10-100 mg/tonna/ természetes vizekből is létrejönnek, melyek nincsenek, vagy nem voltak primer uránérc-előfordulásokkal érintkezésben.

Végül ez uton is köszönetet mondok *dr. Szalay Sándor* professzor urnak, az Intézet igazgatójának, utmutatásáért, és értékes segitségéért.

Köszönetet mondok Kovách Ádám kollegának a mintagyüjtésnél nyujtott önzetlen segitségéért.

I r o d a l o m

[1] *Dr. Szalay S.:* Hazai kőszenek radiológiai vizsgálata. M. Tud. Akadémia VI. Müsz. Tud. Oszt. Közleményei V. 167. 1952.

[2] *A. Szalay:* The Enrichment of Uranium in some Brown Coals in Hungary. Acta Geologica Hungarica II. 299. 1954.

[3] *Dr. Szalay S.:* Vizsgálatok nagy atomsulyu kationok adszorpciójára humusz kolloidokon. Magy. Tud. Akadémia III. Oszt. Közleményei IV. 327. 1954.

[4] *A. Szalay:* The Role of Humus in the Geochemical Enrichment of U in Coal and other Bioliths. Acta Physica VIII. 25. 1957.

[5] *A. Szalay:* The significance of Humus in the Geochemical Enrichment of Uranium Proceedings of the 2. U.N. Conference on the peaceful Uses of Atomic Energy II. 182. 1958.

[6] *Szalay S. - Scherf E.:* Az Eperjes-Tokaji hegység, és előtere vizeinek uránnyomtartalmáról. ATOMKI Közlemények *2*, 1960. 71. old.

[7] *Szalay S. - Máthé Gy.:* Fluoriméter uránium kvantitativ meghatározásához. Magy. Tud. Akadémia III. Oszt. Közleményei V. 247. 1957.

[8] *J. D. Vine - V. E. Swanson - K. G. Bell:* The Role of Humic Acids in the Geo - chemistry of Uranium. Proceedings of the Second U.N. International Conference on the peaceful Uses of Atomic Energy II. 187. 1958.

AZ URÁNIUM, THÓRIUM ÉS A VAS KIMUTATÁSA ÉS AZ URÁNIUM MEGHATÁROZÁSA RHAMNETIN SEGITSÉGÉVEL

Sámsoni Zoltán

Analitikai célok érdekében különböző flavonszármazékokat és más szerves preparátumokat vizsgáltunk meg uranyl ionokkal szembeni viselkedés szempontjából. Szinreakciót kaptunk lúgos közegben a robininnel, o.-oxidibenzolimetánnal és o.-oxiacetofenonnal. Céljainknak legjobban a rhamnetin felelt meg, mely 11-12 pH körül élénk vörösesbarna szinreakciót ad az uranyl ionokkal. Vizsgáltuk a keletkező szines komplex stabilitását és úgy találtuk, hogy a mintához előzetesen adagolt Na_2SO_3 + N_2H_4.HCl keverékével előnyösen befolyásolható a szinintenzitás állandósága. Az előálló szines komplex ilymódon kb. fél óra hosszat stabil, majd lassú, /valószinűleg redukciós/ átalakulási folyamattal párhuzamosan az optikai sűrűség növekedni kezd és további 1 - 1½ órán belül egy magasabb, véglegesen stabil értéket vesz fel. A rhamnetin-uranyl komplex abszorpciós maximumát 505 nm-nél találtuk és a véglegesen stabil moláris extinkció-koefficienst itt 11800 ± 120-nak mértük. A rhamnetin lúgos közegben a Th ionokkal narancssárga a vas ionokkal intenziv zöldes-barna, végül a Co ionokkal kevésbé erős zöldes-sárga szinreakciót ad.

Intézetünk munkatársai néhány kutatási feladat végrehajtása során már eddig is több uránium analitikai módszert dolgoztak ki, illetve fejlesztettek tovább [1-8]. Ezek közül az egyik jól bevált mikroanalitikai módszer az *Almássy-Nagy-Straub* által kidolgozott morinos eljárás [1], melyet *Almássy* és *Ujhelyi* szenek uránium tartalmának meghatározására is alkalmaztak [6]. Az uranyl ionnak a morinnal alkotott szines komplexét gyengén savas, illetve semleges közegben /pH= = 4-7/ vizsgálták *Beck* és *Hantos* [9]. Ők erre a pH intervallumra dolgoztak ki spektrofotometriás U meghatározási módszert. A morinnal azonos összetételü, tőle csak belső szerkezeti felépitésben különböző quercetin és quercitrin is érzékeny szinreakciót ad az uránniummal [10]. *Komenda* ennek alapján a quercetin felhasználásával érzékeny fotometrikus U meghatározási módszert dolgozott ki [11]. Mivel mindhárom vegyület a flavon festékek családjába tartozik, ezért feltételezhető volt, hogy a flavon származékok között találunk még olyat, amely az urá-

nium mikroanalitikájában jól felhasználható, vagy esetleg még érzékenyebb szinreakciót ad, mint a fent felsorolt flavonoidok. E feltételezés alapján a következő vegyületeket vizsgáltuk meg:

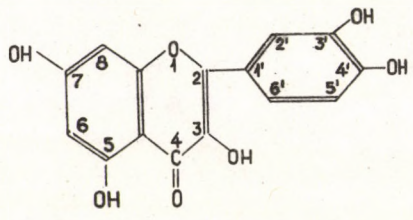
Flavon; flavanon; flavan 3,4 -diol; β-4 oxiflavan; flavanon 3-ol; flavanonoxim; rhamnetin; robinin; rutin; benzalacetofenon /chalkon/; 2'oxichalkon; hesperidin; homo-eriodictiol-Na; 2'oxi-4-methoxichalkon; 2'4,4'-trioxichalkon; 2'oxi-3,4-methilen-dioxichalkon; 4'oxichalkon; 2,4,6-trioxiacetofenon /floracetofenon/; o-oxi-dibenzoilmetán; sophicosid; chrisarobin; O-oxiacetofenon; p-oxiacetofenon; o-oxibutirofenon; o-oxipropiofenon; o-oxi-β-fenilpropiofenon; 1-/o-oxifenil/-3-fenilpropanol-1-ol.

/A felsorolt vegyületek között több olyan is van, amely nem tartozik a flavonszármazékok csoportjába./

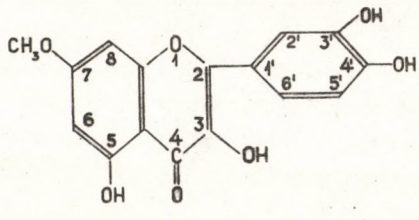
A fenti közel 30 különböző szerves vegyület közül mindössze 4 esetben észleltünk szinreakciót kis koncentrációju (~10 μg U/ml) uranyl oldatok hatására. Gyengén lugos közegben a *robinin* [3-robinobiosido-7(1-rhamnosido)-5,4'dihidroxiflavon] sárga színeződést ad uranyl-ionok jelenlétében. A kialakuló szin intenzitását azonban aránylag gyengének találtuk. A maximális szinerősség pH = 12 körül áll be. Ez alatti és e fölötti pH tartományban a szin erőssége csökken. Mivel az U/VI/-al képződő sárga komplex szinerőssége és igy a reakció érzékenysége elmarad más ismeretes kolorimetriás módszerekétől, ezért ennek mélyrehatóbb vizsgálatától eltekintettünk.

Ugyancsak gyengébb sárga szinreakciót kaptunk még lugos közegben uranyl oldatok hatására az *o.-oxidibenzolimetánnal* és az *o.-oxiacetofenonnal* is. Mivel azonban a képződő szines komplexek szinintenzitása ezek esetében is viszonylag gyenge volt, ezért részletesebb vizsgálatokat ezekkel sem végeztünk.

A megvizsgált reagensek közül a rhamnetin /3,5,3',4'-tetraoxi-7 metoxiflavon/ mutatkozott a leginkább megfelelőnek a kitüzött célunkhoz. E körülmény magyarázata abban rejlik, hogy a rhamnetin, az U/VI/-al ugyancsak érzékeny barnásvörös szinreakciót adó quercetintől mindössze abban különbözik, hogy az egyik OH csoport helyén OCH_3 csoport foglal helyet.



Quercetin



Rhamnetin

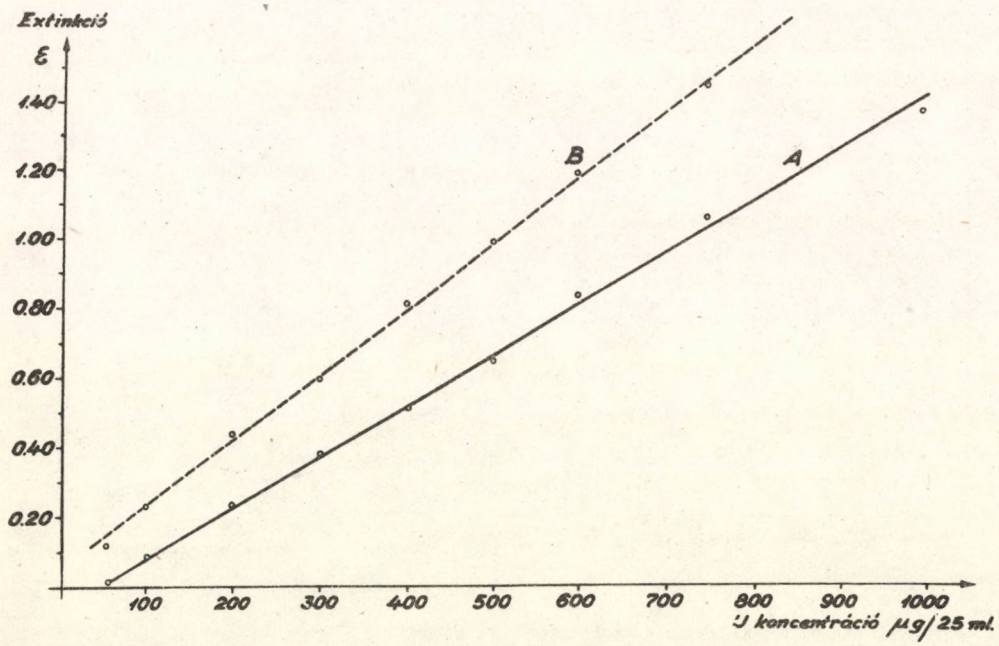
Az uranyl-ionok a rhamnetin alkoholos oldatával lugos közegben az UO_2^{2+} ionok koncentrációjától függően narancssárga-sötétbarnásvörös szinü komplexet adnak. A szines komplex csak pH = 10 felett áll elő. Az optimális pH érték a szin kialakulása szempontjából 11-12 között van.

A rhamnetines U komplex segitségével 10 ml oldatban 50 µg U még vizuális uton is jól kimutatható, müszeres uton pedig 10 ml-ben 20 µg U jól érzékelhető, ami azt jelenti, hogy a határhigitás az előbbi esetben 200.000, az utóbbi esetben pedig 500.000. Szürőpapiron végzett cseppreakció segitségével 1 µg U jelenléte is jól detektálható.

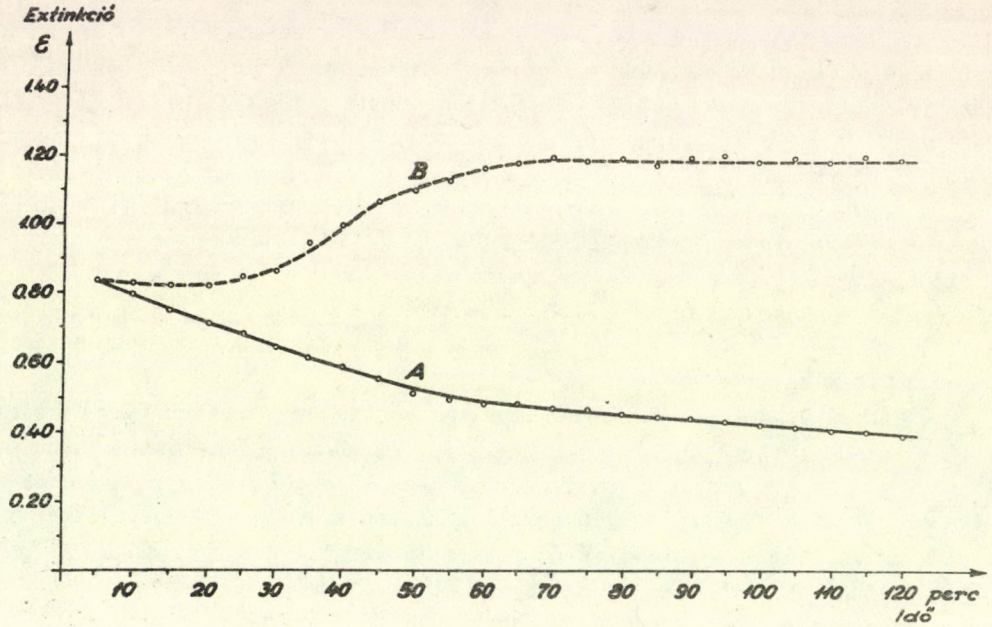
Ennek érdekében szürőpapir csikra egymástól néhány cm-re 1-1 csepp alkoholos rhamnetin oldatot cseppentünk, ezután az egyik foltra egy csepp desztillált vizet, a másik foltra az U-t tartalmazó vizsgálandó oldat egy cseppjét viszszük. Végül tömény ammóniumhidroxidot tartalmazó pohár fölé tartjuk a szürőpapir csikot. 1 µg feletti U tartalom jelenlétében a koncentrációtól függően narancssárga-barna folt keletkezik.

Mérési eredményeink alapján megállapitottuk, hogy a rhamnetines U komplex a Lambert-Beer törvényt jól követi. /L. 1. sz. ábrát./ Nagy hátrányként jelentkezett azonban az a körülmény, hogy a komplex a levegő oxigénjének hatására, illetve az oldatban foglalt oxigén tartalom hatására 10-15 perc elteltével már bomlani kezd és szinének intenzitását rohamosan veszti. A 2. sz. ábra "A" jelü görbéjén feltüntettük ennek a bomlási folyamatnak időbeli lefolyását.

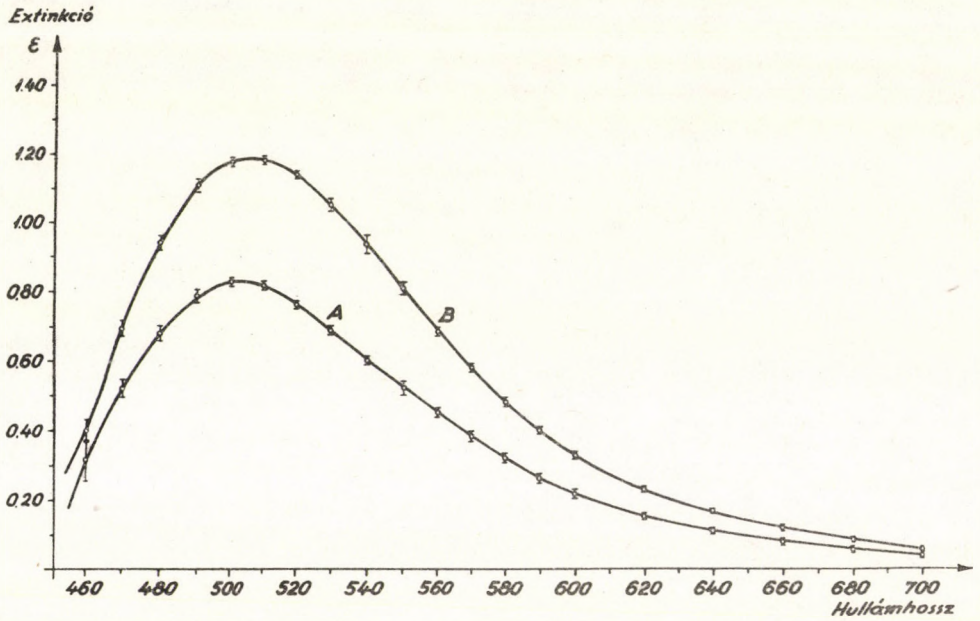
A gyors oxidációs bomlást több különböző módon próbáltuk meggátolni, illetve ennek zavaró hatását kiküszöbölni. Ennek során sikerült olyan megoldást találni, amely a követelményeket elég jól kielégitette. Megfigyeltük ugyanis, hogy amikor az oldathoz erős anorganikus redukálószert adtunk, akkor a szinstabilitási viszonyok kedvezőbbekké váltak. A legjobban bevált erre a célra a nátriumszulfit és hidrazinklórhidrát keveréke. Ilyen redukáló keverék jelenlétében a komplex kb 1/2 - 1 óra hosszat állandó, majd az optikai sürüsége lassan emelkedni kezd és kb 2 óra elteltével véglegesen stabil értéket vesz fel, mely bu -



1. ábra. A rhamnetin-U komplex optika sürűsége az U koncentráció függvényében. /"A" = ½ órán belül, "B" = 2 óra mulva felvéve./



2. ábra. A rhamnetin-U komplex stabilitása az idő függvényében. /"A" = redukáló szer nélkül, "B" = Na_2SO_3 + N_2H_4.HCl keverékének jelenlétében./



3. ábra. A rhamnetin-U komplex abszorpciós spektruma. /"A" = ½ órán belül, "B" = 2 órával később felvéve./

borékmentesen lezárt küvettában még 48 óra állás után sem változtatja meg számottevően az optikai sürüségét. /2. sz. ábra "B" jelü görbéje./ A szabad levegőn álló oldat is csak 36-40 óra elteltével kezd lassan bomlani. Ez a körülmény arra enged következtetni, hogy a kezdetben kialakult komplex bizonyos idő eltelte után nagyobb szinintenzitást biztositó redukciós termékké alakul át valamilyen belső atomátrendeződési folyamat eredményeképpen. Feltételezhető, hogy az erősen redukáló környezetben az U/VI/ is átalakul U/IV/-é és mint U/IV/ lép kölcsönhatásba lugos közegben a rhamnetinnel. A redukáló környezet szinstabilizáló hatása nemcsak a rhamnetin-U komplexnél érvényesül, hanem az egyébként szintén bomlásra hajlamos U mentes vakpróba szinárnyalatát és intenzitását is stabilizálja.

Az U/VI/ rahmnetinnel alkotott komplexének a 210-750 nm-es szinképterületen egyetlen abszorpciós maximuma van és pedig 505 nm-nél. Az abszorpciós görbe lefutását szemlélteti a 3. sz. ábra. Az "A" jelü görbe a komplex kezdeti, 1/2 órán belül felvett értékei alapján, mig a "B" jelü görbe a 2 óra mulva kialakult állapotot tünteti fel. A mérési körülmények a következők voltak:

Rétegvastagság	1 cm
Belépő rés	0,05 mm
Kilépő rés	0,03 mm
Fotocella	Zeiss MQVS
Hőmérséklet	19-21 C°

Az oldat U/VI/ koncentrációja 1/10 millimólos volt, az összehasonlitó próba összetétele pedig az U mentes mérőpróba összetételével egyezett meg. A méréseinket Zeiss-féle univerzális spektrofotométerrel végeztük.

E méréseink alapján a rhamnetin-urán komplex moláris extinkciós koefficiensét 505 nm-nél 8300 ± 150-nek találtuk, 30 percen belüli kiértékelésnél. A 2 1/2 óra mulva beálló végleges érték: 11800 ± 120.

Az U/VI/ rhamnetinnel való meghatározását majdnem minden nehézfém ion zavarja, ezért a vizsgálat előtt az U/VI/-ot a kisérő idegen fémionoktól kvantitative el kell választani. Az anionok közül a szulfát, klorid és nitrát ionok kisebb mennyisége /1 mg-ig/ nem zavar, de a foszfát ionok csökkentik a fényelnyelést. Az urániumnak a zavaró ionoktól való elválasztása minden nehézség nélkül, könnyüszerrel megoldható, mindenek előtt a gyors és quantitativ elválasztást eredményező, kiterjedten alkalmazott oldószeres extrakciós eljárások segitségével.

Az uranyl ionok meghatározása rhamnetin segitségével a következő módon végezhető el:

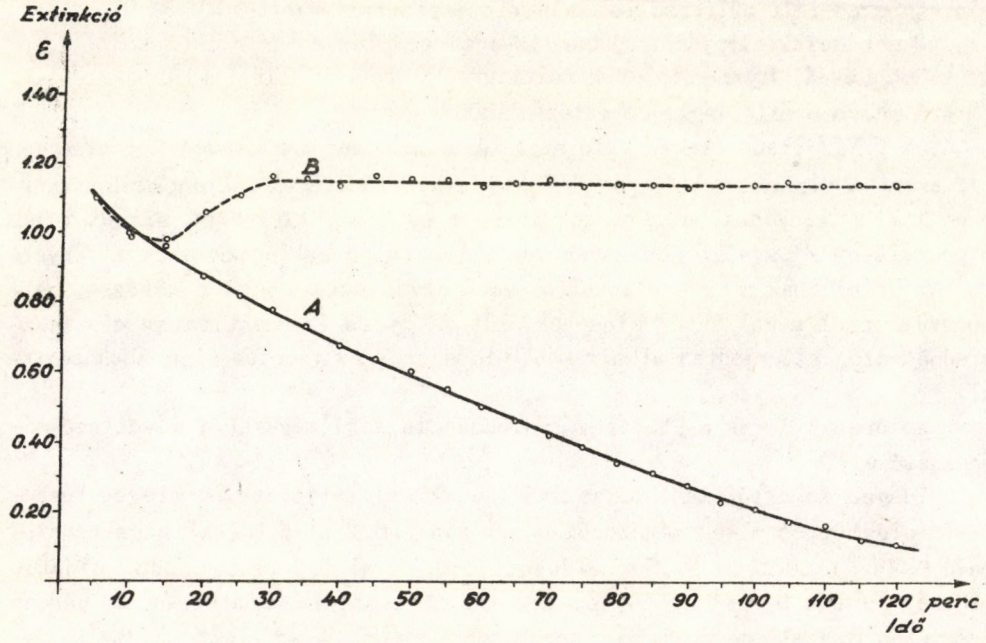
Idegen ionoktól mentes, maximálisan 20 ml térfogatu, semleges kémhatásu U/VI/ oldatot 25 ml-es mérőlombikba viszünk, 0,2 ml N HCl-el megsavanyitjuk, majd 0,25 ml 10 %-os Na_2SO_3 oldatot és 0,75 ml 5 %-os $N_2H_4.HCl$ oldatot adunk hozzá. Ezután 0,4 ml 0,45 %-os alkoholos rhamnetin oldatot és 10 perces várakozás után 0,8 ml conc. NH_4OH-t adunk hozzá, végül desztillált vizzel a jelig töltjük. Ujabb 5 perc várakozás után 505 nm-es hullámhosszon, vagy Pulfrich-fotométer használása esetén S-50 sz. szinszürő mellett mérjük az optikai sürüséget. Az összehasonlitó próba az U mentes mérőpróba összetételével egyezik meg.

A kiértékelő mérés elvégezhető a redukálódott termékből is kb. 2 1/2

óra elteltével, mikoris a magasabb és stabilabb extinkciós értékek folytán a meghatározás pontossága némileg növelhető.

Az ismertetett módon végzett U meghatározás jól reprodukálható, pontos eredményeket szolgáltat, melynek még további előnye, hogy a légmentesen lezárt oldaton a vizsgálat hibamentesen még másnap is elvégezhető, illetve megismételhető.

Az U/VI/ rhamnetinnel alkotott komplexénél tapasztalt jelenségek arra késztettek, hogy megvizsgáljuk annak a lehetőségét, vajjon a morinos U/VI/ komplex stabilitása nem volna-e előnyösen befolyásolható redukáló kondició biztosítása esetén. Először vizsgálat tárgyává tettük a redukálószer nélkül előálló morin-U/VI/ komplex szinintenzitásának stabilitását. *Almássy-Nagy-Straub* szerint [1] a lugos uranyl-morin komplex 30 percig stabil. *Beck* és *Hantos*, már idézett közleményükben [9] többek között azt állapitották meg, hogy 57,6 %-os etilalkoholos közegben a morin-uranyl komplex optikai sürüsége pH = 4-7 között konstans. Megfigyelték továbbá, hogy a csökkenő pH-val az extinkció erősen csökken, viszont növekvő pH-nál az extinkció is lassan növekszik egészen 9,5 pH értékig, viszont ennél az értéknél és még inkább e feletti tartományban már számottevő bomlást észleltek. Mi azt találtuk, hogy a lugos komplex, olyan esetben, amikor semmilyen kisérő anyag nem volt mellette, a félórai időtartam letelte előtt már számottevő bomláson esik át. /Lásd a 4. ábra "A" jelü görbéjét./ Nátriumszulfit-hidrazinklorhidrát keverékének hozzáadása esetén a komplex stabilitása ugyanolyan jellegüvé vált, mint azt a vele rokon rhamnetin esetében tapasztaltuk. /Lásd a 4. ábra "B" jelü görbéjét./ E méréseink alapján a morinos U meghatározásánál is a kellő pontosság és a reprodukálhatóság elérése érdekében ajánlatosnak látszik az Na_2SO_3 + N_2H_4.HCl redukálókeverék alkalmazása.



4. ábra. A morinos U komplex stabilitása az idő függvényében. /"A" = redukáló szer nélkül, "B" = Na_2SO_3 + N_2H_4HCl keverékének jelenlétében./

A rhamnetinnel végzett további kutatásaink azt mutatták, hogy az U/VI/ ionon kivül e vegyület a Th^{4+}, Fe^{2+}, Fe^{3+} és Co^{2+} ionokkal is szinreakciót ad lugos közegben. A Th^{4+} ionokkal a rhamnetin lugos közegben narancssárga szinü komplex vegyületet alkot, melynek abszorpciós maximuma 490 nm-nél van. Cseppreakcióval szürőpapiroson 5 µg Th még jól kimutatható. Ebből a célból a szürőpapirosra egymástól néhány cm távolságra 1-1 csepp rhamnetin oldatot cseppentünk, majd az egyik foltra desztillált vizet, a másik foltra a Th tartalmu oldatot cseppentjük, végül conc. NH_4OH-t tartalmazó főzőpohár felé tartjuk a szürőpapirt. Th jelenlétében, a koncentrációtól főggően sárga, vagy barna folt keletkezik.

Fe /II/ és Fe /III/ esetében intenziv zöldes-barna szinü komplex képződik. A vas-rhamnetin komplex abszorpciós maximumát 510 nm-nél találtuk. Cseppreakcióval 0,1 µg vas még jól kimutatható. A keletkező folt szine szürkés-barna. Kivitelezése megegyezik az U-nál, ill. a Th-nál leirt móddal.

A Co ionok a rhamnetinnel lugos közegben a fentieknél kevésbé intenziv zöldes-sárga szineződést adnak. A Co-nak ilymódon, cseppreakcióval történő kimutatási határa 5 µg.

Nem mulaszthatom el, hogy köszönetet mondjak *Szalay Sándor* professzor urnak, aki e témára figyelmemet felhivta, *Bognár Rezső* professzor urnak, *Uri József* egyetemi docens urnak és *Rákosi Miklós* egyetemi tudományos munkatársnak, akik a szükséges organikus preparátumokat rendelkezésemre bocsátották.

Irodalom

[1] *Almássy Gy. - Nagy Z. - Straub J.:* MTA Kém.Tud.Oszt.Közl. *5,* 257. 1954.
[2] *Almássy Gy. - Vigvári M.:* Magy.Kém.Folyóirat *61,* 109. 1955.
[3] *Almássy Gy.:* Magy.Kém.Folyóirat *61,* 404. 1955.
[4] *Ujhelyi Cs.:* Magy.Kém.Folyóirat *61,* 437. 1955.
[5] *Almássy Gy.:* MTA Kém.Tud.Oszt.Közl. *7,* 337, 1956.
[6] *Almássy Gy. - Ujhelyi Cs.:* MTA Kém.Tud.Oszt.Közl. *8,* 47. 1956.
[7] *Máthé Gy. - Szalay S.:* Magy.Fiz.Folyóirat *5,* 247. 1957.
[8] *Sámsoni Z.:* ATOMKI Közl. *2,* 1.sz. 53. 1960.
[9] *M.T.Beck - E.Hantos:* Acta Chimica Acad.Sci.Hung. *8,* 233. 1956.
[10] *E.J.Kocsis:* Microchemie *25,* 13. 1938.
[11] *J.Komenda:* Chem.Listy *47,* 531. 1953.

Kiadja a
Magyar Tudományos Akadémia
Atommag Kutató Intézete
D e b r e c e n.
A kiadásért és szerkesztésért felelős
Szalay Sándor az Intézet igazgatója.
Készült az Intézet *"Zetaprinton"* tipusu
sokszorositó gépén *"Rotaprint"* eljárással.
Példányszám: 300
46/1960.

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

310.565

Atomki Közlemények

II. kötet 1960 3. szám

M.T.A.
ATOMMAG KUTATÓ INTÉZETE
DEBRECEN

Az ATOMKI KÖZLEMÉNYEK-et az MTA Atommag Kutató Intézete (ATOMKI) adja ki. A szerkesztésért és kiadásért felelős: dr. Szalay Sándor egyetemi tanár, az MTA lev. tagja, az intézet igazgatója. Technikai szerkesztő: Berényi Dénes tud. munkatárs, technikai segédszerkesztő: Meszéna György tud. s. munkatárs.
A lap anyagához hozzájárul a Debreceni Kossuth Lajos Tudományegyetem Kísérleti Fizikai Intézete, valamint Alkalmazott Fizikai Intézete is, amely intézetek szoros együttműködésben vannak az ATOMKI-vel. Kéziratot elvben külső szerzőktől is elfogadunk, ha az a lap célkitűzéseinek megfelel.
Az ATOMKI KÖZLEMÉNYEK feladatát a következőkben látjuk:
1. Lehetőleg hű képet ad az ATOMKI munkásságáról, tevékenységéről, fejlődéséről. Az ATOMKI tudományos eredményei közül csak azokat hozza részletesebben, amelyek más helyen, akadémiai, nemzetközi vagy egyéb folyóiratban nem jelentek meg. Az utóbbiakról csak felsorolást, esetleg rövid ismertetést, kivonatot hoz.
Más folyóiratokban megjelent közleményeinkhez egyes esetekben hozunk itt kiegészítő közleményt, ha az alkalmazott kutatási módszer eredetisége folytán külön leközlésre érdemes, és helyszűke miatt a nagyobb folyóiratokban a részletes leírás célszerűtlen lett volna.
2. Elősegíti különösen a fiatal hazai atomkutatók tudományos ismereteinek bővülését azzal, hogy az atommagfizika egyes területeiről összefoglaló, ismertető közleményeket hoz magyar nyelven.
3. Elősegíti a világon folyó atommagkutatás eredményeinek hazai békés alkalmazását más tudományok és az ipar területén olyan összefoglaló, ismeretterjesztő közlemények útján, amelyek bár tudományosan nem eredetiek, de e téren hazánkban — magyar nyelven — hézagpótló szerepet töltenek be.
Idetartozónak tekintjük az izotópok különböző alkalmazásait a tudományokban, az iparban, stb., valamint az atomkorszak bekövetkeztével kapcsolatban felmerülő szükségleteket, problémákat az oktatásban, és így tovább.
Az ATOMKI KÖZLEMÉNYEK évenként több számban jelenik meg. Tudományos intézeteknek, intézményeknek cserepéldányképpen, vagy kérésükre díjtalanul megküldjük, kötelezettség nélkül. Magánszemélyeknek esetenkénti kérésére 1—1 példányt vagy különlenyomatot szívesen küldünk. Ilyen irányú kéréseket az intézet könyvtárszolgálatához kell irányítani (ATOMKI, Debrecen, Bem-tér 18/c. Levélcím: Debrecen 1. Pf. 51. Táviratcím: ATOMKI, Debrecen).

ATOMKI KÖZLEMÉNYEK

II. kötet, 1960. 3. szám.

TARTALOMJEGYZÉK

TUDOMÁNYOS KÖZLEMÉNYEK Oldal

Csongor Éva: Po α-részecskéinek rugalmatlan szórása Li atommagokon. 195

Angeli István: Vizsgálatok a $Na^{23}/\alpha,p/Mg^{26}$ magreakció gerjesztési függvényére vonatkozólag. 199

Szalay Sándor: Az ATOMKI tervei a meteorit-kutatás terén. 205

Sámsoni Zoltán: A meteoritok általános jellemzése különös tekintettel kémiai összetételükre. 207

Gyarmati Borbála: Meteoritok izotópösszetételét érintő magfizikai hatások. 213

Kovách Ádám: Modern izotópanalitikai vizsgálatok meteoritokon. /Irodalmi áttekintés./ 217

Csikai Gyula - Molnár Erzsébet - Schlenk Bálint: BF_3-számláló kritikus rádiuszának vizsgálata. 225

Kovách Ádám - Szalay Sándor: Kisérleti atombombarobbantások időpontjának meghatározása a légkör radioaktivitásának alapján. 229

MŰHELYÜNKBŐL, LABORATÓRIUMUNKBÓL

Ujhelyi Csaba: Ionizációs kamrás mérőberendezés 10^{-4}-1 curie erősségü gamma-sugárzó preparátumok aktivitásának meghatározására. 237

Kósa György - Scharbert Tibor: Automatikus izotóp mérőberendezés. 243

Berecz István - Schadek János: Elektromágneses vezérlésü nagy vákuum szelep. 249

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

Po α-RÉSZECSKÉINEK RUGALMATLAN SZÓRÁSA Li ATOMMAGOKON

Csongor Éva
Kisérleti Fizikai Intézet, Debrecen*

Az α-részek rugalmatlan szórását kisérő γ-sugárzás észlelésével, vastag Li_2CO_3 céltárgy alkalmazásával a szerző felvette a γ-sugárzás gerjesztési függvényét. Rezonanciát állapit meg 2,9; 3,9 és 4,6 MeV α-energiáknál, amely adatokból a B^{11} közbenső mag gerjesztett állapotait határozta meg.

Bevezetés

A Li^7 az egyik legkönnyebb atommag, amelynek ismeretes alacsonyan fekvő gerjesztett állapota. A Li^7 e gerjesztett állapotából γ-kvantum kibocsátásával tér vissza alapállapotába, amely γ-sugárzás energiáját az ujabb eredmények 0,478 MeV-nek adják [1], [2].

A Li^7 ezen gerjesztett állapotára nézve *Schnetzler* észlelte először 1935-ben [3], hogy nemcsak magátalakitás révén, hanem α-részekkel való rugalmatlan ütköztetéssel is előállitható. Po α-forrást használva felvette a γ-sugárzás gerjesztési függvényét. Mérőberendezésének feloldóképessége igen rossz volt, a gerjesztési függvény monoton emelkedve semmi finomabb strukturát nem mutatott /lásd 2. ábra/.

Nem jobbak a *Siegbahn* és *Slätis* által 1948-ban végzett [4] mérések sem /lásd 2. ábra/. A rossz felbontóképesség oka ugyanaz, mint *Schnetzler*nél: hogy nem tudják a Po forrást kis átmérőjüre készitени és ezért nagy az α-sugarak inhomogenitása.

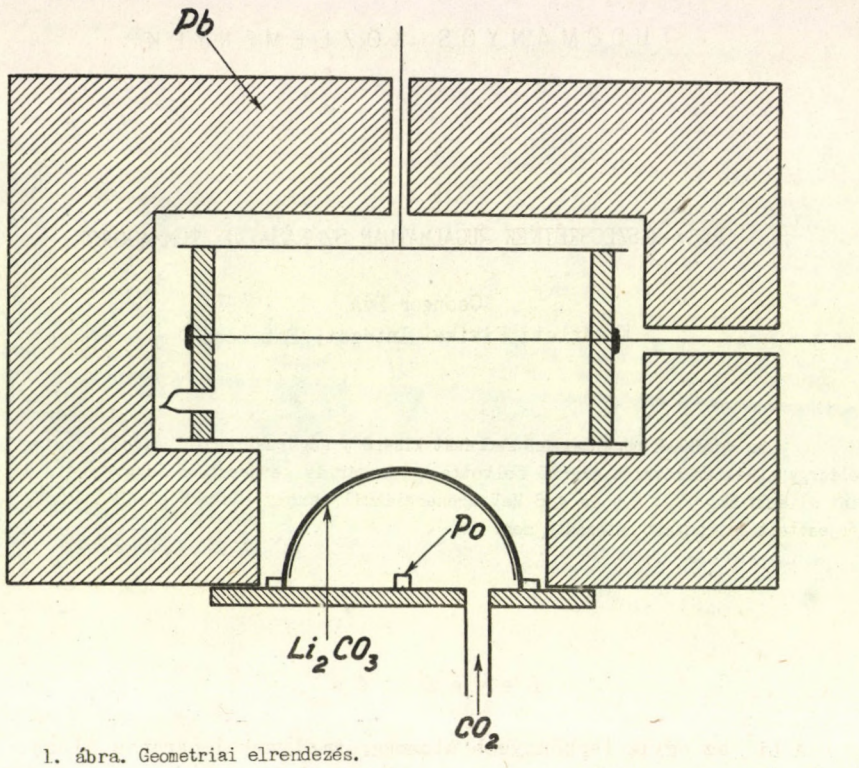
E szisztematikus hiba kiküszöbölésére *Szalay* eljárása [5] szerint és általa készitett, 3 mm Ø Pt-Ir korongra szublimált 6,6 mC erősségü, pontszerü Po preparátumot használtam a gerjesztési függvény felvételéhez.

Mérőberendezés

A Po preparátumot egy 5 cm átmérőjü félgömb középpontjába helyeztem, amelynek felületét Li_2CO_3-mal vontam be. Az α-sugarak energiáját száritott CO_2 gáz nyomásával változtattam. A magfolyamatot kisérő α-sugárzást egy 45 x 85 mm metszetü sárgaréz falu G.M. számlálócsővel mértem. A számlálócsövet a környezet sugárzásától 3 cm vastag ólomköpennyel védtem. A mérőberendezés geometriai elrendezését az 1. ábra mutatja.

---

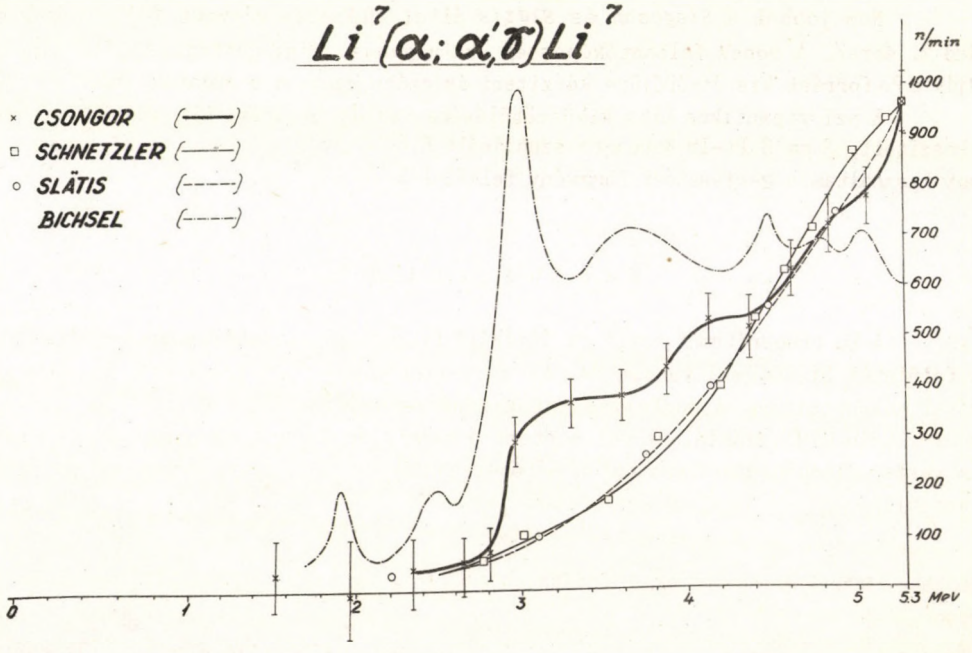
* 1950-ben végzett mérési anyag, előadásra került 1951-ben az I. Magyar Fizikus Vándorgyülésen.



1. ábra. Geometriai elrendezés.

G e r j e s z t é s i f ü g g v é n y

A bombázó α-sugarak energiáját változtatva és mérve a γ-sugárzás intenzitását, felvettem a gerjesztési függvényt. /2. ábra./ A Li_2CO_3 réteg un. vastag réteg volt, amelyben az α-sugarak teljesen abszorbeálódtak, igy a kapott gerjesztési függvény integrális. A jelenlevő C és O atomok ilyen α-energiáknál γ-sugárzó magfolyamatot nem adnak, igy ezek jelenléte a gerjesztési függvényt nem befolyásolja.



2. ábra. A $Li^7(\alpha,\alpha'\gamma)Li^7$ magfolyamat gerjesztési függvénye vastag Li rétegen.
Abszcissza: a bombázó α-részek energiája.
Ordináta: a γ-sugárzás intenzitása önkényes egységekben.

Mint a 2. ábrából látható, a gerjesztési függvényen, a megelőző szerzők vizsgálataitól eltérően, szembetünő rezonancia struktura mutatkozik. Éles rezonancia van /2,9 ± 0,1/ MeV α-energiánál. További rezonancia helyek jelentkeznek /3,9 ± 0,2/ MeV és /4,6 ± 0,2/ MeV-nél, de ezek a statisztikai hiba nagysága miatt nem bizonyitottak kellően.

K i é r t é k e l é s

Li^7 atommagokat α-sugarakkal bombázva a gerjesztési függvény rezonancia-energiából a B^{11} közbenső mag gerjesztett állapotainak meghatározására van lehetőségünk.

Az α-résznek a B^{11} magbani kötési energiája /$E_{köt}$/ 8,670 MeV [8]. Az észlelt 2,9; 3,9 és 4,6 MeV α-energiákat tömegközépponti rendszerbe átszámitva 1,84; 2,48 és 2,93 MeV-et kapunk /E/. Az

$$E_{gerj} = E_{köt} + E$$

összefüggés alapján a B^{11} mag gerjesztett állapotainak energiáira /E_{gerj}/ /10,51 ± ± 0,07/, /11,15 ± 0,15/ és /11,6 ± 0,15/ MeV-et kapunk.

Évekkel e mérések befejezése után 1954-ben jelent meg *Hydenburg* és *Temmer* [6], valamint *Bichsel* és *Bonner* [7] közleménye, akik vékony Li rétegen szcintillációs számláló alkalmazásával vették fel a differenciális gerjesztési függvényt /lásd 2. ábra/. 1,7 - 3,1 MeV [6], ill. 1,7 - 6 MeV energiatartományban [7].

A jelen munkában közzétett mérések és az ujabb mérések [7] eredményeit az alábbi táblázat foglalja össze, és megállapitható, hogy a mérési eredmények jó összhangban vannak az ujabb mérési adatokkal, ill. a B^{11} ma ismeretes gerjesztett állapotaival [8].

T á b l á z a t

A B^{11} mag gerjesztett állapotai /az α-résznek a B^{11} magbani kötési energiája 8,670 MeV [8]./

E_{α} lab MeV		E_{gerj} MeV	
jelen munka	[7]	jelen munka	[7]
2,9 ± 0,1	3,06 ± 0,1	10,51 ± 0,07	10,62
3,9 ± 0,2	3,6 ± 0,1	11,15 ± 0,15	11,0
	4,39 ± 0,01		11,46
4,6 ± 0,2	4,6 ± 0,1	11,6 ± 0,15	11,6

A γ-sugárzás eredetére vonatkozólag *Bichsel* és *Bonner* [7] mérései alapján megállapitható, hogy fenti rezonanciák kétséget kizáróan az α-részek rugalmatlan szórásából erednek, t.i. az észlelt γ-sugárzás a Li^7 első gerjesztett állapotához tartozó, monochromatikus 0,478 MeV-es γ-sugárzásból áll.

I r o d a l o m

[1] *L.G.Elliott* and *R.E.Bell:* Phys. Rev. *74,* 1869, 1948. és *76,* 168, 1949.
[2] *V.S.Spinel:* Izv. Akad. Nauk. *18,* 65, 1954.
[3] *K.Schnetzler:* Zs. f. Phys. *95,* 303, 1935.
[4] *H.Slätis:* Arkiv för Mat. Astr. o Fys., *35 A,* No 31, 1, 1948.
[5] *A.Szalay:* Zs. f. Phys. *112,* 29, 1939.
[6] *N.P.Heydenburg* and *G.M.Temmer:* Phys. Rev. *94,* 1252, 1954.
[7] *H.Richsel* and *T.W.Bonner:* Phys. Rev. *103,* 1023, 1957.
[8] *F.Ajzenberg-Selove - T.Lauritsen:* Nuclear Physics, *11,* 1, 1959.

VIZSGÁLATOK A $Na^{23}/\alpha,p/Mg^{26}$ MAGREAKCIÓ GERJESZTÉSI FÜGGVÉNYÉRE VONATKOZÓLAG

Angeli István

Po α-részecskéivel NaCl céltárgyat bombázva, mértük a γ-sugárzás intenzitását, mint a bombázó α-energia függvényét. Négy rezonanciát találtunk, E_α = 5,275; 5,220; 5,165 és 5,130/±0,015/ MeV laboratóriumi α-energiánál, ezek az Al-27 atommag E^+ = 14,589; 14,542; 14,495 és 14,465/±0,013/ MeV-es energia állapotainak felelnek meg. A mért γ-spektrum arra utal, hogy a sugárzás a Na-23/α,p/Mg-26 reakció következménye.

B e v e z e t é s

Atommagokra vonatkozó ismereteinknek egy lényeges részét a lehetséges energiaállapotok vizsgálatával nyerjük. Alacsonyenergiáju /néhány MeV-es/ magreakciónál a reakciót közvetitő közbenső mag magasan gerjesztett állapotaira kaphatunk felvilágositást, ha megfigyeljük a reakciótermékek hozamának a bombázó részecske energiájától való függését /gerjesztési függvény/. Ha ugyanis a bombázó részecske tömegközépponti rendszerben mért kinetikus energiája a kötési energiával együtt a közbenső magot éppen egy lehetséges energiaállapotban hozza létre, akkor a reakció valószinüsége erősen megnövekszik, ami a reakciótermékek hozamának rezonanciaszerü növekedésében nyilvánul meg.

Jelen közleményben az Al^{27} magnak olyan - magasan gerjesztett - energiaszintjeivel foglalkozunk, amelyek a

$$Na^{23}/\alpha,p/Mg^{26}$$

reakció során keletkeznek. A Mg^{26} végső mag általában gerjesztett állapotban jön létre és γ-sugárzás kibocsátásával megy át alapállapotába. A vizsgálatok során ennek a γ-sugárzásnak az intenzitását mértük, mint a beeső α-részek energiájának függvényét.

Bothe és *Becker* [1] utaltak arra először, hogy α-bombázás hatására a Na-ból γ-sugárzás lép ki, hozzávetőlegesen $(1,2 \pm 1,0)\ \gamma/10^6\ \alpha$ - intenzitással.

Webster [2] és *Savel* [3] már minden kétséget kizárólag kimutatta ilyen γ-sugárzás létezését, sőt *Savel* - abszorpciós méréssel - az energiát is meghatározta /$E_\gamma \approx 1,7 - 1,9$ MeV/, az intenzitást pedig öt különböző energiánál mérte. Ez utóbbi vizsgálat tekinthető a későbbi gerjesztési függvények ősének.

Kovács Magdolna [4] már részletesebben, 17 ponton vette fel ezt a gerjesztési függvényt, azonban a közbenső Al^{27} mag nivóira utaló lépcsők a nyert görbén még nem fedezhetők fel.

Slätis [5] mérése sem hozott eredményt ebben a tekintetben. Itt jegyezzük meg, hogy *Slätis* jó összefoglalást ad az 1948 előtti - könnyü magok /α, γ/ gerjesztésére vonatkozó - munkákról.

Heydenburg és *Temmer* [6], [7] adtak meg először gerjesztési nivókat az $E_\alpha = 1,5 - 3,6$ MeV energiatartományban. Vékony NaCl-rétegen végzett méréseik szerint itt tizenhat rezonancia található. Méréseik során a Mg^{26}-ra jellemző, 1,83 MeV-es vonal intenzitásváltozásait mérték, igy a reakció azonositható volt.

Mi további rezonanciahelyek felkeresését tüztük ki célul az $E_\alpha = 3,6 - 5,3$ MeV energiaintervallumban.

K i s é r l e t i e l r e n d e z é s

A mérőberendezés leirását egy másik ATOMKI Közlemény tartalmazza [8], ezért itt csak a legszükségesebbek leirására szoritkozunk.

Az α-részek 3 mm átmérőjü Pt-Ir korongon lévő 15-20 mC erősségü Po-preparátumból léptek ki. A vékony, egyenletes Po-réteg előállitása az Intézetben használatos eljárással történt [9].

Céltárgy gyanánt vákuumban párologtatott vékony (kb 0,15 - 0,20 mg/cm^2), ill. vastag (kb 1,5 mg/cm^2) NaCl réteget alkalmaztunk. A gömbsüveg alaku céltárgy görbületi középpontjában helyezkedett el a Po-preparátum, tehát az α-részek azonos energiával érkeztek meg a bombázandó felület minden pontjára.

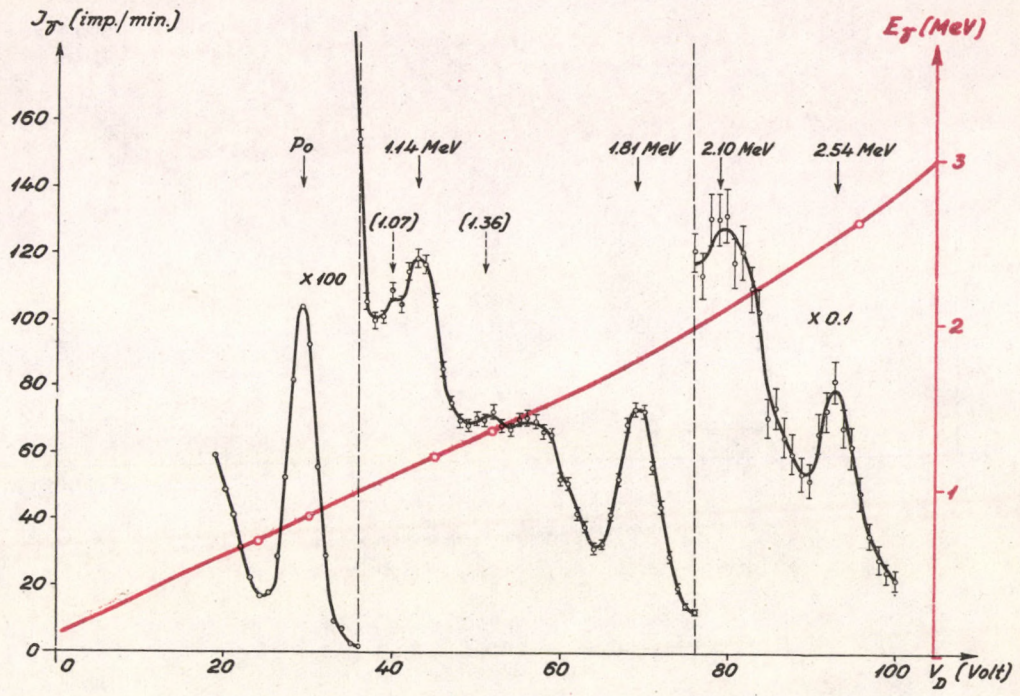
Az α-sugarak energiájának változtatására foszforpentoxiddal szárított széndioxidot használtunk.

A céltárgy-rétegből kilépő γ-kvantumokat 40 mm átmérőjü és 30 mm magasságu NaJ/Tl/ kristály és RCA 5819 tipusu fotoelektron-sokszorozó segitségével, erősités és diszkriminálás után dekatroncsöves számlálóberendezés utján detektáltuk. Az egycsatornás differenciál-diszkriminátornak γ-energiára történő kalibrálásával később foglalkozunk.

M é r é s i e r e d m é n y e k

A γ-spektrum felvételére azért van szükség, mert csak ennek ismeretével dönthetjük el, hogy milyen magreakciónak /esetleg reakcióknak/ a gerjesztési függvényét vettük fel. Az 1 Volt csatornaszélességgel felvett differenciális - γ-spektrum az 1.ábrán látható. Abszcissza: diszkriminátorfeszültség /V_D/, ordináta: gamma-intenzitás /I_γ/. Ide rajzoltuk be /pirossal/ az energia kalibrációs görbét is, amelyet Cs^{137}, Po^{210}, Co^{60} és Th C" fotocsucsaival vettünk fel. A kalibrációs görbe ugyan nem teljesen lineáris, de ez a mérésnél nem okoz semmiféle problémát.

Csucsokat találtunk 2,54 ± 0,05; 2,10 ± 0,04; 1,81 ± 0,03 és 1,14 ± 0,02 MeV energiaértékeknél. További kis intenzitásu csucsok is megállapithatók 1,36 és 1,07 MeV-



1. ábra. Po α-részecskéivel bombázott NaCl céltárgyon létrehozott magátalakitást kisérő γ-sugárzás energiaeloszlása.
Abszcissza: diszkriminátorfeszültség /V_D/; fekete ordináta: γ-intenzitás /I_γ/; piros ordináta: γ-energia /E_γ/.

nél. Az eredmények kiértékelése során látni fogjuk, hogy a spektrum nagy intenzitásu vonalai a

$$Na^{23}/\alpha,p/Mg^{26}$$

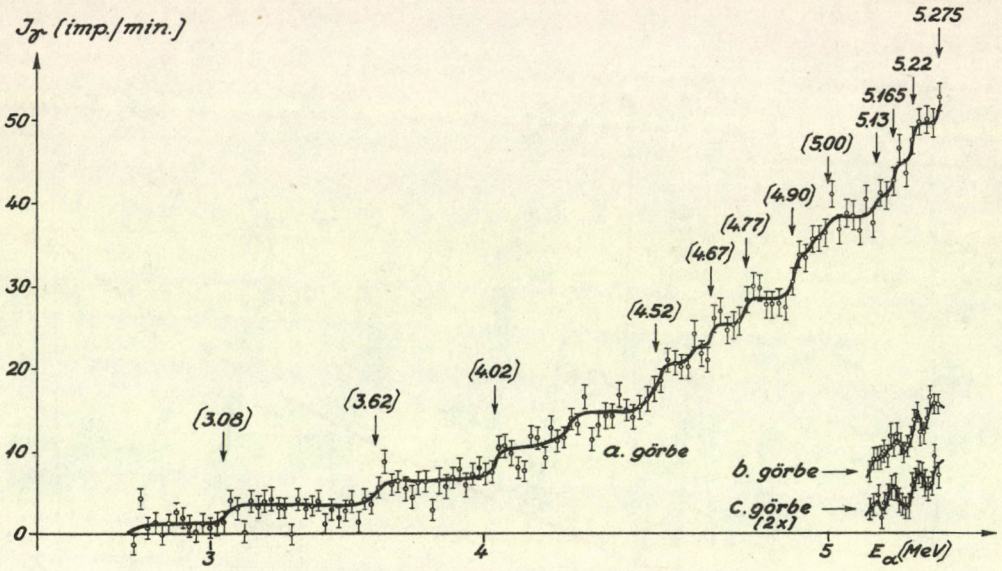
reakcióra vallanak.

A gerjesztési függvény /2. ábra/ felvételét vastag /a. görbe/ és vékony rétegen /b. görbe/ egyaránt megkiséreltük. Mindkét esetben az összes 1 MeV-nél nagyobb energiáju γ-kvantumok számát mértük, és ezáltal a Po saját 0,8 MeV-es γ-sugárzásától eredő impulzusokat kiküszöböltük. Vékony réteg esetében külön megvizsgáltuk az 1,8 MeV-es vonal intenzitását is /c. görbe, ordinátaértékek kétszeresre felnagyitva!/.

A mérési eredmények kiértékelése

A Na^{23} atommagot Po α-részekkel bombázva, két reakció adhat γ-sugárzást /az (α, α') folyamatoktól eltekintve/:

$Na^{23}/\alpha,p/Mg^{26}$	Q = +1,844 MeV [10]
$Na^{23}/\alpha,n/Al^{26}$	Q = -2,964 MeV



2. ábra. A $Na^{23}/\alpha,p/Mg^{26}$ magreakció gerjesztési függvénye.
Abszcissza: bombázó energia /E_α/; ordináta: γ-intenzitás: /I_γ/.

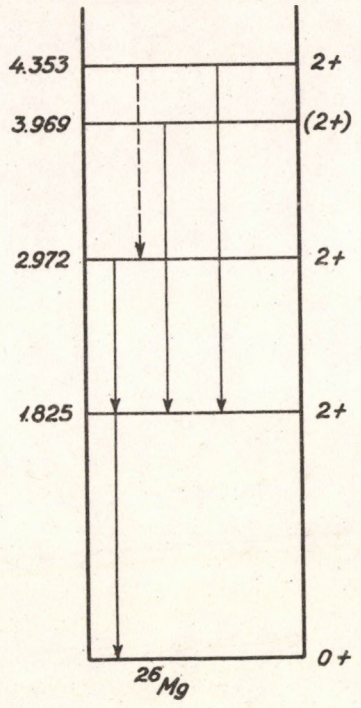
a. görbe: vastag NaCl-réteg, $E_\gamma \geqq 1$ MeV
b. görbe: vékony NaCl-réteg, $E_\gamma \geqq 1$ MeV
c. görbe: vékony NaCl-réteg, 1,94 MeV $\geqq E_\gamma \geqq$ 1,66 MeV

Már a Q-értékek alapján is várható, hogy esetünkben az /α,n/ magreakció kisebb valószinüséggel jön létre; az Al^{26} mag nivósémájának [11] vizsgálata azt is megmutatja, hogy még ha létre is jön a reakció, 1 MeV-nél nagyobb /kb 1,35 MeV energiáju/ γ-sugárzás csak 5,2 MeV-nél nagyobb bombázó energiánál léphet fel. Azonban a 2. ábra b. és c. görbéjének hasonlósága azt bizonyitja, hogy a gerjesztési függvény menetét még ilyen E_α esetén is az E_γ = 1,8 MeV-es vonal szabja meg, amely az imént mondottak szerint nem származhat a neutronkibocsátással járó reakcióból.

Láthatjuk tehát, hogy az általunk felvett gerjesztési függvény az /α,p/ folyamatról ad felvilágositást. A Mg^{26} atommag nivósémája [11], [12] /3. ábra/ alapján *a spektrum* a következőképpen értelmezhető:

/1,36 MeV-es vonal:	4,353 MeV	⟶	2,972 MeV	átmenet/
2,54 " "	4,353 "	⟶	1,825 "	"
2,10 " "	3,969 "	⟶	1,825 "	"
1,14 " "	2,972 "	⟶	1,825 "	"
1,81 " "	1,825 "	⟶	0 "	"

A gerjesztési függvények alapján az Al^{27} mag négy nivójának létezését vehetjük biztosra E_α = 5,130 ± 0,015; 5,165 ± 0,015; 5,220 ± 0,015; 5,275 ± 0,015 MeV-nél; további nyolc meredek szakaszt jelöltünk meg az a. görbén, a megfelelő rezonancia-energiaértékeket azonban zárójelbe tettük, annak jeléül, hogy megerősitésük még további mérést igényel. Ezért az 1. Táblázatban csak a biztosnak tekinthető rezonanciákra vonatkozólag adjuk meg a laboratóriumi rendszerben mért E_α, tömegközéppontra vonatkozó $E_{\alpha,tk.}$ és az Al^{27} közbenső mag $E^+ = E_{köt.} + E_{\alpha,tk.}$ gerjesztési energiáját. Az α-részecske $E_{köt.}$ energiáját [10] alapján 10,094-nek fogadtuk el.



3. ábra. A Mg^{26} atommag nivósémája /*Miura*/ [12].

1. Táblázat.

A $Na^{23}/\alpha,p/Mg^{26}$ magreakció gerjesztési függvényéből leolvasható rezonancia-energiák lab. rendszerben /E_α/, tömegközépponti rendszerben /$E_{\alpha,tk}$/ és a megfelelő Al^{27} energianivók /E^+/.

E_α /MeV/	$E_{\alpha,tk}$ /MeV/	E^+ /MeV/
5,275 ± 0,015	4,495 ± 0,013	14,589 ± 0,013
5,220 ± 0,015	4,448 ± 0,013	14,542 ± 0,013
5,165 ± 0,015	4,401 ± 0,013	14,495 ± 0,013
5.130 ± 0,015	4,371 ± 0,013	14,465 ± 0,013

A jelenleg csak feltételezett rezonanciahelyek ellenőrzése és további, uj nivók felderitése, valamint a γ-energiaspektrum pontosabb felvétele érdekében a mérést - javitott technikával - folytatni kivánjuk.

Köszönetet mondok *Szalay Sándor* professzornak a probléma felvetéséért és a Po-preparátum elkészitéséért, *Csongor Éva* docensnek az értékes diszkussziókért, és *Máthé György* tudományos munkatársnak az elektronikus berendezések terén nyujtott segitségéért.

I r o d a l o m

[1] *W. Bothe - H. Becker:* Naturwiss. *18,* 705, /1930/.
[2] *H.C. Webster:* Proc. Roy. Soc. /L/. A., *136,* 428, /1932/.
[3] *P. Savel:* Ann. de physique, *4,* 88, /1935/.
[4] *M. Kovács:* Phys. Rev. *70,* 895, /1946/.
[5] *H. Slätis:* Arkiv för Mat. Astr. Fysik, *35 A,* 1, /1948/.
[6] *N. P. Heydenburg - G. M. Temmer:* Phys. Rev. *95,* 629 A, /1954/.
[7] *G. M. Temmer - N. P. Heydenburg:* Phys. Rev. *96,* 426, /1954/.
[8] *Csongor É.:* ATOMKI Közlemények, *2,* megj. alatt.
[9] *A. Szalay:* Z. f. Physik, *112,* 29, /1939/.
[10] *P. M. Endt - M. Demeur:* Nuclear Reactions, p. 264. /North-Holland Publishing Co. Amsterdam, /1959/.
[11] *P. M. Endt - C. M. Braams:* Rev. Mod. Phys. *29,* 683, /1957/.
[12] *I. Miura - T. Wakatsuki - Y. Hirao - E. Okada:* Journ. Phys. Soc. Japan, *14,* 239, /1959/.

AZ ATOMKI TERVEI A METEORIT-KUTATÁS TERÉN

Szalay Sándor

Ugy érzem, néhány szóval indokolni kell, hogy egy fundamentális atommag-kutatással foglalkozó intézet miért iktatta tervébe a hazai muzeumokban fellelhető meteoritok magfizikai vizsgálatát. Hol érintkezhetik az atommagkutatás a meteorit-kutatással?

Mindenek előtt előre kell bocsátanom azt a közismert tényt, hogy az elmult években az emberiség tudományos érdeklődése nemcsak eddig szokatlan intenzitással fordult a kozmosz megismerése felé, hanem ezen a téren szokatlan nagy eredményeket is ért el.

A kozmosznak ürrakétákkal való feldèritésére az óriási költségek miatt eddig csak a két legnagyobb gazdasági erőforrásokkal rendelkező nagyhatalom vállalkozott, mert még a nagyobb országok anyagi erőforrásai sem teszik lehetővé az ilyen kutatásokban való részvételt.

A technika és a tudomány szédületesen halad, és ma már nem utópisztikus az a remény, hogy egyszer ilyen ürrakétákkal kozmikus anyagot hozhatunk be a földi laboratóriumokba megvizsgálás céljára. Ha ez bekövetkezik, akkor vajjon mit is fognak a kutatók a beérkező mintákkal csinálni?

Bizonyára meganalizálják azokat a kémiai analizis szokásos módszereivel. Megvizsgálják az ásvány-szemcsék kristálytani szerkezetét röntgendiffraktográfiával, és az ásványtan szokásos módszereivel.

Történtek már itt-ott feltevések arra is, hogy talán a szerves élet valamiféle formájának, csiráinak nyomait is felfedezhetjük majd ilyen mintákon. Kétségtelen, hogy ezt is vizsgálni fogják rajta.

A tömegspektrométerrel megvizsgálhatják az anyagban lévő stabil izotópok százalékos arányát, összetételét és összehasonlitják azt a Földön fellelhető elemek izotóp összetételével. Ebből értékes információkat lehet kapni a minta geológiai korára stb.

A világürből azonban a rakétákra forditott óriási költségek nélkül - mint-

egy a természet ajándékaképpen - is érkezik állandóan Földünk felületére kozmikus anyag; a meteoritek és a meteorit-por formájában.

Érdekes, hogy a magfizikusok csak az utóbbi években kezdenek egyre jobban foglalkozni, a világ muzeumaiban fellelhető, a világürből beérkezett anyagmintákkal, meteoritokkal. Ezeken a tömegspektrometriai vizsgálatokat még nem, vagy csak szórványosan végezték el, bár azok nem költségesek, és egy kis, de civilizált országban is megvan a lehetősége annak, hogy ilyen vizsgálatokat végezzünk.

A hazai muzeumokban is szép számban vannak meteoritok, amelyeket izotóp-összetétel szempontjából még senki nem vizsgált meg és az alapos általános tudományos megvizsgálásuk is várat még magára.

Az ATOMKI hazai körülmények között hézagpótló munkára vállalkozik akkor, amikor befejezéshez közelálló tömegspektrometriai laboratóriumában a hazai kőzetek életkorának megvizsgálása után elsősorban a hazai muzeumok meteoritjeinek tömegspektrometriai vizsgálatát kívánja elvégezni. Hasonló vizsgálatok folynak már évek óta Moszkvában a Szovjetunió Tudományos Akadémiájának *I. V. Vernadszkij* -ról elnevezett *Geokémiai Kutató Intézetében.* Ezen intézettel jó kapcsolatokat építettünk ki, és egyik munkatársunk tanulmányozta az intézet ilyenirányu munkáját.

Hogy mit várhatunk ilyen vizsgálatoktól, azt őszintén szólva előre nem tudjuk.

Munkatársaink előzetes tanulmányokat végeztek ezen a téren, és az itt következő cikkekben számolnak be tanulmányaikról.

Hogy milyen hatásoknak lehetett egy meteorit hosszu keringése alatt kitéve az ürben, erre nézve vannak ugyan támpontjaink, de biztosat és véglegeset nem tudunk. Külföldön végeztek már elég sok izotóp-analizist meteoriteken. Ezek az analizisek a He-3/He-4 arányban hoztak igen nagy eltérést a földi aránytól, ami kozmikus sugárhatás következménye. A többi megvizsgált elemekben általában nem találtak számottevő eltolódást. Feltételezhető, hogy ha vannak is ilyen jelenségek, akkor százalékos arányban csak csekély az eltolódás, tehát az izotópok százalékos előfordulási arányát nagy pontossággal kell mérnünk.

Mindnyájan nagy kíváncsisággal tekintünk ezen tervezett uj vizsgálataink elé, és őszintén szólva nagyon kevés sejtelmünk van arról, hogy vajjon mit fognak hozni. Találunk-e érdekes uj jelenségeket, amelyek külön magyarázatra szorulnak, vagy talán semmi különöset? Egy bizonyos, az, hogy e vizsgálatokat mindenképpen el kellene előbb-utóbb végezni, mert ezek hézagpótlóak és még negativ eredmény esetén is sokat mondanak, legalább is annyit, hogy az elemek összetétele e meteoritokban is pontosan ugyanaz, mint a Földön. E vizsgálatok költsége a már betervezett tömegspektrometriai laboratóriumunk számára nem olyan jelentős, hogy emiatt indokolt volna lemondani azokról. Tervezett munkánk várható eredményeivel a maga szerény eszközeivel, de aránylag fejlett kulturájával hazánk is bekapcsolódhat a nemzetközi vetélkedésbe a kozmosz megismerése területén.

A METEORITOK ÁLTALÁNOS JELLEMZÉSE KÜLÖNÖS TEKINTETTEL KÉMIAI ÖSSZETÉTELÜKRE

Sámsoni Zoltán

A csillagászati terminológia a kozmikus objektumok csoportjában különbséget tesz a meteortestek, meteorok és a meteoritok között. A bolygóközi térben haladó, saját fényt ki nem bocsátó meteortestek legnagyobb része a bolygókhoz hasonló elliptikus pályán kering a Nap körül. Ha egy ilyen meteortest a Föld vonzókörébe kerül, akkor a 30-60 km/sec sebességgel a légkörbe lépő test a rendkivül erős surlódás következtében 120-150 km magasságban felvillan. A Föld légkörében önálló fénnyel világító kozmikus testeket nevezik meteoroknak. A légkör egyre sürübb zónájába jutva, az erős fékező hatás folytán a meteor sebessége csökken, annyira, hogy az un. fékezési pontban 60-80 km magasságban a fénye ismét kialszik. A meteornak a Föld felszinére jutó darabjait nevezik meteoritoknak.

A Földre kerülő meteoritok méretnagysága viszonylag tág határok között ingadozik. Az 1 μ-nál kisebb és csak a mesterséges holdakkal és rakétákkal észlelhető mikrometeoritoktól a sok tonna sulyu, több m átmérőjü óriásmeteoritokig a változatok széles skálája ismeretes.

A régebbi megfigyelések a Földre jutó meteoritok évi mennyiségét kb 2000 t-ra becsülték. 1947-ben *Van de Hulst* ezt a mennyiséget napi 10000 t-ra értékelte, mig a *Nemzetközi Geofizikai Év* során 1959-ben - egyelőre még nem ellenőrzött adatok szerint - a Földünkre érkező kozmikus anyag /főleg finom por/ évi mennyiségét 14 millió tonnára becsülték.

A meteoritokat három, jól elkülönithető csoportra osztják fel:

1. Vas-nikkel meteoritok, vagy szideritek
2. Szilikát-vas " " sziderolitek
3. Szilikát " " aerolitek.

Első pillanatra világosan látható, hogy a meteoritok osztályozása teljesen analóg a Földünk geokémiai felépitésében ismeretes 3 főövezettel: a szideritek a vas-nikkel maggal, a sziderolitek az oxid-szulfid zónával és az aerolitek a lithoszférával analógok. Ez a párhuzam még jobban kidomborodik, ha a meteoritokat ásványtani és kémiai szempontból tüzetesebben megvizsgáljuk. A meteoritok ásványtani vizsgálata azt mutatta, hogy bennük a Földünkön is ismeretes ásványok vannak tulsulyban. Több olyan ásvány is akad azonban a meteoritokban, melyek a földkéregben ismeretlenek. Ilyenek elsősorban a különböző karbidok, nitridek és foszfidok. A meteoritok legfőbb ásványait az 1. sz. táblázat tünteti fel:

1. sz. táblázat.

1. Elemek, karbidok, nitridek, foszfidok.

Kamacit:	α - vas kb 6 % Ni tartalommal
Tenit:	γ - vas kb 13-40 % Ni tartalommal
Grafit:	C
Cohenit:	/Fe, Ni/$_3$C
Moissanit:	SiC
Osbornit:	TiN
Schreibersit:	/Fe, Ni, Co/$_3$P

2. Szulfidok.

Troilit:	FeS
Oldhamit:	/Ca, Mn/S
Daubréelith:	$FeCr_2S_4$

3. Oxidok:

Magnetit:	$FeOFe_2O_3$
Kromit:	$FeCr_2O_4$
Kvarc:	SiO_2 trigonális
Tridimit	SiO_2 hexagonális

4. Szilikátok:

Olivin:	/Mg, Fe/$_2SiO_4$
Augit:	/Ca, Na, Fe/./Mg, Al, Fe, Ti/Si_2O_6
Ensztatit:	$Mg_2Si_2O_6$
Hipersztén:	/Fe, Mg/$_2Si_2O_6$
Diopszid:	$CaMgSi_2O_6$
Hedenbergit:	$CaFeSi_2O_6$
Plagioklász:	$NaAlSi_3O_8$-$CaAl_2Si_2O_8$
Ortoklász:	$KAlSi_3O_8$

5. Egyéb ásványok.

Merrilith, francolith:	Ca_5/PO_4/$_3$./F, OH, CO_3/
Breunnerith:	/Mg, Fe/CO_3
Lawrencit:	/Fe, Ni/Cl_2

Az egyes meteoritfajták összetételében a felsorolt ásványok különböző mértékben veszik ki részüket. A *szideritek* mindenek előtt terméselemeket, vas-nikkel ötvözeteket tartalmaznak, de előfordul bennük troilit, cohenit, grafit és schreibersit is. A szideritek egy része a *Widmannstätten* rajzok néven ismeretes oktaedrites szerkezetet mutatja, ezért az ilyen tipusu vas-nikkel meteoritokat *oktaedritek*nek is nevezik. A szideritek másik csoportja a *Neumann*-féle rajzokat mutató hexaedrites szerkezettel rendelkezik, melynek alapján az ilyeneket *hexaedritek* néven is ismerik. Az oktaedritek gyakoribbak, mint a hexaedritek. A szerkezetet nem mutató szideriteket *ataxitok*nak nevezik.

A *sziderolitek* részben Fe-Ni ötvözetből, részben szilikátos ásványokból állanak. A szilikát-vas meteoritok gyakori ásványa a *troilit*. A sziderolitekben a fémes fázistól kémiailag elég jól elkülönült szilikátos rész jellegzetes gömböcskék alakjában van jelen. Az *aerolitok* tulnyomó részben szilikátos ásványokból állanak, csekélyebb mennyiségü Fe-Ni ötvözettel és triolittal. Az aerolitok között kiemelkedően fontosak a magasabb vastartalmu *kondritok*, melyek szemcsés, gömböcskés szerkezetükről nyerték elnevezésüket. A különböző kondritokban csekély mennyiségben igen sok féle elemet mutattak ki. A vas-nikkel tartalomban szegény aerolit neve *akondrit*, mivel szerkezetében nem található a szemcsézett, gömböcskés jelleg.

Egészen különleges és a fentiektől eltérő üveges jellegü meteorit fajtát képviselnek a *tektitek*. Ezeket lelőhelyeik után is leirták /moldavit, ausztralit, billitonit, bediazit/. *Suess* és munkatársai a tektitek korát a többi meteoritokénál lényegesen kisebbnek találták, /maximálisan 75 millió évesnek/ viszonyitva a többi meteorit-féleségekhez, melyek kora nagyjából egyezik a Földünk korával. Ebből azt a következtetést vonták le, hogy a tektitek a Naprendszerünkön kivüli eredetüek. *Gentner* és *Zähringer* egyes tektiteket egészen fiatal koruaknak, 5-600.000 éveseknek találtak.

A három meteorit tipusnál a kémiai elemek gyakoriságát *H. Brown* alapján a következő táblázatban foglaljuk össze:

2. sz. táblázat.

Az elemek gyakorisága a meteoritokban

Elem	Fémes fázis /sziderítek/ %	Szulfid fázis %	Szilikát fázis /aerolitek/ %	Meteoritok összessége: %
8 O	-	-	41,02	24,61
11 Na	-	-	0,78	0,47
12 Mg	0,03	-	15,82	9,50
13 Al	-	-	1,74	1,00
14 Si	-	-	20,57	12,30
15 P	0,22	0,31	0,16	0,18
16 S	0,04	34,30	1,79	1,08
17 Cl	-	-	0,09	0,05
19 K	-	-	0,20	0,12
20 Ca	0,05	-	1,97	1,20
21 Ti	0,01	-	0,09	0,06
24 Cr	0,02	0,12	0,35	0,22
25 Mn	0,03	0,05	0,30	0,19
26 Fe	90,78	61,10	15,64	45,70
27 Co	0,63	0,01	0,02	0,26
28 Ni	8,59	0,10	0,14	3,51
29 Cu	0,03	0,42	-	0,01
30 Zn	0,01	0,15	-	0,05
32 Ge	0,02	0,06	-	0,01
33 As	0,04	0,10	-	0,02
50 Sn	0,01	0,16	-	-

Mivel a magyarországi gyüjteményekben őrzött 1418 drb meteorit nagyobbik részét, 782 drb-ot a kondritok képviselik, szükségesnek látszik, hogy a kondritok kémiai összetételét külön is ismertessük. A 3. sz. táblázat a kondritok kémiai összetételének adatait tünteti fel *H.C. Urey* és *H. Craig* összeállitása szerint.

3. sz. táblázat

Az elemek gyakorisága a kondritokban
/Si = 10000/

Elem	Gyakoriság	Elem	Gyakoriság	Elem	Gyakoriság
8 O	34386	15 P	45	24 Cr	76
11 Na	500	16 S	1041	25 Mn	56
12 Mg	9335	19 K	58	26 Fe	7091
13 Al	774	20 Ca	558	27 Co	23
14 Si	10000	21 Ti	22	28 Ni	360

A kondritok vizsgálata során *Urey Craig* és *Wahl* ugy találták, hogy bár az egyes kondrit meteoritek belső szerkezete és összetétele rendkivül heterogén, az átlagos összetételük ennek ellenére meglepően hasonló.

Ami az egyes meteoritfajták viszonylagos gyakoriságát illeti, erre is nagyon sokan végeztek becsléseket. Ezek közül néhány adatot tüntet fel a 4. sz. táblázat:

4. sz. táblázat

A meteoritfajták gyakorisága

Meteorit fajták	Fersman 1934	Noddack 1934	Goldschmidt 1937	Watson 1941	Brown 1949	Urey 1952
Szideritek	16,1	12,0	15,4	5,0	40,0	9,0
Szideroliték	3,2	5,5	7,7	1,5	0,0	6,0
Aerolitek	80,7	82,5	77,9	93,5	60,0	85,0

A fenti adatokban mutatkozó különbözőségek miatt ezekből csak kellő óvatossággal lehet kozmokémiai következtetéseket levonni. További fokozott elővigyázatosságra int az a körülmény is, hogy a meteorvasak nagyobb valószinüséggel érik el a Föld felszinét, mint a kémiailag és mechanikailag jóval kevésbé ellenálló meteorkövek. A legtöbb kutató szerint azonban annyi bizonyosra vehető, hogy a meteoritek Naprendszerünkhöz tartoznak és egy olyan bolygó töredékeit képviselik, melynek felépitése Földünkhöz sok tekintetben hasonló volt, de átlagos sürüsége a Földénél kisebb volt /3,7 - 4,0/.

A meteoritkutatás egyéb szempontokon tulmenően az asztronómiai szinképanalizis mellett a legexaktabb módot jelenti az extraterrasztrikus Világ anyagi összetételének vizsgálatára. Ezeket a vizsgálatokat összevetve a geokémiai és geofizikai kutatási eredményekkel, egyre világosabb kozmokémiai kép van kialakulóban a Világegyetem anyagi összetételéről.

Az elemek kozmikus gyakoriságának eloszlását sokan vizsgálták. A legujabb és egyben legátfogóbb összeállitást *Suess* és *Urey* publikálták 1956-ban. A gyakoribb elemekre vonatkozó adataikat foglaltuk össze az 5. sz. táblázatban:

5. sz. táblázat

Az elemek gyakoriságának eloszlása a Világegyetemben

/A közölt adatok a szerzőknek Handbuch der Physik LI. kt.-/Berlin 1958/-ban megjelent cikkéből valók, melyben a Rev. Mod. Phys.-ben 1956-ban megjelent dolgozatukra hivatkoznak, azonban az előbbi adataiktól némiképpen mégis eltérnek./

Elem	Gyakoriság 10^6 Si atomra vonatk.	Elem	Gyakoriság 10^6 Si atomra vonatk.	Elem	Gyakoriság 10^6 Si atomra vonatk.
1 H	$3.2.10^{10}$	13 Al	$9.5.10^4$	9 F	$1.6.10^3$
2 He	$4.1.10^9$	20 Ca	$4.9.10^4$	30 Zn	486
8 O	$3.1.10^7$	11 Na	$4.4.10^4$	23 V	220
6 C	$1,1.10^7$	28 Ni	$2,7.10^4$	3 Li	100
10 Ne	$8,6.10^6$	15 P	$1,0.10^4$	34 Se	67,6
7 N	$3,6.10^6$	17 Cl	$8,9.10^3$	40 Zr	54,5
14 Si	$1,0.10^6$	24 Cr	$7,8.10^3$	36 Kr	51,3
12 Mg	$9,1.10^5$	25 Mn	$6,9.10^3$	32 Ge	50,5
26 Fe	$6,0.10^5$	19 K	$3,2.10^3$	21 Sc	28
16 S	$3,8.10^5$	22 Ti	$2,4.10^3$	5 B	24
18 Ar	$1,5.10^5$	27 Co	$1,8.10^3$	4 Be	20

A szerzők adatai azt mutatják, hogy az elemek gyakorisága első közelitésben exponenciálisan csökken egészen a 40 rendszámig. Innen kezdve a nem radioaktiv elemek gyakoriságában tulzottan nagy kiugrás nincs. Szembetünő törvényszerüség a Harkins-Oddo féle szabály, mely szerint két szomszédos elem közül a páros rendszámu a gyakoribb. E szabály azonban nemcsak a proton számára, hanem a neutron- és a tömegszámra is érvényes. *H. Brown*, valamint *H. E. Suess* és *H. C. Urey* az egyes elemek izotópeloszlási gyakoriságáról részletes adatokat közölnek. Adataikból kitünik, hogy a páros proton és páros neutron számu magok a leggyakoribbak, ritkábbak azok, ahol az egyik páros, a másik páratlan számu és a legritkábbak a páratlan protont és páratlan neutront tartalmazó magok. Az izotópok közül a néggyel maradék nélkül oszthatók vannak tulsulyban. A páros rendszámu elemek nagyobb izotópszámmal rendelkeznek, mint a páratlanok. Az izotópok száma a periodusos rendszer közepe táján, a 10 izotóppal rendelkező ónnál kulminál.

A Niggli-Sonder féle szabály értelmében az elemek gyakoriságában nagyobb szakaszosságok is találhatók. Igy pl. a leggyakoribb elemek /O, Si, Ca, Fe, Sr, Sn, Ba, W,. Pb, Th/ rendszámai közötti különbség 6, vagy ennek többszöröse. A legmagasabb rendszámu elemeknél 8. E szabályt ujabban többen kétségbevonják.

Az előbbiekben vázolt szabályok alól elsősorban azok a magok képeznek kivételt, amelyeknél bizonyos neutronszámoknál /mágikus számu neutronok esetén/ héjlezáródás lép fel.

I r o d a l o m

[1] *Szádeczky Kardoss Elemér:* Geokémia. Akad. Kiadó Budapest 1955.

[2] *V.M.Goldschmidt:* Geochemistry. At the Clarendon Press Oxford 1954.

[3] *H.E.Suess - H.C.Urey:* Rev. Mod. Phys. *28,* 53, /1956/.

[4] *H.E.Suess - J.H.Jensen:* Die Häufigkeit der Elemente im Kosmos.- Landolt - Börnstein:

[5] Zahlenwerte und Funktionen III. 53. Springer Verlag Berlin - Göttingen - Heidelberg 1952.

[5] *H.E.Suess - H.C.Urey:* Die Häufigkeit der Elemente in der Planeten und Meteoriten Handbuch der Physik. LI. 296. Springer Verlag Berlin - Göttingen - Heidelberg 1958.

[6] *H.C.Urey:* Phys. Rev. *88,* 248, /1952/.

[7] *W.Gentner - J.Zähringer:* Zeitschrift für Naturforschung *15a,* 93, /1960/.

[8] *H.Brown:* Revs. Mod. Phys. *21,* 625, /1949/.

[9] *Tokody L. - Dudichné Vendl M:* Magyarország meteoritgyüjteményei. Akad. Kiadó Budapest 1951.

[10] *H.C.Urey - H.Craig:* Geochim. et Cosmochim. Acta *4,* 36, /1953/.

[11] *W.Wahl:* Geochim. et Cosmochim. Acta *2,* 1. /1951/.

[12] *H.C.van de Hulst:* Astrophys. Journal *105,* 471, /1947/.

METEORITOK IZOTÓPÖSSZETÉTELÉT ÉRINTŐ MAGFIZIKAI HATÁSOK

Gyarmati Borbála

A következőkben röviden összefoglaljuk azokat a tényezőket, amelyek meteoritok anyagában az izotópok földi arányától különböző izotóparányt hozhatnak létre. Ilyen megfontolások hozzásegithetnek annak eldöntéséhez, hogy mely elemek vizsgálatánál lehet anomáliát várni az izotópösszetételben.

Nem foglalkozunk itt a meteorit eredetével összefüggő esetleges elem- és izotópösszetétel rendellenességekkel. Nemcsak azért, mert minden eddigi meteoritpályavizsgálat megerősiti azt a felfogást, hogy a meteoritok a Naprendszerből származnak, hanem mert kilátástalan vállalkozásnak látszik az elemek és izotópok un. univerzális eloszlásához vezető, feltételezett, bonyolult magfizikai folyamat [1] minden lehetséges /a csillagok fizikai állapota által megengedett/ megváltoztatásával különféle elem- és izotópeloszlásokat keresni abban a reményben, hogy egy elvégzendő mérés eredménye valamelyikkel majd egybe esik. E helyett azokat a külső és belső magfizikai hatásokat tárgyaljuk, amelyek izotóparány eltolódáshoz vezethetnek.

K ü l s ő m a g f i z i k a i h a t á s o k

Kozmikus sugárzás. A meteorok több millió, esetleg több százmillió évig ki vannak téve a kozmikus sugárzás hatásának. Ennek rendszám szerinti összetétele:

87 % proton, 12 % α-rész, 1 % Z > 2 mag [2]

A légkör külső rétegét érő primér fluxus értéke

J_o = 0,25 részecske sec^{-1} cm^{-2} $sterad^{-1}$ [3], [4].

Energia eloszlását az

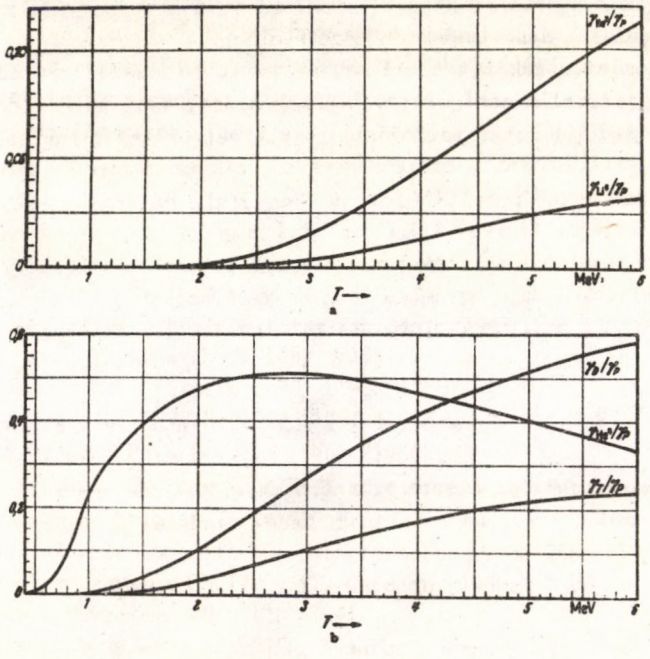
$$F(E)dE = \begin{cases} 0 & \text{ha} \quad E < 1,3 \text{ GeV} \\ 0,28\ E^{-1,9}dE & " \quad 1,3 < E < 15 \text{ GeV} \\ 3,3\ E^{-2,8}dE & " \quad E > 15 \text{ GeV} \end{cases}$$

függvény állitja elő [3], [4], [5].

A kozmikus sugárzás hatásának kitett magfizikai emulzió tanusága szerint ilyen energiáju bombázó részek a magba hatolva direkt kölcsönhatás utján átadják energiájukat a mag egy nukleonjának, amely ütközés révén más nukleonokat lök meg, ezek ismét másokat, igy a magban egy nukleon kaszkád fejlődik ki, amelynek nukleonjai a magot nagy energiával, a beeső részecskék irányát kitüntetve hagyják el. A maradék mag erősen gerjesztett állapotban marad vissza, amelyben a termodinamikai egyensuly beállta előtt különféle, elméletileg ellenőrizhetetlen, közbenső folyamatok játszódnak le, pl. a gerjesztés által megengedett erős deformáció következtében kisebb-nagyobb részek töredezhetnek le a magból stb. Azonban rövid idő alatt /cca 10^{-22} sec/ beáll a termodinamikai egyensuly s az erősen felmelegedett mag párologni kezd. E folyamat leirására alkalmazhatók a statisztikus magmodell módszerei, kiszámitható pl. egy adott x részecske emissziójának γ_x valószinüsége.

Az első ábra a legkönnyebb részecskéknek a proton kibocsátási valószinüségére vonatkoztatott γ_x/γ_p kibocsátási valószinüségét mutatja a MeV-ekben adott hőmérséklet függvényeként [6]. A neutronemisszió protonemisszióra vonatkozó valószinüsége $\gamma_N/\gamma_P \approx 1,53$.

Az első ábra görbéiről leolvashatjuk, hogy a *magpárolgás révén keletkezett elemek izotópösszetételében erős eltérés várható a földi összetételhez képest.* Tekint-



1. ábra. A γ_x/γ_p emisszióvalószinüségi viszony, mint a MeV-ekben adott hőmérséklet függvénye [6].

sük pl. a heliumot. Magasabb hőmérsékletek tartományában a direkt He^3 keletkezés valószinüsége is számottevő a He^4 keletkezés mellett, ha pedig meggondoljuk, hogy az ugyancsak jelentős valószinüséggel keletkező tricium 12,46 év felezési idővel szintén He^3-má alakul, várhatjuk, hogy a meteoritokba zárt helium esetén a légkörben található $He^3/He^4 = 1,29.10^{-6}$ aránynál nagyobbat kapunk. Vasmeteoritok héliumgáz összetételét több szerző vizsgálta /lásd pl. [7]/. Találtak olyan vasmeteoritot, amelyben az izotóparányra $He^3/He^4 = 0,315$ adódott.

Neutrinó sugárzás. Ismeretes, hogy a csillagok hatalmas neutrinósugárforrások. A Napból eredő neutrinó fluxus értéke a Föld helyén $J_F = 10^{11}$ rész/cm^2 sec [8]. Bár a neutrinó anyaggal való kölcsönhatása igen csekély, évszázmilliók alatt nyilvánvalóan hozhat létre ez a sugárzás is változást az izotópösszetételben. A földi összetételtől ennek hatására visszavezethető eltérést meteoritoknál két esetben várhatnánk:

1. ha a meteorit anyaga lényegesen hosszabb, vagy lényegesen rövidebb ideig lett volna kitéve a neutrinó sugárzásnak, mint a Föld anyaga;

2. ha a meteor keringési középtávolságában fennálló fluxus lényegesen eltérne a fenti J_F-től.

Az első eset feltételezésére nem sok jogunk van, s ha tekintetbe vesszük, hogy a Venus középtávolságában a fluxus a J_F-nek cca kétszerese, a Mercur középtávolságában pedig még mindig csak cca 6,5-szerese, a második feltételezés jogosultságában is kételkednünk kell. *Tehát a neutrinó sugárzástól nem várhatunk számbajöhető hatást.*

Ezen általunk ismert sugárzásokon kivül természetesen elképzelhető, hogy a Naprendszerben még más korpuszkuláris sugárzások is jelen lehetnek. Az a tény pl., hogy neutronok nem érik el a Föld légkörét, önmagában még nem zárja ki, hogy *neutronsugárzás* legyen jelen s fejtsen ki hatást a meteorokra. A kozmikus sugárzás protonjaitól eltérő hatást természetesen csak alacsony energiáju neutronoktól várhatunk. Ezek radiativ, vagy radioaktiv befogás, (n,p), (n,2n), (n,np) stb. reakciók révén a meteorok anyagának zömét kitevő, tehát a tömegspektrometria számára legkönnyebben hozzáférhető elemek izotóparányát változtatnák meg.

Egyszerü becslések azonban arra mutatnak, hogy ilyen neutronsugárzás jelenléte valószinütlen. A neutron bomlékony részecske lévén állandó fluxus csak ugy lehetséges, ha a térben neutronforrás müködik. Jogosan fel lehet tenni, hogy a Nap ilyen neutronforrásnak tekinthető, legalábbis olyan vonatkozásban, hogy benne neutronok keletkezhetnek. Azonban a neutron Napból való kiszökési energiája $1,98.10^3$ eV, a 2.10^7 °K hőmérsékletre számitott termikus energia $1,72.10^3$ eV. Termikus neutronok tehát nem hagyhatják el a Napot. Másrészt viszont a nagyrészt hidrogént tartalmazó napanyagban néhány MeV-es neutronok, 1,41 gr/cm^3 átlagsürüséggel számolva, néhányszor 10 cm-nyi uton, a kromoszféra alján uralkodó igen kis sürüségü (10^{16} részecske/cm^3) anyagban is mintegy 10.000 km-nyi uton termalizálódnak. Nem tételezhető fel, hogy a napfoltokban uralkodó, nagyságrendben legfeljebb néhány ezer Gauss erősségü, mágneses terek a neutronokat ugy felgyorsitanák, hogy azok elhagyják a Napot.

Becslésünk eredményét támasztja alá, hogy néhány vasmeteorit vas- és rézanyagán elvégzett tömegspektrometriai vizsgálat szerint a meteoritok ezen elemei a földi összetétellel a mérési pontosságon belül megegyező izotópösszetételt mutatnak [9], [10].

Az utólsó szót a neutronsugárzás, vagy most ismeretlen egyéb sugárzások létének kérdésében természetesen az ürrakéták méréseredményei fogják kimondani.

B e l s ő m a g f i z i k a i h a t á s o k

Ezen cim alatt azokat az izotóparányban jelentkező effektusokat foglaljuk

össze, amelyek a természetes radioaktivitással kapcsolatosak. Ha a meteoritok kialakulása idején valamely radioaktiv anyaelem lényeges mennyiségben jelen volt a leányelem mellett, lebomlásának eredményeképpen a leányelemnek a bomlás végtermékét jelentő izotópja bedusul. Ezt a jelenséget /amely kisérletileg jól kimutatható/ fel lehet használni különböző korbecslésekre.

A meteoritnek, mint kőzetnek a korát pl. a kőzet korbecslésnél szokásos urán-ólom eljárással lehet meghatározni: a jelenlévő uránizotópok és a lebomlott uránizotópok /azaz a megfelelő ólomizotópok/ arányából következtetés vonható az urán kőzetbe kerülésének időpontjára, amelyről feltesszük, hogy a kőzet keletkezésének időpontja. Ha az ősólom /nem radiogén ólom/ izotópösszetétele ismert volna, ez az eljárás az elemek keletkezési időpontjának meghatározására is alkalmas lenne. *H. Brown* [11] ajánl egy módszert az elemek korának becslésére, amelyhez nem szükséges az ősólom összetételének ismerete, helyette a meteorit két különböző fázisában /fémes vas-nikkel - szilikát, vagy fémes vas-nikkel - szulfid stb./ bizonyos elemek izotópanalizise végzendő el. Elgondolása azon az ismert, de még nem eléggé tisztázott törvények által kormányzott, jelenségen alapszik, hogy az elemek a különböző fázisok között nem egyenlő arányban oszlanak el. Tekintsünk most egy radioaktiv anyaelemet és leányelemét. Ha az anyaelem még számottevő mennyiségben jelen volt a fázisok szétválásának idején s leányelemétől frakcionálódott, akkor, lebomlása után abban a fázisban, amelybe az anyaelem nagyobb mennyiségben került, a leányelem izotópeloszlása eltérést fog mutatni a másik fázisból nyert leányelem izotópeloszlásától. Ezen két eloszlás összevetéséből az elem keletkezése és a fázisok szétválása közötti idő az anyaelem néhányszoros felezési idején belüli pontossággal, meghatározható. Ha még feltesszük, amint ez általában szokás, bár bizonyitva nincs, hogy a fázis szétválás ideje egybe esik a meteorok kialakulásának idejével, az igy meghatározott időtartamnak és a meteorit, mint kőzet korának összege adná az elem korát. Ha rendelkezésre állna a radioaktiv elemek egy olyan sora, amelynek tagjai a $10^8 - 10^9$ év felezésiidőtartományt fednék le, ez a korbecslés kielégitő pontosságuvá volna tehető. Legujabban *J. H. Reynolds* [12] közölt egy kormeghatározási vizsgálatot, amelyben a I^{129} bomlásából származó X^{129} izotóp bedusulásából becsülte az elemek keletkezési idejét. Ezen a területen *a nagy felezési idejü izotópok leányelemeinek vizsgálata igér érdekes eredményeket.*

Irodalom

[1] *E. M. Burbirdge et al.:* Rev. Mod. Phys. *29,* 547, /1957/.
[2] *E. P. Ney et al.:* Phys. Rev. *81,* 1069, /1951/.
[3] *J. A. van Allen et al.:* Phys. Rev. *78,* 819, /1950/.
[4] *L. M. Meredith et al.:* Phys. Rev. *99,* 198, /1955/.
[5] *J. R. Winkler et al.:* Phys. Rev. *79,* 656, /1950/.
[6] *R. Hagedorn et al.:* Vortrage über Kosmische Strahlung. Herausgegeben von W. Heisenberg. S. 201. Springer-Verlag 1953.
[7] *K. H. Ebert et al.:* Zeitschrift für Naturforschung *12a,* 766, /1957/.
[8] *E. Fermi:* Nuclear Physics Ch. IV. §. 11. Chicago, 1950.
[9] *Valley et al.:* Phys. Rev. *59,* 113, /1941/.
[10] *H. Brown et al.:* Phys. Rev. *72,* 347, /1947/.
[11] *J. H. Reynolds:* Phys. Rev. Letters *4,* 8, /1960/.

MODERN IZOTÓPANALITIKAI VIZSGÁLATOK METEORITOKON
/Irodalmi áttekintés/

Kovách Ádám

Az ATOMKI-ben meginduló meteoritkutatási programm izotópanalitikai tématervének összeállitásánál célszerünek mutatkozott részleteiben is áttekinteni e témának irodalmát. E cikk egészen kivonatosan kivánja ismertetni azokat a vizsgálatokat, melyek meteoritok izotópösszetételének vizsgálata terén mindezideig történtek.

A meteoritok részletes izotópanalitikai vizsgálata nem tekinthet nagy multra vissza. Eltekintve egyes elszórtan megjelent közlésektől, az ilyen irányu vizsgálatok ak nagyobb arányu megindulása az ötvenes évek elejére tehető, s csupán az ezen idő óta megjelent eredményeket tekinthetjük megbizhatóaknak, mivel a tapasztalatok s az ujabban végzett ujrameghatározások szerint a régi mérések eredményeit sokszor erős kritikával kell fogadnunk.

Az elmult évtized alatt világszerte egyre nagyobb intenzitással folytak ilyen irányu kutatások, s évről-évre nő az e tárgykörből publikált közlemények száma, ami önmagában is rámutat e vizsgálatok jelentőségére. Ezidőszerint még egyedül a meteoritok állanak rendelkezésünkre, mint a Földön kivül eső bolygóközi térből származó anyagminták, igy ezek vizsgálata fontos adatokat szolgáltathat a Naprendszer anyagának pontosabb megismerése terén. A nyert eredmények kozmológiai jelentőségükön tulmenően kozmogóniai szempontból is számottarthatnak érdeklődésre.

Széles keretek között folynak meteorit-vizsgálatok a mainzi *M. P. I. für Chemie*-ben, ahol *Paneth* professzor munkája nyomán alakult ki egy kutató csoport, melynek feladata meteoritok anyagának vizsgálata egyes elemek izotópösszetételére vonatkozóan.

A Szovjetunióban a meteoritkutatásokat a *Szovjetunió Tudományos Akadémiájának Meteorit Bizottsága* /Комитет по метеоритам/ irányitja. Programmjuk keretén belül számos izotópmeghatározást végeztek a moszkvai *"Vernadszkij" Geokémiai és Analitikai Kémiai Kutató Intézetben* /igazgató *A. P. Vinogradov* professzor/.

Az Egyesült Államokban a munka központja a *Brookhawen National Laboratory*, valamint a minneapolisi egyetem.

Ezen felsorolásban csak azokat az intézményeket emeltük ki, ahol széles keretek között folynak izotópanalitikai vizsgálatok meteoritokon. Az ezen intézetekből megjelent közleményeken kivül számos más intézmény publikál rendszeresen e tárgykörbe tartozó cikkeket, ami szintén mutatja az e vizsgálatok iránt egyre növekvő nemzetközi érdeklődést.

Előljáróban le kell szögeznünk, hogy mindezideig aránylag csekély azoknak az elemeknek, izotópoknak a száma, melyek eddig vizsgálat tárgyát képezték. E ténynek kettős oka van.

1/ Aránylag csekély azon elemeknek a száma, melyek számottevő koncentrációban fordulnak elő, mint meteoritok anyagának alkotórészei [1], [2], [3], s igy nagyobb mennyiségben állanak rendelkezésre analizis céljaira. A meteoritok anyagából amugy is általában csak ki mennyiségü anyag áll rendelkezésre egy-egy analizis céljaira, néhány kivételes esettől eltekintve legfeljebb néhány grammnyi mennyiség, ugyanakkor a legtöbb elem csak nyomkoncentrációban van jelen, ami a meghatározások gyakorlati véghezvitelét nagymértékben megneheziti és a vizsgálható izotópok számát erősen korlátozza.

2/ A másik korlátozó tényező megfelelő munkahipotézis hiánya, melynek hijján nincs megfelelő szempont a természetben előforduló elemek közül azok kiválasztására, melyeket érdemes és célszerü vizsgálat tárgyává tenni. Egyetlen kiindulási támpont az a tényező, hogy a meteoritok a bolygóközi térben való tartózkodásuk alatt ki voltak téve a primér kozmikus sugárzás hatásának, s amely sugárzás többé-kevésbé ismert hatásai révén eldönthető, mely elemeknél várható mérhető eltolódás az izotópspektrumban. Frakcionálódási effektusok fellépése nem valószinü, de ezek révén - bármilyen jellegüek is azok - elsősorban a könnyü elemeknél remélhetünk eltolódást.

Fentiek figyelembevételével az eddig vizsgált izotópokat 3 nagy csoportba oszthatjuk:

I. Az első csoportba sorolhatók azok az elemek, melyek vizsgálatát a kozmikus sugárzás hatásai teszik indokolttá, s ezek az elemek teszik ki a vizsgált elemek legnagyobb részét.

II. Másik csoportot alkotnak a különböző hosszu felezési idejü természetes radioaktiv magok, valamint bomlástermékeik, melyeknek vizsgálata az abszolut geológiai életkor meghatározását teszik lehetővé, végül

III. A harmadik csoportba sorolhatók az egyéb szempontok alapján vizsgálat tárgyává tett izotópok.

A következőkben sorban végighaladunk a 3 csoport eddig vizsgált elemein.

Az I. csoport elemei.

Hélium.

A kozmikus sugárzás által meteoritok anyagában létrehozott magreakciók jelentőségére elsőnek *Bauer* [4] és *Huntley* [5] hivták fel a figyelmet, akik feltünő mennyiségü héliumot találtak meteoritokban. *Bauer* rámutatott arra, hogy a kozmikus sugárzás hatása eredményeképpen He^3 és He^4 is keletkezhet. A későbbi vizsgálatok feltevésüket alátámasztották. Hogy meteoritok héliumot tartalmaznak, már korábban is ismert volt, azonban jelenlétét a radioaktiv anyagok alfa-bomlásának tulajdonitották. *Paneth, Reasbeck* és *Mayne* [7] kimutatták, hogy vasmeteoritok He tartalma részben He^3-ból áll s annak He^4-gyel alkotott közelitőleg 1:3 arányu keveré-

ke. Ugyanakkor kimutatták, hogy a jelenlévő He^4 mennyisége is - észszerü geológiai életkort feltételezve - nem lehet egyensulyban a meteoritokban jelenlévő U és Th összmennyiségével. A He^3/He^4 arány a vizsgált meteoritok többségében az urántartalomtól függetlenül azonosnak adódott, ami a kozmikus sugárzási eredetet bizonyitja.

A kozmikus sugárzás nagyenergiáju részecskéinek hatására a meteoritoknak főleg a vasanyagában magszétesési folyamatok lépnek fel, melyek hatására legnagyobb részt könnyü nuklidek, igy H, D, T, He^3, He^4, Li^6 jöhetnek létre. Igy a meteoritokban talált He^3 részint primér folyamatok eredménye, részint a szintén keletkező tricium lebomlása révén keletkezik.

Hogy a héliumizotópok a primér kozmikus sugárzás hatására keletkeznek, bizonyitják a következő meggondolások is:

A primér kozmikus sugárzás közepes szabad uthossza vasban kb 15 cm. Ennek alapján várható, hogy a felszin felől a meteorit középpontja felé haladva változik a hélium koncentrációja, és izotópösszetétele is. A hélium mennyiségének csökkenését radiális irányban *Paneth* és munkatársai 1953-ban valóban kimutatták [8].

Hogy a hélium izotópösszetételében is várható változás, ez a következőképpen látható be: a meteorit belseje felé haladva a sugárzás energiaspektruma is megváltozik, tulsulyba kerülnek az alacsonyabb energiáju szekundér és tercier részecskék, melyek bár erősen, majdnem egy nagyságrenddel csökkent energiájuak, de még elegendő energiával rendelkeznek további magszétesési és magpárolgási jelenségek előidézésére. Alacsonyabb energiáknál viszont a hatáskeresztmetszet viszonylag kisebb a He^3 keletkezésére vonatkozóan, mint a He^4 esetében. Igy várható az, hogy a meteorit belseje felé haladva a He^3/He^4 arány is csökkenni fog. Ezt a csökkenést *Nier* és munkatársai 1958-ban ki is mutatták [9].

Nem szándékozom itt részletesen felsorolni azokat a vizsgálatokat, melyek meteoritok He^3 és He^4 tartalmának meghatározására irányulnak. E vizsgálatok száma igen nagy, bár igen fejlett metodikát követelnek meg. A He koncentrációja meteoritokban 10^{-5}-10^{-6} ccm/gr s ez a nagyságrend egyben felső határa is a meteoritokben előforduló nemesgáz koncentrációknak.

Tricium.

Jelenlétét számlálási módszerekkel *Fireman* és *Schwarzer* [10] mutatták ki elsőizben. Azóta már több közlemény támasztja alá megfigyelésüket.

Neon.

A meteoritekben a héliumon kivül előforduló egyéb nemesgázokat eleinte a légkörből származó szennyeződésként fogták fel. Hamarosan kiderült azonban ennek a tarthatatlansága, ugyanis mig neont és argont mérhető mennyiségben találtak vasmeteoritokban, Kr és Xe nem fordul elő vasmeteoritokban, ill. ha van is igen csekély mennyiségben, és semmiképpen sem vonható párhuzam a légkör Ne-Ar-Kr-Xe megoszlása és a meteoritokban talált megoszlás között. A talált izotóparányok a Ne és Ar esetében viszont megmagyarázhatók a magszétesésre vonatkozó elméletek alapján, ha e nemesgázmagokat ugy tekintjük, mint a spallációs folyamatok során keletkezett maradékmagokat.

A neon mennyisége vasmeteoritokban általában 10^{-8} - 10^{-7} ccm/gr, a He/Ne arány pedig 100 és 200 között változik.

A Ne^{20}, Ne^{21}, Ne^{22} izotópok jelenlétét *Reasbeck* és *Mayne* [11] mutatták ki elsőizben meteoritokban .

Argon.

Tekintettel arra, hogy vasmeteoritokban rendkivül kicsiny mennyiségü kálium található, az argon jelenléte vasmeteoritokban teljes egészében a kozmikus sugárzás hatásának tudható be. Az Ar spallációs eredetét első izben *Gentner* és *Zähringer* mutatták ki 1955-ben [12]. Az azóta történt vizsgálatok eredményeiket alátámasztják [13]. A spallációs eredetet alátámasztja az a tény is, hogy az A^{36}/A^{38} aránynak a meteorit középpontja felé történő csökkenését, ami a különböző aragonizotópok eltérő képződési energiájára vezethető vissza, szintén sikerült azóta kimutatni [14].

Az argon stabil izotópjai mellett *Fireman* és *DeFelice* A^{39} jelenlétét is kimutatta [15].

Könnyü radioaktiv magok.

W. Herr [16], valamint *Sprenkel* és *Davis* [17] Cl^{36} jelenlétét mutatta ki meteoritokban, számlálási módszerekkel.

Kohman és *Ehman* [18] Al^{26}, Be^{10} és Co^{60} magok jelenlétét mutatta ki. A nyert adatokat felhasználták a meteoritek "sugárzási korának" /l. alább/ meghatározására is.

Kálium.

A kálium izotóparányait meteoritokban régebben is vizsgálták sugárzásmérés utján [19], [20] s a kálium specifikus aktivitását a földi eredetü káliuméval megegyezőnek találták, s igy arra következtettek, hogy a kálium izotópösszetétele azonos a földi kálium izotópösszetételével. *Hintenberger* és *Voshage* [21], [22], valamint *Honda* [23] tömegspektrométeres mérésekkel eltolódást mutatta ki a K izotópspektrumában a földi káliumhoz képest, amit a kozmikus sugárzás hatásával magyaráznak.

Kalcium.

Wäncke 1958-ban [24] a Ca^{46} kozmikus eredetü izotópot mutatta ki neutronaktiválásos analizissel, meteoritokban. A Ca alkalmasnak bizonyul ahhoz, hogy kozmikus eredetét vizsgálat tárgyává tegyék, mert a Ca kis mennyiségben fordul elő meteoritokban [1], [2] és a Ca^{46} izotópelőfordulási gyakorisága földi viszonylatban igen kicsi, mindössze $3,2.10^{-5}$ % a Ca teljes mennyiségére vonatkoztatva. A vizsgálatok során bebizonyult a Ca^{46} kozmikus sugárzás hatására történő keletkezése, amennyiben mennyisége arányosnak mutatkozott az ugyanazon meteoritokban talált nemesgázok mennyiségével.

Scandium.

A scandium kozmikus gyakorisága rendkivül kicsi [1], [2]. Ezt a tényt használták fel *Wäncke* és munkatársai a scandium-45 izotóp kozmikus eredetének kimutatására. A Sc^{45} meghatározása neutronaktiválásos analizissel történt. A Ca^{46}-hoz hasonlóan itt is arányosságot találtak a nemesgáz-tartalommal, ami a kozmikus sugárzás hatására történő keletkezés hipotézisét támasztja alá [24].

\+ + +

A stabil izotópok terén a vizsgálatokat számos tényező neheziti meg. A legtöbb elem ugyanis, ha csak nyomnyi mennyiségekben is, de jelen van minden meteoritban, viszont a magszétesés maradékmagjainak várható mennyisége is rendkivül csekély, és összemérhető az egyébként jelenlévő szennyezésekkel. Igy aránylag csekély azoknak az izotópoknak a száma, melyek kozmikus sugárzási eredetének kimutatására számitani lehet.

A kozmikus sugárzás hatására keletkező izotópok mennyiségének meghatározása lehetőséget nyujt annak az időnek a megbecslésére, melyet a meteorit a kozmikus térben töltött. A T idő alatt a kozmikus sugárzás I_0 fluxusa által keltett anyagmennyiség ugyanis a következőképp irható le:

$$N_1 = 4\pi\bar{\sigma}_1 . I_0 . L/A . T$$

ahol L a Loschmidt-szám, A az atomsuly, $\bar{\sigma}$ a hatáskeresztmetszet. Ugyanekkor meghatározhatjuk a meteoritben a leesés időpontjában egy radioaktiv termék aktivitását, ennek aktivitása hasonló formulával irható le, mely azonban a radioaktiv bomlási egyensuly miatt az időt nem tartalmazza. Ha ebből a kozmikus sugárzás intenzitását kifejezzük, és az előző egyenletbe helyettesitjük, végső soron a következő kifejezést kapjuk az un. "sugárzási kor"-ra:

$$T = \frac{\bar{\sigma}_2}{\bar{\sigma}_1} \cdot \frac{N_1}{A_2}$$

ahol A_2 a radioaktiv termék aktivitása a leesés pillanatában. A hatáskeresztmetszetek ma már a nagyenergiáju gyorsitókkal végzett mérésekből több-kevesebb pontossággal ismeretesek.

A II. csoport elemei

Radioaktiv kormeghatározás szempontjából számbajöhető elemek a meteoritok anyagában is találhatók. Hogy mégis aránylag csekély az ezekre vonatkozó vizsgálatoknak a száma, az jórészt az igen alacsony koncentrációra vezethető vissza. K, és leányterméke az argon; urán és terméke az ólom; Rb és terméke a Sr egyaránt kis mennyiségben vannak jelen meteoritokban. E nehézségek ellenére a földi körülmények között alkalmazott módszerek mindegyikével történtek kormeghatározások meteoritokon. Az egyes vizsgálatokat itt nem részletezzük, csupán végeredményüket tekintve összesitjük őket. A K-A, Rb-Sr, U-Pb módszerekkel végzett kormeghatározások eredményeképp az a következtetés szürhető le, hogy a meteoritok életkora általában megegyezik az elemek életkorára nyert más adatokkal, amennyiben többségük $4-4,5.10^9$ év életkorral bir, egyes kivételektől eltekintve. Lényeges eltérés tapasztalható ettől az értéktől a tektiteknél, ahol több nagyságrenddel fiatalabb életkorok adódnak eredményül. A következőkben csupán a kormeghatározásokhoz szükséges meghatározásokon tulmenő vizsgálatokat tárgyaljuk.

Urán.

Bár az első izotópanalitikai vizsgálatok (*Schumb* és munkatársai, [25]) a földitől eltérő izotópösszetételt szolgáltattak, a későbbi vizsgálatok [26], [27], [28] szerint a meteoritikus urán izotópösszetétele azonos a földi urán izotópösszetételével. A méréseknél mindenütt nehéséget jelent az urán kis előfordulási gyakorisága meteoritokban.

Ólom.

A meteoritok kis urántartalma lehetőséget nyujt arra, hogy a meteoritokban talált ólom izotópösszetételéből a radiogén eredetü ólomtól mentes "ősólom" izotópösszetételét meghatározzuk. Az eddigi mérések azonban - éppen életkormeghatározás céljá-

ból - főleg a magasabb urántartalmu meteoritekre vonatkoznak, ezért pontos adatok az ősólom izotópösszetételére még nincsenek, bár ilyen irányban mérések történtek [27], [29]. Jelenleg ezeket az értékeket alkalmazzuk radioaktiv kormeghatározásoknál, (pl. [30]).

Osmium.

Ujabban jelent meg *W. Herr*nek és munkatársainak néhány közleménye [31], [32], [33], melyekben a rénium radioaktivitását /felezési idő $6,2.10^{10}$ év/ használja fel kormeghatározásra. A meteoritekben található osmiumban valóban sikerült mérhető eltolódást kapni a földi körülmények között mért osmiumhoz viszonyitva. A nyert életkor egyezik a más uton nyert életkorok adataival, bár a méréseknek még igen nagy a hibája, tekintettel arra, hogy mint kiderült, éppen a rénium radioaktivitásának eredményeképpen a földi osmium izotópösszetételében is ingadozások tapasztalhatók.

A III. csoport elemei.

Oxigén.

Meteoritek oxigéntartalmának izotópösszetételére az első adatok 1934-ből *Manian, Urey* és *Bleakney*-től származnak [34]. Már az ő eredményeik azt mutatták, hogy a meteoritikus oxigén összetételét tekintve nem tér el lényegesen a földi kőzetekben talált oxigéntől. A később igen nagy precizitásuvá kifejlesztett oxigén-izotópmeghatározási technika lehetővé tette az oxigén-izotóparányok pontos meghatározását is. Ennek eredményeképpen adódott, hogy a meteoritikus oxigén izotópösszetétele a földi ultrabázikus kőzetek izotópösszetételéhez áll legközelebb [35]. Az oxigén-izotóparányok ingadozásainak nagyságrendje az egyes meteoritokban és meteoritfázisokban azonos a földi körülmények között talált ingadozásokkal (pl. [35], [36]).

Szén.

1936-tól kezdődően több szerző foglalkozott meteoritok széntartalmának vizsgálatával. Eredményeiket összefoglalva megállapithatjuk, hogy az eddigi eredmények szerint a meteorok szénizotóparányai nem térnek el lényegesen a földi arányoktól. Hogy a meteorok anyagában is észlelt középértéktől mért aránylag nagy eltérésekről pontos képet kapjunk, további mérésekre van szükség, melyek már tekintetbe veszik az egyes meteoritfázisok széntartalmát külön-külön. A C^{12}/C^{13} arány azonos a földi eredetü szénminták átlagos C^{12}/C^{13} hányadosának értékével. (l. [37]), ami arra mutat, hogy biológiai frakcionáló folyamatok nem hatottak a meteoritek anyagára.

Kén.

Az első vizsgálatok *Trofimovtol* [38], valamint *Macnamara* és *Thode*-tól [39] származnak. A különböző minták kéntartalmának izotópösszetétele a mérési hiba korlátain belül azonosnak adódott, és egyezik a földi idős kénelőfordulások izotópösszetételével, s értéke a szulfidokra és szulfátokra kapott földi értékek közös határán van ($S^{32}/S^{34} = 22,10$) [40]. Ez arra mutat, hogy a meteoritok kéntartalma, még ha nem is a troilitfázisból származik a minta, nem volt biológiai hatásoknak alávetve, illetve,ha a födi viszonyokat tekintjük a nyert adatok értelmezésében irányadóaknak, legalább 800 millió évvel ezelőtt kellett, hogy ásványi kötésbe lépjen.

Vas.

Az első tömegspektrometriai eredmények a vas izotópjaira *Valley*től és *An-*

*dersont*ól származnak [41]. Méréseik szerint a meteorvas izotópösszetétele nem tér el a földi vas izotópösszetételétől. Az egyes fázisok között észlelhető izotópeltolódások azonosak a földi eredetü különböző vasásványoknál észlelt eltolódásokkal.

Ezen közleményben csupán rövid áttekintést kivántam adni azokról a vizsgálatokról, melyek meteoritok izotópanalitikai vizsgálata terén az irodalomban fellelhetők. Sem magát a teljes anyagot, sem a közölt bibliográfiát illetően nem törekedtem teljességre, csupán áttekintő képet kivántam nyujtani e témakör jelenlegi helyzetéről, s az eddig világszerte elért főbb eredményekről.

I r o d a l o m

[1] *H.E.Suess - H.C.Urey:* Hdbch d.Phys. Vol. 51, p.296-323.
[2] *H.C.Urey:* The Planets. New Haven, Yale Univ.Press, /1952/.
[3] *A.P.Vinogradov:* Geochim. et Cosmochim. Acta *15,* /1958/ 80.
[4] *C.A.Bauer:* Phys.Rev. *72,* /1947/ 354.
[5] *H.E.Huntley:* Nature, *161,* /1948/ 356.
[6] *W.J Arrol et al.:* Nature, *149,* /1942/ 235.
[7] *F.A.Paneth et al.:* Geochim. et Cosmochim. Acta *2,* /1952/ 300.
[8] *K.I.Mayne et al.:* Nature *172,* /1953/ 200.
[9] *H.J.Hoffmann - A.O.C.Nier:* Phys.Rev. *112,* /1958/ 2112.
[10] *E.L.Fireman - D.Schwarzer:* Geochim. et Cosmochim. Acta *11,* /1957/ 252.
[11] *P.Reasbeck - K.I.Mayne:* Nature *176,* /1955/ 733.
[12] *W.Gentner - J.Zähringer:* Z.f.Naturforsch. *10a,* /1955/ 498.
[13] А.В.Трофимов - К.Г.Рик: Докл. АН. СССР. *102,* /1955/ 911.
[14] *W.Gentner et al.:* Z.f.Naturforsch. *13a,* /1958/ 569.
[15] *E.L.Fireman - J.DeFelice:* Geochim. et Cosmochim. Acta *18,* /1960/ 182.
[16] *W.Herr* személyes közlés.
[17] *E.L.Sprenkel - R.Jr.Davis:* Bull.Amer.Phys.Soc. *2,* /1959/ 223.
[18] *W.D.Ehman - T.P.Kohman:* Geochim. et Cosmochim. Acta *14,* /1958/ 364, és Geochim. et Cosmochim. Acta *14,* /1958/ 364.
[19] *W.C.Schumb et al:* J.Amer.Chem.Soc. *63,* /1941/ 1203.
[20] *H.Suess:* Naturwiss. *26,* /1938/ 411.
[21] *H.Voshage - H.Hintenberger:* Z.f.Naturforsch. *14a,* /1959/ 194.
[22] *H.Voshage - H.Hintenberger:* Z.f.Naturforsch. *14a,* /1959/ 828.
[23] *M.Honda:* Geochim. et Cosmochim. Acta *17,* /1959/ 148.
[24] *H.Wänke:* Z.f.Naturforsch. *13a,* /1958/ 645.
[25] *W.C.Shumb et al.:* J.Amer.Chem.Soc. *61,* /1939/ 3451.
[26] *J.R.Dunning:* Amer.Scientist, *37,* /1949/ 505.
[27] *C.C.Patterson et al:* Phys.Rev. *92,* /1953/ 1234.
[28] И.Е.Старик: Труды пятой сессии комиссии по опр. абс. возраста геол. формации. Академиздат, Москва, 1955. стр. 336.
[29] *G.R.Tilton:* Geochim. et Cosmochim. Acta *14,* /1958/ 323.
[30] *F.G.Houtermans:* Nuovo Cim. *10,* /1953/ 1623.
[31] *J.Geiss et al.:* Helv.Phys.Acta *31,* /1958/ 324.
[32] *W.Herr et al.:* Helv.Phys.Acta *32,* /1959/ 282.
[33] *W.Herr et al.:* Z.f.Naturforsch. *15a,* /1960/ 99.

[34] *S.A.Marian et al.:* J.Amer.Chem.Soc. *56,* /1934/ 2601.
[34] А.П.Виноградов: Геохимия, /1958/, No. 3, p.187.
[36] *S.R.Silverman:* Geochimica et Cosmochim. Acta *2,* /1951/ 26.
[37] *K.Rankama:* Isotope Geology. Pergamon Press, London. /1954/ p.191.
[38] А.В.Трофимов: Докл.А.Н. СССР. *66,* /1949/ 181.
[39] *J.Macnamara - H.G.Thode:* Phys.Rev. *78,* /1950/ 307.
[40] *H.G.Thode:* Canad. Mining and Metallurg. Bull. *47,* /1954/ 463.
[41] *G.E.Valley - H.H.Anderson:* Phys.Rev. *59,* /1941/ 113.

BF_3-SZÁMLÁLÓ KRITIKUS RÁDIUSZÁNAK VIZSGÁLATA

Csikai Gyula, Molnár Erzsébet és Schlenk Bálint

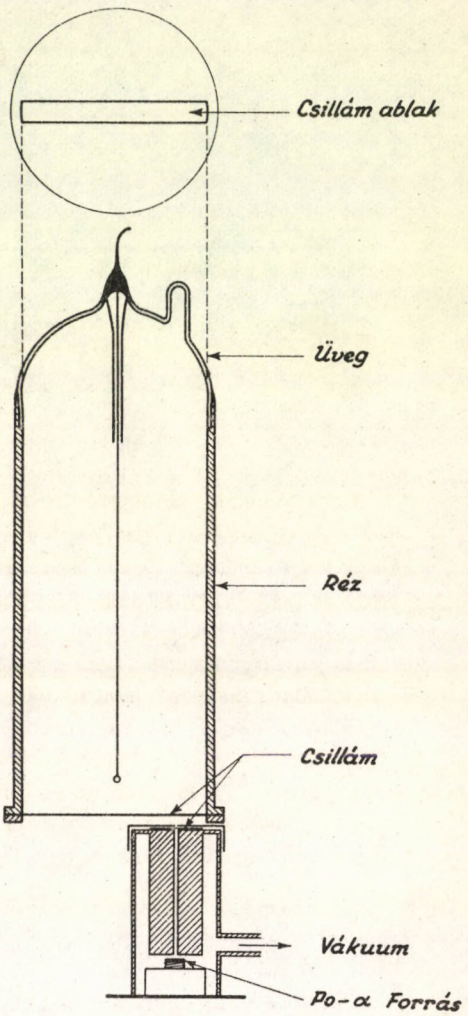
Ellentétben *A.Milojevic, M.Kurepa és S.Ribnikar* [5] szerzők eredményével az általunk vizsgált BF_3 proporcionális számlálónál kritikus rádiuszt nem tapasztaltunk. 150 Hgmm BF_3-gázzal töltött csillámvégablakos számlálóba az anóddal párhuzamosan alfa-részecskéket bocsátottunk, és vizsgáltuk az impulzus-szám radiális változását. 150- és 300 Hgmm BF_3-gázzal töltött számlálónál megvizsgáltuk az integrális amplitudó eloszlást az elektronikus erősités függvényében, különböző forrás anód-távolságnál. *Milojevič* és munkatársai által tapasztalt rádiusz effektust feltehetően a BF_3-gáz elektronegativ szennyezettsége okozta.

Az utóbbi években számos vizsgálatot végeztek a BF_3 proporcionális számláló tulajdonságaira vonatkozólag [1], [2], [3], [4], [5]. A vizsgálatok egy jelentős része a BF_3-gáz szennyezettségének a számláló müködési sajátságaira gyakorolt hatásával foglalkozik. Ezekből a vizsgálatokból egyértelmüen kiderül, hogy a gázban lévő egészen minimális elektronegativ szennyezettség /cca 10^{-2} %/ igen jelentősen befolyásolja a számláló tulajdonságait.

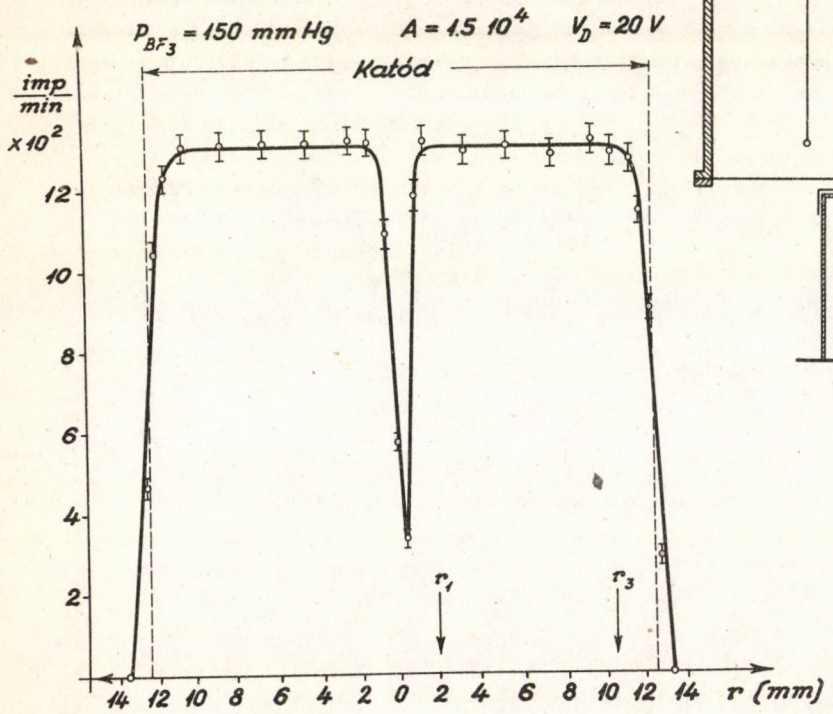
A.Milojevič, M.Kurepa és *S.Ribnikar* [5] a BF_3-számlálók egy érdekes uj sajátságáról, az un. kritikus rádiuszról adtak számot. Egy végablakos BF_3-gázzal töltött számlálóba az anóddal párhuzamosan alfa-részecskéket bocsátottak és vizsgálták az észlelt impulzusok számát az anódtól mért távolság függvényében. Azt tapasztalták, hogy egy bizonyos távolságon tul az impulzusszám zérusra csökken. Ezt a távolságot kritikus rádiusznak nevezték el, melynek értékei méréseik szerint 4-8 mm; 380-100 Hgmm nyomásintervallumban. Ez az eredmény azt jelentené, hogy a BF_3 proporcionális számláló érzékeny térfogatát a kritikus sugár határozza meg, ami független a geometriai mérettől.

Feltehető, hogy az emlitett effektus létrejöttében a BF_3-gáz elektronegativ szennyezettségének fontos szerepe van, ezért megismételtük a mérést az általunk más módon - $CaF_2/BF_3/_2$ termikus bontása utján - előállitott gázzal [6]. A vizsgálatokhoz cca 1 mC Po-210-forrást használtunk, amely egy 0,6 mg/cm^2 vastag csillámmal

fedett evakuált kollimátorban foglalt helyet. /1. ábra/ A kollimátorból az anóddal párhuzamosan $2,3^{\circ}$ szögszórással jutottak az alfa-részecskék a számlálóba. A számláló végablaka 2 mg/cm^2 vastag csillám, katódja 25 mm átmérőjü rézcső, az anódja 0,1 mm átmérőjü wolfram, érzékeny térfogatának hossza 45 mm. A csillámablakok és a köztük lévő levegőréteg vastagsága ugy lett megválasztva, hogy az alfa-részek maradék energiája közelitőleg megegyezzen a $B^{10}/n, \alpha/Li^7$ reakció-termékek kinetikus energiájával.



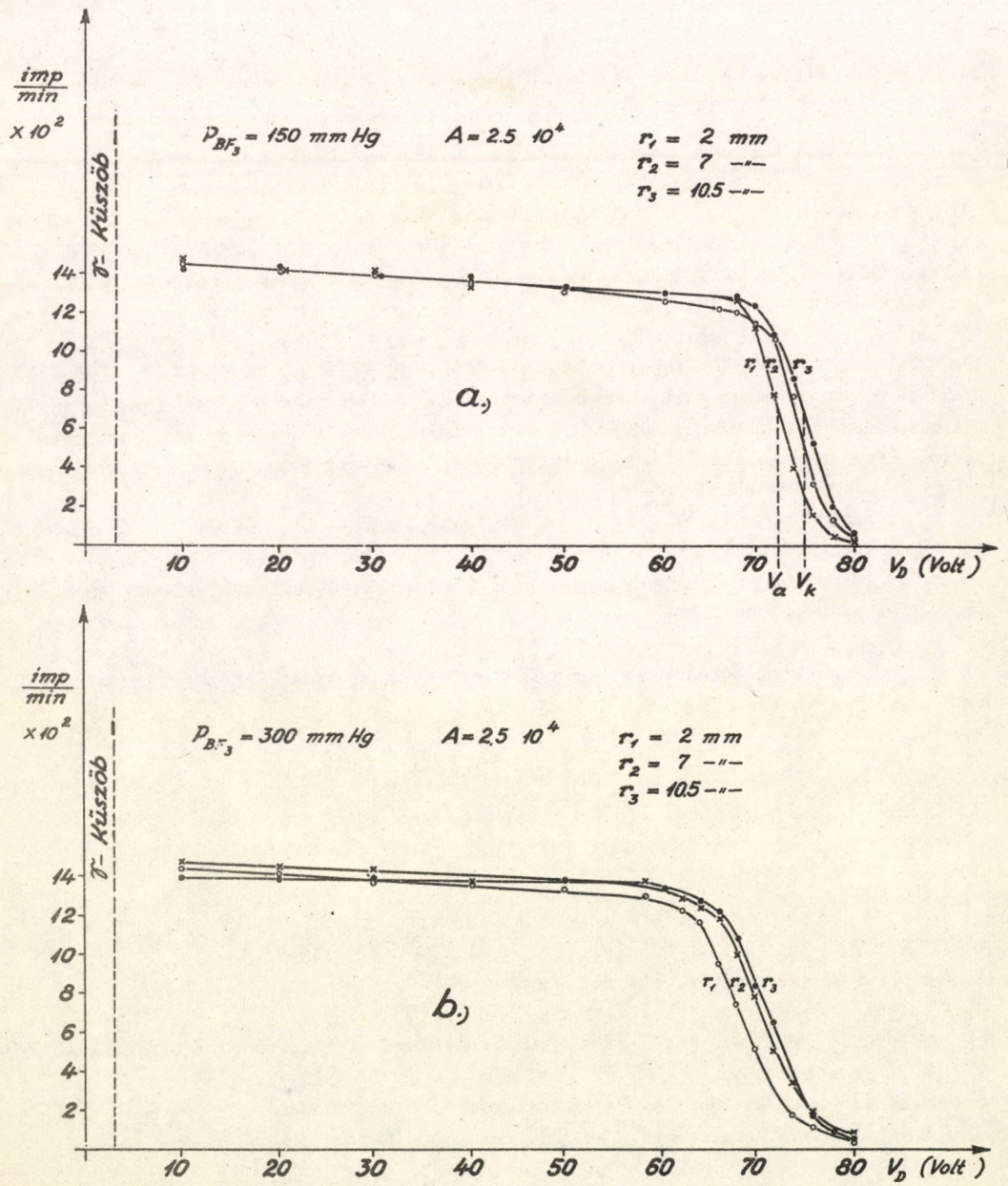
1. ábra. A számláló és a forrás geometriai elrendezése.



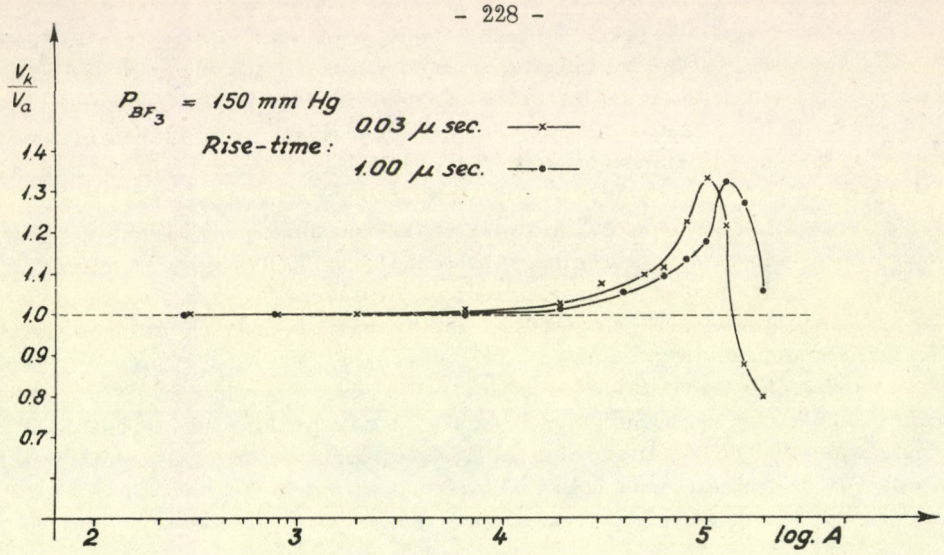
2. ábra. Az impulzusszám változása, az anód- forrástávolság függvényében.

Először megvizsgáltuk 150 Hgmm BF_3 gáznyomás esetén /elektronikus erősités $1,5 \times 10^4$, risetime: 0,2 µsec, clipping-time: 5 µsec/ az impulzusszám radiális változását ugy, hogy a diszkriminátor előfeszültsége kb a maximális impulzus amplitudo felénél volt. Mint a 2. ábrán látható, a számláló a teljes térfogatában egyformán érzékeny, a kritikus rádiusz nem tapasztalható. A számláló tengelyében az impulzusszám hirtelen csökkenését a szál végén lévő üveggyöngy abszorpciója okozza.

Vizsgáltuk továbbá az integrális amplitudo-eloszlást 150- és 300 Hgmm BF_3-gáz nyomásnál, különböző elektronikus erősitésnél; 2; 7; 10,5 mm alfa-részecske nyaláb-anódtávolságnál. Minden egyes elektronikus erősitésnél a számláló nagyfeszültségét ugy választottuk meg, hogy a katódnál mért amplitudó-eloszlás átlagos amplitudója közelitőleg azonos diszkriminátor feszültségnél legyen. Mint a 3a/ és b/ ábra mutatja, az integrális amplitudóeloszlás megfelel a monoenergetikus Po-alfa sugaraknak, és csak jelentéktelen mértékben függ $2,5 \times 10^4$-szeres elektronikus erősitésnél a primer ionizáció helyétől. Az integrális amplitudo eloszlások fenti jellegétől csak igen nagy erősités értékeknél tapasztalható eltérés.



3a/ b/ ábra. Az integrális amplitudó eloszlás különböző anód forrástávolságnál.



4. ábra. A katódnál és az anódnál mért átlag-amplitudók viszonya az elektronikus erősités logaritmusának a függvényében.

Az anódtól és a katódtól 2–2 mm távolságban /lásd r_1, r_3 pontot a 2. ábrán/ bocsátottuk az alfa-részecskéket a számlálóba, és vizsgáltuk az ezeken a helyeken mért átlag amplitudók /V_k, V_a/ viszonyát az elektronikus erősités függvényében. A vizsgálatot 0,03 és 1 μsec risetime értéknél végeztük el. Amint a 4. ábrán látható, a $V_k/V_a \simeq 1$ széles erősitési tartományban, ami azt jelenti, hogy itt az amplitudók nagysága független az anódtól mért távolságtól. Nagy elektronikus erősitésnél azonban a katód felől bejövő impulzusok amplitudója nagyobb, mint az anódtól érkezőké /$V_k/V_a > 1$/, az erősités további növelésével a forditott helyzet áll elő. /$V_k/V_a < 1$/. A görbének ezen utóbbi szakasza a rekombináció felléptével magyarázható. Azt a tényt, hogy bizonyos elektronikus erősitési tartományban $V_k/V_a > 1$, a számláló elektromos terének inhomogenitásával értelmezhetjük. A tér inhomogenitását elsősorban a szál végén lévő üveggyöngy és a csillám ablak okozza.

Végül megemlitjük, hogy – tőlünk függetlenül – *Brinckmann* [7] más módszerrel végzett vizsgálatai szintén nem igazolták a kritikus rádiusz létezését.

A *Milojevic* és munkatársai által tapasztalt effektust feltehetően a BF_3-gáz tisztátalansága okozta.

Köszönetet mondunk *Szalay Sándor* professzornak, az Intézet igazgatójának, hogy ezen vizsgálatok elvégzését lehetővé tette.

Irodalom

[1] *J. Davila Aponte* and *S. A. Korff:* Rev. Sci. Instr. *31*, 522, /1960/.
[2] *R. B. Mendell* and *S. A. Korff:* Rev. Sci. Instr. *30*, 442, /1959/.
[3] *H. F. Brinckmann* and *D. Gerber:* Kernenergie *3*, 309, /1960/.
[4] *J. Csikai* and *M. Buczkó:* Nucl. Instr. & Meth. *8*, 73, /1960/.
[5] *A. Milojević, M. Kurepa* and *S. Ribnikar:* Proceedings of the Second International Conference Geneva *14*, 325 P/493, /1958/.
[6] *Buczkó M.* és *Csikai Gy.:* ATOMKI Közlemények *1*, 29, /1960/.
[7] *H. F. Brinckmann:* Kernenergie *3*, /1960/ december /közlés alatt/.

KISÉRLETI ATOMBOMBAROBBANTÁSOK IDŐPONTJÁNAK MEGHATÁROZÁSA A LÉGKÖR RADIOAKTIVITÁSÁNAK ALAPJÁN

Kovách Ádám és Szalay Sándor

Az Atommag Kutató Intézetben 1952 óta rendszeresen mérik a csapadék hasadási termékektől származó rádióaktiv szennyezettségét. A hasadási termékek együttes lebomlását leiró Way-Wigner formulát használták az egyes atombombarobbantások időpontjának meghatározására. Szerzők vizsgálják a Way-Wigner formula érvényességét csapadékok esetében. Méréseik szerint a Way-Wigner formula jó közelitésben érvényes, legjobb közelitést az $I = I/1/.t^{-1,18 \pm 0,1}$ kifejezés adja. A módszer az 1958 évig ± 2 nap hibával alkalmas volt atombombarobbantások időpontjának meghatározására. Az 1958. évtől kezdve a módszer csak nagy hibával volt alkalmazható, ami elsősorban a sztratoszféra megnövekedett rádióaktiv szennyezettségével magyarázható.

A debreceni *Kossuth Lajos Tudományegyetem Kisérleti Fizikai Intézetében*, a *Tudományegyetem Meteorológiai Intézetével* együttmüködésben 1952 tavaszán indultak meg a rendszeres mérések a légkör hasadási termékektől származó radioaktiv szennyeződésének vizsgálatára [1], [2]. E vizsgálatok azóta is rendszeresen folynak [3], [4], [5] 1954 óta a *MTA Atommag Kutató Intézetében*.

Már az első hónapok mérési eredményei alapján bebizonyitást nyert, hogy az egyes kisérleti atomrobbantásokból származó hasadási termékek a magaslégköri áramlatok utján a robbanás helyétől igen nagy távolságokra is eljutnak, s a csapadék, valamint az állandó porhullás révén a föld felszinére jutva ott szennyeződést hozhatnak létre.

A ma már világszerte széles keretek között végzett mérések meteorológiai szempontból való kiértékelhetősége megköveteli a robbantások időpontjának ismeretét. Az irodalomban rendszeres hivatalos közlések az egyes robbantások időpontjáról nem jelennek meg, vagy a robbantásról csak jóval később történik hivatalos közlés, igy nagy jelentőséggel bir a robbantások időpontjának kisérleti meghatározása is. E célra

ma már számos módszer nyert kidolgozást, igy pl. a mikroszeizmikus rengésekből, légnyomásingadozásokból gyakran eredményesen lehet következtetni kisérleti robbantások megtörténtére, illetőleg ezek segitségével lehet meghatározni a robbantások időpontját.

Lehetőséget nyujt azonban a robbantások időpontjának utólagos meghatározására a hasadási termékek lebomlásának vizsgálata is.

Hasadási termékek időbeni lebomlása.

Az atombombarobbanás során igen nagyszámu radioaktiv hasadási termék keletkezik, amelyek felezési ideje a másodperc törtrészétől több évtizedig terjed. Éppen ezért együttes lebomlásuk nem irható le az egyszerü exponenciális bomlástörvénynyel. Az aktivitás elvben előállitható lenne kellő számu exponenciális tag összegeként a következő módon:

$$I(t) = \sum_{i=1}^{n} A_i exp(-\lambda_i t) \qquad /1/$$

azonban a sor tagjainak nagy száma, valamint az a tény, hogy a mintegy kétszáz hasadási termék nem független egymástól, hanem a mintegy hatvan primér hasadvány rádioaktiv bomlási sorainak tagja, lehetetlenné teszi e kifejezésnek gyakorlati számitásokban való használatát. Ezért a hasadási termékek rádioaktivitásának leirására közelitő formulát használunk. A tapasztalat szerint az /1/ kifejezés legjobban hiperbolikus kifejezéssel közelithető, s a legjobb közelitést a *Way-Wigner* formula adja [6]:

$$I(t) = I(1).t^{-1,2} \qquad /2/$$

ahol $I(t)$ a robbanás pillanatától számitott t időpontban mért aktivitást jelenti önkényes egységekben. $I(1)$ jelenti a robbanástól számitott első, egyébként önkényesen megválasztható időegység elteltével mért rádioaktivitást, ugyanazon preparátumon.

Way és *Wigner* e formulát, amely a hasadási termékek teljes spektrumára vonatkozik, tisztán elméleti uton, statisztikus számitással állapitották meg, alapul véve a béta-bomlás energiája és felezési ideje között a Sargent-diagrammból megállapitható közelitő összefüggést. A formula jó egyezésben van a *Hill* és *Lanze* [7] *Knight* [8], valamint *Brady* és *Turkevich* [9] által szolgáltatott kisérleti adatokkal. Kisérleti adataik szerint a t hatványkitevője általában minusz 1 - minusz 1,5 között fekvő érték.

A Way-Wigner formula alkalmazása.

Méréseinknél a hasadási termékek keverékének bomlását leiró törvényszerüségként a *Way-Wigner* formulát használtuk. A gyakorlatban célszerü a /2/ alakban megadott formulát időben lineáris alakra hozni:

$$I(t)^{-\frac{1}{1,2}} = I(1)^{-\frac{1}{1,2}}.t$$

azaz

$$I(t)^{-0,83} = konst.\ t \qquad /3/$$

Ha tehát a minták lebomlása során különböző időpontokban mért rádioaktivitás -0,82-ik hatványát ábrázoljuk a naptári idő függvényében, akkor a mérési pontok közelitőleg egyenest kell, hogy adjanak, s a mérési pontokat interpoláló egyenes és az időtengely metszéspontjának a robbanás időpontját kell adnia.

A mérések kiértékelésénél felvetődik a következő probléma: mivel a csapadékokban jelenlevő hasadási termékek nem képviselik a hasadási termékek teljes spektrumát, ugyanis egyrészt nem tartalmazzák az aránylag nagy hatáskeresztmetszettel keletkező kripton és xenon izotópokat, másrészt a légkörben megtett ut során egyéb, frakcionálódást előidéző effektusok is felléphetnek /igy pl. a lebegő részecskék szemnagyság szerinti szeparálódása/, vajjon valóban alkalmazható-e csapadékok mérése esetén is a *Way-Wigner* formula? Másik kérdés, hogy vajjon hidrogénbombától származó rádióaktivitás esetén minden további korrekció nélkül alkalmazhatók-e az atombombákra érvényes ilyen formulák? E kérdések eldöntésére megvizsgáltuk, hogy hiperbolikus közelités esetén az időnek milyen hatványkitevője adja a legjobb közelitést.

Ha különböző hatványkitevőjü hiperbolákkal közelitjük a mérési pontokat, az illeszkedés jósága lineáris alaknál a grafikus ábrázolásból nem állapitható meg pontosan, bár, ha az alkalmazott hatványkitevő tul kicsiny, az $I^{-1/x}$ alakban ábrázolt mérési pontok sora alulról konvex, ha tul nagy, alulról konkáv lesz, azonban a pontok sorának görbülete olyan kicsiny, hogy ez a grafikus ábrázolásnál csak a valódi hatványkitevő értékétől való nagy eltérés esetén szembeötlő, ugyanakkor viszont a robbanás időpontjára nyert értékek egymástól nagy eltérést mutatnak. Ezért ugy jártunk el, hogy adott bomlási folyamat során nyert mérési adatokat különböző, -0,9 - -1,4-ig terjedő hatványkitevőjü hiperbolákkal közelitettünk. Lineáris alakra való hozás után a kapott interpoláló egyeneseket a mérési pontokkal együtt olyan transzformációnak vetettük alá, melynek eredményeként az összes közelitő hiperbolákhoz tartozó egyenesek egybeestek. Legjobb közelitésnek tekintettük most már azt az esetet, melyhez képest a mérési eredményekből számitott pontok szórásnégyzetösszege minimális volt.

Több csapadék lebomlásának ilyen értelmü kiértékeléséből a hatványkitevő értékére a *Way-Wigner* formulában

$$x = -1,18 \pm 0,1$$

adódott, ami megfelel a *Way-* és *Wigner* által megadott -1,2 értéknek, tehát a *Way-Wigner* formula csapadékokban található hasadási termékek időbeni lebomlására is alkalmazható.

Különböző tipusu bombákból származó hasadási termékek esetén nem találtunk lényeges eltérést a *Way-Wigner* formulától.

Egyes szerzők az atombombarobbanások időpontjának megállapitásához az aktivitásnak az idő reciprokával való látszólagos arányosságát használják fel [10], [11], [12], [13], [14], [15], bár általában megjegyzik, hogy ez csak a robbanás utáni rövid időszakban jelent jó közlést.

Eredményeink szerint ez az egyszerüsités nem engedhető meg, mert, bár a mérési pontok látszólag jól illeszkednek az interpoláló egyenesre, mégis ezen közelités alkalmazása a robbanás időpontjának meghatározásánál meg nem engedhető pontatlanságot, illetőleg eltolódást eredményez.

Méréseink során a közelitő görbét minden esetben a legkisebb négyzetek elvének alapján határoztuk meg, számitással határozva meg a robbanás időpontját is.

Eredmények.

Az I. Táblázatban - a [3] közleményben közölt adatokat is befoglalva - közöljük azon csapadékok adatait, melyeknél a hasadási termékeket szolgáltató robbantás időpontja megállapitható volt. A "Megjegyzés" rovatban megadott hivatkozási szám a II. Táblázat megfelelő sorszámát jelenti, s a mérésből megállapitott robbantás a II. Táblázat megfelelő robbantásával volt azonositható.

I. Táblázat.

Kimutatható eredetü hasadási termékeket tartalmazó csapadékok.

Csapadék leesésének időpontja.	Kezdeti aktivitás imp./min. 1/50 m^2-ként.	Számitott robbantási időpont.	Megjegyzés.
1953.06.12	364	1953.06.02	/17/
1953.06.13	37,7	1953.05.25	/16/
1953.06.06	128	1953.05.19	/15/
1953.06.23	78	1953.05.25	/16/
1954.11.04	47.6	1954.10.16	/26/
1955.05.22	25,8	1954.10.16	/26/
1955.06.09	30,9	1955.01.23	
1955.12.15	21,9	1955.11.19	/39/
1955.12.16	32,6	1955.11.15	/39/
1955.12.18	8,7	1955.11.03	/39/
1955.12.30	14,7	1955.11.08	/39/
1956.01.18	21,2	1955.11.08	/39/
1956.06.14	24,9	1955.11.19	/39/
1956.09.27	29,6	1956.09.02	/47/
1956.10.06	8,0	1956.08.31	/46/
1957.02.03	19,5	1956.10.15	/51/
1957.02.04	7,0	1956.10.17	/51/
1957.02.10	8,0	1956.10.13	/51/
1957.02.18	34,0	1956.10.24	/51/
1957.02.25	13,0	1956.10.13	/51/
1957.04.20	34,0	1957.03.25	/55/
1957.04.27	26,0	1957.03.19	/54-55/
1957.05.27	12,0	1957.04.04	/55/
1957.06.08	16,5	1957.04.15	/59/
1957.07.09	35,0	1957.06.11	/61/
1957.07.11	33,0	1957.06.27	/61/
1957.07.12	12,0	1957.06.21	/61/
1957.07.29	9,8	1957.06.12	/61/
1957.09.26	48,0	1957.09.10	/63/
1957.09.30	25.0	1957.09.05	/62/
1957.10.03	12,0	1957.08.30	/63/

Megjegyzés: Az I. Táblázatban foglalt csapadékokon kivül még számos esetben sikerült robbantási időpontot meghatároznunk, azonban összehasonlitó adat hiján nem tudtuk őket ismert robbantásokhoz hozzárendelni, ezért e táblázat összeállitásánál ezen adatokat nem vettük figyelembe. Hogy aránylag kevés azon robbantásoknak a száma, amelyekből származó hasadási termékeket megbizható módon sikerült kimutatnunk, annak is tulajdonitható, hogy rádióaktiv lebomlást csak erősebben aktiv csapadékokon tudtunk mérni. A csapadék rádioaktivitásnak időbeni változásai. az aktivitás görbéjén mutatkozó helyi maximumok /lásd [1], [2], [3], [4] arra engednek következtetni, hogy a Debrecenben lehullott csapadékban más robbantások hasadási termékei is megjelentek, azonban nem állott rendelkezésre megfelelő nagy aktivitás ahhoz, hogy a rádioaktiv lebomlást hosszabb időn keresztül figyelemmel kisérhessük. A táblázat aktivitásadatai 1/50 m^2 felületre vonatkoznak.

A II. Táblázatban közöljük az 1952-1957 évben történt, részben az irodalomból, részben egyéb forrásokból /sajtóügynökségi jelentések stb./ származó adatok alapján ismert robbantásokat. Csillag jelzi azokat a robbantásokat, melyek hasadási termékei a Debrecenben lehullott csapadékban minden kétséget kizáróan jelentkeztek. A csillagok száma azon egynapi csapadékok számát jelenti, ahányban a hasadási termékek kimutathatóak voltak.

Megjegyzés: A II. Táblázat természetesen nem kiván számot tartani teljességre, hiszen az Egyesült Államok, Nagybritannia és a Szovjetunió által végzett kisérleti atombombarobbantások csak mintegy harmadát tartalmazza. A további robbantásokra nézve azonban nem állottak közlések rendelkezésünkre. Nem tüntettük fel továbbá az I. és II. Táblázatban azon robbantások időpontját sem, amelyeknek megtörténtét csupán saját méréseink valószinüsitik. A II. Táblázat adatainak legnagyobb része a Bulletin of the Atomic Scientist c. folyóiratból származik.

Az 1958 évtől kezdődően adatokat egyik táblázatban sem tüntettünk fel, mivel ebben az évben igen megnövekedett a kisérleti robbantások száma, s ennek következtében a gyors egymásutánban a légkörbe kerülő hasadási termékek már nem robbantásonként elkülönülve, hanem egymással keveredve jelentkeztek. Ez abban nyilvánul meg, hogy a lebomlási görbe nem követi többé a Way-Wigner törvényt, illetőleg a Way-Wigner formula alapján transzformált mérési pontok nem interpolálhatók egy egyenessel. Szerencsés esetben ez még megtörténhet, ha a csapadék rádioaktivitása a troposzférából, s az aktivitás főtömege egy robbantásból származik, de a robbantási időpont csak igen pontatlanul - az előző évek ± 2 nap hibája helyett ± 5-10 nap pontossággal - határozható meg, még abban az esetben is, ha elvégezzük a bomlásgörbe felbontását összetevőire, amelyekre már alkalmazható a Way-Wigner formula. Ez az eljárás azonban tapasztalatunk szerint igen nehézkes, és nem javitja meg lényegesen az időpontmeghatározás pontosságát.

Egyébként is a gyakorlatban ez az eset ritkán fordul elő. A tapasztalatok szerint ugyanis egy adott robbantásból származó hasadási termékek mintegy egy hónapig találhatók meg a troposzférában. Ha azonban a robbantás olyan nagyerejü volt /1 Mto TNT nagyságrendü/, hogy a robbanás során keletkezett rádioaktiv felhő a sztratoszférába is feljut, ugy - eltekintve a gravitációs szedimentációtól, ami csak nagyobb szemcsenagyság esetén számottevő - a rádioaktiv szemcsék csak kis valószinüséggel tudnak a föld felszinére jutni, a sztratoszféra és troposzféra rétegei közötti kicserélődés igen csekély volta következtében, s igy több évig is tartózkodhatnak a sztratoszférában. Természetes, hogy a sztratoszférában felhalmozódott rádioaktiv anyag idővel mégis a föld felszinére kerül, de ekkor már egyrészt csak az igen hosszu felezési idejü ter-

II. Táblázat.

Kisérleti atombombarobbantások időpontjai. /Nem teljes összeállitás./

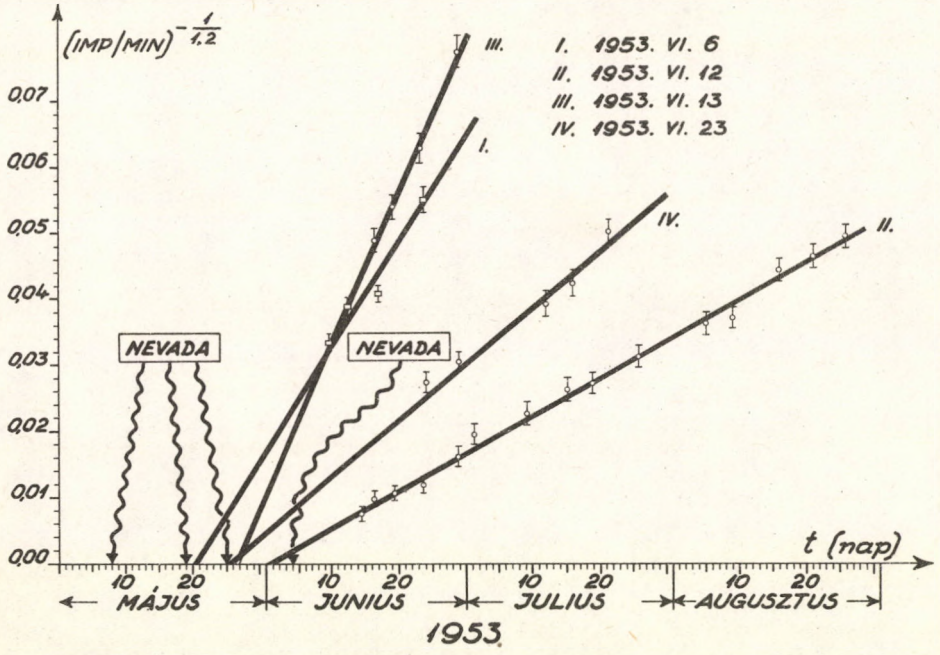
Sorsz.	Robbanás napja.	Robbanás helye.	Sorsz.	Robbanás napja.	Robbanás helye.
	1952.			1955.	
/1/	04.22	Nevada, USA	/32/	03.22	Nevada, USA
/2/	04.30	Nevada, USA	/33/	03.23	Nevada, USA
/3/	05.07	Nevada, USA	/34/	03.31	Nevada, USA
/4/	05.25	Nevada, USA	/35/	04.05	Nevada, USA
/5/	06.01	Nevada, USA	/36/	04.08	Nevada, USA
/6/	06.06	Nevada, USA	/37/	08.01	Szovjetunió
/7/	10.03	Montebello	/38/	09.27	Szovjetunió
/8/	11.01	Marshall szk.	/39/	11.09	Szovjetunió******
	1953.			1956.	
/9/	03.19	Nevada, USA	/40/	03.10-04.02	SzU, 6 robb.
/10/	04.05	Nevada, USA	/41/	05.05	Bikini
/11/	04.14	Nevada, USA	/42/	05.16	Montebello
/12/	04.17	Nevada, USA	/43/	05.21	Bikini
/13/	04.23	Nevada, USA	/44/	07.07	Bikini
/14/	05.07	Nevada, USA	/45/	08.24	Szovjetunió
/15/	05.19	Nevada, USA*	/46/	08.29	Szovjetunió*
/16/	05.25	Nevada, USA**	/47/	09.02	Szovjetunió**
/17/	06.04	Nevada, USA*	/48/	09.03	Szovjetunió
/18/	08.11	Szovjetunió	/49/	09.09	Szovjetunió
/19/	10.14	Woomera	/50/	09.27	Maralinga
/20/	10.26	Woomera	/51/	okt. - ben	Nevada, USA*****
			/52/	11.17	Szovjetunió
	1954.			1957.	
/21/	03.02	Marshall szk.			
/22/	03.27	Marshall szk.	/53/	01.19	Szovjetunió
/23/	04.07	Marshall szk.	/54/	03.08	Szovjetunió*
/24/	04.17	Marshall szk.	/55/	04.03	Szovjetunió**
/25/	09.15	Szovjetunió	/56/	04.06	Szovjetunió
/26/	10.15	Szovjetunió**	/57/	04.10	Szovjetunió
			/58/	04.12	Szovjetunió
	1955.		/59/	04.16	Szovjetunió*
			/60/	05.31	Xamas Isl.
/27/	02.17	Nevada, USA	/61/	máj.-szept.	Nevada 16 r.****
/28/	02.23	Nevada, USA	/62/	08.22	Szovjetunió*
/29/	03.01	Nevada, USA	/63/	09.24	Szovjetunió**
/30/	03.06	Nevada, USA	/64	10.10	Szovjetunió
/31/	03.10	Nevada, USA			

mékek maradnak meg, másrészt a különböző robbantásokból származó termékek a sztratoszférában lévő hosszu tartózkodásuk alatt egymással tökéletesen elkeverednek, s a földi csapadékban is elkeveredve jelentkeznek. /A sztratoszférában végzett kisérleti robbantások adatai szerint a sztratoszférán belüli elkeveredéshez kb 3 hónap szükséges./

Az 1957-1958 évek kisérleti robbantásai többségükben nagy hatóerejüek voltak. A sztratoszféra rádioaktiv szennyezettsége az elmult években igen megnőtt, tehát megnőtt annak a valószinüsége is, hogy egy adott, uj robbantásból származó, a troposzférikus csapadékkal a föld felszinére jutó hasadási termékek mellett azokat szennyezve nagyobb mennyiségben jelentkezzen a sztratoszférából a föld felszinére jutó, régebbi robbantásokból származó rádioaktiv anyag is. Mindebből következik, hogy nem látszik sokat igérőnek az az eljárás, hogy a közös bomlásgörbét összetevőire bontsuk fel, mivel, ha a csapadékban sztratoszférikus eredetü rádioaktiv anyag jelentkezik, az feltétlenül igen sok robbantás hasadási termékeit fogja tartalmazni.

Végeredményben tehát megállapithatjuk, hogy a leirt módszer kisérleti atombombarobbantások időpontjának meghatározására az 1958. évtől kezdődően nem volt használható, illetőleg a módszer pontossága nem haladta meg a ± 5-10 nap pontosságot.

Az 1. ábrán példaképpen bemutatjuk néhány 1953 tavaszáról származó csapadék lebomlási görbéjét, a Way-Wigner formula alapján transzformált lineáris alakban.



1. ábra. Néhány, 1953. juniusában esett csapadék lebomlási görbéje a Way-Wigner formula alapján transzformált alakban.

I r o d a l o m

[1] *Szalay S. - id. Berényi D.:* MTA III. Oszt. Közl. *5,* /1955/ 89.

[2] *A. Szalay - D. Berényi sen.:* Acta Phys. Hung. *5,* /1955/ 1.

[3] *Szalay S. - id. Berényi D.:* MTA III. Oszt. Közl. *9,* /1955/ 175.

[4] *A. Szalay - D. Berényi sen:* Proc. 2nd Geneva Conf. P/1953, Vol. *18,* p. 570.

[5] *Szalay S.:* Fizikai Szemle *10,* /1960/ 101.

[6] *K. Way - E. P. Wigner:* Phys. Rev. *73,* /1948/ 1318.

[7] *D. L. Hill - L. Lanze:* USAEC Rept. CP-1827. /1944/.

[8] *J.D.Knight:* USAEC Rept. CC-3479 /1946/.
[9] *E.L.Brady - A.Turkevich:* USAEC Rept. CL-687 /1945/.
[10] *G.Schumann:* Z.angew.Phys. *8*, /1956/ 361.
[11] *W.Gerlach:* Atomkernenergie, *1*, /1956/ 237.
[12] *W.Gerlach:* Atomkernenergie, *2*, /1957/ 161.
[13] *W.Gerlach:* Atomkernenergie, *2*, /1957/ 438.
[14] *W.Gerlach:* Atomkernenergie, *3*, /1958/ 222.
[15] *K.Schmidt - H.Zindler:* Kernenergie, *2*, /1959/ 900.

IONIZÁCIÓS KAMRÁS MÉRŐBERENDEZÉS 10^{-4} - 1 CURIE ERŐSSÉGŰ GAMMA-SUGÁRZÓ PREPARÁTUMOK AKTIVITÁSÁNAK MEGHATÁROZÁSÁRA

Ujhelyi Csaba

Az irodalomban [1, 2, 3, 4, 5, 6] a gamma-sugárzó preparátumok mérésére számos leirást találunk. Mi erre a célra - az alábbiakban megadott változtatásokkal - egy *Rutherford*tól és *Chadwick*tól származó fekvő henger tipusu [6] ionizációs kamrát készitettünk, amelyet egybeépitettünk egy aranyozott kvarcszálas Lauritsen-tipusu elektrométerrel. A kamra beton talpu vasállvány tetején - a száraztelepek elhelyezésére szolgáló - fadobozon fekszik. /Lásd 1. ábra./ A kamra müszaki adatait a 2. ábrán tüntettük fel.

A kamra belső falát ólomköpennyel körülvett vörösrézhenger alkotja. /A külső vasköpeny az ólomköpeny könnyü elkészitését szolgálja./ A vörösréz henger belső falát és a vörösrézcsőből készitett gyüjtőelektródot - p.a. $CuSO_4$ kénsavas oldatából - elektrolitikusan 100 mg/ cm^2 vastagságu Cu réteggel vontuk be, azért, hogy az esetleges alfa-szennyeződésnek a kamra természetes effektusát növelő hatását kiküszöböljük.

Szigetelő anyagként plexi-üveget alkalmaztunk a 2. ábrán látható alakban és méretben.

A kamrát ugy hozzuk mérőképes állapotba, hogy az aranyozott kvarcszálat tartalmazó elektrométerházra [7] és a gyüjtőelektródra - az *A* gomb benyomása közben - két sorbakapcsolt 120 V-os száraztelep pozitiv polusát kapcsoljuk és a negativ pólust a kamrával földeljük. /A zárófémfedélen elhelyezett *A* gomb benyomásával az elektrométerház és a gyüjtőelektród fémes érintkezésbe kerül. A *B* fémgomb benyomásával pedig a feszültség levétele után az elektrométerházon maradt töltést vezetjük le./

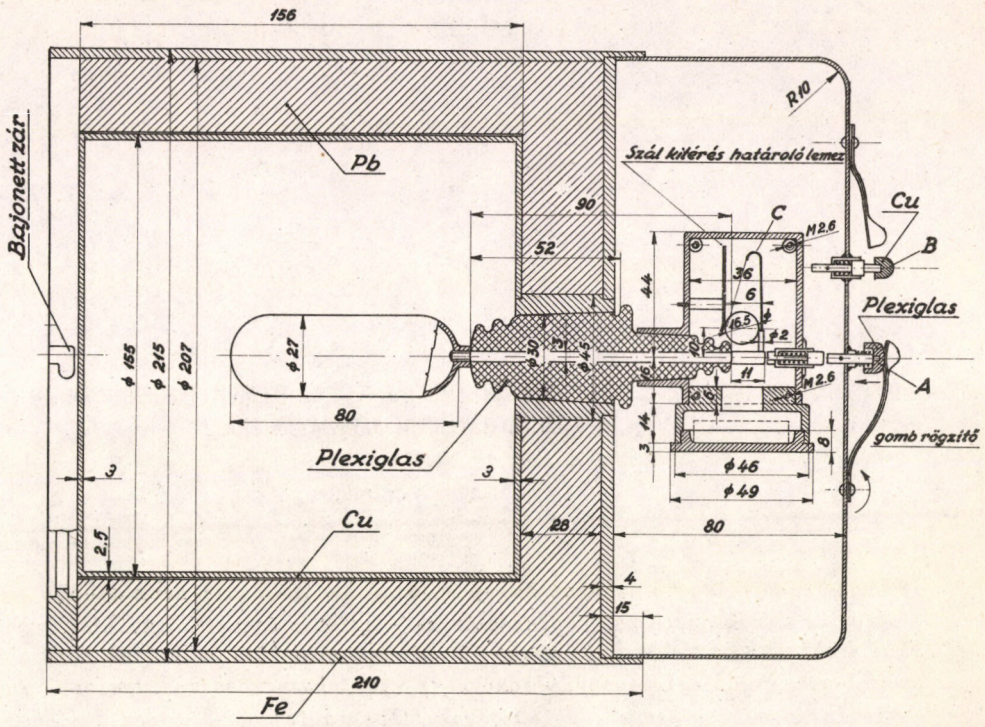
A kvarcszál egy sárgarézdrótból készült tartó /*C*/ félkörben meghajlitott végéhez van ragasztva. A szállal szemben beforrasztott fémlemez a szál tulzott kitérését akadályozza meg. A szál mozgását átlátszó arany-réteggel bepárologtatott üveg-ablakon keresztül leolvasó mikroszkóppal /3x objektiv és 7x okulár/ figyeljük.

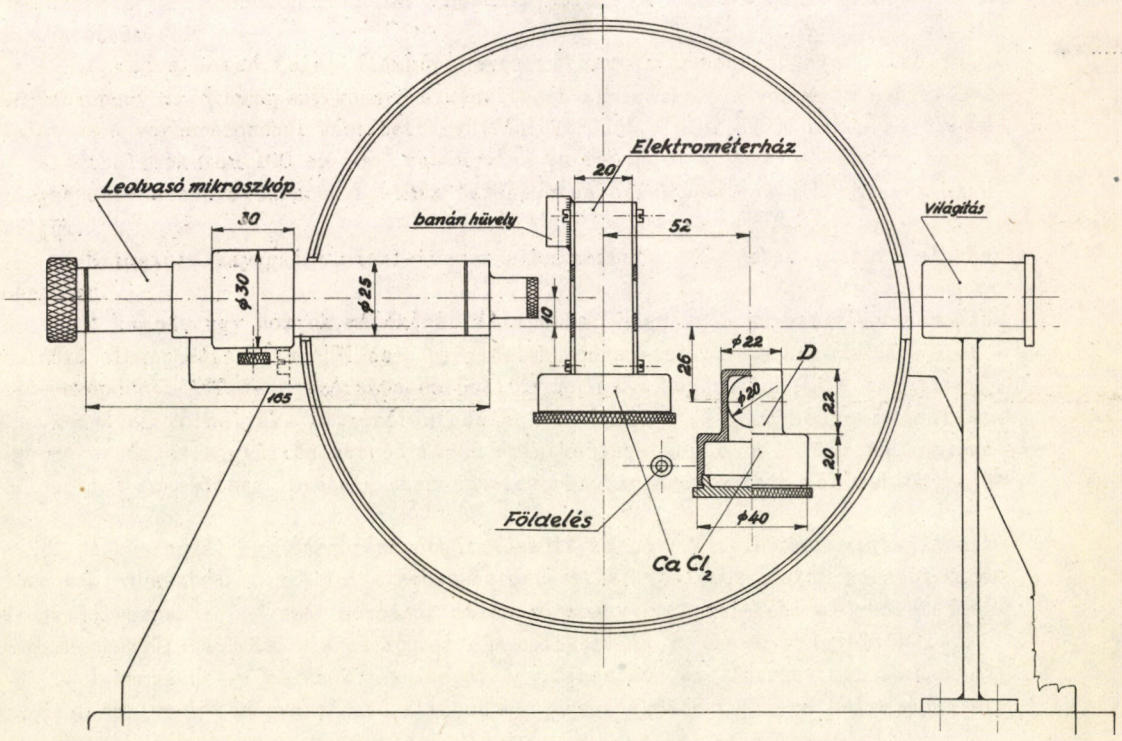
A kamra belső terének száritását egy fémcső végére forrasztott fémtok /*D*/ oldja meg, amelynek lecsavarozható aljában egy üvegtálkában $CaCl_2$-ot helyeztünk el. Az elektrométerház lecsavarozható alja szintén a $CaCl_2$ elhelyezésére szolgál.

A kamrának a preparátum felőli oldalán elhelyezett ólomszürő cserélhető és igy vastagabb szürő használatával a mérés felső határa növelhető.

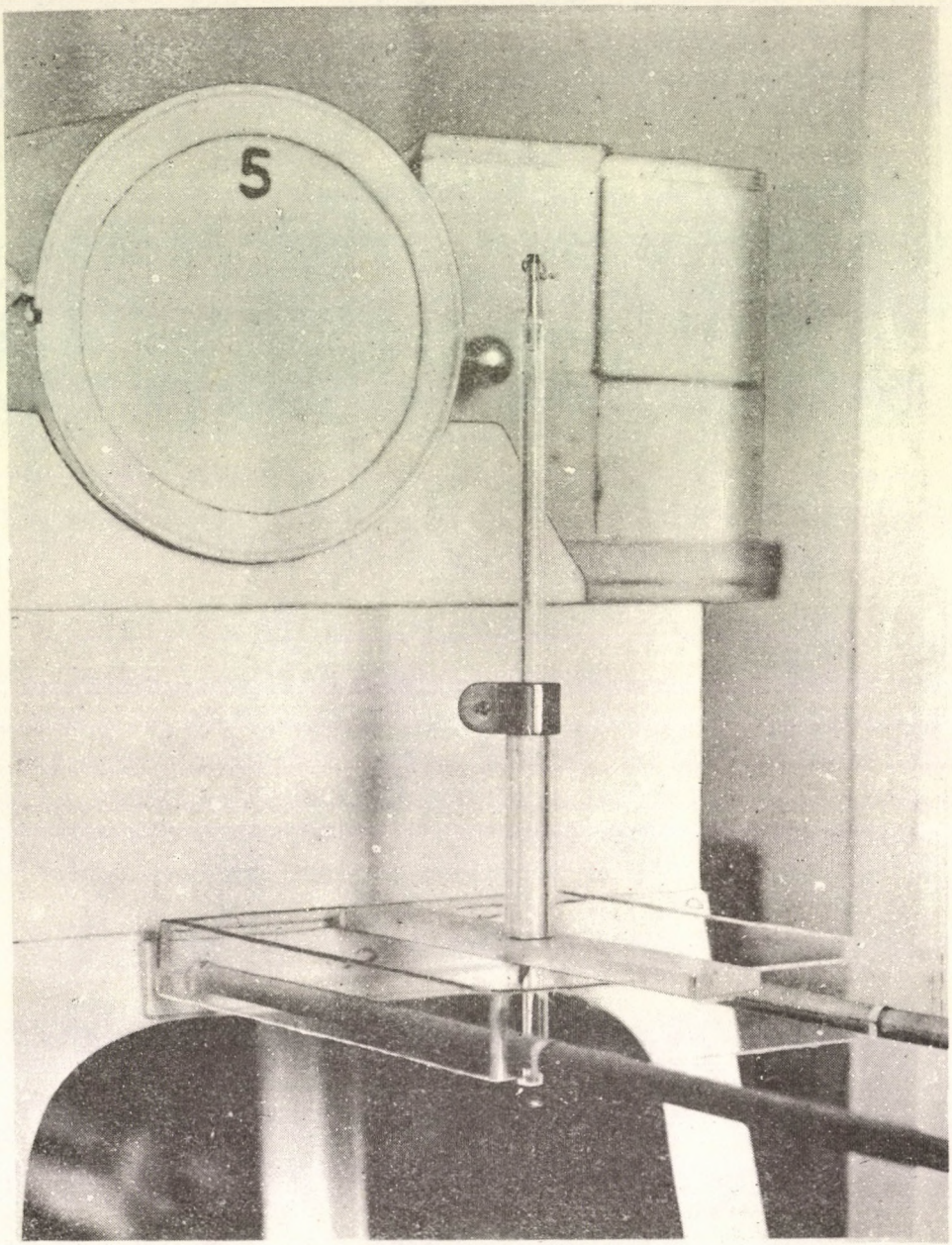
A preparátumok elhelyezésére a 3. ábrán látható két párhuzamos - 2,5 m

1. ábra. Ionizációs mérőberendezés rádióaktiv preparátumok kvantitativ összehasonlitására gamma-sugárzások alapján.





2. ábra. Ionizációs kamra műszaki adatai.



3. ábra. Preparátumtartó a gamma-forrással. /A fényképen jól látható a kamra cserélhető 5 mm vastag ólomszűrője.

hosszu,távolságosztással ellátott - Al csövön mozgó plexi-üvegből készitett preparátumtartó szolgál. A preparátumtartó közepén - a kamra középvonalában - elhelyezett és különböző magasságokban rögzithető plexirud végébe plexitartó csavarható. Ez a preparátumtartó biztositja a preparátum helyzetének pontos reprodukálhatóságát és biztos elhelyezését.

A mérőszemély sugárvédelmét az asztalon elhelyezett vaskeretbe foglalt ólomlemezekből és ólomtéglákból álló fal biztositja.

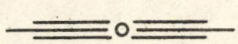
A Lauritsen tipusu elektrométerrel egybeépitett ionizációs kamra müködésének jellemzésére az alábbiakban megadott adatokat egy évi tapasztalat alapján közöljük. 0,01 - 1 Curie nagyságrendü Co-60, Cs-137, Ra-226 forrásokkal végeztünk méréseket. Megállapitottuk, hogy egy standard preparátummal bemért preparátum* aktivitására kapott érték az ujra történő meghatározásnál mért értéktől 0,4 ± 0,2 %-ra** tér el, vagyis egy ilyen meghatározás standard deviációja 0,2 ± 0,1 %. Ez a megállapitás 0,4 - 85 skr/min*** önkényes egységben kifejezett ionizációs áram intervallumban érvényes. [A természetes effektus $(9,4 \pm 1,1) \cdot 10^{-3}$ skr/min.]

Köszönetet mondok *dr. Szalay Sándor* intézeti igazgatónak, aki a mérőberendezés elkészitését tanácsaival támogatta.

Köszönetemet fejezem ki továbbá *Schadek János*nak a müszaki tervezés elvégzéséért, valamint *Dézsi Zoltán*nak a kvarcszál elkészitéséért és *Nagy János*nak tanácsaiért.

I r o d a l o m

[1] *L. F. Curtiss:* J. Optical Soc. Am. and Rev. Sci. Instruments, *16,* /1928/, 363.
[2] *G. C. Laurence:* Can. J. Research, *7,* /1932/, 109.
[3] *W. E. Perry:* Brit. J. Radiology, *9,* /1936/, 648.
[4] *T. H. Oddie:* Proc. Phys. Soc. /London./ *51,* /1939/, 905.
[5] *G. M. Keyser:* Canad. J. Phys. *29,* /1951/, 301.
[6] *C. F. Weiss:* "Radioaktive Standardpräparate", VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften Beriln, 1956, 45 old.
[7] *Dézsi Z.:* Közlésre nem küldött munka.



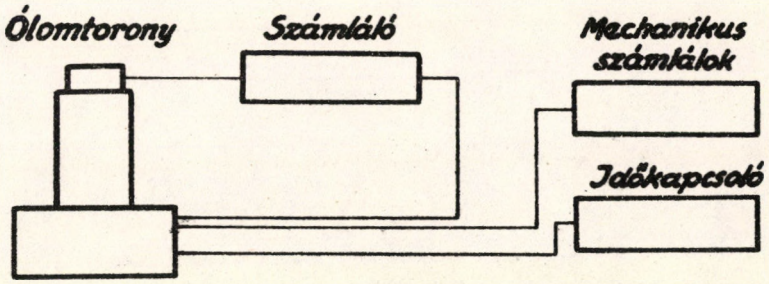
* A preparátumok aktivitásának aránya 1 : 5 és 1 : 50 volt.
** Hat esetben meghatározott %-os eltérés középértéke a standard deviációval.
*** Az esési időt 30 skr intervallumban mértük.

AUTOMATIKUS IZOTÓP MÉRŐBERENDEZÉS

Kósa György és Scharbert Tibor

Radioaktiv preparátumok sorozatos mérésénél időmegtakaritás, szisztematikus hibák kiküszöbölésére, a mérést végző személy munkájának egyszerübbé tétele céljából szükséges a mérési folyamat automatizálása. Az itt ismertetésre kerülő kis aktivitásu preparátumok mérésére alkalmas készülék jól alkalmazható radiobiológiai kutatásoknál és kezelése igen egyszerü.

A berendezés blokkdiagrammját az 1. ábra mutatja.

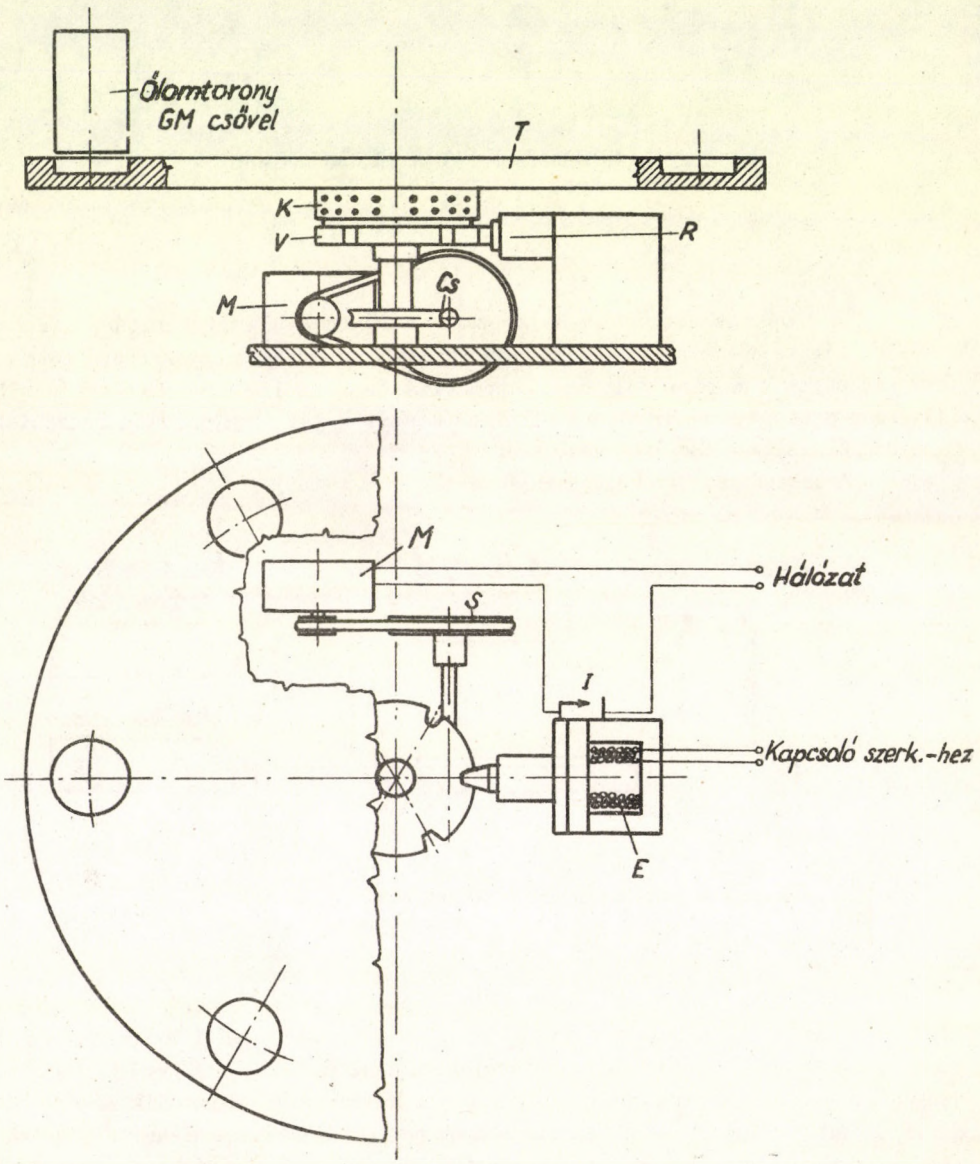


1. ábra. Az automatikus izotópmérő blokkdiagrammja.

Müködése a következő: A készülék GM csővel müködő bináris aláosztásu számláló berendezés [1], különleges kiképzésü ólomtoronnyal, ami lehetővé teszi, hogy a preparátumok előre meghatározott időtartamokra a számlálócső alá kerüljenek. A mérések eredményeit hat nagysebességü számláló rögziti külön-külön. A hatodik mérés után a számlálás automatikusan leáll, az eredmények pedig rögzitve maradnak. A megmért preparátumok helyére ujakat téve, egy billentyü lenyomásával a mérési folyamat elölről kezdődhet.

A z ó l o m t o r o n y

Az ólomtorony magában foglalja a GM csövet a katód-csatolt erősitővel és a preparátumok automatikus továbbitására szolgáló szerkezetet. Ez utóbbi a 2. ábrán látható. A preparátumok egy csőtengelyen elhelyezett *T* plexi tárcsa mélyedéseiben foglalnak helyet. Közvetlenül alatta helyezkedik el a *K* kapcsoló tárcsa, mely a preparátumokkal együtt forogva bekapcsolja a megfelelő számláló szerkezetet és jelző izzót. A tárcsa elforgatása az *M* gramofon motorral történik, a mozgás vezérlését pedig egy *R* retesz és egy *V* vezérlőtárcsa végzi.



2a ábra. A preparátumok automatikus továbbitására szolgáló szerkezet /oldalnézet/.

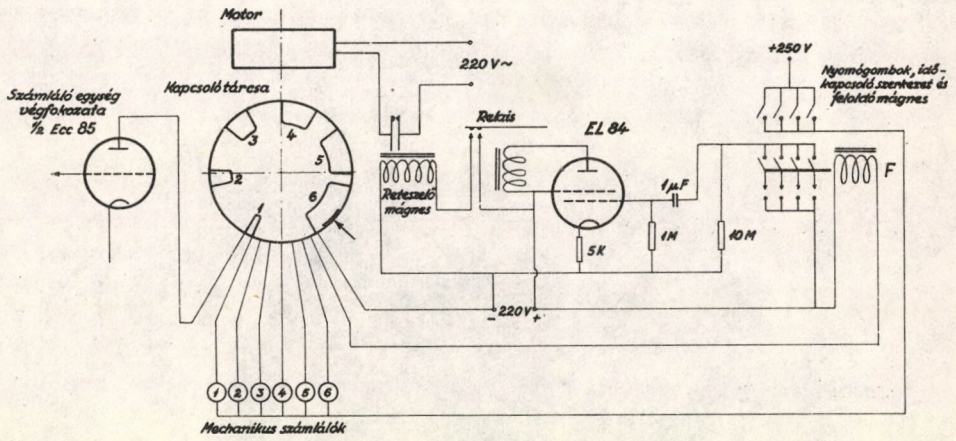
2b ábra. A preparátumok automatikus továbbitására szolgáló szerkezet /felülnézet/.

Ha a reteszt az *E* elektromágnes behuzza, az *I* érintkezőn keresztül záródik a motor áramköre, a tárcsa forogni kezd mindaddig, mig a retesz a forgásirányban a következő reteszhoronyba be nem ugrik. Ekkor a motor áramköre megszakad és a reteszelés a preparátum helyét a számlálócső alatt egyértelmüen meghatározza. A motor-tengely és a csőtengely között *S* szij és *Cs* csiga áttétel van. A gumiszij a rendszer rugalmasságát biztositja.

A z i d ő k a p c s o l ó s z e r k e z e t

Az *E* elektromágnes pontos időben való müködését egy időkapcsoló szerkezet biztositja. Ez egy szinkron motorból és egy ehhez kapcsolt fogaskerék rendszerből áll. A fogaskerekek különböző gyorsasággal forognak és négy darab érintkezőt zárnak különböző időközökben. Ezek határozzák meg egy preparátum mérésének az időtartamát. Ezen érintkezők közül a megfelelő időtartam billentyüs kapcsoló segitségével kiválasztható. Ha a számláló négyes aláosztásu, célszerü 4 perces időtartamot is beiktatni, ekkor a számláló szerkezet azonnal az egy percre eső impulzus számot mutatja.

Ezek az érintkezők nem alkalmasak arra, hogy közvetlenül velük kapcsoltassuk a reteszelő elektromágnest, mert az általuk létesitett rövidzár ideje kb. 10–12 sec, és ha az elektromágnes ennyi ideig meghuzva tartana, a preparátum tartó



3. ábra. A preparátum továbbitó szerkezet és az időkapcsoló kapcsolási rajza.

plexi tárcsa egy teljes körülfordulást is végezne. Ezért ezt a hosszu impulzust egy RC taggal, melynek időállandója 1 sec, megdifferenciáljuk, és egy lezárásig előfeszitett EL 84-es cső rácsára vezetjük /3. ábra/. A 10 Mohmos ellenállás szerepe az, hogy lassan kisüsse a kondenzátort. Az előbb emlitett érintkezőkkel +220 V-os feszültséget kapcsoltatunk a kondenzátorra, ezért az impulzus időtartama alatt az elektroncsövön keresztül áram fog folyni és a cső anódkörében elhelyezett relé müködni kezd. A relé ekkor bekapcsolja a reteszelő elektromágnest, de most már csak 1 sec-ig. Ennyi idő elég ahhoz, hogy az ólomtoronyban a kireteszelés megtörténjen, és a tárcsa forogni kezdjen. A nyomógombos kapcsolón egy billentyü lenyomásával nemcsak

a kivánt időtartamot kapcsoljuk be, hanem az időkapcsoló szinkron motorjának az áramkörét és a mechanikus számláló szerkezetek közös vezetékét is. Igy ha egy billentyü sincs lenyomva, nem müködik az időkapcsoló és a számláló szerkezetek is áramtalanitva vannak. Ugyanezt az állapotot hozza létre a hatodik, egyben utólsó preparátum lemérése után az *F* elektromágnes, mely közvetlenül a nyomógombos kapcsolóra van felszerelve. Ha a tekercsen áram halad át, a billentyük alapállapotba kerülnek. Müködését a kapcsolótárcsa 6. és 1. állapot közé szerelt érintkező /az ábrán nyillal megjelölve/ biztositja, ami a tárcsa továbbfordulása közben egy rövid ideig egyenfeszültséget kapcsol az elektromágnes tekercsére. Ezért a hat preparátum lemérése után a készülék automatikusan megáll.

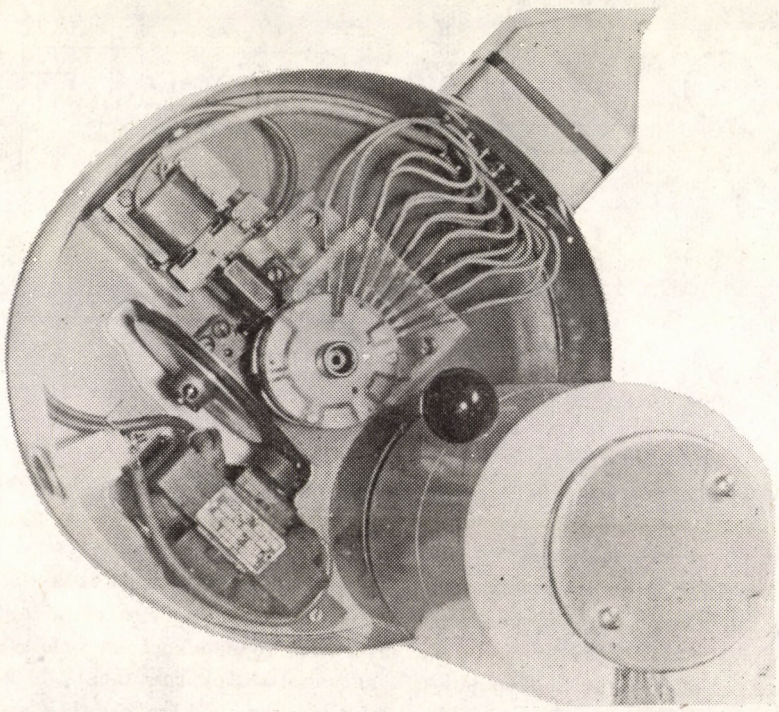
A s z á m l á l ó

A készülék többi elektronikus része a szokásos kapcsolásu. A GM cső feszültség-impulzusait felerősitve egy jelformáló billenőkörre visszük. Ezután egy aláosztó fokozat következik, melynél az aláosztást 0, 2 és 4 mértékben változtatni lehet. A fokozat helyes müködését az előlapra szerelt csillólámpák jelzik. A számláló utólsó egysége végerősitő fokozat, mely a mechanikus számláló szerkezetek müködtetésére szolgál.

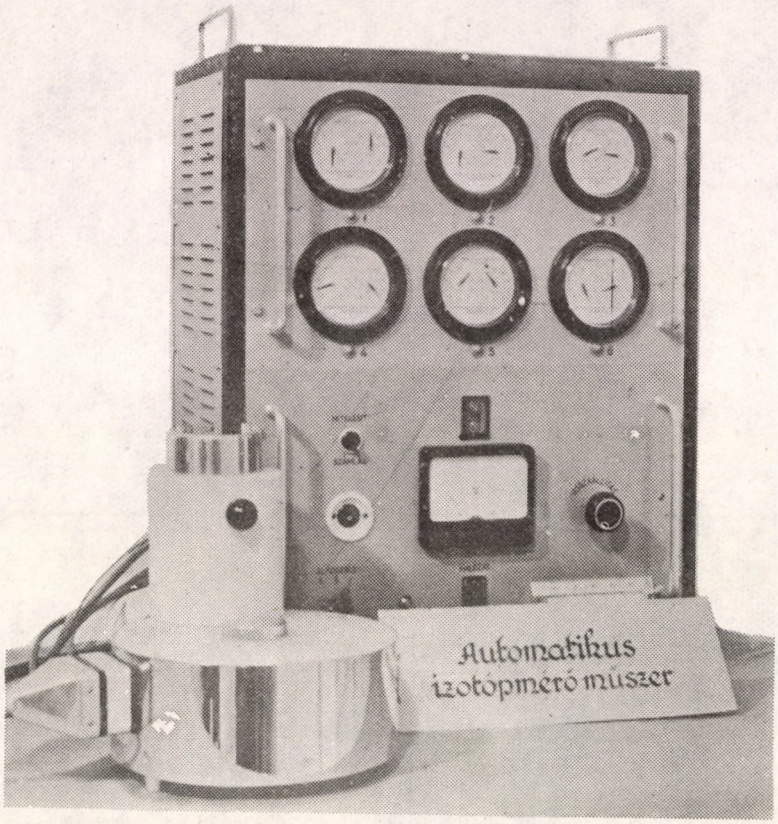
A GM cső részére a 800 V-tól 1200 V-ig folyamatosan szabályozható magasfeszültséget nagyfrekvenciás módszerrel állitjuk elő.

A készülékbe épitett egyszerü 50 Hz-es impulzus generátor segitségével a készülék hiteles müködését ellenőrizni lehet.

Végül a 4/a és 4/b ábrán bemutatjuk a berendezés és az ólomtorony mechanikus részének a fényképeit.



4/a. ábra. Az ólomtorony szerkezete.



4/b. ábra. A teljes izotópmérő készülék.

Köszönetet mondunk *dr. Szalay Sándor* professzornak, az Intézet igazgatójának a probléma felvetéséért és értékes tanácsaiért.

I r o d a l o m

[1] *Makranczi B. - Nagy J. - Szalay S.:* GM csöves sugárzásmérő berendezés. Mérés és Automatika. *4,* /1956/ 300.

ELEKTROMÁGNESES VEZÉRLÉSŰ NAGYVÁKUUM SZELEP

Berecz István tud.munkatárs és Schadek János g.mérnök

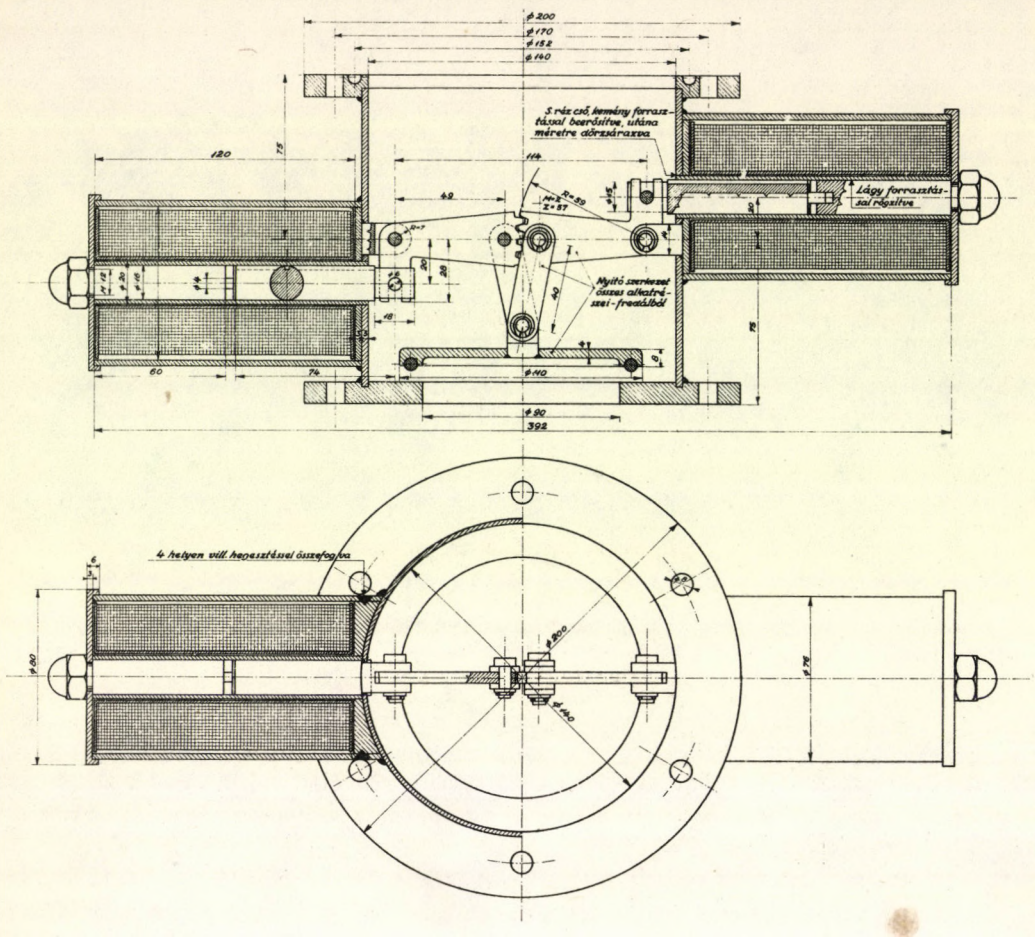
A debreceni *Atommag Kutató Intézet*ben épülő uj gyorsitó berendezésekhez szerkesztettünk és kiviteleztünk egy olyan nagyvákuum szelepet, amelynél a mozgató mechanizmus szerkezete teljesen zárt belső térben van elhelyezve és a mozgatás kivezetésére tömszelencéje nincs. A nyitást és a zárást a szelepház külső oldalán elhelyezett elektromágnesek vezérlik.

Ezen szelep alapgondolata a *Műszaki Egyetem Vákuumtechnikai Intézete* által régebben elkészitett szerkezetből adódott, amelyet mi most a jelenlegi formájára kifejlesztettünk. A módositást az tette szükségessé, hogy bár az eredeti szelep alapgondolata jó és annak megoldása nyitás irányában jól is van megszerkesztve, - a zárást végző és a perembe beépitett elektromágnes megoldása vákuumtechnikailag nem volt megfelelő, mert az szerkezeténél és kivitelénél fogva komplikált és a szelep gyakori meghibásodásához vezetett. Uj szerkezetünknél ezt a hibát teljesen kiküszöböltük.

Az 1. ábrán látható módon, a szelep nyitását és zárását, két teljesen egyforma, a szelepház külső oldalán egymással szemben elhelyezett elektromágnessel végezzük.

A szeleptányért mozgató mechanizmust kétkaru szögemelőkkel és fogasives összekapcsolással ugy áttételeztük, hogy a mágnesek huzó hatására az egyik vasmag felfelé, a másik vasmag pedig lefelé mozgassa a szeleptányért. A mozgatást végző elektromágnesek vasmagjai dugattyuszerüen vannak vezetve a szelepház oldalába kemény forrasztással beerősitett sárgaréz csövekben, amelyeknek külső végei egy vasmag ellendarabbal vákuumbiztosan le vannak zárva.

Ilyen szerkesztés mellett elértük azt, hogy a tányér mozgatását végző mechanizmus a vákuumbiztosan lezárható belső térben mozog, és a mozgatását végző elektromágnes tekercsek ezen belső tértől teljesen függetlenek. A tekercsek kivülről vannak a sárgaréz csövekre ráhuzva, igy egyszerüen és üzembiztosan szerelhetők. A tekercstestek lágyvas hengerrel vannak körülvéve, amely a külső mágneskört zárja



1. ábra. Elektromos vezérlésü nagyvákuum szelep rajza.

és egyben a tekercsek mechanikai védelméül is szolgál.

A mechanizmus karos áttételei és a szeleptányér, sulycsökkentés céljából, fredál-anyagból készülnek.

A két mozgató mágnestekercset 48 V egyenárammal tápláljuk. A rajzban megadott méretü tekercsek egyenként 7.500 menettel birnak 0,6 mm Ø huzalból. Belső ellenállás 69 Ohm, áramerősség 0,7 Amp. A mágnesek bekapcsolása, ezzel a szelep nyitása és zárása, két oldalra átkapcsolható, egyszerü tumbler-kapcsolóval történik.

Kiadja a
Magyar Tudományos Akadémia
Atommag Kutató Intézete
D e b r e c e n.
A kiadásért és szerkesztésért felelős
Szalay Sándor az Intézet igazgatója.
Készült az Intézet *"Zetaprinton"* tipusu
sokszorositó gépén.

Példányszám 300
49/1960.

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA