310.565
27/1985

ATOMKI KÖZLEMÉNYEK

27. kötet / 2. szám

MTA
ATOMMAGKUTATÓ INTÉZETE, DEBRECEN / 1985

ATOMKI KÖZLEMÉNYEK

27. kötet / 2. szám

MTA
ATOMMAGKUTATÓ INTÉZETE, DEBRECEN / 1985

HU ISSN 0236-5359

ATOMKI Report E/5 (1985)

PNG-300
A NANOSECOND PULSED NEUTRON GENERATOR[x]

T. Sztaricskai, L. Vasváry and G. C. Pető

Institute of Experimental Physics,
Kossuth University, Debrecen

and

B. V. Dewkin

Institute of Physics and Power
Obninsk, USSR

A nanosecond pulsed neutron generator has been constructed for the study of promt neutron and gamma radiation. The neutron generator has a 300 kV acceleration voltage and a Florov's bunching system. It allows a 2 nsec time resolution with the associated neutron spectrometer. The utilization of the generator started for the measurements of prompt neutron and gamma radiations induced in different constructional materials.

1. Introduction

The utilization of a gamma spectrometer in the fast neutron time of flight experiments allows a more detailed study of fast neutron reactions. The use of germanium detectors in fast neutron induced reactions requires the background reducing methods: an associated particle beam or a pulsed neutron source. The nanosecond pulsed neutron source is a fundamental equipment in the study of promp neutron and gamma spectra. The broadening of the experimental base in the Institute of Experimental Physics, the study of fast neutron induced prompt radiations initiated the construction of a nanosecond pulsed neutron generator. The development of the PNG-300 has taken several years [1,2] and was done in co-operation with the Institute of Physics and Power in Obninsk. An important assistance was during the final test of the generator the support of the IAEA: it made possible to obtain the most adequate units for the time of flight spectrometer.

The construction of the PNG-300 neutron generator has been finished and it is used [3] for about two years trouble free. The study of prompt radiations started, the development of the TOF spectrometers two branch is finished.

---

[x] This work was partly supported by IAEA, contract No.3015/RB

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

2. The ion optical set-up

Like every 14 MeV neutron generators, the PNG-300 consists of an ion source, an acceleration tube, beam handling facilities and a TiT target. The ion source is floating on the first focus potential and the beam pulser unit is on ground potential. The target is on the acceleration high voltage. The ion optical construction of the nanosecond pulsed neutron generator is shown on Fig. 1.

The d^+ ions to be accelerated are produced by a high frequency ion source [4] with extraction electrodes on the booth end of the pyrex bulb. The position of the ion source is vertical in consequence of the vertical construction of the generator. The positive extraction electrode has the lowest position in the ion optical system; the target is on the top of it. For focusing the ions to be extracted to the canal of the extraction electrode an usual quarz sleeve is used. The construction of the pyrex bulb is such that it holds the quarz sleeve on the extraction electrode and it prevents the fall of it. The deuterium gas led into the ion source trough a mechanical leak is ionized by a 27 MHz, 200 W pushpull oscillator built around a pair of metall-ceramical valves [5]. To avoid the unwanted discharges between the pyrex bulb and the coil of the oscillator, the positive pole of the extraction power supply has been connected to the anode power supply of the oscillator. The extraction voltage and the gas flow is remote controlled from the control desk. The gas consumption of the ion source is about 5 cm^3 D_2 of NTP. The energy of the extracted d^+ ions is about 6-7 keV and their divergence is too much to get an appropriate beam at the entrance of the pulser unit. The distance between the extraction canal and the pulser unit is about 80 cm, so two stage focusing was needed. The first focus lens is an immersion lens, the second one is an Einzel lens. The lenses are powered by two 0-20 kV power supplies controlled from the control desk. The first immersion lens is producing a 2 mA, 1 cm of diameter ion beam to the input of the Einzel lens. The Einzel lens serves to achive the maximal beam transmission through the pulser electrodes. The pulser unit contains two pairs of crossed field electrostatic deflector plates, a double slot bunching electrode [6,7] and at last a pair of deflectors for pulse selection. All of the deflection plates are used for beam position correction by U_{Defl} DC voltages. The first pair of deflection plates serves only for beam position correction. The second one is the 10 MHz beam chopper. This chopper produces the 20 MHz repetition rate beam pulses for the 20 MHz klystron type beam buncher.

The velocity modulated 20 MHz repetition rate beam pulses are selected by the third pair of deflection plates: the sequence of the pulses on the target may be choosen between 50-800 nsec in five steps. The diameter of the holes on the bunching electrode and the diaphragmas are 3.5 mm, the length of the buncher electrode is adjustable and it is about 50 mm. The whole pulser unit, based on the well known Florow's bunching [8], is a geometrically slightly modified version of the KG-0.25 neutron generators pulsing system [6].

The calculations on the basis of ref. [7] have been shown, that an unanalyzed beam, bunched before acceleration, at a distance of 1.2 m, with the above bunching frequency may easily deliver the desired 1 nsec pulses. The accurate synchronization and the amplitude selections of the chopping, bunching and selecting signals made it possible to achive the goal of the generator: to produce nanosecond 14 MeV neutron pulses.

The acceleration tube is a multigap homogenous field tube used earlier in a Van de Graaff generator [9]. On the top of the drift tube is placed the beam pick-up electrode, the suppressor and the target. The pick-up signals are amplified and feed by an optical link to a photomultiplier tube at the ground potential. The suppressor electrode has an approximately 200 V negative voltage comparatively to the target. The target current is integrated by a current integrator and its pulses are linked optically by an elastic light guide to the ground potential. The target holder is a thin wall aluminium tube to decrease the scattering of the neutrons on the target holder. The target cooling has been made by compressed dry air.

3. The control system of the generator

The generators control system consists of units for the control of:

1. Ion source and beam focus
2. Beam pulsing
3. Acceleration voltage
4. Target head
5. Vacuum system

The block diagram of the PNG-300 is shown on Fig.2. The electronic units of the generator control are settled in three places. The acceleration high voltage power supply and the power amplifiers at the pulsing unit are placed in the upper generator room, the ion source and focus power supplies closed to the ion source, the base oscillator, the phase shifters, ion source focus and high voltage controls and the vacuum control units are placed on the control desk.

The ion source oscillator based on two GI-6B metalceramic tubes is powered by a 1000 V 300 mA unregulated power supply. This power supply, the 10 kV 10 mA extraction power supply and the electromechanical leak D_2 gas flow regulator are floating at the voltage of the Focus I. power supply. The extraction voltage is controlled by a variac-servomotor pair from the control desk. The gas flow is similarly controlled by a similar servomotor. The two focus power supplies - booth are full wave voltage doublers - are controlled by variacs from the control desk.

The heart of the nanosecond pulsed neutron generator is the pulsing system and the associated electronics. The base oscillator is an X-tal controlled one, producing the 20 MHz bounching frequency by frequency doubling. The phase of the 10 MHz signals and the selector pulser are controlled by usual two monostable multivibrator delay. The pulse selector is a binary counter gating every 2-16th 50 nsec pulses from the 20 MHz bunching frequency. The synchron signal to the stop branch of the time of flight spectrometer can be obtained from

the phase shifter of the selector pulses. Both the 10 MHz and the 20 MHz power amplifiers are tuned push-pull amplifiers, built around the vacuum vessel of the pulser unit. The selector amplifier producing the 35 nsec selector pulses is a distributed parameter wide band one of eight electron tubes. The anode voltage - the amplitude of the 10 MHz, 20 MHz and selector pulses - can be changed on the control desk by regulated power supplies (500 V 200 mA) to tune the whole generator to an optimal work.

The high voltage power supply of the generator is a traditional open air single wave voltage doubler with 900 kohms and 300 kohms damping resistors at the HV transformer and the target head respectively. The primary voltage of the 150 kV HV transformer is powered by a motor controlled variac [10]. The input voltage of the variac is regulated by a 5 kVA AC voltage regulator. The primary current, the primary voltage and the high voltage on the target is monitorized by meters on the HV control panel of the control desk.

The target head (the electronic circuits connected to the target assembly) is battery powered. A simple DC-DC converter is producing the above -200 V suppressor voltage for the secondary electron suppression. The target current integrator is linear in the range of 0.5-200 μA and delivers about 100 μsec pulses to drive the light transmitter. The light pulses from this transmitter are feed by light guide to the photodiode in the ground potential. The pulses from the photodiode are amplified, formed and feed to the control desk's ratemeter - used for target current measurements - or to a frequency counter. The optical connection is made by plastic cover glass fibre light guides.

The signals influenced by the ion beam on the pick-up electrode are amplified by IC video amplifier. These signals drive the fast LED transmitter coupled by similar light guide to a fast photomultiplier. The anode pulses of the fast photomultiplier can be observed by a 200 MHz oscilloscope on the control desk.

4. The vacuum system

The vacuum system of the generator is as simple as it was possible. The normal 5 cm^3 of D_2 gas consumption does not need more sophisticated vacuum components; there were used rubber seals and oil diffusion pump. The scheme of the generators vacuum system is shown on Fig.3. The main vacuum manifold is the same one used in the Institute's earlier Van de Graaff generator [11]. A liquid nitrogen trap volume of 20 l was installed to the original manifold to improve the quality of the vacuum in the system. The 1200 l/sec oil diffusion pump (Diff.I) is connected through an electromagnet operated plate valve to the manifold. The Diff.II pump is boostered by the small 500 l/sec. Diff.II pump. The forevacuum is produced by a 20 m^3/h duplex mechanical pump. The ion source and the Focus I immersion lens is connected to the vacuum manifold by a spherical slide plate for the adjustment of the ion source to the axis of the pulser unit and the acceleration tube situated at the other side of the vacuum manifold. The remote regulated

mechanical leak is a Balzers RNV 10 H needle valve. The vacuum manifold, the pumps and the ion source are hanging from the ceiling in the lower generator room to achive the minimal distance between the ion source and the pulsing unit.

The Einzel lens, the pulsing unit and the acceleration tube can be separated from the manifold by a large diameter ball valve in the case of target change. This upper section of the vacuum system - placed in the upper generator room - can be pumped separetly by Rot. II mechanical pump after the target change.

The vacuum in the system is measured by a VTP-2 type (Thermopair-Penning) vacuum meter. The thermopair guages are connected to the main vacuum manifold and to the pulser's vessel, the Penning one to the pulsers vessel, to the most important place of the generator. The meter itself has been built in the vacuum control plug in of the control desk.

The Rot. I mechanical pump, the plate valve, the MV-I electromechanical valve as well as the cooling water are remote controled from the control desk. The switch - off of the cooling water, the MV-I and the Rot.-I can be done manually or automatically by an electronic switch-off program unit.

5. The control desk and the accelerator hall

The PNG-300 neutrongenerator has been built in the earlier Van de Graaff generator's place [11]. The control of the PNG-300 has been installed on the place of the earlier VDG control desk. It consists of two 19" cabinets. (Fig.4.) The left hand side cabinet holds the plugs for the pulse generation and control, the base oscillator and phase shifter unit, built up mostly of Schottky TTL circuits, a beam position corrector for the selector plates is including in the plug as well as the forming amplifier for the pick up signals. The beam position correctors are 0-1 kV power supplies with changable output polarities. The 10 MHz chopper signals, the 20 MHz bunching signals amplitudes can be controlled by the three 500 V 200 mA DC power supplies placed in the lower part of the left hand side cabinet.

The right hand side of the control desk holds the vacuum control unit of the generator built in it the VTP-2 vacuum meter. The focus control unit contains two variacs for the control of Focus I. and Focus II lens voltages respectively as well as a meter for the monitorization of the ion current from the ion source. The HV control panel holds the main switch of the acceleration high voltage - interlocked by the electrostatic shield metal door in the accelerator hall - the control push buttons of the HV regulator as well as the meters for the HV, primary current and voltage of the HV transformer. The ion source control unit serves for the control of the extraction voltages adjustement and for the D_2 gas flow into the ion source. The target current is measured by the built in rate meter on the same panel.

The top unit on the right hand side of the control desk is a control unit for the sample transfer, and there is a built in digital X-tal clock for the experiments as well as two volt-meters for the monitor detector and the neutron detector HV monitorization. The lowest two racks are NIM bins for the twin

time of flight spectrometer: one of the m is used in the experiment, the second one for the monitorization of the generators operation.

The main point at the fitting out of the accelerator hall was to utilize the relative maximum empty space to get for the scattering free experiments. The target point has been choosen about 180 cm height from the floor, because the closest oil containers (HV transformer and the condensers) are at similar distance from the target. The high voltage power supply was built around the accelerator tube having an adequate distance from the walls and the metal shield. The lay out of the generator in the accelerator hall is shown on Fig. 5. The door on the electrostatic screening fence has been connected to the HV interlock of the accelerator voltage. The metal fence holds the optoreceivers of the target head, the compressed air's noozle for the target cooling and the transport mechanics for the sample used in the experiments. The monitor detector has been settled close to this electrostatic screen. The neutron detector with its shielding is movable for the change of the geometry between the detector and the sample.

6. Specification of the PNG-300 neutron generator

The main parameters of the neutron generator are:
Average neutron output: $<10^9$ n/sec
Neutron output in the pulses: $4 \cdot 10^{10}$ n/sec
Average target current: 10-20 μA Beam diameter: 8 mm
Ion current in the pulses: 1 mA
Acceleration voltage: maximum 300 kV (negative)
Type of HV power supply: single wave voltage doubler
Ion source: radiofrequency one, with 200 W push-pull oscillator
Extraction voltage: 0-15 kV
Focus voltage: 0-20 kV
Gas consumption: 4-5 cm^3 D_2/hour at NTP
Vacuum system: 1200 l/s oil diffusion pump with booster,
20 m^3/h mechanical pump, liquid N_2 trap
Final vacuum: below $2 \cdot 10^{-6}$ Torr with liquid N_2 trap
Pulsing method: klystron bunching
Compression factor: 1:10
Pulse width: 1 nsec
Pulse repetition rate: selectable between 10-1.25 MHz
Target holder: 0.3 mm thick aluminium tube, with stationary
TiT aluminium backing target
Target cooling: pressurized air
Power consumption: about 5 kVA
Water consumption: about 5 l/min
Air consumption: 5 m^3/h at 2 bar

The monitorization of the generator operation, the testing of the direct 14 MeV peak position and form, as well as the neutron yield monitoring is performed by the monitor TOF spectrometer. The block diagram of this spectrometer is shown on Fig. 6.

A relatively large, 50x50 mm stilben is mounted on a FEU-30 fast multiplier for neutron monitorization. The time signal is picked up from the anode by an ORTEC type 473A constant fraction of pulse height time pick-off. The positive

output pulse of the pick-off is delayed by an usual digital delay to the start input of the NE820 type time to amplitude converter. The stop signal for the TAC can be obtained from the pick up electrode of the generator or from the base oscillator through the selector impulse phase shifter. The neutron output of the generator is monitorized on the basis of the 14 MeV direct peak by a counter. The operation, the stability of the form and the position of the direct peak is monitorized by a MCA. The pick up signals have more jitter, so mostly the selector pulses from the base oscillator are used in the stop branch at longer experiments.

Acknowledgements

The authors would like to express their gratitude to Prof. J. Csikai for stimulating discussions, to B.E. Leschenko for his valuable suggestions as well as to A. Halmi and J. Szegedi for the excellent technical assistance.

References:

1 T. Sztaricskai et al.: ZfK-324 (1976)
2 L. Vasváry et al.: ZfK-470 (1982)
3 L. Vasváry, F. Divós, G. Pető, J. Csikai and N. K. Mumba: Investigations on Fast Neutron Interactions with Constructional Materials, To be published in Acta Phys. Hung.
4 J. Nagy: ATOMKI Reports 5, 143 (1963)
5 J. Erő, L. Vályi: KFKI Reports 5, 414 (1957)
6 Б. В. Ануфриенко, и др.: Препринт ФЭИ-307, (1971)
7 D. Lehman, D. Seeliger, A. Sgonina: ZfK-268 (1974)
8 Н. Н. Флеров и др.: Атомная Энергия 2, 44 (1957)
9 E. Klopfer: private communication
10 P. Bornemisza-Pauspertl: ATOMKI Reports 7, 47 (1965)
11 A. Szalay et al.: ATOMKI Reports 2, 3, (1960)

Referee: Gyula Szabó

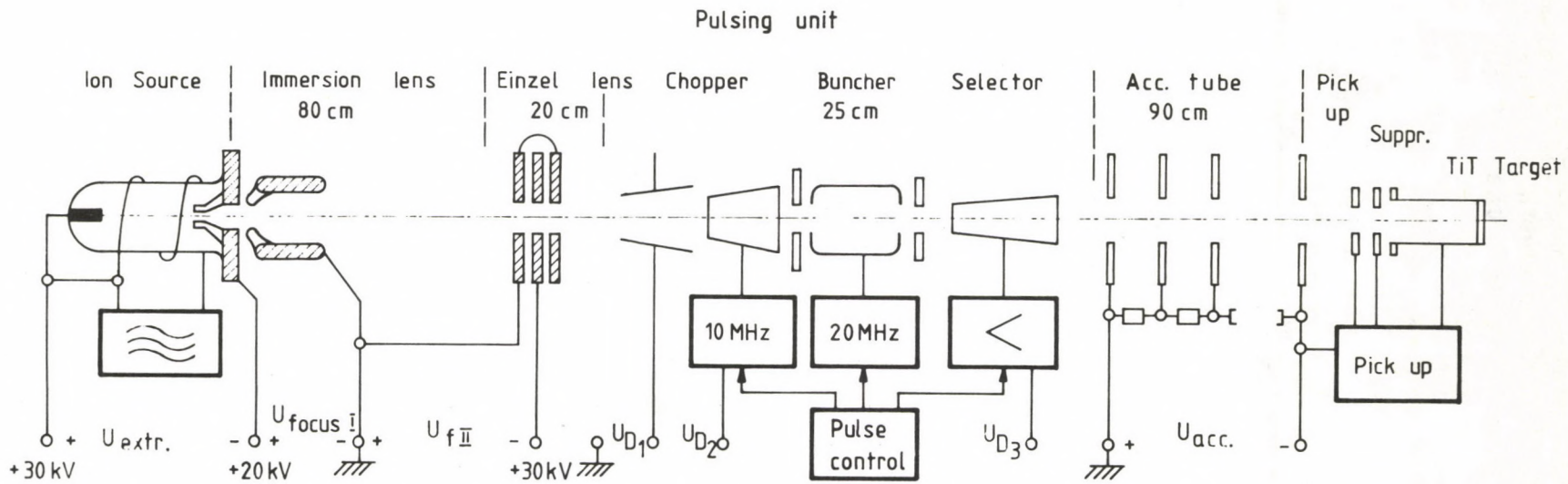


Fig.1. The ion optical set-up of PNG-300

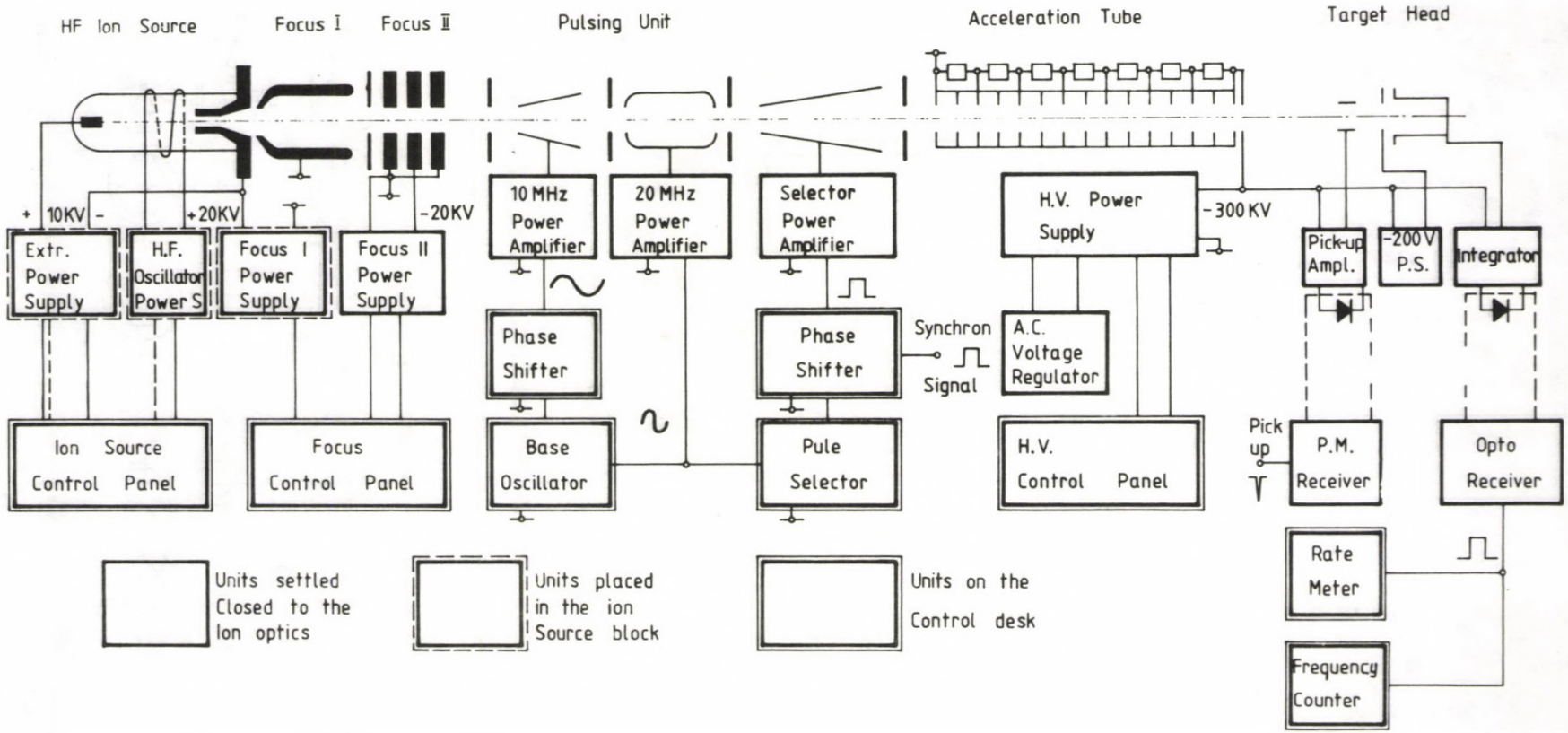
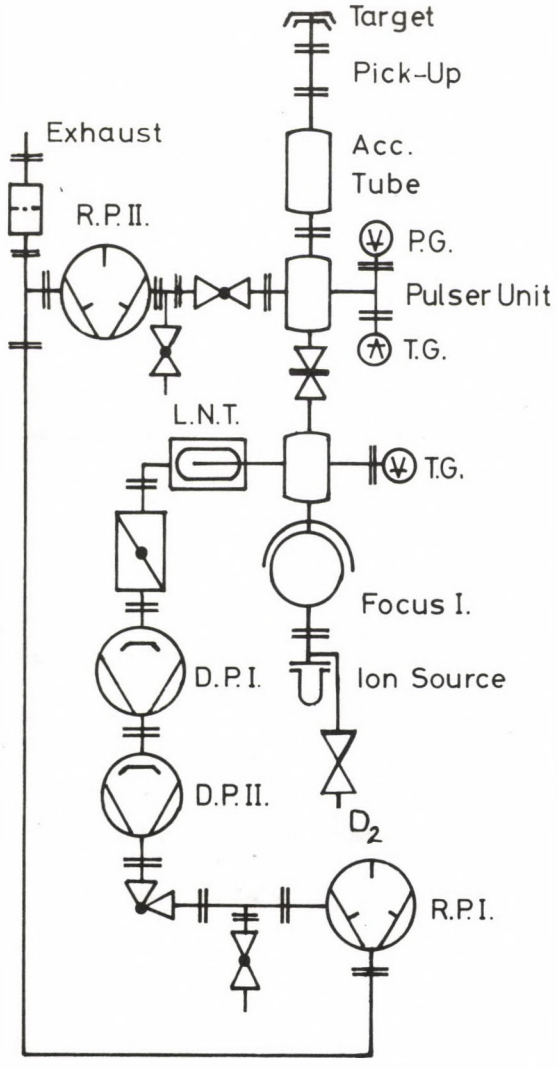


Fig.2. The block diagram of the PNG-300



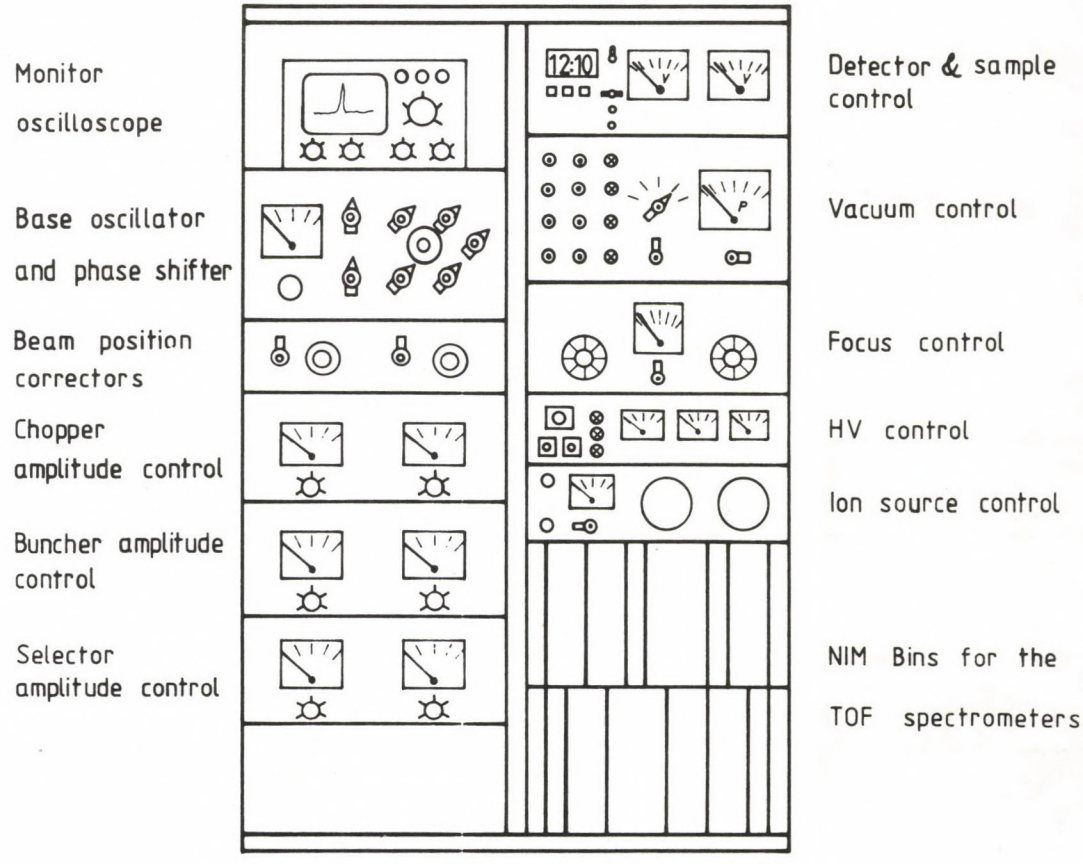


Fig.3. The vacuum system of the generator (on left)

Fig.4. The control desk

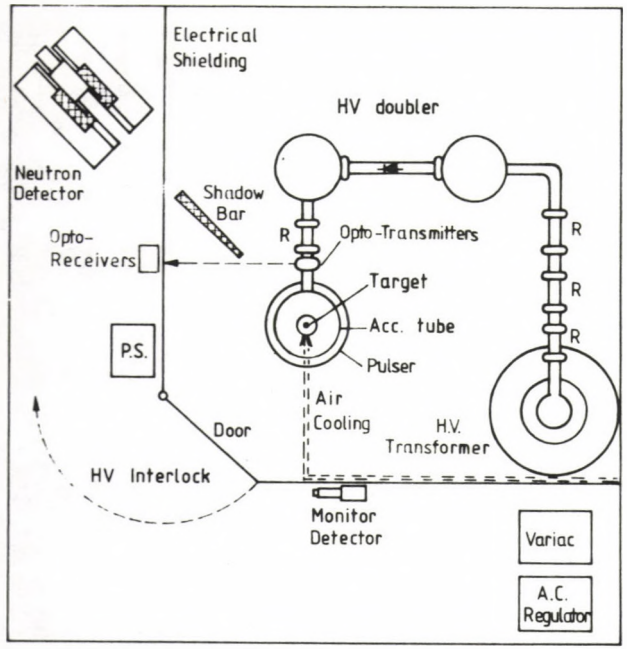


Fig.5. The generator hall

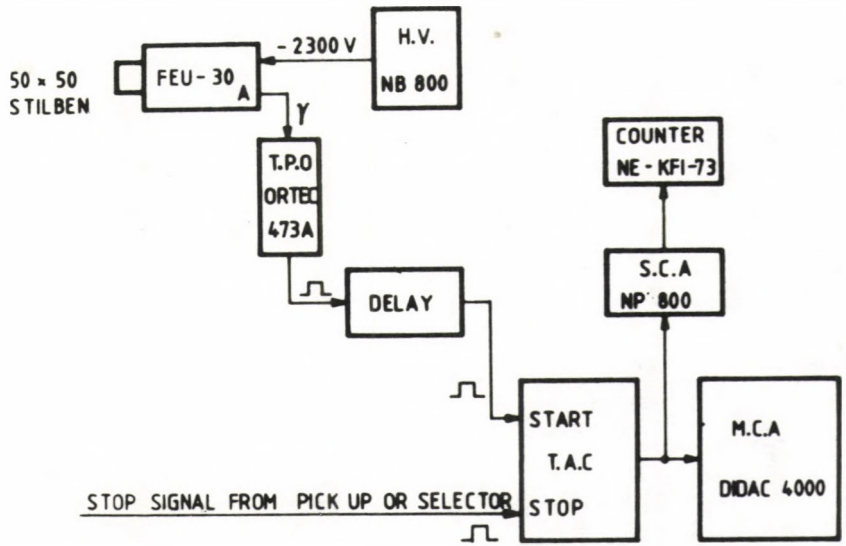


Fig.6. Block diagram of the monitor spectrometer

HU-ISSN 0231-3685

ATOMKI Riport X/14 (1985)

ANYAGVIZSGÁLÓ MŰSZEREK AZ ATOMKI-BAN

Berényi Dénes, Máthé György

-Röntgenemissziós analizátor
-Hordozható röntgenemissziós analizátor
-Elektronspektrométer
-Kvadrupól tömegspektrométer
-Supravezető kvantum interferométer (SQUID)

A több évtizedes magkutatás és magfizikai mérőmüszer fejlesztés során számos olyan lehetőség kinálkozott az ATOMKI-ban, ami korszerü anyagvizsgáló berendezés létrehozását tette lehetővé. Az intézet munkatársai felismerve, hogy az ilyen müszerek iránti igény a jövőben robbanás szerüen várható, esetenként nemcsak laboratóriumi szintü kisérleti mérőmüszereket hoztak létre hanem gyártásra alkalmas, üzemi laboratóriumokba, sőt közvetlenül a termelésbe telepithető berendezéseket. Ezeket kis sorozatban az intézet elő is állitja, esetenként exportálja.

A következőkben sorra ismertetjük ezeket a müszereket felsorolva:

- Milyen anyagvizsgálat végezhető velük?
- Az egyes összetevőknek mi a kimutathatósági határuk?
- Mekkora a mérési eredmény várható pontossága?
- A méréshez milyen minta preparálás kell, jelezve, hogy gyártási folyamatban mennyire alkalmazható?
- Felsorolunk néhány felhasználót, akik a müszert már alkalmazzák és referenciát adhatnak.
- Jelzést adunk, hogy az adott müszer specifikációja hogyan viszonyul hasonló tipusu fejlett tőkés termékhez.
- Amennyiben a szóbanforgó müszer már gyártásba került, akkor annak részletes müszaki leirása az intézettől beszerezhető. Erre a lehetőségre a tipusszám megadásával az adott helyen felhivjuk a figyelmet.
- Végezetül megadjuk azt a további fejlesztési célt, amit az adott téren kivánatos lenne a jövőben elérni.

1. Röntgenemissziós analizátor

Ha röntgen sugárzásnak teszünk ki anyagot, akkor az anyagban lévő egyes elemek atom burkában lejátszódó gerjesztési és ujabb röntgenemissziós folyamatok lehetőséget nyujtanak arra, hogy minden magnéziumnál nehezebb elemet a röntgenemissziós analizátorral kimutassunk, mennyiségét meghatározhassuk.

- A kimutatható mennyiség nagysága és a mérés pontossága attól függ, hogy mit és milyen elemek társaságában kivánunk mérni.
  - Optimális körülmények között ppm a kimutathatósági küszöb, néhány % relativ meghatározási hiba mellett.

- A vizsgált anyag lehet szilárd, por, folyadék esetleg gáz halmazállapotu. A vizsgálat - amennyiben kémiai módszerekkel történő koncentrálást nem alkalmazunk - roncsolásmentes.
- A szinesfém kohászatban Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Pb, Sn, Sb, Pb gyártásközi ellenőrzésére alkalmas. A Székesfehérvári Nehézfém öntödében üzemelő berendezésünk bronz, sárgaréz, különleges sárgaréz, L-68 és alubronz ötvözetekben a felsorolt elemeket méri, Cu esetén <0,6 relativ %, Zn és Sn esetén (>5 % koncentráció mellett) <1 relativ %, Mn, Fe és Ni (0,5 %-nál) <10 relativ % hibával.
  Vaskohászatban, magasan ötvözött acélok Ti, V, Cr, Mn, Co, Ni, W és Mo meghatározására alkalmas. Felhasználható az acélipari nyersanyagok, hulladékok, ferroötvözetek, martinsalakok Ca, Ti, V, Mn, Fe, stb. mennyiségi meghatározására.
  Geológiában, bányászatban ércek minősitése végezhető vele.
  Intézetünk készitette a Gabona Tröszt és a MÉM Élelmiszerellenőrző és Vegyvizsgáló Központ takarmány és élelmi anyagok mikroelem vizsgáló berendezését.
  A Hajdusági Iparmüvekben alapanyag ellenőrzésre és máshol előállitott szerkezeti elemek analizisére használják berendezésünket.
- Az ATOMKI-ban kifejlesztett NZ-860 röntgenemissziós analitikai mérőfej és az ezt kiszolgáló NZ-854 mikroszámitógép vezérlésü és adatkiértékelésü berendezés müszaki specifikációit illetően azonos, mérési sebességét tekintve jobb mint az azonos kategóriáju, radioaktiv gerjesztést használó nyugati berendezések. Utóbbi tulajdonsága miatt a jelfeldolgozó iránt a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség is érdeklődik, ill. ilyet már vásárolt, továbbá tagországnak kiajánlott.
- A mérőrendszer specifikus tulajdonságait tartalmazó NZ-860 és NZ-854 prospektusok az intézettől beszerezhetők.
- *További fejlesztési lehetőség, hogy a gerjesztést a vizsgálando anyag szempontjából optimálisra választott, röntgencsőből eredő, a jelfeldolgozás szempontjából maximális sebességet igérő pulzált nyalábbal oldjuk meg. Továbbá a mérőfejet a jelenleg nehézkesen kezelhető cseppfolyos levegőtől függetlenitsük. Ezek eredményeként gyorsabban mérő, gyártási folyamatba való közvetlen beavatkozást könnyebben lehetővé tevő, könnyebben telepithető, könnyebben kezelhető berendezést hozhatunk létre.*

2. Hordozható röntgenemissziós analizátor

Az előzőekben ismertetett röntgenemissziós analizátor széles tartományban szimultán analizálja valamennyi elemet. A hordozható müszer kifejlesztésével olyan célberendezést hoztunk létre, amely egy, vagy néhány elem jelenlétét illetve koncentrációját határozza meg gyorsan és pontosan, szükség esetén üzemi körülmények között. Azt, hogy mely elemre, vagy elemek kimutatására és mérésére legyen alkalmas a müszer, azt a konkrét feladattól függően konstruáljuk meg.

- Ca-tól Mo-ig ill. In-tól U-ig alkalmas analizisre. Kivánságra kiterjeszthető a mérés a Si - Sc - tartományra is.
- Pontosság tekintetében a hordozó anyag, annak mennyisége és a kimutatandó anyag minősége meghatározó jelentőségüek.

Gyengén ötvözött acélok esetében Cr és Mn 0-2 % koncentrációs tartományban 0,02 % ill. 0,03 % standard hibával lehet mérni.

- Sima felületü szilárd, továbbá por és folyadék minták mérhetők segitségével. Por esetén az anyagot homogenizálni kell és a mintatartóba kell préselni.
  Folyadék mintákba a mérőfej bemerithető.
- A müszer a közelmultban került kifejlesztésre.
  Ipari alkalmazása a jövőben várható.
- Hasonló kategóriáju külföldi berendezéseknél a saját fejlesztésünk nagyobb mérési pontosságot, rövidebb mérési időt biztosit.
- *További fejlesztési lehetőség, az ipari alkalmazások körének bővitése, a konstrukcio mechanikai egyszerüsitése a gyárthatoság érdekében. Továbbá kivánatos, a minta felület előkészitésével szemben támasztott követelmények csökkentését lehetővé tevő kutatások elvégzése, ill. ennek megfelelően egy tökéletesitett változat előállitása.*

3. Elektronspektrométer

Ha monokromatikus röntgen sugárzásnak tesszük ki az anyagot, akkor az anyagban lévő egyes elemek rendszámuktól függően különböző energiáju elektronokat emittálnak. Igy az elektronok energiájából, számából következtetni lehet a vizsgált minta elemi összetételére, az egyes elemek mennyiségére. Az egyes elemekhez tartozó csucsok eltolódása az energia skálán viszont kvantitativ információt szolgáltat az elemek kémiai állapotára.

- A módszer segitségével H és He kivételével minden elemet ki lehet mutatni.
- Érzékenysége nagyon jó (10^{-9}g) és közel azonos az egész rendszám tartományban. Az információt a vizsgált felület 0,1-1 nm-éből szolgáltatja, ami felület analizisnél nagy előny. A vizsgálati mélység növelhető 0,1-1 µm-ig ionmaratásos módszerrel.
- A mennyiségi meghatározás pontossága feladat függő, de általában jobb mint 10 %.
- A mérés ultra vákuumban történik, ennek megfelelően a minta preparálás utolsó fázisát is ilyenben kell végrehajtani. A mérés és adatkiértékelés mikroszámitógépes vezérléssel történik. A mérési időt általában a minta preparálás határozza meg. A spektrum felvétel és kiértékelés általában 15-20 perc.
- Az intézetben kifejlesztett berendezéssel csapágygolyók és csapágyak felület vizsgálatát végeztük, erőmüvi acélszerkezeti anyagok korrózióállóságát vizsgáltuk, aluminium ötvözetek felületén Mg feldusulást mértünk. Összesen hét elektronspektrométer (általában különböző) készült az ATOMKI-ban.
  Speciális célokra komplett elektronspektroszkópot készitettünk a miskolci Nehézipari Müszaki Egyetemnek és a Csehszlovák Magfizikai Kutató Intézetnek (Prága-Rez).
- Az intézetben kifejlesztett berendezés müszaki paramétereit tekintve azonos a tőkés piacon kapható hasonló kategóriáju elektronspektrométerekkel.

- *A további fejlesztések tekintetében igéretesnek kinálkozik, ha a felület vizsgálatot nagyenergiáju töltött részekkel végezzük és kombináltan alkalmaznánk az elektron spektroszkopiát más gerjesztő részecske nyalábokat felhasználo módszerekkel. Ezekhez a gyorsitók - Van de Graaff, ciklotron a jövőben rendelkezésre fognak állni.*

4. Kvadrupól tömegspektrométer

A kvadrupól tömegspektrométerek segitségével gázok, azok vegyületeinek, keverékeinek összetétele, az egyes összetevők mennyisége határozható meg. Ez egyben megnyitja a lehetőséget, vegyi folyamatok pl. fermentáció nyomonkövetésére, végtermékek analizálására pl. kipufogó gáz, erőmü égéstermék analizisre. Lehetőséget tud biztositani technológiai problémák megoldására. Segitségével nagynyomásu tartályok, vagy éppen vákuum -edények hegesztési hibái kimutathatók, a hiba próbagáz feltöltéssel vagy ráfuvással behatároható.

- Az ATOMKI-ban kifejlesztett tömegspektrométerekkel 1-től (hidrogén) az 500 tömegegységig minden gáz és ezek vegyületei kimutathatók.
- A mérhető legkisebb parciális nyomás $2\text{-}3\cdot10^{-11}$ mbar. Gyakorlatban nagynyomásu rendszerektől, igen jó minőségü vákuum térig a gáz összetétel analizálható.
  A mérés elvégezhető az egész méréstartományon optimális esetben 0,1 s alatt de kiválasztható és figyelhető egyetlen gáz mennyisége, ill. annak változása is.
- A vizsgálandó gáz bejuttatása a mérő rendszerbe a mérés természetétől függ. Nagy nyomás esetén kapillárison keresztül, vákuum térnél közvetlenül a vákuum rendszerre épitve a mérőfejet, juttatjuk be a vizsgált anyagot a rendszerbe.
- Az ATOMKI-ban kifejlesztett kvadrupól tömegspektrométereket felhasználja és gyártja a MEDICOR légzési gázok analizisére (orvosi légzésvizsgáló berendezés), a Bácsmegyei Épitőipari Vállalat Kecskeméten pedig nagynyomásu edények hegesztés vizsgálatára alkalmazza. Az Országos Mérésügyi Hivatal fémtömitéses, kikályházható vákuumrendszerek automatikus analizáló berendezéseként használja.
- Az intézetben mind kézi vezérlésü, mind mikroszámitógépes, klaviaturáról vezérelhető automatikus csucskiválasztást lehetővé tevő berendezések készülnek. Ezek a vezető tőkés müszerekkel azonos specifikációjuak. A kvadrupól spektrométerekből exportálunk szocialista országokba, mindenekelőtt az NDK-ba.
- A kvadrupól spektrométer specifikus tulajdonságait tartalmazó Q-300 prospektus az intézettől beszerezhető.
- *További fejlesztési lehetőség, hogy a gázanalizist ne csak önmagában kvadrupol spektrométerrel végezzük el, hanem a kvadrupolt gázkromatográfra kötve az azonos diffuzio sebesség alapján előszelektált gázt tudjuk spektroszkopiailag tovább analizálni. Igy egyértelmübb analizis várható különösen komplex gázok vizsgálata esetén.*

5. Szupravezető kvantum interferométer (SQUID)

Az ATOMKI-ban kifejlesztésre került egy a Josephson-effektuson alapuló nagyérzékenységü mágneses tér mérésére alkalmas müszer, a szupravezető kvantum interferométer (SQUID). Segitségével minden olyan fizikai mennyisgé mérhető, melyet mágneses tér változássá lehet konvertálni.

Elektromos feszültséget	10^{-12} V nagyságrendben,
mágneses momentumot	10^{-12} Am^2 érzékenységgel,
mágneses fluxust	10^{-18} Wb nagyságrendben, egyben pontossággal,
ohmikus ellenállást	10^{-11} Ohm nagyságrendben lehet mérni.

Müködésének elengedhetetlen feltétele cseppfolyós hélium hőmérséklet (4,2 ^{o}K) biztositása.

- Ipari alkalmazás szempontjából nagyjelentőségü, hogy valamennyi fém minősitésére alkalmas nagytisztaság szempontjából. Az öt, vagy több kilences fémekből készült geometriailag standardizált próbatestek 4,2 ^{o}K-on ellenállásának mértéke ugyanis jellemző a fém tisztaságára.
- A mérést megelőzően a vizsgálandó fémből próbatestet kell készitenі. Amennyiben az huzott, vagy hengerelt anyag, akkor azt hőkezelni kell a rácshibák redukálása céljából. Ezt követően cseppfolyós héliumba helyezve lehet az ellenállást meghatározni.
- Az ALUTRÖSZT és az Ajkai Timföldgyár és Aluminiumkohó megbizásából az intézet laboratóriumában több éven át minősitünk nagyszámu Ga és Al mintát.
- Az intézetben kifejlesztett müszer a világpiacon hozzáférhető hasonló berendezésekkel azonos müszaki paraméterekkel rendelkezik.
- *További fejlesztési lehetőség, ipari környezetben használhato müszer prototipusának megtervezése és számitógépes kiértékelés lehetőségének megteremtése.*

Szakmai lektor: Kis-Varga Miklós

HU ISSN 0231-3685

ATOMKI Riport X/15 (1985)

A DEBRECENI CIKLOTRON IPARI ALKALMAZÁSI LEHETŐSÉGEINEK ÁTTEKINTÉSE

Ditrói Ferenc, Takács Sándor, Tárkányi Ferenc
MTA Atommag Kutató Intézete, Debrecen

Debrecenben, a Magyar Tudományos Akadémia Atommag Kutató Intézetében 1985 második felében megkezdi müködését hazánk első ciklotron laboratóriuma. Ismeretes, hogy a ciklotronok szerepe és jelentősége világszerte növekszik az ipari kutatás, fejlesztés és termelés területén.

Az ATOMKI jelentős erőfeszitéseket tesz arra, hogy a mag- és atomfizikai alapkutatási feladatok megoldásán tulmenően a ciklotron gyakorlati és multidiszciplináris alkalmazásait is felfuttassa.

Az áttekintés első részében összefoglaljuk azokat a módszereket és lehetőségeket, amelyek alkalmazása a magyar ipar területén legperspektivikusabbnak látszik. Ezt követően ismertetjük a ciklotron főbb paramétereit és röviden vázoljuk a gyakorlati együttmüködés technikai körülményeit.

1. Szilárd és folyékony anyagok összetételének vizsgálata

Napjainkban a feldolgozóipar legkülönbözőbb ágai követelik a nagytisztaságu, vagy bizonyos szennyezőktől mentes, esetenként pontos ötvözésü alapanyagok szállitását. Ezeknek az anyagoknak az előállitása, az előállitási technológiájuk kidolgozása, ellenőrzése korszerü nagy teljesitő képességü, megbizható ellenőrző, analizáló módszerek használatát feltételezi és igényli. A ciklotron üzembehelyezésével a hazai ipar szolgálatába állithatunk egy a fejlett ipari országokban széleskörüen alkalmazott nagypontosságu analitikai módszert, a töltött részecske aktivációs analizist (CPAA). A módszer töltött részecske besugárzással keltett hosszabb felezési idejü (>10 perc) izotópok bomlását kisérő gamma- és béta sugárzás detektálásán alapul. Alkalmas a mintában található nyomszennyező elemek azonositására és koncentrációjuk meghatározására. Érzékenysége egyes esetekben a ppb (10^{-9} g/g) szintnél is alacsonyabb. Ugyanakkor nemcsak a szennyezők, hanem az ötvözők és a minta fő komponensének pontos mennyiségi meghatározása is lehetséges.

Például proton aktivációs analizissel a következő nagytisztaságu anyagok vizsgálhatók: Be, C, Na, Mg, Al, Si, Mn, Co, Tb, Ho, Ta, Bi és Rh.

További 12 nagytisztaságu anyag 5 napnál hosszabb felezési idejü izotópot eredményező nyomelemeinek vizsgálata lehetséges proton aktivációs módszerrel. Ezek az elemek a következők: Ca,

Sc, Ni, Ag, Nb, Ba, Ce, Pr, Dy, Ir, Au és Tl.
Példaként felsoroljuk az aluminiumban meghatározható nyomelemeket is. 10^{-3}-10^{-2} ppm határok között meghatározható elemek: Ca, Ti, Cr, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, Se, Br, Rb, Y, Zr, Mo, Ru, Pd, Cd, Sn, Te,
10^{-2}-10^{-1} ppm határok között meghatározható elemek: Li, V, Fe, As, Sr, Nb, Ag, Sb, I, Pt, Hg, Nd, Er,
10^{-1}-1 ppm határok között meghatározható elemek: B, S, Re, Ir, Au, Tl, Pb, La, Pr, Sm, Gd, Dy, Yb
1-30 ppm határok között meghatározható elemek: In, Ba, V, Eu, Rh, Tb.
A ciklotron a protonokon kivül további három részecske a deutérium, Hélium-3 és Hélium-4 (alfa) részecske gyorsitására is alkalmas. Ennek megfelelően a fent vázolt vizsgálati lehetőségek tovább bővithetők. Igy például töltött részecske aktivációs analizissel egyedülálló érzékenységgel lehet meghatározni aluminiumban, tantálban és más anyagokban az oxigén térfogati koncentrációját.

Természetesen a fent emlitett nagytisztaságu elemeken tul azok vegyületeinek, ötvözeteinek keverékeinek illetve oldatainak nyomszennyező vizsgálata is lehetséges. Ugyanis a ciklotron laboratóriumban kialakitandó besugárzó helyek nemcsak szilárd hanem folyékony halmazállapotu minták besugárzását és vizsgálatát is lehetővé teszik. Ugyanakkor tervezzük gáz fázisu minták vizsgálatát is.

A fent vázolt töltöttrészecske aktivációs analizis mellett a ciklotron neutronforrás segitségével lehetőség lesz gyors-neutron aktivációs analizis végzésére is. A módszer jól használható azon elemek vizsgálatára, amelyek termikus neutron hatáskeresztmetszete alacsony. Pl.: Li, Be, B, C, N, O, Si, P, S, Cr, Fe, Os, Pb, Bi.
Az aktivációs módszer előnye, hogy a vizsgálat sokelemes, nagyérzékenységü és roncsolásmentes.

A ciklotronnál alkalmazható nukleáris analitikai módszerek a különböző de adott tulajdonságu anyagok, elsősorban nagytisztaságu fémek, ötvözetek, félvezető alapanyagok előállitásánál, az előállitási technológiák kidolgozásánál eredményesen használhatók. Például egy tisztitási folyamat kiinduló, közbenső szakaszaiból valamint a végtermékből vett minták analizisével meghatározható az alkalmazott tisztitási technológia hatásossága az egyes szennyezőkre nézve. A vizsgálat eredményei felhasználhatók a technológiai folyamat irányitására illetve ellenőrzésére használt analitikai módszer abszolut kalibrálására, vagy a technológia beállitására. A módszereink alkalmazásával olyan végtermék előállitására van lehetőség, amely jobban megállja a helyét a hazai és nemzetközi piacon, és magasabb áron is értékesithető.

2. Analitikai vizsgálatok a félvezetőiparban

Az elektronizáció robbanásszerü fejlődésével a nukleáris analitikai vizsgálatok egyik legperspektivikusabb alkalmazási területe a félvezetőipar. Napjainkban a korszerü mikroelektronika egyre inkább igényli a jóminőségü félvezető alapanyagok és félvezető alkatrészek hazai előállitását. A gyártás egyik alapvető feltétele a gyártási technológiák és a gyártmányok megbiz-

ható ellenőrzése. A félvezetőipar egyre nagyobb tisztaságu alapanyagokat kell hogy előállitson, amelyek szennyezőkoncentrációjának (sokszor ppb szint alatti) meghatározására a nukleáris analitikai módszerek jó lehetőséget nyujtanak. Az alkatrészek gyártása folyamán a különböző szennyezettségü és minőségü rétegek előállitásának ellenőrzése legalább a technológiai eljárás kifejlesztése során szintén fontos feladat. A félvezető lapkák gyártásakor a több egymás fölötti rétegben a szennyezők mélységi eloszlásának ismerete nagy segitséget adhat a technológia kedvező irányba történő módositásához. Részecskeszórás segitségével a felületkezelést követően a felület közelében kialakult rácshibák is felfedezhetők, valamint ezzel a módszerrel az epitaxiális rétegek és a felpárologtatott kontaktusok vastagsága és összetétele is megállapitható. A teljesség igénye nélkül felsorolunk néhány alkalmazási területet, ahol a félvezető és elektronikai ipar és az ezekhez kapcsolódó kutatás gyümölcsözően használta fel a nukleáris analitika lehetőségeit: szennyezés eloszlás, felületi boritottság mérése; szerkezeti vizsgálatok, rácshibák kimutatása; mikrometallurgia, korróziós vizsgálatok; felületen létrehozott illetve implantált rétegek vizsgálata, litográfiai lakkok exponálása; oxigén, B, C, Al és más könnyü elemek meghatározása a félvezető anyagban; vékonyrétegek vastagságának mérése; elektronikai célra használt nem félvezető anyagok (kerámia, szigetelők, fémek) vizsgálata.

Néhány az utóbbi időben végzett analitikai vizsgálat ciklotronon:

- Polikristályos szilicium nyomszennyezőinek vizsgálata (Li, B,S,Ca,Ti,V,Cr,Fe,Ni,Cu,Zn,Ga,Ge,As,Se,Br,Rb,Sr,Y,Zr,Nb,Mo, Ru,Rh,Pd,Ag,Cd,In,Su,Sb,Te,I,Ba,W,Re,Ir,Pt,Au,Hg,Tl,Pb)
- Nyomszennyezők (O,N,P...) viselkedése polikristályos szilicium metallurgiájában
- Oxigén koncentráció meghatározás szilicium és GaAs-ben
- N, O és P meghatározás sziliciumon kialakitott epitaxiális rétegben
- Hidrogén meghatározás nap-elem céljaira használt amorf sziliciumban

3. Korrózió, erózió és kopás vizsgálatok, nyomjelzéses technika

A/ Vékony réteg aktivációs technikát kopás, korrózió és eróziós folyamatok vizsgálatára használják. Az aktiválás nehéz töltött részekkel történik. Az aktivitás-mélység összefüggés pontos ismeretében a kopás, korrózió vagy erózió következtében eltávozott anyag mennyiségét pontosan meg lehet határozni. Az aktivált réteg vastagsága 10-1000 µm között változik, az aktivált felület néhány mm^2-től néhány cm^2-ig terjedhet. A minta mozgatásával az egész felület felaktiválható. Aktiv atommagokat lehet előállitani változatos anyagokban (vas, réz, titán, stb.) ugyanakkor diffuzióval és nukleáris reakciókban történő meglökődés segitségével is juttathatók nyomjelző radioaktiv izotópok olyan anyagokba, amelyek egyébként közvetlenül nem aktiválhatók. Amennyiben nem magát a mintát, hanem a különböző folyamatokban leváló részecskék aktivitását mérjük, és viszonylag nagyobb aktivitások is megengedhetők, lehetőség van a minta teljes tömegének felaktiválására a ciklotron neutronforrás segitségével. A felaktivált mintáról üzemszerü vagy mesterséges körülmények közötti kopás

korrózió, vagy erózió következtében részecskék válnak le. A maradék vagy a levált részek, esetleg mindkettő, aktivitását mérve a kopási, korróziós folyamatok pontosan követhetők.

A vizsgálatok célja meghatározni egyes alkatrészek mozgó, csuszó, vágó felületeinek elhasználódását, ellenőrizni az agressziv kémiai közegeknek kitett anyagok korróziós folyamatait.

A továbbiakban felsrolunk néhány alapanyagot, melyek után zárójelbe tettük, hogy milyen összetevőjük alapján célszerü a kopásukat mérni.

acél - (Fe,Ni,Cr); bronz - (Cu); kerámia - (Al); dörzsanyag - (Si); gyémánt - (C); oxidok - (O); nitridek - (N)

Néhány gyakorlati felhasználási terület és ciklotronon végzett konkrét vizsgálat:

- motorok dugattyujának dugattyu gyürüinek és hengerfalának kopásvizsgálata
- kenőanyagok minősitése a surlódó felületek kopásának mértékében
- járművek (vasuti, közuti) futőfelületeinek kopásvizsgálata
- forgácsoló szerszámok vágóéleinek kopása
- acéllemezek oxidációs kinetikájának vizsgálata
- rozsdamentes acélcsövek korróziójának vizsgálata
- üreges korrózió vizsgálata kettős vékonyréteg aktiválással
- kémiailag agressziv anyagokkal érintkező alkatrészek korróziójának vizsgálata
- orvosi protézisek kopásának vizsgálata (pl. mesterséges fémizületek)
- hengermüvek hengereinek üzemszerü kopása, stb.

A módszer előnye, hogy a természetes körülmények között történő vizsgálatoknál gyorsabban kaphatunk pontos adatokat a felületek kopásáról, a felületkezelési eljárások hatékonyságáról. Ez a fejlesztés idejét jelentősen lerövidítheti, a megfelelő kezelési eljárás pedig a késztermék értékét növeli. Az egyes alkatrészek kopásának ismeretében megállapitható a leggazdaságosabb felhasználási idő is.

B/ Nyomjelzéses technika

A ciklotronnal gyakorlatilag a periodusos rendszer minden elemének előállitható olyan, hosszu vagy rövid felezési idejü izotópja, mely az izotópfelhasználó szempontjából számitásba jöhet.

A ciklotron izotópok magasabb előállitási költsége miatt ezeket az izotópokat ott célszerü alkalmazni, ahol

a./ kihasználható a ciklotronok azon speciális sajátossága, hogy a ciklotron töltöttrészecske nyalábjával roncsolásmentesen, a kivánt mélységig nyomjelezhető a minta felülete

b./ nincs megfelelő tulajdonságu reaktor-izotóp

A korszerü öntészeti, olvasztási eljárások, vegyipari folyamatok kidolgozására és ellenőrzésére az anyagok összetételétől függően szükség lehet ciklotron izotópok alkalmazására. Különösen fontos a ciklotron izotópokkal történő nyomjelzés a gyógyszeripar számára, farmakológiai gyógyszerkutatásban főleg ipari kutatások céljaira.

A nyomjelzéses vizsgálatok elvégzését a ciklotron-laboratóriumban létrehozott besugárzóhelyek a beindulást követően azonnal lehetővé teszik. Az izotóp termelő nyalábvégen a szükséges nyomjelző izotópok előállithatók. Más nyalábvégeken lehetőség van a minták felületének felaktiválására töltött részecské-

kel, vagy egész tömegének aktiválására neutronokkal. A létrehozott aktivitás mérésére Ge(Li) és Na(I) detektoros gamma-spektrométerek állnak rendelkezésre.

4. Besugárzásos és radiográfiai vizsgálatok töltöttrészecske nyalábokkal és gyorsneutronokkal

Az intenziv radioaktiv sugárzásnak kitett anyagok fizikai paraméterei kedvező vagy kedvezőtlen irányba megváltoznak. A fuziós és a hasadási reaktorok technológiájában fontos, hogy az alkalmazott anyagok minél tovább megőrizzék kedvező tulajdonságaikat. A reaktorok neutronjainak szerkezeti anyagokra gyakorolt sugárkárositó hatását laboratóriumi körülmények között jól tanulmányozhatjuk a ciklotron töltöttrészecske és gyorsneutron nyalábjai segitségével.
Néhány alkalmazási példa
- gyors neutronok hatásának vizsgálata elektromos kábelek szigetelő rétegére
- Fe-Ni-Cr ötvözetek szakitási nyujtási sajátságainak vizsgálata felület alá injektált He segitségével
- sugárzással létrehozott felületi keményedés mélység eloszlásának vizsgálata 10 MeV ^{4}He besugárzott Mo mintán
- reaktor szerkezeti anyagok vizsgálata.

A radiográfiai vizsgálatoknál a ciklotron töltöttrészecske nyalábjainak segitségével vékony, max. 1 mm vastag lemezek, a neutronforrás lelassitott neutronjaival pedig vastagabb minták világithatók át és vizsgálható azok szerkezete.

5. Környezetvédelmi vizsgálatok

Az egyre nagyobb mértékü iparosodás korszakában sürgető probléma környzetünk tisztaságának megóvása. Ennek a legfontosabb módszere az ipari szennyezés környezetbe való kikerülésének megakadályozása. A környezetvédelmi vizsgálatok alapvető feladata a szerves életre (ember, állat, növényzet) veszélyes elemek szintjének ellenőrzése a környezetben (felszini és hálózati vizekben, levegőben, növényi és állati részekben, sőt emberektől származó mintákban (pl. haj)). Erre a célra a függelékben leirt analitikai módszerek alkalmasak. A legmegfelelőbb eljárás kiválasztását az határozza meg, hogy milyen nyomelemekre vagyunk kiváncsiak, és hogy milyen mintavételi lehetőségünk van. A levegőre kihozott töltöttrészecske nyalábbal CPAA, PIXE vagy PIGE történő analizis kiválóan alkalmas szilárd és folyadékminták elemzésére.
Néhány példa a fenti vizsgálatokra:
- légköri aeroszol vizsgálata
- természetes vizek szennyezettségének mérése különböző mértékben iparositott területeken
- hálózati vizek nyomelemtartalmának vizsgálata, következtetés a hálózat állapotára
- ipari és gyógyászati célra használható termálvizek mikroelemtartalmának vizsgálata
- élelmiszerek és élelmiszeralapanyagok vizsgálata egészségre hasznos és káros nyomelemek szempontjából
- növényekbe beépült nehézfémek (pl. ólom) koncentrációjának vizsgálata

6. Geológiai vizsgálatok

Az ipar növekvő nyersanyagigénye egyre ujabb nyersanyagforrások feltárását, és a régen gazdaságtalannak tartott források (kimerült bányák, meddőhányók) ujbóli feltárását követeli. A kitermelést viszont meg kell hogy előzze a kérdéses területről vett minták elemzése. Erre nyujtanak jó lehetőséget az általunk alkalmazható analitikai módszerek. Használatuk segitséget adhat a geológia tudományának is egyes kőzetek és talajtipusok összetételének meghatározásában. Mivel módszereink többsége roncsolásmentes, ezért lehetőség van arra, hogy a mintákat egyszerre, vagy egymás után többféle módszerrel is megvizsgáljuk, s igy megbizható abszolut eredményeket kapjunk.
Néhány alkalmazási példa:

- kőzetek összetételének vizsgálata (makro- és mikrokomponensek)
- próbafurások mintáinak vizsgálata
- fosszilis fütőanyagok (szén, kőolaj) és azok alapkőzetének vizsgálata
- különböző anyagok származásának meghatározása az összetételük alapján

7. A vizsgálatok lefolytatásának kivitelezése

A ciklotron laboratóriummal kapcsolatos alkalmazási feladatok felmérésével, az együttmüködő partnerek informálásával, a vizsgálatok elvégzésével egy 10 fős Alkalmazási Csoport foglalkozik. A felkészülés során a csoport tagjainak a legfontosabb módszerek elsajátitására lehetősége nyilt, részben az intézet más gyorsitóin, részben hasonló méretü külföldi ciklotronokon.

Az áttekintésből kitünik, hogy a ciklotron beinditásával egyidőben lényegében majdnem minden fontosabb alkalmazás lehetőségei készen állnak.

Ismételten szeretnénk aláhuzni, intézetünk nagy sulyt helyez a ciklotron gyakorlati, ezen belül az ipari feladatok megoldásában való felhasználására.

Végezetül közöljük néhány összefoglaló munka és konferenciaanyag jegyzékét, amelyekből az egyes fejezetek végén felsorolt vizsgálatokról részletesebb ismeretek is szerezhetők.

1. Az atomenergia és magkutatás legujabb eredményei I. Gyorsitóberendezések népgazdasági alkalmazásai (Munkaközösségvezető Mahunka Imre) Akadémiai Kiadó, Bp. 1983.
2. Valek A. ATOMKI Közlemények 22/1. melléklet (1980)
3. Szabó-Simonits Aktivációs Analizis, Müszaki Kiadó, Bp. 1973.
4. Ciklotronok interdiszciplináris kihasználásáról a fizikában, kémiában, biológiai-orvosi tudományokban és a gyakorlatban, ATOMKI Közlemények 17 (1975)
5. 7th International Conference on Cyclotrons and their Applications Zürich, 19-22 aug. 1975.
6. Conference on the Applications of small Accelerators in Research and Industry, Denton, Texas, 1970-82 (két évenként tartott konferenciák anyaga).

FÜGGELÉK

A debreceni MGC ciklotron primer és szekunder besugárzó nyalábjai

Az ATOMKI-ban a leningrádi Jefremov Elektrofizikai Berendezések Tudományos Kutató Intézete által gyártott MGC tipusu kisméretü kompakt izokrón ciklotron kerül elhelyezésre.

Ez a ciklikus gyorsitó proton, deuteron, alfa és hélium-3 részecskéket tud gyorsitani. A gyártó által garantált nyalábadatok az I. táblázatban találhatók. A részecskék energiája és intenzitása a táblázatban megadott határok között folyamatosan változtatható. A felgyorsitott nyalábot felhasználhatjuk besugárzásra magában a ciklotronban, vagy a ciklotronból kihozva alkalmasan kiépitett besugárzó mérőhelyekre vihetjük. A gyorsitó nyalábtranszport rendszerét az 1. ábrán tüntettük fel. A jelenlegi kiépités szerint alkalmazási célokra a belső nyalábot vagy az ábrán x-al jelölt nyalábvégeket használhatjuk.

A gyorsitóból közvetlenül kapott p,d,alfa, ^{3}He töltöttrészecske nyalábokon kivül a ciklotront felhasználjuk másodlagos sugárforrásként neutronok termelésére. A ^{9}Be és deutérium vastag céltárgyakon deuteronokkal és protonokkal keltett magreakciókban folytonos energiaspektrumu, zömében gyors neutronok keletkeznek. A neutronhozamokat átlagenergiákat, maximális energiákat és a forrástól 3 cm-re mért fluxusokat a II. táblázat tartalmazza. A folytonos energiaspektrum a céltárgyfajta és vastagság valamint a bombázó nyaláb energiájának módositásával változtatható.

A gyorsitó egyik széleskörü felhasználási lehetősége a nukleáris analitika. Segitségével sok olyan analitikai feladat megoldható, melyekre jelenleg nem áll rendelkezésre hagyományos eljárás. A nukleáris analitika hasznos segitséget nyujt a hagyományos módszerek megbizható kalibrálására is. Sok esetben az elérhető érzékenység jóval meghaladja minden más ismert analitikai eljárását.

Alábbiakban a ciklotron laboratóriumban a meglévő és a tervezett berendezések segitségével megvalósitható analitikai vizsgálatokat foglaljuk össze. Ezeket a módszereket többféleképpen csoportosithatjuk aszerint, hogy milyen részecskéket használunk gerjesztésre, milyen sugárzást vizsgálunk, és a mérést a besugárzással egyidőben (prompt) vagy bizonyos idő elteltével végezzük.

1. Töltöttrészecskés módszerek

a/ PIXE (Részecskével Keltett Röntgen Emisszió): prompt módszer, a belső atomi héjak közti elektronátmeneteket kisérő röntgensugárzás detektálásán alapul. A mintában található elemek azonositására és koncentrációjuk meghatározására alkalmas. A meghatározás alsó határa általában a Z=12 rendszám körül van, amely bizonyos módszerekkel (speciális detektor...) kiterjeszthető a könnyebb elemek felé. A módszerrel szilárd, gázt ki nem bocsájtó (vákuumba helyezhető) minták vizsgálhatók. A módszer továbbfejlezstett változata az un. kihozott PIXE amelynél a méréseket levegőre, vagy semleges (hélium, nitrogén) atmoszférában kihozott nyalábon végezzük. Ezen változtatás segitségével már folyadék és gázminták is vizsgálhatók. A módszer érzékenysége ppm

szintü, egyes elemekre és bizonyos mátrixokra ennél jóval nagyobb érzékenységeket is értek már el. A módszer jól alkalmazható még mélységi és felületmenti szennyeződés eloszlás feltérképezésére is.

b/ PIGE (Részecskével Keltett Gamma Emisszió) prompt módszer, az atommagok gerjesztett állapotai közti átmeneteket kisérő gamma sugárzás detektálásán alapul. Lehetővé teszi az elemek azonositását és a koncentrációjuk meghatározását. Könnyü elemekre (Z<12) is jól alkalmazható. Érzékenysége függ attól, hogy milyen nyomszennyezőt milyen alapanyagban akarunk meghatározni, de a rutinszerü méréseknél az érzékenység a ppm és ppb szint között mozog. A mérések szitén végezhetők vákuumban és levegén is.

c/ Részecskeszórás: prompt módszer, a minta felületi rétegében rugalmasan szóródott bombázórészecskék detektálásán alapul. Aszerint, hogy a nyaláb irányához képest előre, vagy hátrafelé eső térfélben detektáljuk a részecskéket, megkülönböztetünk előre és visszaszórást (RBS-Rutherford Visszaszórás). Ezt a módszert ritkábban használják pusztán az elemek azonositására, legtöbb esetben egyes szennyezők mélységi eloszlásának mérésére, felületre párologtatott vékony rétegek vastagságának és minőségének mérésére használják. A mérések a töltött részecskék korlátozott hatótávolsága miatt csak vákuumban végezhetők.

d/ CPAA (Töltöttrészecske Aktivációs Analizis), késleltetett módszer, töltöttrészecske besugárzással keltett hosszabb felezési idejü (> 10 perc) izotópok bomlását kisérő gamma- és béta sugárzás detektálásán alapul. Alkalmas a mintában található elemek azonositására és koncentrációjuk meghatározására. Érzékenysége egyes esetekben a ppb szintnél is alacsonyabb, és a legtöbb elem jól mérhető. A felület vékony rétegének aktiválásával a módszer surlódó alkatrészek kopásának korróziónak, erózionak kitett anyagok tulajdonságainak közvetett vizsgálatára is használható.

A leirt módszerek sokelemesek (egy mérésben több elem határozható meg) és roncsolásmentesek, de bizonyos nyomelemek meghatározásánál a CPAA módszer alkalmazása során, a nagyobb érzékenység elérése céljából a besugárzás után kémiai szeparációra is szükség lehet.

2. Analitikai vizsgálatok neutronnyalábon

NAA (Neutron Aktivációs Analizis) késleltetett, sokelemes módszer, neutron besugárzással keltett izotópok bomlásából származó rádióaktiv sugárzás detektálásán alapuló, az egyik legjobban elterjedt analitikai müdszer. A módszer két csoportra osztható aszerint, hogy termikus vagy gyors neutronokkal végezzük a besugárzást. Termikus neutronokat nagy fluxussal atomreaktorokban lehet előállitani, de a gyorsitók neutronforrása is alkalmas erre a célra a nagyobb energiáju spektrumrész lelassitásával (a lassitás valamilyen könnyü elemet tartalmazó anyaggal, pl. paraffin történik). Gyors neutronokat leggyakrabban 14 MeV-es neutrongenerátorokkal állitanak elő, de a ciklotron-neutronforrás is, nagyságrendekkel nagyobb neutronfluxusa miatt, kiválóan

alkalmas gyorsneutron aktivációs célokra, főleg olyan elemek esetében, amelyek termikus neutronokkal nem, vagy rosszul aktiválhatók (pl. O,N,Si...).

A felsorolt nukleáris módszerek optimális megvalósitásánál nagy előny, hogy az ATOMKI-ben a ciklotron mellett rendelkezésre áll egy 5 MV-os névleges feszültségü Van de Graaff generátor, melynek kis energiáju töltöttrészecske nyalábja előnyt jelent bizonyos analitikai módszereknél, továbbá az, hogy az intézetben hosszu idő óta sikeresen alkalmaznak más analitikai módszereket is, pl. röntgenfluoreszcencia analizis, elektronspektroszkópia, tömegspektrometria. A ciklotron mellett létesülő izotóplaboratóriumban lehetőség lesz hagyományos analitikai vizsgálatok elvégzésére.

A fent emlitett módszereket természetesen nem külön-külön, hanem kombinálva, egymás megerősitésére és kiegészitésére célszerü használni. Az épülő laboratórium egyik előnye éppen abban van, hogy egy helyen áll rendelkezésre az analitikai módszerek széles skálája és az a tapasztalat, ami az anyagvizsgálati módszerek és müszerek fejlesztése és alkalmazása terén az évek során felhalmozódott. Igy szinte tetszés szerint kiválaszthatjuk a megoldandó probléma szempontjából legmegfelelőbb módszert.

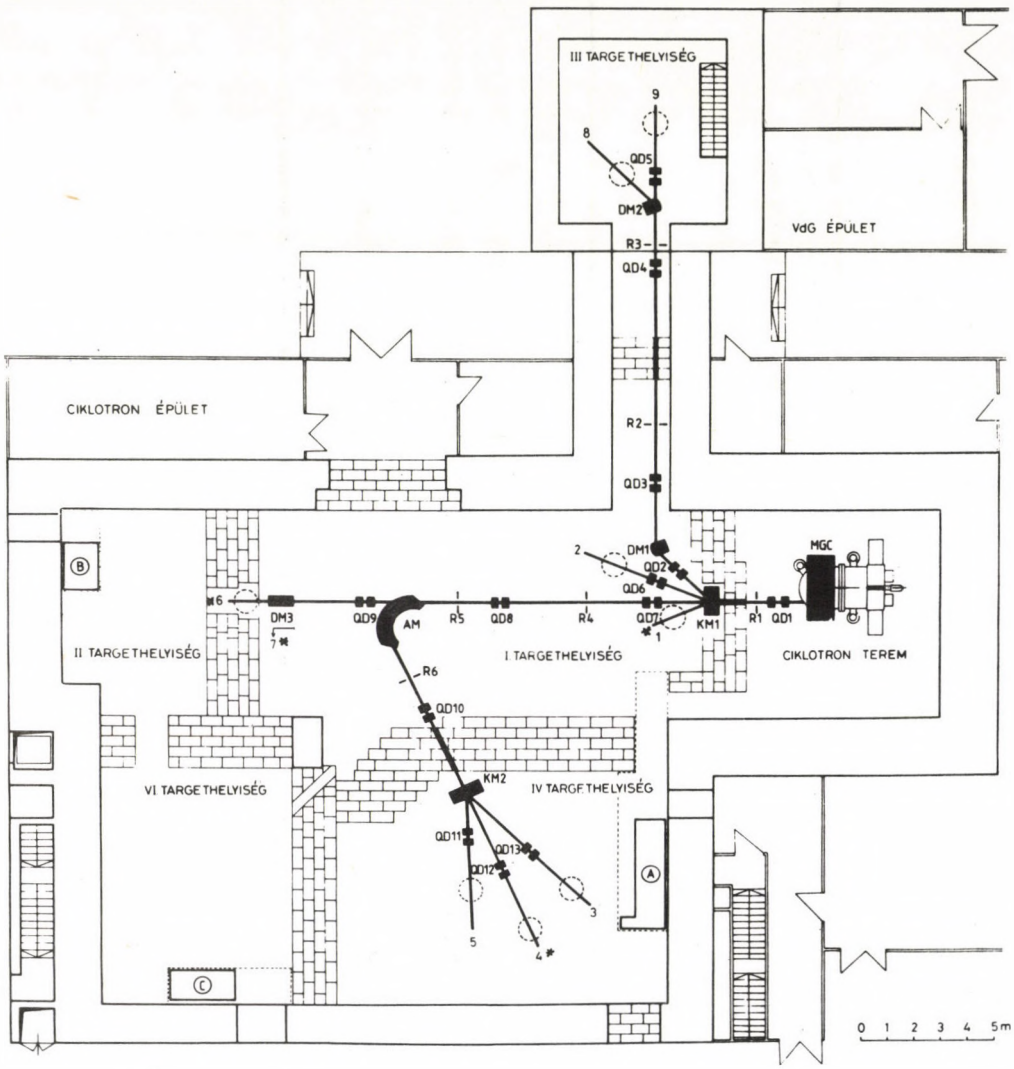
Szakmai lektor: Berényi Dénes

I. táblázat: Az MGC ciklotron nyalábadatai

Gyorsitott részecskék	belső nyaláb		külső nyaláb	
	energia (MeV)	intenzitás (μA)	energia (MeV)	intenzitás (μA)
P	2-20	200	5-18	50
d	1-10	300	3-10	50
$^{3}He^{++}$	4-26	50	8-24	25
$^{4}He^{++}$	2-20	50	6-20	25

II. táblázat: A tervezett neutronforrások fontosabb adatai

Céltárgy	Bombázó részecske és energia	neutronok MeV átlag-energiája	neutronok MeV max. energiája	hozam (I_B=50 μA) n/s	fluxus d=3 cm távolságban $n/cm^2.s$ (I_B=50 μA)
Be szilárd	proton 18 MeV	3,7	16	$1,19.10^{13}$	$1,05.10^{11}$
Be szilárd	deuteron 10 MeV	3,9	13,5	$6,31.10^{12}$	$6,1.10^{10}$
nehézviz (D_2O)	deuteron 9 MeV	6,6	13	$1,88\text{-}2,5.10^{12}$	$1,9\text{-}2,2.10^{10}$
deuteron gáz D_2	deuteron 10 MeV	9,1	13	$7,5.10^{12}$	$6,66.10^{10}$



1. ábra: A ciklotron laboratórium alaprajza, és a nyalábcsatornák rendszere.

HU ISSN 0231-3685

ATOMKI Riport X/16 (1985)

MIKROSZKOPIKUS KOLLEKTIV MODELLEK*

Lovas Rezső

az MTA Atommagkutató Intézete, Debrecen, Pf. 51,
H-4001

Az atommag kollektiv mozgásainak Rosensteel-Rowe-féle mikroszkopikus elméletét mutatom be. Ezen elmélet a kollektiv mozgások szimmetriáinak feltárásán és ezeknek megfelelő harmonikus oszcillátoros héjmodellbázisok megalkotásán alapszik.

1. Bevezetés

A kollektiv modell ugy ábrázolja az atommagot, mintha meghatározott alaku és/vagy alakváltoztatásra képes közeg volna. A modell ortodox, Bohr-Mottelson-féle [1] változata feltételezi, hogy a magot egy hozzá rögzitett koordinátarendszerben egy

$$R(\vartheta,\varphi)=R_0\left[1+\sum_{\lambda\mu}\alpha_{\lambda\mu}Y_{\lambda\mu}(\vartheta,\varphi)\right]$$

felület jellemzi. A kvadrupólos dinamika leirására kifejlesztett eredeti változatban $\lambda=0,\ 2$. A forgási, tükrözési és időmegforditási invariancia követelménye miatt az öt komplex $\alpha_{2\mu}$ közül csak öt valós szám független. A mag összenyomhatatlanságának feltételezése α_{00} és az $\alpha_{2\mu}$-k között egyértelmü kapcsolatot létesit. Az öt $\alpha_{2\mu}$ paraméter főtengely-transzformációval öt olyan mennyiséggé transzformálható, melyek közül három a felület orientációját, kettő pedig az alakját irja le. A modell Hamilton-operátorát ugy nyerjük, hogy az $\alpha_{2\mu}$-ket általános koordinátáknak tekintjük, az alakjellemzőkben egyensulyi helyzet körüli kicsiny oszcillációkat engedünk csak meg, és a testhez rögzitett koordinátarendszerből laboratóriumi rendszerbe térünk át, ami a forgási kinetikus energia felléptéhez vezet.

A kollektiv modellben tehát nem esik szó nukleonokról. Mégis alapos a gyanunk, hogy a kollektiv mag is nagyjából-egészéből nukleonokból tevődik össze. Nem mondhatjuk tehát, hogy értjük a mag kollektiv viselkedését mindaddig, mig mikroszkopikusan, azaz a nukleonok nyelvén meg nem magyaráztuk. Ugyanakkor az is kivánatos volna, hogy a kollektiv és a részecskés szabadsági fokokat egységes modellbe foglaljuk.

A kollektiv modell rafináltabb változatai ("egyesitett modellek") [1] nem mulasztják el, hogy a nukleonokra hivatkozzanak. Definiálnak a - nem kollektiv - "belső" mozgás számára hullámfüggvényeket (Nilsson-modell, kurblis héjmodell, projiciált Hartree-Fok-modell), és levezetik a kollektiv Hamilton-operátor paramétereit (kényszerfeltételes Hartree-Fok-modell, kurblis héjmodell). Ezen mikroszkopikus megalapozások azonban elvi okokból támadhatók. Ha ugyanis bizonyos kollektiv koordinátákat külön kezelünk,

---

*Az 1985. januári Magfizikai Téli Iskola előadásának anyaga

ezen koordinátákat le kellene választanunk az egyrészecske-koordinátákról. Pl. ha a tömegközéppont $\vec{R}=A^{-1}\Sigma_i \vec{r}_i$ koordinátáját bevezetjük, akkor a többi koordináta nem $\vec{r}_i$, hanem $\vec{x}_i=\vec{r}_i-\vec{R}$ marad, melyek közül csak $A-1$ független, mert $\Sigma_i \vec{x}_i=0$. Ugyanigy kellene a rotációs és vibrációs szabadsági fokokat is leválasztani. A szokásos belső mozgási hullámfüggvényeket azonban mégis az $\vec{r}_i$-k függvényének tekintik. Ez komoly elvi és gyakorlati hiányosság, hogy ne mondjam: hiba.

Megalapozottabbak a konfigurációs tér helyett a Hilbert-tér kollektiv alterének definiálásával dolgozó módszerek, mint pl. az időfüggő Hartree-Fok-módszeren alapuló véletlen fázisos közelités (RPA) [2] vagy az SU(3) héjmodell [3]. Ezek igazából mikroszkopikus, de nem kollektiv modellek, abban az értelemben, hogy semmiféle kollektiv változót nem vezetnek be, s ezért a kollektiv modellnek csak áttételes értelemben adják megalapozását. Másrészt az RPA csak kis amplitudóju rezgések, az SU(3) modell pedig csak könnyü magok forgási módusainak leirására alkalmas, érvényességük tehát erősen korlátozott.

A kollektiv mozgás általános mikroszkopikus elmélete a 70-es évek végére érett be, s napjainkig is még elég kevés alkalmazásra jutott idő. Az elmélet hosszu fejlődés és számos csoport munkájának eredménye [4]. Megfogalmazói D. J. Rowe és G. Rosensteel [5,6].

A modell alapgondolata hasonlit az SU(3) modelléhez, amennyiben a kollektiv mozgást szintén szimmetriája révén ragadja meg. Az SU(3) modell egy egyszerü héjmodellbeli Hamilton-operátor szimmetriája folytán szolgáltat kollektiv jellegü állapotokat. Egy ilyen Hamilton-operátor a 0p és az 1s0d héj magjaira ($A\leq 40$) kvalitative jó, igy az SU(3) modell itt türhetően működik. Hogy azonban e modell kitüntetett állapotai rotációs sávokat irnak le, az szinte a véletlen müve. A Rosensteel-Rowe-féle kollektiv modell ezzel szemben a kollektiv mozgás módszeres leválasztásán alapul. Megoldották a kollektiv koordinátáknak a többiről való egzakt leválasztását, és meghatározták azt a szimmetriát, amely a kollektiv alteret definiálja. Mi több, e kollektiv altér számos alterének szimmetriáját is megadták, s ezek jól ismert speciális kollektiv mozgásoknak felelnek meg. A modell különböző változatai lényegében e szimmetriáknak pontosan megfelelő bázisokon alapuló héjmodellek. A héjmodellbázison mind mikroszkopikus, mind a makroszkopikus kollektiv modellből levezetett maradék-kölcsönhatással diagonalizálni lehet, ami a modell további változatait hozza létre.

Hogy e modellek lényegét megérthessük, a szimmetria-megfontolások logikáját kell felületesen megérteni. Ezért néhány csoportelméleti alaptényt fogok először az olvasó emlékezetébe idézni (2. fejezet). Utána vázolom az SU(3) héjmodellt (3. fejezet), majd a mikroszkopikus kollektiv modellhez vezető megfontolásokat (4-6. fejezet). Néhány eredmény bemutatása után (7. fejezet) összefoglalom a tanulságokat (8. fejezet).

2. Néhány csoportelméleti ismeret

A csoport, mint tudjuk, elemek olyan halmaza, mely egy szorzásnak nevezett asszociativ müveletre zárt, e művelet egységelemét és minden elem erre vonatkozó inverzét tartalmazza. Pl. adott méretü reguláris négyzetes mátrixok csoportot alkotnak. Egy fizikai rendszeren végezhető különféle lineáris transzformációk ugyancsak csoportokat képeznek. Egy ilyen csoportot a rendszer szimmetriacsoportjának nevezzük, ha a H Hamilton-operátor a csoporthoz tartozó összes A transzformációval szemben invariáns: $AHA^{-1}=H$. Ha ez fennáll, akkor $H\psi=E\psi$-ből $AHA^{-1}A\psi=EA\psi$ miatt $H(A\psi)=E(A\psi)$ következik, tehát $A\psi$ a H-nak ugyanazon sajátenergiához tartozó sajátvektora, mint ψ.

Ha egy akármilyen csoport minden eleméhez müvelettartó módon egy mátrixot rendelünk, az igy kapott mátrixok ugyancsak csoportot alkotnak, s ezt

a csoportot az eredeti csoport egy ábrázolásának vagy reprezentációjának nevezzük. Ha ez a hozzárendelés kölcsönösen egyértelmű, azt mondjuk, hogy a mátrixok a csoportot megvalósitják. Lineáris transzformációk egy csoportjának egy ábrázolását megkaphatjuk, ha találunk egy függvényrendszert, egy "bázist", amely a csoport transzformációival szemben zárt. Ekkor minden függvény transzformációját egy mátrix irja le, s ezek adják a csoport egy ábrázolását. Más szóval azt mondjuk, hogy a bázis az ábrázolást "kifeszíti" vagy "a szerint transzformálódik". Két ábrázolást egyenértékünek mondunk, ha minden $A, \bar{A}$ elempár egymásból ugyanazon T hasonlósági transzformációval nyerhető: $\bar{A}=TAT^{-1}$. Egy ábrázolás két ábrázolásból tevődik össze (annak "direkt összegére" bomlik), ha minden eleme ugyanazon hasonlósági transzformációval ugyanolyan méretü kvázidiagonális blokkokra ejthető szét. Ha nincs ilyen hasonlósági transzformáció, akkor az ábrázolást irreducibilisnek mondjuk.

Mivel az $AHA^{-1}=H$ szimmetria $H\psi=E\psi$ esetén a $H(A\psi)=E(A\psi)$ összefüggést vonja maga után, a H egy szimmetriacsoportjának irreducibilis reprezentációihoz tartozó sajátfüggvények degenerált sajátfüggvény-rendszert alkotnak. Ezért célszerü kvantummechanikai bázisokat a Hamilton-operátor szimmetriacsoportjának irreducibilis ábrázolásait kifeszitő függvényseregekbe rendezni. A Hamilton-operátornak egy-egy ilyen függvényrendszeren való diagonalizálása akkor is jó közelitést adhat, ha a Hamilton-operátor csak közelitőleg invariáns a csoport transzformációival szemben.

A számunkra fontos folytonos (vagy Lie-)csoportok a következők:

$GL_+(n)$: általános lineáris csoport, az $n\times n$-es pozitiv determinánsu valós mátrixok csoportja;

$SL(n)$: speciális lineáris csoport, az 1 determinánsu valós $n\times n$-es mátrixok csoportja;

$U(n)$: unitér csoport, az $n\times n$-es unitér ($U^+U=1$) mátrixok csoportja;

$SU(n)$: speciális unitér csoport, az 1 determinánsu unitér mátrixok csoportja;

$O(n)$: ortogonális csoport, az $n\times n$-es ortogonális (O valós, $O^TO=1$) mátrixok csoportja;

$SO(n)$: speciális ortogonális csoport, az 1 determinánsu $n\times n$-es ortogonális mátrixok csoportja;

D : a 3×3-as valós pozitiv diagonális mátrixok csoportja;

$Sp(n,R)$: szimplektikus csoport, azon valós reguláris $2n\times 2n$-es mátrixok csoportja, melyek a $\Sigma_{i=1}^{n}(x_i y_i' - x_i' y_i)$ bilineáris formát változatlanul hagyják; néha $Sp(2n,R)$-rel is jelölik.

A felsorolt csoportok természetesen nem diszjunktak. Pl. $U(n)\supset SU(n)$, $U(n)\supset O(n)\supset SO(n)$. Megemlitendő, hogy az $O(3)$ a forgáscsoport megvalósitása descartes-i rendszerben, az $SO(3)$ pedig az un. "valódi" forgásoké, melyek közül a tükrözések ki vannak zárva.

Szerepelni fognak még un. direktszorzat-csoportok. Igy nevezzük és $A\times B$-vel jelöljük az egymással kommutáló elemü A és B csoport elemeinek szorzatából álló csoportot, ha minden szorzat csak egyféleképpen állitható elő. Két csoport elemeinek szorzata mindig direkt szorzatot alkot, ha a két csoport elemei szorzatokból álló objektumok két különböző tényezőjére hatnak.

Lie-csoportok minden eleme felépithető infinitezimális elemek szorzatából. Minden infinitezimális elem felirható $\mathbb{1}+i\Sigma_i \delta\varrho_i X_i$ formában, ahol $\mathbb{1}$ az egységelem, $\delta\varrho_i$-k infinitezimális mennyiségek, X_i-ket pedig a csoport infinitezimális generátorainak nevezzük. Az X_i-k véges számu, jól meghatározott objektumok; ezek együttese feszíti ki (a valós számtest fölött) a kommutációra mint szorzási müveletre nézve a csoporthoz rendelt Lie-algebrát. A Lie-algebrát a csoport jelével azonos, de kis betükkel jelölik. Pl. az $SO(3)$ albegrája az $so(3)$; ezt három elem feszíti ki: az impulzusmomentum három komponense. A csoporttal kapcsolatos minden lényeges állitás megfo-

galmazható e néhány operátor segitségével. Pl. H akkor és csak akkor invariáns a csoport transzformációival szemben, ha a generátorokkal fölcserélhető. Egy csoport akkor és csak akkor alcsoportja a másiknak, ha a másik Lie-algebrája tartalmazza az egyikének az elemeit.

3. Elliott SU(3) modellje

A háromdimenziós izotróp harmonikus oszcillátor (h.o.) szimmetriacsoportja az U(3) csoport. Az $u(3)$ algebrát a

$$C_{ij} = \frac{1}{2}\sum_{n=1}^{A}\left(b_{ni}^{\dagger} b_{nj} + b_{nj} b_{ni}^{\dagger}\right)$$

operátorok feszitik ki, ahol $b_{ni}^{\dagger}$ (b_{ni}) az $i(=x, y, z)$ irányban az n-edik részecske számára $\hbar\omega$ gerjesztési kvantumot keltő (eltüntető) operátor:

$$b_{ni}^{\dagger} = \left(\frac{m\omega}{2\hbar}\right)^{\frac{1}{2}}\left(r_{ni} - \frac{i}{m\omega} p_{ni}\right), \qquad b_{ni} = \left(b_{ni}^{\dagger}\right)^{\dagger}.$$

Az, hogy U(3) valóban a h.o. szimmetriacsoportja, abból a könnyen bizonyitható tényből következik, hogy a h.o. $H_0 = \Sigma_i C_{ii}$ Hamilton-operátora fölcserélhető C_{ij}-vel. A C_{ij}-k egy lineáris kombinációja, pl.

$$H_0 = \sum_{i=1}^{3} C_{ii},$$

$$L_q = \sum_{i=1}^{A}\left(\vec{r}_i \times \vec{p}_i\right)_q,$$

$$Q_q = \left(\frac{4\pi}{5}\right)^{\frac{1}{2}}\sum_{i=1}^{A}\left[\frac{m\omega}{\hbar} r_i^2 Y_{2q}(\hat{r}_i) + \frac{1}{m\hbar\omega} p_i^2 Y_{2q}(\hat{p}_i)\right]$$

természetesen ugyancsak U(3)-at generálja. Itt L_q a pálya-impulzusmomentum, Q_q pedig egy kvadrupólusmomentumszerü tenzor q-adik komponense. Szférikus tenzortulajdonság szempontjából H_0 skaláris, L_q-k egy első rendü, Q_q-k pedig egy másod rendü tenzor komponensei. A 3 db L_q és az 5 db Q_q operátor az SU(3) csoportot generálja, tehát $U(3) \supset SU(3)$. Mivel az U(3) csoport minden eleme az SU(3) valamely elemétől csak egy fázissal való szorzásban különbözik, csak az SU(3) alcsoport érdekes fizikai szempontból. Az L_q-k az SO(3)-at generálják, tehát $SU(3) \supset SO(3)$. Az L_q-kból L_z a kétdimenziós forgás SO(2) csoportját generálja, tehát $SO(3) \supset SO(2)$.

A rotációs szimmetria következménye az impulzusmomentum M vetülete szerinti degeneráció. A 2. fejezetben mondottak értelmében azt várjuk, hogy az U(3) invariancia további degenerációt okoz. Valóban, az egyrészecskés h.o. azonos $N = 2n + L = n_x + n_y + n_z$-hez ($n$ a radiális függvény, n_i pedig az i irányu h.o. függvény csomópontjainak száma) tartozó nivóinak jól ismert degenerációját ez okozza, és sok részecske esetén is elfajuláshoz vezet. Az U(3) egy irreducibilis ábrázolása olyan többrészecske-függvényekkel feszithető ki, amelyek az őket alkotó $b_{ni}^{\dagger}$ operátorok i irányindexeinek páronkénti minden kicserélésével szemben vagy szimmetrikusak vagy antiszimmetrikusak. Az i három lehetséges értéke ($i = x, y, z$) miatt az egy függvényt alkotó $b_{ni}^{\dagger}$-k három olyan osztályba sorolhatók, melyeken belüli cserékre nézve a függvény szimmetrikus, az egymás közöttiekre nézve pedig antiszimmetrikus. Egy adott reprezentációhoz tartozó függvényekre ezen osztályok (p_1, p_2, p_3) számossága $[p_1 \geq p_2 \geq p_3,\ p_1 + p_2 + p_3 = \Sigma_{i=1}^{A}(n_{ix} + n_{iy} + n_{iz})]$ azonos, s igy ez alkalmas a reprezentáció jellemzésére. Az SU(3) reprezentációkat már a $(\lambda, \mu) = (p_1 - p_2, p_2 - p_3)$ számpár jellemzi.

Elliott SU(3) héjmodelljében több részecske tölti be az $N = 2n + L$ kvantumszámu valenciahéjat. Az előbbiek szerint a rendszer állapotait az $SU(3) \supset SO(3) \supset SO(2)$ csoportlánc irreducibilis ábrázolásaihoz tartozás alapján jellemezhetjük. Kiderül, hogy az egy adott (λ, μ)-jü SU(3) ábrázoláshoz tartozó

állapotok egy K kvantumszámmal cimkézhető sávokba rendezhetők, mely a $K=\mu, \mu-2, \ldots, 1$ vagy 0 értékeket veszi fel, s minden sávban az L teljes pályamomentum az $L=K, K+1, \ldots, K+\lambda$ értékeket futja be, kivéve $K=0$-t, ahol is L kettesével ugrik, $L=0$-val vagy 1-gyel kezdődőleg aszerint, hogy λ páros-e vagy páratlan. E kvantumszám-sorozatok pontosan megfelelnek egy szimmetrikus rotor rotációs sávjainak, melyekben K az impulzusmomentumnak a szimmetriatengelyre vonatkozó vetülete. Egyetlen szokatlan specialitása e sávoknak, hogy $L=K+\lambda$ értéknél lezárulnak. Egy tiszta h.o. modellben ezen állapotok energiája természetesen mind ugyanaz. Ha viszont a maradék-kölcsönhatást bekapcsoljuk, a nivó fölhasad. Ha a maradék-kölcsönhatás jól közelithető egy kvadrupólus-kvadrupólus kölcsönhatással, akkor minden egyes K-sáv energiája tiszta rotációs [$L(L+1)$-es] szkémát követ. Ezen állapotok közül némelyek - kivált a $K=0$ sáv tagjai - egyéb tulajdonságaikban is kollektiv jelleget viselnek.

Az $SU(3)$ modell tehát szimmetriasajátságaik alapján választ ki a nagy héjmodell-állapottérből kollektiv állapotokat. Azért müködik könnyü magokra, mert ezek átlagpotenciálja a h.o. potenciáljával jól közelithető. Az sd héj fölött azonban az állapottér különféle okokból (az átlagpotenciál alakja, az erősebb spin-pálya kölcsönhatás, Coulomb-tér, szimmetriapotenciál stb. miatt) összekuszálódik, s igy kollektiv szeleteinek kiválasztásához bonyolultabb megfontolásokra van szükség.

4. Mozgásfajták csoportelméleti osztályozása

Egy A-test-rendszer konfigurációs tere $3A$-dimenziós. A tömegközéppont $\vec{R}$ koordinátájának kiküszöbölésével az $\vec{x}_i = \vec{r}_i - \vec{R}$ vektorok egy $(3A-3)$-dimenziós konfigurációs tér X pontjait alkotják. A rendszer egy $X \to X'$ elmozdulását nyilvánvalóan egy $(3A-3)\times(3A-3)$ dimenziós valós reguláris mátrix irja le. Ha kizárunk bizonyos - reflexiókat is tartalmazó - elmozdulásokat, e mátrixok determinánsa mindig pozitiv. Az elmozdulások mátrixai tehát a $GL_+(3A-3)$ általános lineáris csoportot alkotják. E csoportnak egy alcsoport-felbontása a következő:

$$GL_+(3A-3) \supset GL_+(3) \times SO(A-1).$$

A $GL_+(3)$ elemei minden egyes részecskét ugyanugy mozditják el, tehát kollektiv mozgást reprezentálnak. Igy ezen csoportszerkezet lehetővé teszi a konfigurációs tér kollektiv és "belső" alterekre való felbontását.

Az $SO(A-1)$ csoport a "részecskeindex-tér"-beli "valódi" forgásokat tartalmazza. Az $SO(A-1)$ irreducibilis ábrázolásait hordozó függvényrendszerek egyuttal $O(A-1)$ irreducibilis ábrázolásait is kifeszitik. Ennek azért van jelentősége, mert az S_A szimmetrikus csoport az $O(A-1)$ alcsoportja: $O(A-1) \supset S_A$, s igy az antiszimmetrizálás kizárólag a nemkollektiv térrészben való manipulációt jelent.

A makroszkopikus Bohr-Mottelson-modellt követve a mikroszkopikus modellt is a monopólus+kvadrupólus mozgásra dolgozták ki. E mozgás a

$$q_{ij} = \sum_{n=1}^{A} x_{ni}\, x_{nj} \qquad (i, j = x, y, z)$$

kollektiv koordináták bevezetésével van különválasztva, ahol q_{ij} valós, pozitiv definit szimmetrikus mátrix. A $GL_+(3)$ elemei erre egyszerüen hatnak. A kollektiv mozgási módus definició szerint inkompresszibilis, ha a "folyadék" térfogateleme változatlan. A térfogatelem változását leiró Jacobi-determináns maga a csoportelem determinánsa. Következésképp az inkompresszibilis mozgást a $GL_+(3)$ csoport 1 determinánsu $SL(3)$ alcsoportja irja le. Speciálisan a rotációt az $SO(3)$ elemei testesitik meg. E csoportokra teljesül, hogy

$$GL_+(3) \supset SL(3) \supset SO(3).$$

Hogy a koordináták és alterek ilyetén szétválasztásából kollektiv modelleket szerkeszthessünk, megfigyelhető mennyiségek (observables) egy rendszerét kell felállitanunk. Hogy ezekből a Hamilton-operátort meg tudjuk alkotni, koordinátákra és impulzusokra van szükségünk. Az előbbi célra q_{ij}-k, az utóbbi célra a mozgást leiró csoport generátorai alkalmasak. (Jusson eszünkbe, hogy pl. az SO(3) generátorai L_x, L_y és L_z.) Egy általános kollektiv algebrát szolgáltat a q_{ij} hat független elemét tartalmazó $[\mathbb{R}^6]$ jelü algebrát és a $gl_+(3)$ algebrát egybefoglaló $[\mathbb{R}^6]gl_+(3)$ jelü algebra. Egy rotációs modell épithető föl az $[\mathbb{R}^5]so(3)$ algebrára, ahol $[\mathbb{R}^5]$ a

$$Q_{ij} = \sum_{n=1}^{A} \left(t_{ni} t_{nj} - \frac{1}{3} \delta_{ij} \sum_k t_{nk}^2 \right)$$

zérus átlóösszegü kvadrupólus tenzor öt független elemének algebráját jelöli. Egy kollektiv Hamilton-operátor e kollektiv algebra elemeiből épithető fel. Minthogy pedig e kollektiv operátorok mind kifejezhetők a részecske-koordinátákkal, ezzel elvben meg is alkottuk a mikroszkopikus modelleket: a kollektiv feladványt meg kell oldani, majd az állapotfüggvényben a kollektiv koordinátákat mikroszkopikus képletükkel ki kell fejezni.

Ezen eljárás elvi lehetőséget teremt arra, hogy a makroszkopikus kollektiv modellek számára pontos mikroszkopikus megfelelőt találjunk, de ez nem jár gyakorlati haszonnal. Egy gyakorlatias mikroszkopikus kollektiv modellnek az is célja, hogy a nem kollektiv szabadsági fokokat is korrektül figyelembe vegye. A most vázolt szkémába azonban a nem kollektiv szabadsági fokok explicit beépitése igen bonyolult volna. Ezért a mikroszkopikus modell kidolgozásában más utat követtek. Akárcsak az SU(3) modellben, a Hamilton-operátor eltér a kollektiv formától, a modell kollektiv jellegét pedig elsősorban a bázis hordozza.

5. A mikroszkopikus modell Hamilton-operátora

Az imént mondottak szerint a mikroszkopikus kollektiv modellnek egyszerre kell leirnia a kollektiv és a belső mozgást, ezért a Hamilton-operátornak kollektiv és nem kollektiv tagokat egyaránt kell tartalmaznia.

Az A részecske kinetikus energiája többféleképpen is felbontható kollektiv és egyéb tagokra, s igy különféle makroszkopikus kollektiv kinetikusenergia-operátorok pontos mikroszkopikus megfelelői alkothatók meg. A kinetikus energia kollektiv része e formulák szerint rotációs, vibrációs és örvény-tagok igen bonyolult kombinációja, a többi tagok pedig még komplikáltabbak. Mivel azonban a tárgyalt modell Hamilton-operátorában mind a kollektiv, mind a nem kollektiv (és ha vannak: a kevert) tagoknak benne kell lenniük, e szétválasztás fölösleges. A Rosensteel-Rowe-modell kinetikus energiája tehát a rendszer egzakt kinetikus energiája.

A potenciált ugyancsak kollektiv és egyéb tagok összegeként lehetne felirni. A nem kollektiv koordináták azonban közvetlen szemléletes jelentést nem hordoznak, igy a tőlük függő potenciál felirására nincs támpontunk. A potenciál felirásában ezért ugyancsak célszerü letérni a kollektiv-nemkollektiv szétválasztás utjáról. Helyette két alternativ megoldás is ki van dolgozva.

Az egyik a mikroszkopikus modellt a héjmodellre ültetett kollektiv modellnek tekinti. E szerint a Hamilton-operátor $H = T + V_{av.} + V_{res.}$, ahol $V_{av.}$ egy átlagos, $V_{res.}$ pedig egy maradék-kölcsönhatás. Az SU(3) modell mintájára természetes $V_{av.}$-ot a h.o. potenciálnak venni. A $V_{res.}$-nek kell hordoznia a kollektiv jelleget, s igy plauzibilis őt a kollektiv modell potenciáljával azonositani. A Bohr-Mottelson-modellben a testhez rögzitett rendszerben ez a potenciál az $\alpha_{2\mu}$ koordináták ötdimenziós h.o.-a. Az $a_{2\mu}$-vel jelölt főtengely-rendszerbeli $\alpha_{2\mu}$-k közül csak a_{20} és $a_{22} = a_{2,-2}$ nem nulla.

Ezeket a szokásosabb β, γ paraméterekkel $a_{20}=\beta\cos\gamma$, $a_{22}=2^{-\frac{1}{2}}\beta\sin\gamma$ módon lehet kifejezni. Egy általánosabb ("anharmonikus") kollektiv potenciál a β, γ fenomenologikusan parametrizált függvényeként adható meg: $V=V(\beta,\gamma)$. A β és a γ viszont kifejezhető a kvadrupólus tenzor Q operátorával. Mivel ez a nukleon-koordinátákkal van definiálva, e kapcsolat segitségével $V(\beta,\gamma)$ mikroszkopikus formuláját nyerjük. A Hamilton-operátor a laboratóriumi rendszerben nyilvánvalóan forgásszimmetrikus, ezért plauzibilis, hogy β és γ éppen a kvadrupólus tenzor két rotációinvariáns komponensével fejezhető ki.

A mikroszkopikus modell másik, fundamentálisabb változatában a potenciál valamely effektiv nukleon-nukleon potenciál: $H=T+\Sigma_{i<j}V_{ij}$. A kollektiv jelleget tehát csupán a bázis hordozza.

6. A szimplektikus bázis

A 4. fejezetben ismertettük a kollektiv megfigyelhető mennyiségek operátorait és egy csupán tőlük függő, **tisztán kollektiv** Hamilton-operátor felállitását. A fizikai állapotok kollektiv altereit nyilvánvalóan ugy kell megalkotni, hogy ezen operátorok ne vezessenek ki belőlük. A kollektiv operátorok egy Lie-csoportot generálnak. Azon függvényrendszerek, melyek e generátorokra nézve zártak, nem egyebek, mint a csoport irreducibilis reprezentációinak bázisai. E reprezentációk természetesen mikroszkopikus A-nukleon-hullámfüggvényekkel is kifeszithetők. Az A-nukleon-állapottér kollektiv altereit tehát a kollektiv megfigyelhető mennyiségek operátorai által generált csoport irreducibilis reprezentációi szerinti dekomponálással állithatjuk fel.

Pl. a rotációs modellnek megfelelő bázist az $[\mathbb{R}^5]SO(3)$ irreducibilis reprezentációi szerint transzformálódó függvények alkotják. Megmutatható, hogy a h.o. héjmodellből egy ilyen függvényteret választ ki a kvadrupólus operátor $0\hbar\omega$ jellegü csonkitásával az $SU(3)$ modell. Az $[\mathbb{R}^5]SO(3)$ soktest-függvényekkel való egzakt realizálása azonban rendkivül bonyolult, mert $[\mathbb{R}^5]SO(3)\not\supset SU(3)$, s ezért ezen eljárás során a h.o. függvények nem nyujtanak segitséget. Van továbbá egy nemkivánatos többértelmüség az $[\mathbb{R}^5]SO(3)$ szerinti dekompozicióban a belső állapotok tekintetében. Az $[\mathbb{R}^5]so(3)$ ugyanis - az $su(3)$-mal ellentétben - kizárólag kollektiv operátorokat tartalmaz, melyek érthető módon a belső állapotok specifikálásáról nem gondoskodnak. A belső állapotokra megkötéseket célszerü módon a csoport kibővitésével lehet tenni. Kézenfekvő ezért az $[\mathbb{R}^5]so(3)$ algebrát az $su(3)$-mal kiegésziteni, s ez valóban mindkét problémát egy csapásra megoldja. Az $su(3)$ hozzávételével H_0, a h.o. Hamilton-operátora is eleme lett az algebrának. A kollektiv tér igy a h.o. héjmodellbe ágyazódik be; egy-egy irreducibilis reprezentáció a h.o. állapottér részét alkotja.

A legkisebb Lie-algebra, amely mind $[\mathbb{R}^5]so(3)$-at, mind $su(3)$-at tartalmazza, az $Sp(3,\mathbb{R})$ szimplektikus csoport $sp(3,\mathbb{R})$ algebrája. Ez azonban történetesen tartalmazza az általánosabb $[\mathbb{R}^6]gl_+(3)$ algebrát is:

$$sp(3,\mathbb{R})\supset[\mathbb{R}^6]gl_+(3)\supset[\mathbb{R}^5]so(3),\qquad sp(3,\mathbb{R})\supset u(3)\supset su(3)\supset so(3)\supset so(2),$$

és hasonló relációk igazak az ezekhez tartozó csoportokra is.

Az $Sp(3,\mathbb{R})$ generátorai a következők:

$$A_{ij}=\sum_n b^+_{ni}b^+_{nj},\qquad B_{ij}=\sum_n b_{ni}b_{nj},$$

$$C_{ij}=\frac{1}{2}\sum_n\left(b^+_{ni}b_{nj}+b_{nj}b^+_{ni}\right).$$

Látható, hogy az $SU(3)$ C_{ij} generátorai itt a $2\hbar\omega$ kvantumot keltő A_{ij} és eltüntető B_{ij} operátorokkal társulnak. Az $sp(3,\mathbb{R})$ elemei tehát a $0\hbar\omega$-s állapotokat összekeverik magasabb gerjesztésekkel. A H_0 az $sp(3,\mathbb{R})$ elemeivel

szemben nem invariáns. Ezért egy irreducibilis reprezentáción belül különböző energiáju h.o. állapotok szerepelnek. Azonban a H_0 nem keveri össze a különböző reprezentációkhoz tartozó függvényeket és hasonló mondható el a $H_{coll.} = H_0 + V(\beta,\gamma)$ operátorról.

Az $Sp(3,R)$ reprezentációi végtelen dimenziósak. Egy irreducibilis reprezentáció bázisa pl. egy un. legkisebb sulyu állapotból kiindulva épithető fel. Ez az az állapot, amelyet minden "kvantumszám-csökkentő" operátor, tehát C_{ij} $(i<j)$ és minden B_{ij}, eltüntet. A reprezentáció többi eleme az "emelő" operátorok módszeres alkalmazásával kapható meg.

A magszerkezeti számolás a Hamilton-operátornak a bázison való diagonalizálásából áll. Mivel a $H_{coll.}$ kollektiv Hamilton-operátor az egyes reprezentációkat nem keveri össze, irreducibilis reprezentációkat kifeszitő minden altéren a diagonalizálás külön-külön hajtható végre. Természetesen egy $H = T + \Sigma_{i<j} V_{ij}$ mikroszkopikus Hamilton-operátorra ez nem áll; egy ilyen H használata esetén a modell kollektiv voltát éppen a bázisnak egy irreducibilis reprezentációra való korlátozása adja. Az igy nyert állapotok épp olyan joggal tekinthetők kollektivnek, mint a $H_{coll.}$ diagonalizálásából nyert állapotok, hiszen a H ilyen diagonalizálása egyenértékü $H'_{coll.} = PHP$ diagonalizálásával, ahol P a kollektiv altérre vetitő operátor.

Az egyes reprezentációkhoz tartozó bázisok a $\hbar\omega$ gerjesztési kvantumok száma szerint kényelmesen csonkithatók. Az $Sp(3,R)$ irreducibilis reprezentációi a teljes h.o. állapotteret lefedik. Az $Sp(3,R)$ mint báziskiválasztó recept mégis hatékony. Ugyanis adott számu gerjesztési kvantumos közelitésben a bázisnak egyetlen irreducibilis reprezentációra való korlátozása az ugyanugy korlátozott h.o. tér radikális szükitésével ér fel. További, a kollektiv modell almodelljei szerinti csonkitási szkémák is kiválóan müködnek. Ezek mikroszkopikus nyelvre az $Sp(3,R)$ csoport alcsoport-szerkezetének tüzetesebb vizsgálata utján fordithatók le. Egy-egy alcsoport irreducibilis reprezentációi egy-egy azonos kollektiv jelleget viselő állapotcsoportot feszitenek ki. Igy beszélhetünk pl. az $Sp(3,R)$ modell tiszta rotációt $[Sp(1,R)]$ és örvénymentes rotációt és vibrációt $[SO(3)\times D]$ leiró almodelljeiről.

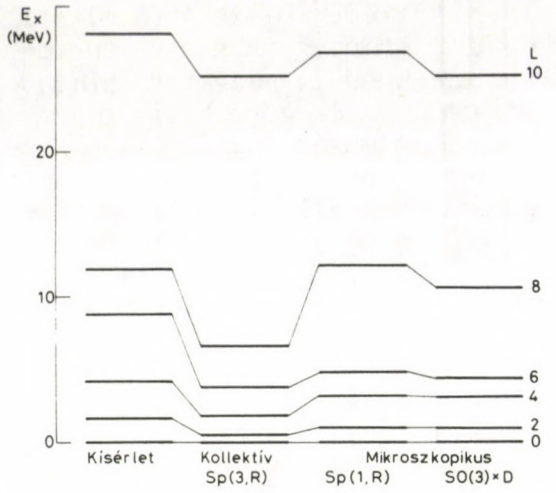
7. Illusztrativ eredmények

A ^{20}Ne első rotációs sávjára az $Sp(3,R)$ modellnek mind kollektiv potenciálos [5], mind mikroszkopikus [7] változatát alkalmazták - az utóbbit a Brink-Boeker-erővel [8], $Sp(1,R)$ és $SO(3)\times D$ közelitésben. Az $Sp(1,R)$ határeset érvénye $K=0$-s rotációs sávokra korlátozódik. A gerjesztési energiákra vonatkozó eredményeket az 1. ábra tartalmazza. Az eredmények kielégitőek. Látható, hogy a paramétermentes és csonka mikroszkopikus számitások jobb eredményt adnak, mint az illesztendő paramétereket tartalmazó kollektiv potenciális teljes számitások. Az elektromágneses mennyiségek a kisérlettel hasonló minőségü egyezést mutatnak. A ^{24}Mg példáján [9] az $SO(3)\times D$ modellnek az $SU(3)$-hoz való viszonyát lehet tanulmányozni (2. ábra).

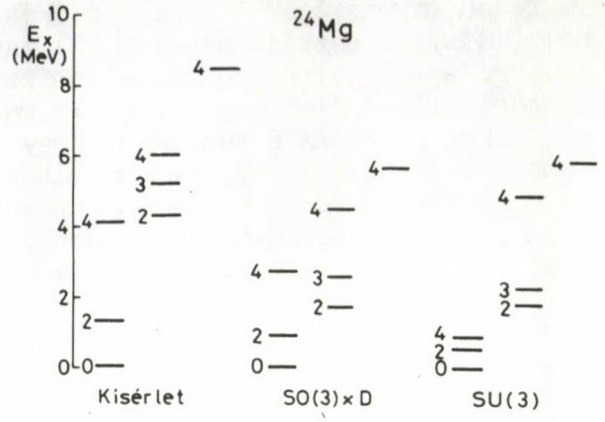
Néhány nehéz deformált mag alapállapoti rotációs sávját fenomenologikus kollektiv potenciállal mind $Sp(1,R)$ közelitésben, mind az $Sp(3,R)$ modellben kiszámolták, ugyancsak kielégitő eredménnyel [6]. Az $Sp(1,R)$ közelitésben $100\hbar\omega$-ig, mig az $Sp(3,R)$ modellben $8\hbar\omega$-ig felmentek. E vizsgálatok azt mutatják, hogy a bázisállapotok járuléka kb $20\hbar\omega$-ig számottevő.

Utolsó példaként megemlitem, hogy a modellt az ^{16}O-ra is sikerrel alkalmazták [10]. Ennek legalacsonyabb gömbszerü 0^+-os és 2^--os kollektiv állapotai az ilyen multipolaritásu óriásrezonanciák. Gömbszimmetrikus legkisebb sulyu állapot esetén az $Sp(3,R)$ modell egybeesik az $SO(3)\times D$ határesettel. A számitáshoz a Brink-Boeker-erőt használták. Az eredményt a 3. és 4. ábra foglalja össze. Megemlitendő, hogy a monopólus rezonanciát az elméleti

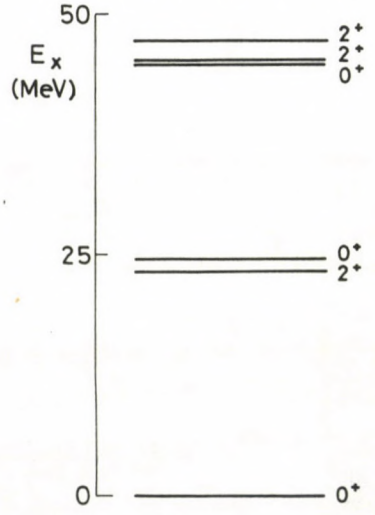
becslések a kvadrupólus rezonanciával azonos energiára teszik. Az Sp(3,R) modell tehát multipólus óriásrezonanciák leirására is bevált.



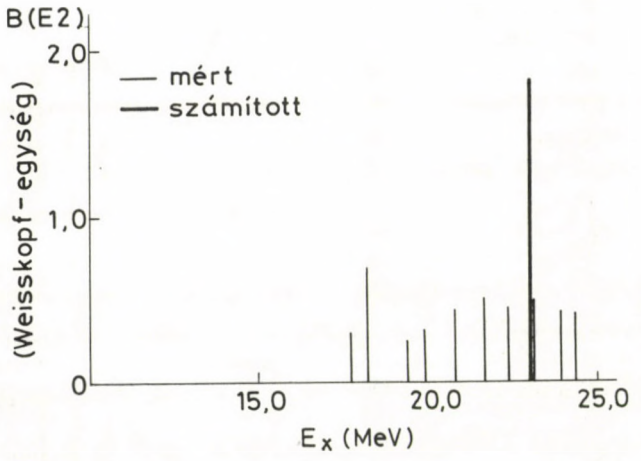
1. ábra. A ^{20}Ne alapállapoti sávjának gerjesztési energiái.



2. ábra. A ^{24}Mg néhány rotációs nivójának gerjesztési energiája.



3. ábra. Az ^{16}O 0^+-os és 2^+-os gerjesztett állapotai.



4. ábra. A B(E2) erősség kisérleti eloszlása a számitással összehasonlitva.

8. Összefoglalás

A kollektiv állapotok mikroszkopikus modellje a makroszkopikus modellekben bennefoglalt szabadsági fokokra értelmezett operátorok rendszerét állitja föl. A kiszemelt operátorrendszer tartalmazza a kollektiv koordinátákat és a kollektiv mozgást leiró csoport generátorait. Ezen algebra elemeiből állitható fel a kollektiv modell Hamilton-operátora. A kollektiv operátorok részecske-koordinátákkal való kifejezése definiálja a kollektiv modell mikroszkopikus megfelelőjét, mely természetesen a 3A szabadsági foku rendszernek egy kényszermozgását irja le. A teljes 3A szabadsági fokkal biró rendszer kollektiv altereit az definiálja, hogy a kollektiv operátorok által generált csoport irreducibilis reprezentációi szerint transzformálódnak. Ezen ábrázolások akkor válnak teljesen meghatározottakká, ha a belső mozgás szimmetriáját is megkötjük. Ez érhető el a kollektiv operátorok algeb-

rájának az SU(3) generátorokkal való kiegészitésével. Az igy kapott csoport a 6×6-os mátrixok $Sp(3,R)$ szimplektikus csoportja (pontosabban azzal izomorf), mely a h.o. állapotaival reprezentálható. Irreducibilis ábrázolásai végtelen dimenziósak és igen érdekes szerkezetüek. Mindegyikük a valenciahéj ("$0\hbar\omega$ gerjesztésü állapotok") egy szük alterére épül, melyet az SU(3) csoport egy-egy irreducibilis ábrázolása definiál. Az irreducibilis reprezentáció többi eleme egy ezen alapra épülő végtelen magas függőleges oszlopot alkot abban az értelemben, hogy az SU(3) reprezentáció bázisából kvantumszámokat felfelé léptető operátorok alkalmazásával áll elő. A szimplektikus modell ilyen értelemben komplementere a közönséges héjmodellnek. Mindkettő lényege egy mikroszkopikus Hamilton-operátor diagonalizálása, de a szokványos héjmodell a bázist energetikai alapon, tehát vizszintes vonallal vágja le. A héjmodell és a szimplektikus modell tehát egyazon modell két különböző aspektus vizsgálatára kiélezett formájának tekinthető. A szimplektikus modell az SU(3) határeset révén a csomómodellel is átfed. Közismert, hogy az SU(3) modellben a ^{20}Ne alapállapoti sávja tiszta α-csomó-állapotokból áll. A szimplektikus bázis nagyobb energiáju elemei felé haladva a nekik megfelelő h.o. α-csomó-állapottal való átfedés csökken, de még mindig elég nagy ahhoz, hogy a kvadrupólus óriásrezonanciák α-szélessége jelentős legyen [11].

A kezdeti eredmények azt mutatják, hogy a szimplektikus modell valóban képes a kollektiv állapotok leirására. Figyelemre méltó például, hogy a deformált nehéz magok spektrumát - a kisérlettel egyezően - igen pontosan rotációsnak adja annak ellenére, hogy a Hamilton-operátor a részecske egzakt mozgási energiáját és nem a csonkitott $T_{rot.} \sim L^2/(2\mathcal{J})$ tagot tartalmazza. A részletes vizsgálat azonban igen érdekes különbséget tár föl. Kiderül, hogy a gerjesztés nagyrészt a potenciális energia növekedéséből adódik, noha a rotációs modell szerint ez az energianövekmény tisztán mozgási. Nem lehet tehát a mikroszkopikus modellt mechanikusan a makroszkopikus kollektiv modell "igazolásának" felfogni.

A két modell egyetlen közös alapvonása az azonos szimmetria. A mikroszkopikus modell a kisérletet reprodukálja, tehát ugy látszik, a kisérleti adatokat a vizsgált állapotok szimmetriájából le lehet vezetni. A makroszkopikus kollektiv modellek a szimmetrián kivül ad hoc elemeket is tartalmaznak, mint pl. a kinetikus energia csonkitása. A (fundamentálisabb) mikroszkopikus modellel nyert eredmények arra utalnak, hogy az ilyen ad hoc elemek esetleg szükségtelenek, és nem feltétlenül fedik a valóságot.

Hivatkozások

1. A. Bohr és B.R. Mottelson: Nuclear Structure II (Benjamin, Reading, Mass., 1975)
2. A.M. Lane: Nuclear Theory (Benjamin, New York, 1964)
3. J.P. Elliott, Selected Topics in Nuclear Theory, szerk.: F. Janouch (IAEA, Bécs, 1963) 157. o.
   M. Harvey, Advances in Nuclear Physics I., szerk.: M. Baranger és E.Vogt (Plenum, New York, 1967) 67. o.
4. D.J. Rowe: Nuclear collective motion (Methuen, London, 1970);
   W. Zickendraht, J. Math.Phys. 12 (1971) 1663;
   A. Ja. Dzjublik, V.I. Ovcsarenko, A.I. Sztyesenko és G.F. Filippov, Jagy. Fiz. 15 (1972) 869;
   P. Gulshani és D.J. Rowe, Can.J.Phys. 54 (1976) 970;
   O.L. Weaver, R.Y. Cusson és L.C. Biedenharn, Ann.Phys. 102 (1976) 493;
   B. Buck, L.C. Biedenharn és R.Y. Cusson, Nucl. Phys. A317 (1979) 205;
   F.G. Filippov, V.I. Ovcsarenko és Ju.F. Szmirnov: Mikroszkopicseszkaja tyeorija kollektyivnih vozbuzsgyenyij atomnih jagyer (Naukova Dumka,

Kijev, 1981)
5. G. Rosensteel és D.J. Rowe, Phys.Rev.Lett. 38 (1977) 10;
G. Rosensteel és D.J. Rowe, Ann.Phys. 123 (1979) 36;
D.J. Rowe és G. Rosensteel, Ann.Phys. 126 (1980) 198;
G. Rosensteel és D.J. Rowe, Ann.Phys. 126 (1980) 343
6. P. Park, J. Carvalho, M. Vassanji, D.J. Rowe és G. Rosensteel, Nucl.Phys. A414 (1984) 93
7. M.G. Vassanji és D.J. Rowe, Phys.Lett. 127B (1983) 1
8. D.M. Brink és E. Boeker, Nucl.Phys. A91 (1967) 1
9. M.G. Vassanji és D.J. Rowe, Nucl.Phys. A426 (1984) 205
10. M.G. Vassanji és D.J. Rowe, Phys.Lett. 125B (1983) 103
11. K.T. Hecht és D. Braunschweig, Nucl.Phys. A295 (1978) 34

HU ISSN 0231-3685

ATOMKI Riport X/17 (1985)

A KÖLCSÖNHATÓBOZON-KÖZELITÉS ELEMEI*

Cseh József

az MTA Atommagkutató Intézete, Debrecen, Pf. 51,
H-4001

Áttekintjük a kölcsönhatóbozon-közelités módszerének elemeit, és ennek kapcsán röviden kitérünk a legismertebb kölcsönható-bozon tipusu modellek egymáshoz való viszonyára.

1. Bevezetés

A hetvenes évek közepén Akito Arima és Francesco Iachello egy uj fenomenologikus modellt dolgozott ki az atommagok kollektiv tulajdonságainak leirására, amelyet kölcsönhatóbozon-modellnek neveztek. Azóta e modellt több irányba kiterjesztették, továbbfejlesztették, és hasonló tipusu modelleknek egy egész családja született meg. Közös jellemvonásuk az algebrai - csoportelméleti - leirás, és ezzel összefüggésben a szimmetriák vizsgálatának központi szerepe. Az elmult tiz évben e téren széleskörü elméleti és kisérleti kutatásokat folytattak. A módszer egyik legfőbb előnyének az tünik, hogy segitségével nagy mennyiségü kisérleti adatot lehet egyszerüen osztályozni és értelmezni.

E rövid ismertetőben a kölcsönhatóbozon-közelités elemeit tekintjük át. A szakirodalom szóhasználata nem egységes abban a tekintetben, hogy mit neveznek kölcsönhatóbozon-közelitésnek, és mit kölcsönhatóbozon-modellnek. E vonatkozásban azokat a szerzőket követjük, akik közelitésnek a módszert nevezik, amelynek keretében több modell is létezik, és továbbiak is létrehozhatók.

Az alapfeltevések felsorolása után (2. fejezet) a csoportelméleti eszközöket tekintjük át vázlatosan a 3. fejezetben. Ennek során nem törekszünk matematikai igényességre, helyette inkább a szemléletességet és a fizikai alkalmazást tartjuk szem előtt. A 4. fejezetben a már megismert algebrai apparátus modellbeli felhasználásának prototipusát adjuk meg és ezzel befejezzük a közelités elemeinek szükreszabott és szükségképpen hiányos bemutatását. Az 5. fejezetben a leggyakrabban idézett kölcsönható-bozon tipusu modellek összefüggését vesszük szemügyre, kitérve, ha csupán néhány szóval is, a legfontosabb ismérveikre.

---

*Az 1985. januári Magfizikai Téli Iskola előadásának anyaga

A modelleknek és alkalmazásuknak áttekintését egy későbbi ismertetőre hagyjuk.

A közelités módszerének és a benne használatos matematikai apparátusnak a kifejtése több összefoglaló munkában található meg, ezeket az irodalomjegyzék első felében felsoroljuk anélkül, hogy a szövegben külön utalnánk rájuk. A modellekkel kapcsolatban hivatkozunk egy-egy alapvető cikkre, ezek kiindulásul szolgálhatnak a részletesebb tanulmányozás számára.

2. Alapfeltevések

Tételezzük fel, hogy egy atommag viselkedéséért véges sok, egymással kölcsönható bozon felelős.

Ez a feltevés ugyan első pillantásra szokatlannak tünik, hiszen az atommagra legtöbbször ugy gondolunk, mint protonok és neutronok, tehát fermionok együttesére, ám ellenérzésünket enyhithetjük a következők szem előtt tartásával. A modellalkotással az a célunk, hogy a rendszert jellemző sok szabadsági fok közül kiválasszunk néhányat, amelyeket könnyen tudunk kezelni, és amelyek segitségével a rendszer legfontosabb jellemvonásai jól értelmezhetők. Ezek lehetnek bozonikus szabadsági fokok is, ahogyan például a kollektiv gerjesztések kvantumai is bozonok voltak a folyadékcsepp-modellben, vagy gondoljuk meg, hogy a párba csatolt nukleonok is bozonok, és tudjuk, hogy az erős párkölcsönhatás miatt ezek fellépése igen valószinü az atommagokban. Szemléletbeli vélekedésünknek azonban nincs meghatározó fontossága; alapfeltevésünk jogosságának igazi próbaköve a belőle levonható következtetések helytállósága.

A bozonokat szerkezet és spin nélküli részecskékként kezeljük, amelyek adott impulzusmomentumu egyrészecske-állapotokat tölthetnek be. A közöttük müködő kölcsönhatás kéttest-kölcsönhatás.

A bozonok szerkezetnélkülisége azt jelenti, hogy eljárásunk nem adja meg a bozonállapotok kapcsolatát a proton- és neutronállapotokéval, vagyis nem világitja meg a bozonok fizikai természetét. Ennek felderitése fontos és érdekes feladat minden egyes kölcsönhatóbozon-modell esetében, tisztázása azonban mikroszkopikus (a nukleonokat egyenként tekintetbe vevő) számitásokat igényel, nem modellalkotási módszerünknek, a kölcsönható-bozon-közelitésnek a folyománya.

Alapfeltevéseinkből adódóan leirásunk egész spinü magállapotokra korlátozódik. Amint azonban a későbbiekben látni fogjuk, ezek az alapfeltevések általánosithatók oly módon, hogy a feles spinü magállapotok is leirhatók legyenek.

A modellfeltevések a bozonok egyrészecske-állapotainak megadásával válnak teljessé. Az egyes kölcsönhatóbozon-modellek éppen abban különböznek egymástól, hogyan választjuk ki ezeket az állapotokat. A legegyszerübb modell az, amelyben két darab egyrészecske-pályát veszünk tekintetbe, melyekhez $\ell=0$ impulzusmomentum tartozik. Ha $\ell=0$ és $\ell=1$ impulzusmomentumu pályákat engedünk meg, akkor négy darab egyrészecske-állapottal van dolgunk, hiszen az $\ell=1$-es impulzusmomentumnak három vetülete van: $m=-1,0,+1$; még akkor is, ha ezek az állapotok esetleg degeneráltak (energiájuk egybeesik). Hasonlóképpen, az $\ell=0$ és $\ell=2$ impulzusmomentumu pályák figyelembevétele $1+5=6$ db egyrészecske-állapotra alapozott leirást jelent.

Hogyan alakitják ki a bozonok a mag tulajdonságait? Nézzük például a gerjesztési energia spektrumát.

Az egyrészecske-állapotok energiája különböző lehet. Tekintsük azt az esetet, amikor két energianivónk van, mondjuk az egyik az $\ell=0$-ás, a másik pedig az $\ell=1$-es, vagy $\ell=2$-es, vagy egy, az előzőtől különböző energiáju $\ell=0$-ás. Ha az N db (véges sok és változatlan számu) bozont különbözőképpen helyezzük el a két nivón, akkor már csak az egyrészecske-energiák összegeként is különböző teljes energiákat kapunk. (Bozonokból természetesen tetszőleges sokat helyezhetünk el ugyanabban az állapotban, hiszen ezt nem tiltja a Pauli-elv - ellentétben a nukleonok hasonló elhelyezésével.) Ám ez az energiaspektrum még igen egyhangu; egyenlő távolságokban elhelyezkedő "létrafogakból" áll, és csöppet sem hasonlit a magok nivósémájára. A bozonok között müködő kölcsönhatás azonban ezt az egyszerü spektrumot eltorzitja. Olyannyira eltorzithatja, hogy az akár valószerüvé is lehet.

Az energia kiszámitásának menete demonstrálja modellünk müködését.

A számolásokhoz a betöltésiszám-reprezentációt (a keltő és eltüntető operátorok nyelvét) használjuk. A Hamilton-operátorban - alapfeltevésünkből kifolyólag - az egyrészecske-energiákon kivül csak a kéttest-kölcsönhatásból származó tagok szerepelnek. Az n db egyrészecske-állapotba keltő b_i^+ $(i=1,\ldots,n)$ és azokból eltüntető b_i $(i=1,\ldots,n)$ operátorok a bozonokra vonatkozó felcserélési relációknak tesznek eleget: $[b_i,b_j^+]\equiv b_ib_j^+ - b_j^+b_i=\delta_{ij}$, $[b_i^+,b_j]=[b_i,b_j]=0$. Mivel modellünkben a részecskeszám megmarad, ezért a fizikai mennyiségek operátoraiban a keltő és eltüntető operátorok csak azonos számban fordulhatnak elő, vagyis az operátorok kifejezhetők a $G_{ij}\equiv b_i^+b_j$ mennyiségekkel, amelyekből összesen $n\cdot n=n^2$ db van. A Hamilton-operátor alakja tehát

$$H=\sum_{ij}\varepsilon_{ij}G_{ij}+\sum_{ijk\ell}u_{ijk\ell}G_{ij}G_{k\ell}, \qquad (1)$$

ahol az ε_{ij} és $u_{ijk\ell}$ paramétereket a modell fenomenologikus jellegéből adódóan kisérleti adatokhoz való illesztésből határozzuk meg. Az (1) összefüggést másképpen fogalmazva: a Hamilton-operátort a G_{ij}-k szerinti sorfejtés formájában állitottuk elő, és a kvadratikus tagnál megálltunk, amit a kéttest-kölcsönhatásra való korlátozódásunk indokol. A Hamilton-operátor megszerkesztése után az energia kiszámitása - a kvantummechanikai sajátérték-probléma megoldásának receptje szerint - az energia- vagy Hamilton-mátrix meghatározásával, majd annak diagonalizálásával folytatódik. A diagonalizálást általában numerikusan hajtják végre, amihez természetesen ismernünk kell a Hamilton-operátor mátrixelemeit (nem diagonális formában) valamilyen bázisállapotok között. Keressük tehát a rendszer bázisállapotait. Felderitésükhöz hatékony segitséget nyujt a csoportelmélet, melynek alkalmazását az a tény könnyiti meg, hogy az n^2 darab G_{ij} operátor éppen az U(n) csoport generátora. Azt mondjuk, hogy a Hamilton-operátornak U(n) csoportszerkezete van, amin tehát azt értjük, hogy H az U(n) csoport generátoraival fejezhető ki. Érdemes ezért egy rövid kitérő erejéig szemügyre venni az algebrai módszerek felhasználásának módját, mely - mint látni fogjuk - a bázisállapotok felkutatásán kivül más haszonnal is jár. Ezt az áttekintést a következő fejezetben végezzük el.

A kölcsönhatóbozon-közelités módszerét eddig az energia-operátor példájával illusztráltuk. Más, fizikailag fontos operátorok (például az elektromágneses átmenetek operátorai) kapcsán hasonló eljárást követnek: az operátort az G_{ij}-k szerinti sorfejtéssel állitják elő, a sorfejtési együtthatók ismét illesztendő paraméterek.

3. Csoportelméleti eszközök

E rövid ismertető keretei nem engedik meg, hogy a csoportelméleti módszereknek a kölcsönhatóbozon-közelitésben való felhasználását részletesen áttekintsük, ezért itt e kapcsolatnak csupán néhány alapvető vonását szeretnénk szemléltetni.

3.1. Szimmetriacsoportok

A csoportelmélet fizikai felhasználásának (a kvantummechanika megjelenése után) első periódusát a szimmetriacsoportok alkalmazása jelentette. Számos kvantummechanikai rendszer viselkedését jellemzik szimmetriák, melyek összefüggéseit a csoportelmélet révén lehet feltárni. A legismertebb példa a forgáscsoport, és vele összefüggésben az impulzusmomentum-algebra. A szimmetriacsoportokkal és felhasználásukkal kapcsolatos legszükségesebb fogalmakat ennek segitségével vesszük szemügyre.

A J_x, J_y és J_z impulzusmomentum-operátorok a

$$[J_x,J_y] = iJ_z, \qquad [J_y,J_z] = iJ_x, \qquad [J_z,J_x] = iJ_y \tag{2}$$

felcserélési törvényeknek tesznek eleget. Más fizikai mennyiségek operátorai között is áll fenn hasonló összefüggés, nevezetesen: közülük bármely két operátor kommutátora ezen operátorok lineárkombinációját adja. Az ilyen operátorokra azt mondjuk, hogy Lie-algebrát alkotnak.

A (2) felcserélési törvényből következik, hogy létezik egy olyan

$$J^2 = J_x^2 + J_y^2 + J_z^2 \tag{3}$$

operátor, amely felcserélhető az összes impulzusmomentum-operátorral:

$$[J^2,J_x] = [J^2,J_y] = [J^2,J_z] = 0. \tag{4}$$

Hasonlóképpen: minden Lie-algebra elemeiből konstruálható egy vagy több olyan operátor, amely felcserélhető az algebra minden elemével. Ezeket az operátorokat Casimir-operátoroknak nevezzük.

A J_x, J_y és J_z operátorok a háromdimeziós, (valós), tér ortogonális (távolságtartó: $x^2+y^2+z^2=x'^2+y'^2+z'^2$) forgatásait generálják. Ha ψ a rendszer hullámfüggvénye, akkor az x tengely körüli infinitezimális α szöggel történő elforgatás után a hullámfüggvény:

$$\psi' = (1+i\alpha J_x)\psi. \tag{5}$$

A véges forgatások pedig az ilyen infinitezimális forgatásokból állithatók elő. Ugyanilyen összefüggések érvényesek az y és z tengely körüli forgatásokra is. A háromdimenziós tér ortogonális forgatásai csoportot alkotnak melyet O(3)-nak nevez-

nek. Ez azt jelenti, hogy a forgatások egymásutáni végrehajtására mint müveletre nézve teljesülnek a csoportaxiómák, u.m.: zártság, vagyis az α és β forgatások szorzata is forgatás: $\gamma=\alpha\cdot\beta$, asszociativitás: $(\alpha\cdot\beta)\cdot\gamma=\alpha\cdot(\beta\cdot\gamma)$, egységelem: $1\cdot\alpha=\alpha\cdot 1=\alpha$, és inverzelem: $\alpha\cdot\alpha^{-1}=\alpha^{-1}\cdot\alpha=1$ létezése. Hasonlóan: minden Lie-algebrához tartozik (Lie-) csoport, amelynek generátorai az algebra elemei. Igy például az n dimenziós ortogonális csoportot, melyet O(n)-nel jelölünk az n dimenziós lineáris tér azon transzformációi alkotják, amelyek megőrzik egy tetszőleges z vektor $z_1,\ldots,z_n$ komponenseiből alkotott $\Sigma_{i=1}^{n} z_i^2$ mennyiséget. Speciálisan: a két dimenziós tér (az x-y sik) ortogonális forgatásainak csoportja: O(2). Ezt a csoportot a J_x és J_y operátorok generálják, a hozzá tartózó Lie-algebra Casimir-operátora pedig J_z.

Az előzőekben emlitett n^2 db $b_i^{\dagger}b_j$ bilineáris operátor is Lie-algebrát alkot, az általuk generált csoport pedig az n dimenziós komplex vektortér unitér forgatásainak csoportja. Unitérnek azt a transzformációt nevezzük, amely megőrzi a $\Sigma_{i=1}^{n} z_i^* z_i$ mennyiséget: $\Sigma_{i=1}^{n} z_i^* z_i = \Sigma_{i=1}^{n} z_i'^* z_i'$.

Később az unitér és az ortogonális csoportokon kivül még egy nevezetes csoportfajtára fogunk hivatkozni, a szimplektikus csoportra. Ez páros (2n) dimenziószámu lineáris terek olyan transzformációs csoportja, amely a tér két tetszőleges $z\equiv(z_1,\ldots,z_n,\ \tilde{z}_1,\ldots,\tilde{z}_n)$ és $w\equiv(w_1,\ldots,w_n,\ \tilde{w}_1,\ldots,\tilde{w}_n)$ eleméből képzett $\Sigma_{i=1}^{n}(z_i\tilde{w}_i-\tilde{z}_i w_i)$ mennyiséget hagyja változatlanul. Jele Sp(n) (, vagy Sp(2n)).

Mi <u>a Lie-algebra ismeretének haszna</u> különböző esetekben (még mindig az impulzusmomentum példájánál maradva) ? 1. Ha a Hamilton-operátorunk forgásinvariáns, tehát felcserélhető J_x-, J_y- és J_z-vel, vagyis O(3) rendszer szimmetriacsoportja. Ekkor a Hamilton-operátor sajátállapotainak teljes készlete sajátállapota J^2-nek és valamelyik komponensnek, mondjuk J_z-nek is. (Ha a rendszer állapota J_z-nek sajátállapota, akkor a fel nem cserélhetőség miatt már nem lehet sajátállapota J_x- és J_y-nak.) Ha J^2 sajátértéke J, akkor ehhez J_z-nek 2J+1 sajátértéke tartozik: $m=-J,-J+1,\ldots,J-1,J$. Forgásinvariancia esetében ezek a sajátállapotok degeneráltak. Ilyenkor az impulzusmomentum-algebra azáltal egyszerüsiti a feladatot, hogy két mozgásállandót (J és m), másszóval az állapotok jellemzésére szolgáló kvantumszámot ad. Bázisállapotaink J^2 és J_z sajátfüggvényei, a J és m indexekkel jellemzett gömbi harmonikus függvények. 2. Ha a Hamilton-operátor nem cserélhető fel mind a három impulzusmomentum-operátorral, de még mindig felcserélhető J^2-tel és J_z-vel, vagyis az O(3) nem szimmetriacsoportja a rendszernek, de a forgásinvariancia speciális módon sérül. Ekkor az energia-sajátértékek szintén J^2 és J_z sajátértékek, de a 2J+1 tagu, multiplettek nem degeneráltak többé. Ez a helyzet például annak a spin nélküli töltött részecskének az esetében, amely egy gömbszimmetrikus térre szuperponált z-irányu homogén mágneses mezőben mozog. Ennek a rendszernek a Hamilton-operátora

$$H = H_o + KJ_z \qquad (6)$$

alaku, ahol H_o felcserélhető J_x-, J_y- és J_z-vel, K pedig állandó. Egy multipletten belül az energianivók távolsága K. 3. Ha a

Hamilton-operátor nem cserélhető fel ezekkel az operátorokkal sem, de jól közelithető egy, az impulzusmomentumokkal, vagy a J^2-tel és J_2-vel felcserélhető operátorral, akkor perturbációszámitást lehet végezni, és a nem-perturbált sajátérték-probléma megoldásában segit az impulzusmomentum-algebra.

A szimmetraicsoport és a hozzá tartozó algebra felismerése révén azon tul, hogy a rendszer állapotai multiplettekbe sorolhatók ismerjük a multiplettek összeadásának szabályait is (például: egy részecske teljes impulzusmomentuma mint a pályamomentum és a spin eredője). Továbbá a rendszer állapotai között való átmenetek valószinüségeit leiró mátrixelemek között összefüggések állapithatók meg (például kiválasztási szabályok). Ha a rendszert valamilyen más szimmetriacsoporttal (is) jellemezhetjük az 1.,2. vagy 3. pont értelmében, akkor annak létéből ugyanilyen jellegü következmények fakadnak.

A szimmetriacsoportok klasszikus példái a háromdimenziós izotróp harmonikus oszcillátor és a hidrogén atom degenerált sajátállapotait leiró csoportok.

A háromdimenziós harmonikus oszcillátor Hamilton-operátora Descartes-koordinátákkal felirva szétesik három darab egydimenziós harmonikus oszcillátor Hamilton-operátorára. A háromdimenziós oszcillátor energiája az oszcillátorkvantumok számától függ, de független azok eloszlásától az egydimenziós oszcillátorok között. Ez a tény jól láthatóvá teszi az energiaszintek erősen degenerált voltát.

Gömbi koordinátákban elvégezve a sajátérték-probléma megoldását a rotációs invarianciából eredő degeneráltság szintén megmutatkozik. Szembe tünik azonban további elfajulás is: különböző impulzusmomentum-értékekhez tartozó sajátfüggvények energiája azonos. A rendszer szimmetriacsoportja tehát nagyobb mint az O(3) csoport; az elfajult energia-sajátállapotok osztályozását egy olyan csoport segitségével végezhetjük el, amely az O(3) csoportot részcsoportként (a csoportmüveletre és inverzelemekre nézve zárt részhalmazként) tartalmazza.

Azok az operátorok, amelyek nem változtatják meg az állapot energiáját nyilvánvalóan azok, amelyek az egyik irányban lévő oszcillátorkvantumok számát csökkentik, a másik irányban lévő kvantumok számát pedig növelik. Ezek az operátorok a legkényelemesebben a keltő és eltüntető operátorokkal fejezhetők ki: $a_i^+ a_j$ $(i=x,y,z)$. Összesen 9 darab ilyen $a_i^+ a_j$ operátor van, amelyek az SU(3) csoport generátorai (a részecskeszám-operátor leválasztása után). Az S a speciális szót röviditi, és azt jelenti, hogy e csoport elemei olyan mátrixokkal reprezentálhatók (ld. a fejezet végén), amelyeknek a determinánsa +1.

A nemrelativisztikus Coulomb-probléma esetében (hidrogén atom) szintén erős elfajulást tapasztalunk a kötött energia-sajátállapotok körében, amiből szimmetriacsoport létére következtethetünk. A részletek mellőzésével itt csupán annak megjegyzésére szoritkozunk, hogy ennek a rendszernek a szimmetriacsoportja az SO(4).

A továbbiak szempontjából hasznos az itt emlitett példák kapcsán még egy fogalmat megvilágitani. Azt mondjuk, hogy a harmonikus oszcillátornak SU(3), a hidrogén atomnak pedig SO(4) dinamikai szimmetriája van. A dinamikai jelző a geometriai szimmetriáktól való különbözőségre hivja fel a figyelmet. A geometriai szimmetria operációi változatlanul hagyják a rendszer

potenciális energiáját. A dinamikai szimmetria transzformációi csak a teljes Hamilton-operátort hagyják változatlanul. Mind a tér-, mind az impulzuskoordinátákat transzformálják, de úgy, hogy az energia operátora invariáns marad. A dinamikai szimmetria fellépése a rendszerben működő kölcsönhatás speciális voltának köszönhető.

3.2. Spektrumgeneráló algebrák, dinamikai csoportok

Körülbelül 1960-tól kezdődően a csoportelmélet fizikai felhasználásának egy másik formája bontakozott ki. Ennek során olyan csoportokat kutattak fel, amelyeknek generátorai nem cserélhetőek fel a Hamilton-operátorral, de vele egyszerű felcserélési relációnak tesznek eleget oly módon, hogy a generátor egy energia-sajátállapotból egy attól különböző energiáju sajátállapotba viszi át a rendszert. Az ilyen csoportok generátorai által alkotott Lie-algebrát spektrumgeneráló algebrának nevezik.

A harmonikus oszcillátor és a Coulomb-probléma spektrumgeneráló algebráját egyaránt az SU(1,1) csoport generátorai alkotják. A H atom esetében ez az algebra szórási állapotokat is generál. (Az U(p,q) csoport elemei azok a transzformációk, amelyek a p+q=n dimenziós komplex vektortér tetszőleges eleméből képzett

$$-\sum_{i=1}^{p} z_i z_i^* + \sum_{i=p+1}^{p+q=n} z_i z_i^* = -\sum_{i=1}^{p} z_i' z_i'^* + \sum_{i=p+1}^{p+q=n} z_i' z_i'^* \qquad (7)$$

alaku formát változatlanul hagyják. Hasonlóan az SO(p,q) csoport elemei azok a transzformációk, amelyek a

$$-\sum_{i=1}^{p} z_i^2 + \sum_{i=p+1}^{p+q=n} z_i^2$$

mennyiséget megőrzik.)

Egy rendszer dinamikai csoportjának azt a csoportot nevezzük, amely képes megadni a rendszer energiaspektrumát és az energiaszintek elfajultságát, és amely meghatározza az állapotok közötti átmenetek valószinüségét.

A harmonikus oszcillátor dinamikai csoportja az SU(3,1) csoport, mely részcsoportként tartalmazza mind az SU(3), mind az SU(1,1) csoportokat. Hasonlóképpen: a Coulomb-probléma dinamikai csoportja, az SO(4,2) csoport, melynek az SO(4) és az SU(1,1) részcsoportjai.

3.3. Csoportreprezentációk

A csoportok absztrakt algebrai strukturák, amelyeket az elemeik között fennálló összefüggések jellemeznek. Fizikai alkalmazásukhoz azonban szükségünk van konkrét, számolásokra alkalmas ábrázolásukra is. A következőkben főként a csoportok mátrixreprezentációja játszik fontos szerepet.

Azok az

$$A = \begin{pmatrix} a_{11} & a_{12} & \cdots & a_{1n} \\ a_{21} & a_{22} & \cdots & a_{2n} \\ \vdots & & & \\ a_{n1} & a_{n2} & \cdots & a_{nn} \end{pmatrix} \qquad (8)$$

tipusu (röviden: n dimenziós négyzetes) mátrixok, amelyek determinánsa nem nulla, a szokásos mátrixszorzásra nézve: $C=A\cdot B$

($c_{ik}=\sum_{j=1}^{n} a_{ij}b_{jk}$) csoportot alkotnak. A csoport egységeleme az egységmátrix:

$$1 = \begin{pmatrix} 1 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & 1 & \dots & 0 \\ \vdots & & & \\ 0 & 0 & \dots & 1 \end{pmatrix} . \qquad (9)$$

Az a_{ij} komplex számok folytonosan változhatnak, a csoportelemek számossága kontinuum, ezért azt mondjuk, hogy folytonos komplex mátrixcsoporttal van dolgunk.

Azokat a mátrixokat, amelyek eleget tesznek az $A^{+}A=1$ megkötésnek, unitér mátrixoknak nevezzük. A^{+} itt az A mátrix adjungáltja, melyet A-ból a főátlóra való tükrözéssel (A^{t}), és az elemek komplex konjugáltjával való helyettesitésével nyerünk. Az ortogonális mátrixokat az $A^{t}A=1$ tulajdonság jellemzi. (Látható, hogy valós mátrixok esetén az orotognalitás és az unitaritás azonos követelmény.)

Az nxn-es unitér mátrixok az U(n), mig az nxn-es ortogonális mátrixok az O(n) csoport mátrixreprezentációját alkotják.

Az n dimenziós komplex mátrix n^2 db valós számot jelent. Ezek folytonosan változhatnak, ezért azt mondjuk, hogy az n dimenziós komplex mátrixok $2n^2$ paraméteres csoportot alkotnak. Az unitér mátrixok elemeire nézve az $A^{t}A=1$ megkötés n^2 db egyenletet jelent, ezért azok n^2 paraméteresek. A speciális unitér csoport a $\det|A|=+1$ egyenlőség miatt n^2-1 paraméteres. Az ortogonális komplex mátrixok csoportja n(n-1) paraméteres.

A mátrixreprezentációk között is kitüntetett helyet foglalnak el a tenzorreprezentációk. Különösen kényelmessé teszi őket az a körülmény, hogy segitségükkel könnyen számot adhatunk a sokrészecske-rendszert jellemző permutációs szimmetriáról.

Az azonos részecskék alkotta rendszer leirására szolgáló Lie-algebrák operátorai felcserélhetők a részecskék permutációját leiró operátorokkal. Ennélfogva az egy multiplettbe tartozó állapotok ugyanolyan permutációs szimmetriával rendelkeznek. Az általános definiciók helyett inkább csak érzékeltetjük ismét az koncepciót, a másodrangu tenzorok egyszerü példája segitségével.

Tekintsük a háromdimenziós vektortér (V_3) egy elemét, melyet most $x\equiv(x_1,x_2,x_3)$-mal jelölünk, és amely egy általános lineáris transzformáció során az

$$x_i' = \sum_k a_{ik}\, x_k \qquad (10)$$

módon transzformálódik. (Az n dimenziós tér általános lineáris transzformációit olyan mátrixok jellemzik, amelyekre nézve az egyetlen kikötés, hogy nem szingulárisak: $\det|A|\neq 0$.) Ezek a transzformációk csoportot alkotnak, melynek jele: GL(n). Nyilvánvalóan: $GL(n)\supset SL(n)$, $GL(n)\supset U(n)$, $GL(n)\supset O(n)$...).
Legyen $y\equiv(y_1,y_2,y_3)$ a vektortérnek egy másik eleme. A 9 db $x_k y_\ell$ szorzat transzformációját az

$$x_i' y_j' = \sum_{k,\ell} a_{ik}\, a_{j\ell}\, x_k\, y_\ell \qquad (11)$$

egyenlet adja. Az $F_{ij}\equiv x_i y_j$ mennyiségekre azt mondjuk, hogy azok a V_3 vektortér felett értelmezett másodrangu tenzor elemei. Az F_{ij} tenzorok egyuttal vektorteret is alkotnak, melyet a V_3 vektortér önmagával képezett direkt szorzatának ($V_3 x V_3$) nevezünk. Az $a_{ik}a_{j\ell}$ elemek szintén csoportot alkotnak, amelyet a GL(3) csoport önmagával képezett direkt szorzatának (GL(3)xGL(3)) nevezünk. Ez a csoport 9x9-es mátrixok képében a GL(3) csoport egy reprezentációját adja. (Két különböző vektortér és azok transzformációcsoportjainak direkt szorzata hasonlóképpen értelmezhető.)

Képezve az

$$S_{ik}=S_{ki}=\frac{1}{2}(F_{ik}+F_{ki}),$$
$$A_{ik}=-A_{ki}=\frac{1}{2}(F_{ik}-F_{ki}) \qquad (12)$$

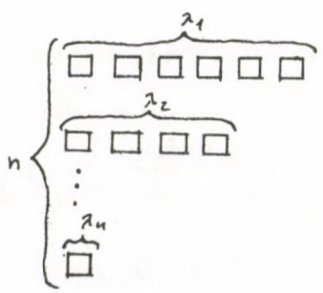
mennyiséget a tenzor egy 6 komponensü szimmetrikus (S_{ik}) és egy 3 komponensü antiszimmetrikus (A_{ik}) részre esik szét. S_{ik}-ra és A_{ik}-ra azt modnjuk, hogy GL(3)-ra nézve irreducibilis tenzorok.

Más dimenziószámu lineáris tér fölött értelmezett tenzorok definiciója értelemszerü általánositással nyerhető. Ha pedig a vektorok komponenseiből nem kétszeres, hanem r-szeres szorzatokat készitünk, akkor az r-ed rangu tenzor meghatározásához jutunk. Az n dimenziós vektortér felett értelmezett r-ed rangu tenzorok azonban nem bonthatók fel csupán teljesen szimmetrikus és teljesen antiszimmetrikus részekre, mint ahogyan az az előző egyszerü példánkban volt, hanem ennél bonyolultabb szimmetriáju komponensek is előfordulnak. Hogy miféle szimmetriával rendelkeznek az n dimenziós vektortér felett értelmezett r-ed rangu tenzorok a permutációval szemben (vagyis melyek az irreducibilis tenzorok a szóban forgó transzformációcsoportra nézve), annak felkutatására a Young-ábrák szolgálnak. Éspedig a következő módon:

1. Bontsuk fel r-et n db λ_i nemnegativ egész szám összegére oly módon, hogy teljesüljenek az alábbi összefüggések:

$$\lambda_1 + \lambda_2 + \ldots + \lambda_n = r,$$
$$\lambda_1 \geq \lambda_2 \geq \ldots \geq \lambda_n \geq 0. \qquad (13)$$

2. Minden felbontásnak megfeleltetünk egy Young-ábrát a következő illusztráció szerint:



(14)

példánkban $\lambda_1=6, \lambda_2=4, \ldots, \lambda_n=1$ értéket választottunk. Ezt röviden [64...1]-gyel jelöljük, a $\lambda_1, \ldots, \lambda_n$ felbontást hasonlóan $[\lambda_1\lambda_2\ldots\lambda_n]$-nel.

3. A tenzor szimmetrikus a soron belüli, és antiszimmetrikus az oszlopon belüli felcserélésre.

Példaként tekintsük a már emlitett egyszerü esetet: r=2. A lehetséges felbontások a következők: a) $\lambda_1=1$, $\lambda_2=1$, s) $\lambda_1=2$, $\lambda_2=0$. A megfelelő Young-ábrák:

$$a)\ \begin{array}{|c|}\hline\ \\ \hline\ \\ \hline\end{array} \equiv [1,1], \qquad s)\ \square\square \equiv [2]. \tag{15}$$

Az a) felbontás az antiszimmetrikus, mig az s) felbontás a szimmetrikus tenzort szolgáltatja.

Tekintettel arra, hogy az irreducibilis tenzor egy transzformációs csoportra nézve van értelmezve egy másik transzformációs csoportra áttérve az irreducibilitás tényét külön meg kell vizsgálni. Bizonyitás nélkül megjegyezzük itt, hogy a GL(n)-re nézve irreducibilis tenzorok irreducibilis tenzorok U(n)-re nézve is, de már nem azok O(4)-re nézve.

Az irreducibilis reprezentációkat tehát annyi egész számmal tudjuk jellemezni, ahány sora van a Young-ábrának. A GL(n) és az U(n) csoport esetében ez n db, az SU(n) esetében n-1 db, az O(n) és SO(n) esetében $\nu=n/2$, ha n=páros és $\nu=(n-1)/2$, ha n=páratlan, az Sp(n) esetében $\nu=n/2$ db számot jelent.

Egy (tetszőleges) G csoportra nézve irreducibilis tenzorok a G csoportnak az irreducibilis tenzorreprezentációját definiálják. Annak a kérdésnek az eldöntése, hogy a G csoport irreducibilis reprezentációja milyen irreducibilis reprezentációit tartalmazza egy $G' \subset G$ részcsoportnak, külön vizsgálatot igényel. Ennek a távolról sem triviális csoportelméleti feladatnak nagy jelentősége van a fizikai alkalmazásokban, amint azt a sokrészecskerendszer bázisállapotainak felkutatása kapcsán a következőkben is fogjuk látni.

4. Bázisállapotok, dinamikai szimmetriák

Ha a vizsgált rendszer Hamilton-operátora G csoportszerkezettel rendelkezik, azaz kifejezhető a G csoport generátoraival, akkor a bázisállapotokat egy G-ből induló, teljes csoportlánc tagjainak irreducibilis reprezentációi szolgáltatják:

$$G \supset G' \supset G'' \supset \ldots \tag{16}$$

A csoportláncot egymásba skatulyázott alcsoportok alkotják, amelyek rendszerint az O(3) vagy O(2) csoportig vezetnek. Az a tény, hogy a láncot az O(3) vagy O(2) csoport zárja le azt juttatja kifejezésre, hogy a rendszer a térbeli (vagy sikbeli) elforgatásokkal szemben invariáns, és az impulzusmomentum (vagy annak vetülete) a rendszer állapotait jellemző jó kvantumszám. A csoportlánc teljességének megvilágitásához a csoporthoz tartozó algebrákat használhatjuk fel. A G csoport generátorai a kommutációs relációra nézve egy zárt halmazt, Lie-algebrát alkotnak. Megkeressük ezeknek egy részhalmazát, amelyek ugyancsak zártak a kommutációs relációra nézve. Ezek az elemek az előző Lie-algebrának egy részalgebráját alkotják, az általuk generált G' Lie-csoport pedig alcsoportja G-nek. A következő lépésben

hasonlóképpen jutunk G''-re. Mindezt annak szem előtt tartásával végezzük, hogy a végén az O(3) ill. O(2) csoportra jussunk, a rendszer szimmetriájának megfelelően; vagyis ezek generátorait megtartjuk a láncban szereplő minden algebra elemei között. Ha G^i és G^{i+1} között nem lehet további lépést közbeiktatni az előzőek szellemében, akkor az igy nyert (16) tipusu csoportláncot teljesnek nevezzük. Ekkor a csoportok irreducibilis reprezentációját jellemző indexek szolgáltatják a bázisállapotok kvantumszámait. A bázisállapotok felkutatása tehát az előző fejezet végén emlitett matematikai problémára redukálódott: azt kell tudnunk, hogy a G csoport irreducibilis reprezentációja mely irreducibilis reprezentációját tartalmazza a G' csoportnak, s.i.t. Ha a vizsgált rendszer r db részecskéből áll, akkor a kérdés az r-ed rangu tenzorreprezentációkra vonatkozik.

Lehetséges, hogy több, a követelményeinknek eleget tevő csoportlánc is létezik. Akkor valamennyien egy-egy bázist szolgáltatnak, amely bázisok természetesen, egymásba transzformálhatók.

Ha a Hamilton-operátor kifejezhető egy (16) tipusu csoportlánc Casimir-operátoraival, akkor azt mondjuk, hogy a rendszernek a szóban forgó csoportlánccal jellemezhető dinamikai szimmetriája van. Ez a Hamilton-operátor az (1) általános kifejezésében szereplő együtthatók speciális értékei mellett valósul meg: vagyis a modell valamely határesetét jelenti. Ekkor H sajátérték-problémája analitikusan megoldható, a rendszer energiáját zárt formula adja. Más fizikai mennyiségek várható értéke is egyszerüen számitható.

Egy G csoportszerkezetü Hamilton-operátorral rendelkező kölcsönhatóbozon-modellnek rendszerint több dinamikai szimmetriája létezik.

Megjegyzendő azonban, hogy a dinamikai szimmetriának ez az értelmezése általánosabb, mint amit a szimmetriacsoportok kapcsán emlitettünk. A Hamilton-operátorban szereplő G', G'',... csoportok Casimir-operátora miatt G nem szimmetraicsoportja, hanem dinamikai csoportja a rendszernek. Multiplettjeik nem degeneráltak, hanem felhasadnak, de az állapotok jellemzésére jó kvantumszámok a csoportok irreducibilis reprezentációit jellemző indexek. Azt lehet mondani, hogy a hidrogén atom, vagy a harmonikus oszcillátor példájával illusztrált korábbi definiciónk értelmében az itt adott meghatározás sérült dinamikai szimmetriákat is megenged. De, mint emlitettük, az ilyen értelemben vett dinamikai szimmetria fellépése is a kölcsönhatás speciális alakjának köszönhető.

A helyzet azzal analóg, mint amit a mágneses térben mozgó spin nélküli részecske kapcsán emlitettünk. A (6)-beli Hamilton-operátorban a z irányu mágneses tér miatt jelenlévő KJ_z tag rontja el a H_o szimmetriáját (H_o az impulzusmomentumot csak J^2 formában tartalmazta). Ennek a rendszernek a jellemzésére egy meghatározott J érték mellett az O(3)⊃O(2) csoportlánc szolgál.

A háromdimenziós harmonikus oszcillátor SU(3) szimmetriájának hasonló jellegü megsértése a magfizikában igen gyümölcsözőnek bizonyult. Az Elliott-modell a magok leirásához abból indul ki, hogy azokat háromdimenziós harmonikusoszcillátor-potenciálban mozgó nukleonok együttesének tekinti. Ilyenkor a rend-

szernek az SU(3) éppugy szimmetriacsoportja, mint egyetlen részecske esetében volt. Ezután figyelembe veszi a nukleonok között müködő kölcsönhatást, amelyről azt tételezi fel, hogy kvandrupólus tipusu (a kölcsönhatás nyilvánvalóan multipól-sorba fejthető és ebből a modell csak egy tagot tart meg). Ennek következtében az SU(3) multiplettek felhasadnak. A Hamilton-operátor a

$$H=H_{osc}-36VC_{SU3}+3VL^2 \qquad (17)$$

alakba irható, ahol H_{osc} az oszcillátor-potenciálban kölcsönhatás nélkül mozgó nukleonok Hamilton-operátora, V a maradék kéttest-kölcsönhatás erősségét jellemző tényező, C_{SU3} az SU(3) csoport Casimir-operátora, L^2 az impulzusmomentum-négyzet, vagyis az O(3) csoport Casimir-operátora. Az állapotok multiplettekbe szerveződését most az $SU(3)\supset O(3)$ csoportlánc jellemzi. A Hamilton-operátor (17) alakjából az is kitünik, hogy az állapotok rotációs sávot alkotnak, amelyhez az

$$\frac{1}{2\theta} = 3V \qquad (18)$$

egyenlet által definiált θ tehetetlenségi nyomaték tartozik. Az Elliott-modell ily módon (a magelmélet történetében elsőként) mikroszkopikus leirását adta a mag egészére jellemző kollektiv viselkedésnek, a rotációnak.

Az elemi részecskék spektrumának rendszerezésére Gell-Mann és Ne'eman által bevezetett SU(3) dinamikai szimmetria hasonló értelemben sérül, az $SU(3)\supset SU(2)\times U(1)\supset SO(2)\times U(1)$ csoportlánccal jellemzett módon.

A kölcsönhatóbozon- közelitésről eddig elmondottak szemléltetése érdekében vegyük szemügyre az ilyen modellek egy egyszerü példáját. A bozonok számára két különböző egyrészecske-állapotot engedünk meg, de mindkettőhöz nulla impulzusmomentum, és pozitiv paritás jár. A két állapothoz tartozó keltő és eltüntető operátorokat jelölje s^+, σ^+, s és σ. A felcserélési relációk:

$$\begin{aligned}&[s,s^+]=[\sigma,\sigma^+]=1,\\ &[s,s]=[\sigma,\sigma]=[s^+,s^+]=[\sigma^+,\sigma^+]=\\ &=[\sigma,s^+]=[s^+,\sigma^+]=[s,\sigma]=[s,\sigma^+]=0.\end{aligned} \qquad (19)$$

A keltő és eltüntető operátorokból képzett, a teljes bozonszámot megőrző bilineáris operátorok: s^+s, $\sigma^+\sigma$, σ^+s és $s^+\sigma$. Közülük az első és második az s ill. σ állapotban lévő bozonok számát méri: $n_s=s^+s$, $n_\sigma=\sigma^+\sigma$. Célszerü bevezetni e négy operátornak a következő lineárkombinációját:

$$\begin{aligned}N&=n_s+n_\sigma=s^+s+\sigma^+\sigma\\ t_3&=\tfrac{1}{2}(\sigma^+\sigma-s^+s)\\ t_1&=\tfrac{1}{2}(\sigma^+s+s^+\sigma)\\ t_2&=\tfrac{1}{2}(\sigma^+s-s^+\sigma)\end{aligned} \qquad (20)$$

Ezen operátorok a felcserélési relációra nézve zárt halmazt, azaz Lie-algebrát alkotnak, melynek elmei az U(2) csoportot

generálják. Az operátorok közül az első a bozonok számát adja. Mivel alapfeltevésünknek megfelelően modellünkben a teljes bozonszám megmarad hagyjuk figyelmen kivül N-et. A maradék három operátor szintén Lie-algebrát alkot a kommutációra nézve. Ez az algebra éppen az impulzusmomentum-algebra, vagy ami azzal azonos, az izospin-algebra. Ez utóbbit használva szemléltetésül mondhattuk volna azt, hogy σ a proton-, s pedig a neutronállapotot jelöli, egy olyan egyszerü leirásban, amelyben a hely- és spinfüggő részeket figyelmen kivül hagytuk. Ennek az algebrának az elemei az SU(2) csoportot generálják. (A félegész impulzusmomentum-értékeket is megengedve ez az impulzusmomentum-algebrához tartozó csoport. A korábban emlitett O(3) a csak egész értékeket felvevő impulzusmomentum - például pályamomentum - algebrájához tartozik.) A Hamilton-operátor SU(2) csoportszerkezettel rendelkezik, egy- és kéttest-kölcsönhatásokat tartalmazó általános alakja a következő:

$$H=\sum_i \varepsilon_i t_i + \sum_{ij} u_{ij}\, t_i\, t_j. \qquad (21)$$

A bázist az $SU(2)\supset SO(2)$ csoportlánc szolgáltatja, állapotait a t^2 és t_3 operátorok (a csoportlánc tagjainak Casimir-operátorai) τ és τ_3 sajátértékei jellemzik. A dinamikai szimmetriának megfelelő Hamilton-operátorok közül megemlitjük a

$$H=-\alpha t_3^2 \qquad (22)$$

esetet. Az energiát (22)-nek megfelelően az

$$E=-\alpha \tau_3^2 \qquad (22)$$

adja. A (22) az egydimenziós Morse-oszcillátor Hamilton-operátora, amelyet differenciálegyenlet (Schrödinger-egyenlet) leirásban a

$$V(x)=e^{-2x}-2e^{-x} \qquad (24)$$

potenciál jellemez, és amely molekulafizikai problémákkal kapcsolatban tart számot érdeklődésre. A (21) tipusu Hamilton-operátorral rendelkező modelleket szokás Lipkin-modellnek nevezni.

5. A kölcsönhatóbozon-modellek családfája

Napjainkra a kölcsönhatóbozon-modellek száma annyira megnőtt, hogy áttekintésüket a történelmi ut követése helyett célszerübb logikai sorrendben végezni. A következőkben mi is ezt választjuk.

A vibron modellben a tekintetbe vett egyrészecske-állapotokhoz 0^+ ill. 1^- spin-paritás tartozik (σ ill. π állapot). Ennek megfelelően a Hamilton-operátor U(4) csoportszerkezettel rendelkezik [1-3]. Ez a modell a dipólus tipusu kollektivitás leirására való. Kétatomos molekulák [4] és az atommagok molekulaszerü gerjesztéseinek leirására alkalmazták néhány esetben [5-7]. Egy továbbfejlesztett változatában háromatomos molekuláknak a két kémiai kötése mentén lezajló kollektiv mozgását tanulmányozták [8]. Mindkét kötés mentén U(4)-es csoportszerkezetü Hamilton-operátor jellemzi a rotációt-vibrációt, ezért a teljes rendszer Hamilton-operátora $U^1(4)\times U^2(4)$ csoport-

szerkezettel rendelkezik.

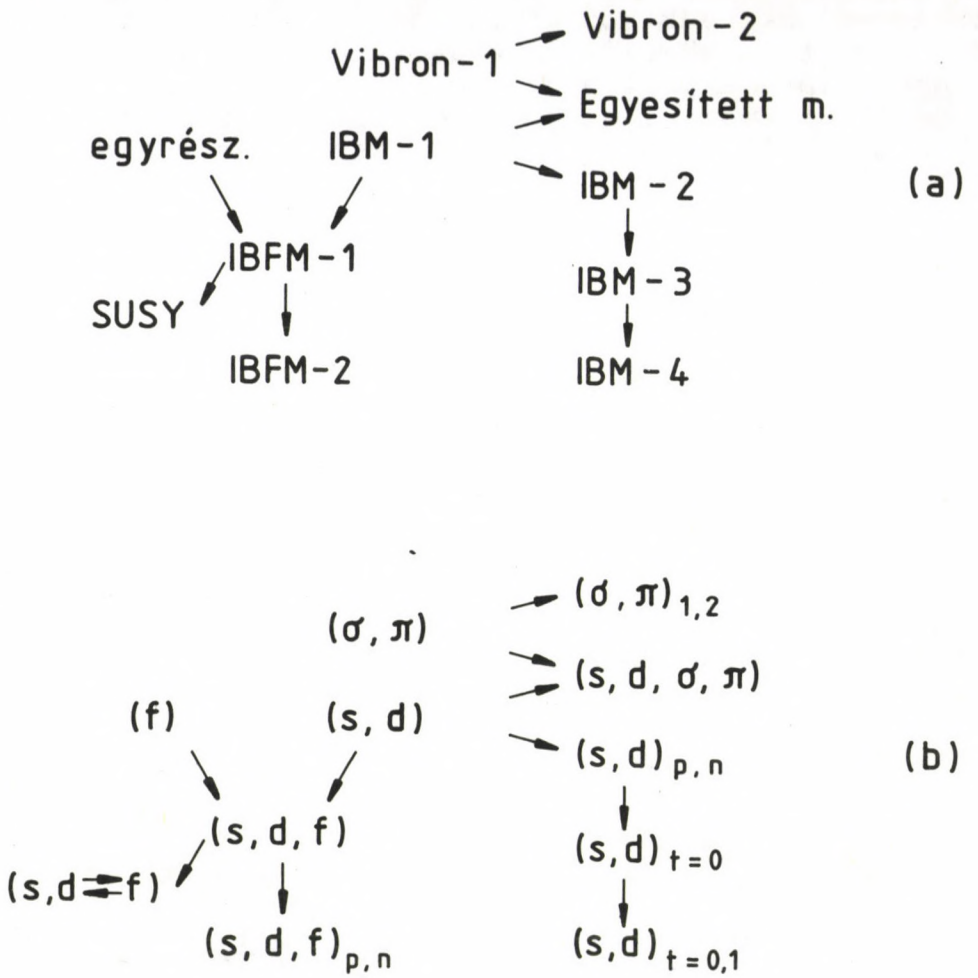
A kölcsönhatóbozon-modell-1 (IBM-1) a történetileg elsőként megalkotott modell [9-12]. A leirást ebben a modellben 0^+-os és 2^+-os spin-paritásu egyrészecske-állapotokra (s és d állapotokra) alapozzák. A Hamilton-operátor csoportszerkezete U(6). A modellt széles körben alkalmazták közepes és nehéz páros protonszámu és páros neutronszámu atommagok alacsonyan fekvő kollektiv állapotainak leirására [13]. E modell lényegében ekvivalens a kollektiv mozgás folyadékcsepp- vagy geometriai modelljével [14].

A kölcsönhatóbozon-modell-2 (IBM-2) leirás az előző általánositása oly módon, hogy az s és d bozonokat egy ujabb szabadsági fokkal látjuk el: mindketten lehetnek proton- ill. neutronbozonok [15]. A Hamilton-operátor csoportszerkezete $SU(2)\times U(6)$ ahol az első tényező a proton-neutron szabadsági fok alterében, az utóbbi pedig az impulzusmomentum altérben jellemzi a rendszert. E fejlettebb változat lehetőséget nyujt az s és d bozonokra alapozott leirás és a héjmodell-kép viszonyának felderitésére. Eredményül az adódik, hogy egy s állapotu protonbozon egy 0 impulzusmomentumu állapotba összecsatolt protonpárt, mig egy d állapotu neutronbozon egy 2-es impulzusmomentumu állapotba összecsatolt neutronpárt jelent, s.i.t.

Az s-d bozonközelités mikroszkopikus megalapozása veti fel a proton-neutron párok alkotta bozonok szükségességét. Ezek tekintetbevétele vezetett az IBM-3, majd az IBM-4 változatra [16]. Mindkettőben szerepel proton-neutron pár mint bozon, az utóbbi az izospin-formalizmust teljesen következetesen épiti be a modellbe. A Hamilton-operátoruk csoportszerkezete $SU(3)\times U(6)$ ill. $SU(4)\times U(6)$. Alkalmazásuk a könnyü magok tartományában előnyösebb, mint az egyszerübb változatoké.

Az egyesitett modellben a dipólus és a kvadrupólus modell egyrészecske-állapotait egyaránt tekintetbe veszik [17]. Ennek megfelelően 0^+, 2^+, 0^+ és 1^- spin-paritásu állapotokból (s,d, σ és π állapotokból) indul ki a leirás. A Hamilton-operátor csoportszerkezete $U(6)\times U(4)$. E modell alkalmazása azokban az esetekben válik szükségessé, amelyekben mind a dipólus, mind a kvadrupólus kollektivitás fontos szerephez jut. Az első számitásokat [18] a nehéz α-klaszterizációjával kapcsolatban végezték.

A kölcsönható bozon-fermion modell (IBFM-1) az IBM-1-nek olyan kiterjesztése, amelyben a kollektiv viselkedésért felelős bozonokon kivül a leirásba explicit módon belefoglalják a nukleonok egyrészecskés szabadsági fokait [19,20]. Ha m db fermion egyrészecske-állapotot veszünk tekintetbe, akkor a Hamilton-operátor csoportszerkezete $U^B(6)\times U^F(m)$. A már ismert b_i^+ és b_i bozonkeltő és -eltüntető operátorokon kivül még a_j^+ és a_j fermionkeltő és -eltüntető operátorok is fellépnek a fizikai menynyiségek operátoraiban. A modell azonban mindkét fajta részecskeszám megmaradását megköveteli, ezért csak a $b_i^+ b_\ell$ és $a_j^+ a_k$ bilineáris szorzatok fordulhatnak elő. Ebben a keretben a páratlan nukleonszámu magok tulajdonságai is vizsgálhatók. További általánositásként ismét bevezethetjük a proton-neutron szabadsági fokot, ahogyan azt az IBM-2 kapcsán láttuk, és igy nyerjük az IBFM-2 leirást.



1. ábra
A leggyakrabban idézett kölcsönható-bozon tipusu modellek összefüggése (a) a modellek neveivel, (b) alapvető épitőköveikkel szemléltetve. Az s,d,σ és π betük bozonokat jelölnek a szövegben mondottak szerint, f jelentése fermion, p: proton, n: neutron, t: izospin.

Az előző bekezdésben vázolt módon a csak bozonokból ill. bozonokból és fermionokból álló rendszerek (páros-páros ill. páros-páratlan és páratlan-páratlan magok) egységesen irhatók le. E modell dinamikai szimmetriái ezért valamilyen bozon-fermion szimmetriát fejeznek ki, amely jellegében eltér a legtöbb eddig ismert szimmetriától. A modell egy további általánositásával a leirás alkalmassá tehető a szuperszimmetriák (SUSY) magfizikai példákon való vizsgálására. Szuperszimmetrián az olyan transzformációval szemben való invarianciát értjük, amely transzformáció bozont fermionba visz át, és megforditva: fermiont bozonba. A szükséges általánositás az IBFM-hez képest:

a bozonok és fermionok számának külön-külön való megmaradásának megkövetelése helyett csupán a részecskék teljes számának megmaradását kell előirni. A már ismerős $b_i^\dagger b_\ell$ és $a_j^\dagger a_k$ bilineáris szorzatokon kivül ekkor fellépnek a $b_i^\dagger a_k$ és $a_j^\dagger b_\ell$ mennyiségek is. Az igy kiterjesztett leirást szembesitve a kisérleti tapasztalattal magspektroszkópiai adatok evidenciát szolgáltattak szuperszimmetria közelitő megvalósulására [21].

Az 1. ábra a leggyakrabban idézett kölcsönható-bozon tipusu modellek egymással való összefüggését szemlélteti, az (a) részben a modellek neveit, a (b) részben azok alapvető épitőköveti feltüntetve.

Összefoglaló irodalom a matematikai apparátusról:

1. Hall G.G.: Alkalmazott csoportelmélet
   Müszaki Könyvkiadó, Budapest, 1975.
2. Wigner J.: Csoportelméleti módszer a kvantummechanikában,
   Akadémiai Kiadó, Budapest 1979.
3. H.J. Lipkin: Lie Groups for Pedestrians,
   North-Holland Publishing Co., Amsterdam 1965.
4. M. Hamermesh: Group Theory and Its Application to
   Physical Problems, Addision-Wesley Publ. Co., Reading, 1962.
5. B.G. Wybourne: Classical Groups for Physicists,
   John Wiley and Sons Inc., New York, 1974.
6. R.Gilmore: Lie Groups, Lie Algebras and Some of their
   Applications, John Wiley and Sons Inc., New York, 1974.

a közelités módszeréről:

7. F. Iachello: Lecture Notes in Physics 119 (1980) 140
8. A. Arima-F. Iachello, Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.
   31 (1981) 75.
9. I. Talmi: Comments Nucl. Part. Phys. 11 (1983) 241.
10. F. Iachello: Nucl. Phys. A396 (1983) 233 c.
11. A. Arima: Nucl. Phys. A421 (1984) 63 c.
12. A. Arima-F. Iachello: Adv. Nucl. Phys. 13 (1984) 139.

HIVATKOZÁSOK

[1] F. Iachello: Chem. Phys. Lett. 78 (1981) 581.
[2] F. Iachello: Phys. Rev. C23 (1981) 2778.
[3] F. Iachello: in Proc. Int. Symp. on In-Beam Nuclear
    Spectroscopy, Debrecen 1984.
    Eds.: Zs. Dombrádi and T. Fényes, p. 631.
[4] F. Iachello-R.D. Levine: J. Chem. Phys. 77 (1982) 30.6.
[5] K.A. Erb-D.A. Bromley: Phys. Rev. C23 (1981) 2781.
[6] J. Cseh: Phys. Rev. C27 (1983) 2991.
[7] J. Cseh: Phys. Rev. C31 (1985) 692.
[8] O.S. van Roosmalen - F. Iachello - R.D. Levine -
    A.E.L. Dieperink: J. Chem. Phys. 71 (1983) 2515.
[9] A. Arima-F. Iachello: Phys. Rev. Lett. 35 (1975) 1069.
[10] A. Arima-F. Iachello: Ann.Phys. 99 (1976) 253.
[11] A. Arima-F. Iachello: Ann. Phys. 111 (1978) 201.

[12] A. Arima-F. Iachello: Ann. Phys. 123 (1979) 468.
[13] Interacting Bosons in Nucl. Phys. Ed.: F. Iachello, Plenum Press, New York 1979.
[14] M. Moshinsky: Nucl. Phys. A354 (1981) 257c.
[15] T. Otsuka-A. Arima - F. Iachello - I. Talmi: Phys. Lett. 76B (1978) 139.
[16] P. Halse - J.P. Elliott - J.A. Evans: Nucl. Phys. A417 (1984) 301.
[17] F. Iachello - A.D. Jackson: Phys. Lett. 108B (1982) 151.
[18] H. Daley - F. Iachello: Phys. Lett. 131B (1983) 281.
[19] F. Iachello - O. Scholten: Phys. Rev. Lett. 43 (1979) 679.
[20] A. Arima - F. Iachello: Phys. Rev. C14 (1976) 761.
[21] A.B. Balatekin - I. Bars - F. Iachello: Nucl. Phys. A370 (1981) 284.

Szakmai lektor: Gyarmati Borbála

HU ISSN 0231-3685

ATOMKI Riport X/18 (1985)

A PÁRATLAN-PÁRATLAN ATOMMAGOK MODELLJEI*

I. GÖMBSZERŰ MAGOK

FÉNYES TIBOR

MTA Atommagkutató Intézet, Debrecen, Pf. 51.

1. BEVEZETÉS
2. A KÖLCSÖNHATÁSI MATRIXELEMEK FOGALMA, KISÉRLETI MEGHATÁROZÁSA ÉS NORMÁLÁSA
   2.1. A kölcsönhatási mátrixelemek fogalma
   2.2. A kölcsönhatási mátrixelemek kisérleti meghatározása
   2.3. A kölcsönhatási matrixelemek normálása
3. KISÉRLETI ADATOK
   3.1. Átlagos kölcsönhatási energiák
   3.2. A $j_1=j_2$ multiplettek energiafelhasadása
   3.3. A $j_1\neq j_2$ multiplettek energiafelhasadása
4. A KÖLCSÖNHATÁSI MATRIXELEMEK SZÁMÍTÁSA KÜLÖNBÖZŐ EGYSZERŰ EFFEKTIV KÉTNUKLEON KÖLCSÖNHATÁSI POTENCIÁLOKBÓL
   4.1. Molinari és munkatársai számításai
   4.2. Haritonov; valamint Alexeev és munkatársai számításai
   4.3. Moinester és munkatársai számításai
   4.4. Schiffer és True számításai
   4.5. Chiang és munkatársai számításai
5. TÖREKVÉSEK A KÉTNUKLEON MARADÉK KÖLCSÖNHATÁSI MÁTRIXELEMEK LEVEZETÉSÉRE A SZABAD NUKLEONOK KÖZÖTTI KÖLCSÖNHATÁSBÓL
6. ÖSSZEGZÉS

IRODALOM

---

*Az 1985. januári Magfizikai Téli Iskola előadásának anyaga

1. BEVEZETÉS

A jelen összefoglaló munka két főrészből áll. Az első azokkal a páratlan-páratlan atommagokkal foglalkozik, amelyekben a zárt maghéjak mellett két részecske (vagy lyuk, vagy egy részecske és egy lyuk) van. A zárt héjaktól távolabb eső páratlan-páratlan magokat a második rész tárgyalja.

Ismeretes, hogy a héjmodell történetileg először kialakult formája, a független részecske modell jól működik, ha a zárt héjakon kívüli, ún. valencia nukleonok száma egy. A kétszeresen mágikus, közel gömbszerű magtörzs gerjesztődése kis gerjesztési energiáknál alig észlelhető; a kétszeresen mágikus atommagokkal szomszédos magoknál a legalsó nívók egyrészecske állapotoknak tekinthetők. A magtörzs gerjesztési valószínűsége kicsi, ha a zárt magtörzs és a következő aktív héj közötti energiarés nagy (jellemzően $\Delta E \gtrsim 2$ MeV). A Heisenberg határozatlansági reláció ($\Delta E \cdot \Delta t \approx \hbar$) szerint minél nagyobb a ΔE energia, annál kisebb a gerjesztett állapotban eltölthető Δt idő, azaz annál jobban működik az érintetlen magtörzs közelítés.

Ha azonban a zárt héjon kívül két nukleon van, a nukleonok már egymással is kölcsönhatásba léphetnek. A két valencia nukleon - a magon belül lévén - térben közel van egymáshoz és a betöltetlen héjon sok hasonló energiájú állapot van egymás mellett (ΔE kicsi). Ezért az alacsonyan fekvő magnívóknál a független részecske modell hullámfüggvények intenziv keveredése észlelhető.

2.A KÖLCSÖNHATÁSI MATRIXELEMEK FOGALMA, KISÉRLETI MEGHATÁROZÁSA ÉS NORMÁLÁSA

2.1. A kölcsönhatási matrixelemek fogalma

A következőkben röviden tárgyaljuk a nukleáris N-test problémát a kiterjesztett héjmodell keretében.

Ha N nukleon kéttest erőkkel hat kölcsön egymással, nem relativisztikus energiáknál a megfelelő Schrödinger-egyenlet a következő:

$$H_N \psi(1, \dots N) = \left[\sum_{i=1}^{N} T_i + \sum_{i<j}^{N} V_{ij}(\vec{r}_i, \vec{r}_j) \right] \psi = E \psi. \qquad (1)$$

Első közelítésben, különösen érintetlen magtörzs esetén, V_{ij} helyettesíthető egy vonzó centrális $U(r_i)$ potenciállal (amelyik a spin-pálya kölcsönhatást is magában foglalja):

$$H_0 \phi_0 = \left[\sum_{i=1}^{N} T_i + U(\vec{r}_i) \right] \phi_0 = E_0 \phi_0 . \qquad (2)$$

Itt ϕ_0 a független részecske hullámfüggvény. A Hamilton-operátor (2)-ben elhanyagolt része (H') a maradék kölcsönhatáshoz tartozik, amire fennáll a következő összefüggés:

$$H_N = H_0 + H' . \qquad (3)$$

Az N-test rendszer H_N operátorának egy bizonyos sajátfüggvénye (ψ_p) előállítható a H_0 operátor sajátfüggvényeinek ortogonális rendszeréből a következő módon:

$$\Psi_p = \sum_{n=1}^{t} a_{np}\,\phi_{on}. \qquad (4)$$

Az (1) egyenlet pontos megoldásához a t-t nem szabad lehatárolni, az összes nyitott héj minden konfigurációját figyelembe kell venni. Ez azonban rendkívül elkomplikálná a megoldást, ezért t-t célszerű az aktív főhéj kéttest konfigurációira korlátozni. Ez a t-re tett közelítés, az állapotok "csonkítása" természetesen hatással van a maradék kölcsönhatásra.

Behelyettesítve a (4) egyenletet az (1)-be, azt kapjuk, hogy

$$H_N\psi = (H_o + H')\psi = (H_o + H')\Big(\sum_{n=1}^{t} a_{np}\,\phi_{on}\Big) = E_p \sum_{n=1}^{t} a_{np}\,\phi_{on}. \qquad (5)$$

Beszorozva az egyenletet balról a ϕ_{ol} bázisállapot-függvénnyel és kihasználva a ϕ_{on} megoldások ortonormáltságát kapjuk, hogy

$$\sum_{n=1}^{t} \langle \phi_{ol} | H_o + H' | \phi_{on} \rangle\, a_{np} = E_p \sum_{n=1}^{t} \phi_{ol}\, a_{np}\, \phi_{on} = E_p\, a_{lp}. \qquad (6)$$

A H_{ln} matrixelemek a (2) egyenlet felhasználásával a következő alakban is felírhatók:

$$H_{ln} = \langle \phi_{ol} | H_o | \phi_{on} \rangle + \langle \phi_{ol} | H' | \phi_{on} \rangle = E_{on}\,\delta_{ln} + H'_{lm}. \qquad (7)$$

E rövidített írásmódot használva a (6) egyenlet a következő alakba írható:

$$\sum_{n=1}^{t} H_{ln}\, a_{np} = E_p\, a_{lp}. \qquad (8)$$

Az egyenletet explicit matrix alakban is felírhatjuk, ha az a_{np} amplitúdókat mint oszlopvektorokat írjuk fel minden p értékre:

$$\begin{pmatrix} H_{11} & H_{12} \cdots & H_{1t} \\ H_{21} & H_{22} \cdots & H_{2t} \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ H_{t1} & H_{t2} \cdots & H_{tt} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{1p} \\ a_{2p} \\ \vdots \\ a_{tp} \end{pmatrix} = E_p \begin{pmatrix} a_{1p} \\ a_{2p} \\ \vdots \\ a_{tp} \end{pmatrix}, \qquad (9)$$

ahol a matrixműveletek szabályai szerint sorokat oszlopokkal kell szorozni.

A H hermitikus volta miatt $H_{ln} = H_{nl}$ és a matrixelemek valósak.

A (9) egyenletnek akkor van a_{np} megoldása, ha

$$\begin{vmatrix} H_{11} - E_p & H_{12} \cdots & H_{1t} \\ H_{21} & H_{22} - E_p \cdots & H_{2t} \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ H_{t1} & H_{t2} \cdots & H_{tt} - E_p \end{vmatrix} = 0. \qquad (10)$$

Ez E_p-ben egy t-ed fokú egyenlethez vezet, amelynek t számú E_p gyöke van. Behelyettesítve a különböző gyököket a (9)-be, egyenleteket kapunk az a_{np} sajátvektorokra, ahonnan azok meghatározhatók.

A konfiguráció keveredési számítások részletes leírását l. pl. Brussaard és Glaudemans [1] könyvében.

A matrixelemekre a következő írásmódok bármelyike használható:

$$H'_{\ell n} = \langle \phi_{o\ell} | H' | \phi_{on} \rangle = \int \phi^*_{o\ell}(\mathbf{r})\, H' \phi_{on}(\mathbf{r})\, d^3r. \qquad (11)$$

Itt az integrál a teljes térre terjed ki, d^3r a háromdimenziós térfogatelem: $r^2 dr\, d\Omega = dx\, dy\, dz$.

2.2. A kölcsönhatási matrixelemek kisérleti meghatározása

A mágikus atommagok közelében számos magnál elég jól meg lehet határozni a maradék kölcsönhatás diagonális matrixelemeit. Különösen az egynukleon transzfer reakciók sokat adnak ebben a tekintetben, mivel segítségükkel a gerjesztési energiák, átadott impulzusnyomatékok, paritások, konfigurációk és konfiguráció keveredések egyaránt meghatározhatók.

Tekintsük például a $^{208}_{83}Bi_{125}$ esetét, amelynél a zárt héjon felüli proton várhatóan $\pi h_{9/2}$, $\pi f_{7/2}$, $\pi i_{13/2}$, $\pi f_{5/2}$, a neutron lyuk pedig $\nu p^{-1}_{1/2}$, $\nu p^{-1}_{3/2}$, $\nu f^{-1}_{5/2}$, $\nu f^{-1}_{7/2}$, $\nu i^{-1}_{13/2}$ konfigurációk valamelyikében lesz.

Az E_o gerjesztési energia, amelynél a $|\pi h_{9/2}\, \nu j\rangle$ multiplett megjelenne a ^{208}Bi-ban maradék kölcsönhatás nélkül, a következőképpen számítható:

$$E_o\,|\pi h_{9/2}\, \nu j\rangle = \{B[^{209}Bi] - B[^{208}Pb]\} + \{B[^{207}Pb(j)] - B[^{208}Pb]\} - \{B[^{208}Bi] - B[^{208}Pb]\},$$

ahol j a neutron (lyuk) teljes impulzusnyomatéka,
B a teljes kötésenergia a megjelölt magra.

Ezek az állapotok pl. a ^{209}Bi(d,t)^{208}Bi neutron felcsipési reakciókkal jól tanulmányozhatók. A kéttest kölcsönhatás megszünteti a multiplett degenerátcióját, amit E_o energiánál lehetne várni. Az állapot tényleges gerjesztési energiája (E^*_J) függni fog a J-től, a kétnukleon rendszer eredő teljes impulzusnyomatékától. Feltéve, hogy a konfiguráció tiszta, a kéttest-kölcsönhatás matrixelemét az

$$E_J(j_1 j_2) = E^*_J - E_o \qquad (12)$$

kifejezés adja részecske-részecske multiplettre.

A viszonyok a ^{208}Bi néhány multiplettjére az 1. táblázatban könnyen áttekinthetők.

Amennyiben az állapotok fragmentálódnak (a konfigurációk nem tiszták), az adott J^π értékhez tartozó energia-súlypont a felcsipési vagy lefosztási reakció spektroszkópiai faktorának figyelembevételével számítható (l. pl. Daehnik [4] munkájában).

1. táblázat. Kölcsönhatási matrixelemek a ^{208}Bi nehány multiplettjére (energiák MeV-ben)

Konfiguráció	π	E_o		J										
				1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
$\pi 1h_{9/2}\nu 3p_{1/2}^{-1}$	+	-0,085	E_J^*				0,063	0,000						
			E_J				0,148	0,085						
$\pi 1h_{9/2}\nu 2f_{5/2}^{-1}$	+	0,484	E_J^*		0,926	0,634	0,603	0,629	0,510	0,650				
			E_J		0,442	0,150	0,119	0,145	0,026	0,166				
$\pi 2f_{7/2}\nu 3p_{1/2}^{-1}$	+	0,811	E_J^*			0,939	1,038							
			E_J			0,128	0,227							
$\pi 1h_{9/2}\nu 3p_{3/2}^{-1}$	+	0,812	E_J^*			1,070	0,960	0,887	1,096					
			E_J			0,258	0,148	0,075	0,285					
$\pi 1i_{13/2}\nu 3p_{1/2}^{-1}$	-	1,523	E_J^*						1,630	1,673				
			E_J						0,107	0,150				
$\bar{\pi} 1h_{9/2}\nu i_{13/2}^{-1}$	-	1,548	E_J^*		2.901	1,925	1,844	1,708	1,721	1,721	1,664	1,792	1,571	2,434
			E_J		1,353	0,377	0,296	0,160	0,173	0,173	0,116	0,244	0,023	0,886
$\pi 1h_{9/2}\nu 2f_{7/2}^{-1}$	+	2,255	E_J^*	2,892	2,508	2,464	2,391	2,391	2,415	2,346	2,668			
			E_J	0,637	0,253	0,209	0,136	0,136	0,160	0,091	0,413			
$\pi 2f_{5/2}\nu 3p_{1/2}^{-1}$	+	2,737	E_J^*		2,945	2,890								
			E_J		0,208	0,153								

Megjegyzés. A táblázatban megadott $\tilde{E}_J = E_J^* - E_o$ értékek részecske-lyuk multiplettekre vonatkoznak. Ezekből az E_J részecske-részecske kölcsönhatási matrixelemek Pandya-transzformációval [2] nyerhetők. Az adatok Schiffer és True [3] munkájából származnak.

2.3. A kölcsönhatási matrixelemek normálása

Kimutatható, hogy a kéttest maradék kölcsönhatás matrixeleme, az $E_J(j_1 j_2)$ sorbafejthető a következő kifejezés szerint:

$$E_J(j_1 j_2) = \sum_k \alpha^k_{j_1 j_2} E^k_J(j_1 j_2), \qquad (13)$$

ahol $E_J(j_1 j_2)$ a (12) kifejezéssel számítható a gerjesztési energiából,

$$E^k_J(j_1 j_2) = (-1)^{j_1 + j_2 - J} \sqrt{(2j_1+1)(2j_2+1)(2k+1)}\, W(j_1 j_2 j_1 j_2; J k),$$

$W(j_1 j_2 j_1 j_2; Jk)$ a Racah együttható,

j_i az i-edik nukleon, J a kétnukleon rendszer teljes impulzusnyomatéka,

$k = 0, 1, \ldots 2j_<$, ahol $j_<$ a j_1 és j_2 impulzusnyomatékok közül a kisebb,

$\alpha^k_{j_1 j_2}$ sorfejtési együtthatók.

Lásd Racah [5], French [6] és Moinester és mások [7] munkáit.

A (13) kifejezés, ami az állapotok energiáit adja a J magspin függvényében, analóg a magfizikai szögeloszlás kifejezésével:

$$W(\Theta) = \sum_l A_l P_l(\cos\theta). \qquad (14)$$

Az $E^k_J(j_1 j_2)$ megfelel a $P_l(\cos\theta)$ Legendre-polinómoknak kvantált argumentum esetére. Az $\alpha^k_{j_1 j_2} \equiv \alpha_k$ együtthatók ugyanúgy jellemzik a magnívó spektrumot, mint ahogy az A_l együtthatók jellemzik a szögeloszlást. Az $\alpha_0, \alpha_1, \alpha_2$ stb. multipól együtthatók a kölcsönhatás monopól, dipól, kvadrupól stb. komponenseinek erősségét határozzák meg.

A (13) kifejezésből Racah transzformációval megadhatók az α_k együtthatók, mint az $E_J(j_1 j_2)$ energiák függvénye. Levezethető, hogy a k=0 esetén

$$\alpha_0 = \frac{\sum (2J+1)\, E_J}{\sum (2J+1)} = \bar{E}(2), \qquad (15)$$

ahol $\bar{E}(2)$ a kéttest multiplett energia-súlypontja. A (2J+1) súlyfaktor az M=-J, -J+1,... J-1, J degenerációról ad számot. A kifejezés mutatja, hogy az α_0 monopól együttható a kéttest kölcsönhatás energiájában átlag hozzájárulást ad, eltolja a multiplett energia-súlypontját.

Ugyanúgy, mint a szögeloszlás esetében a (14) kifejezést A_0-ra, a (13) kifejezést célszerű $\alpha_0 = \bar{E}(2)$ -re normálni.

Később a 3.1. részben látni fogjuk, hogy az $\bar{E}$ a tömegszám függvénye; az $E_J/|\bar{E}|$ hányados képzésével a kölcsönhatási matrixelem tömegszám-függése közelítőleg megszüntethető.

3. KÍSÉRLETI ADATOK

A zárt maghéjak közelében mért kéttest kölcsönhatási matrixelemekről jó összefoglalás található Schiffer és True [3], valamint Baehnick [4] munkájában. Az adatok többsége egynukleon transzfer reakcióból származik.

Schiffer nyomán bevett, hogy a kéttest-kölcsönhatás matrixelemeit a θ_{12} szög függvényében adják meg, ami a J-vé kapcsolódó j_1 és j_2 teljes

impulzusnyomaték vektorok közötti szöget jellemzi és a két nukleon hullámfüggvényei közötti átfedésre ad információt. A θ_{12} szöget a

$$\vec{J}^2 = (\vec{j}_1 + \vec{j}_2)^2 = \vec{j}_1^2 + \vec{j}_2^2 + 2\vec{j}_1\vec{j}_2 = \vec{j}_1^2 + \vec{j}_2^2 + 2j_1 j_2 \cos\theta_{12}$$

kifejezésből könnyen kiszámíthatjuk, ha $\vec{J}^2$ -et J(J+1), $\vec{j}^2$ -et j(j+1) kifejezésekkel helyettesítjük a félklasszikus tárgyalásnak megfelelően:

$$\cos\theta_{12} = \frac{J(J+1) - j_1(j_1+1) - j_2(j_2+1)}{2\sqrt{j_1(j_1+1)\, j_2(j_2+1)}} . \qquad (16)$$

A maradék kölcsönhatás matrixelemei függnek még a kétnukleon rendszer izospinétől is, így külön adják meg a T=0 és 1 matrixelemeket, ahol azok kísérletileg ismertek. A proton-neutron multipletteknél mind a T=0, mind a T=1 kölcsönhatásból fellépnek összetevők. Ha ismert a proton-neutron és a T=1 matrixelem, amely utóbbi meghatározható a proton-proton, neutron-neutron, proton-proton lyuk, vagy neutron-neutron lyuk adatokból, ki lehet számítani a T=0 matrixelemet is a következő összefüggés segítségével:

$$E_J^{n-p}(j_1 j_2) = \frac{E_{J,T=0}(j_1 j_2) + E_{J,T=1}(j_1 j_2)}{2} . \qquad (17)$$

Az összefüggés érvényessége itt nem részletezett, egyszerű levezetéssel bizonyítható (lásd pl. Brussaard és Glaudemans [1] könyvének 47-48. oldalát; különböző pályákon levő proton, ill. neutron esetére).

A következőkben röviden áttekintjük a kísérleti adatok rendszerezéséből leszűrhető főbb törvényszerűségeket. Itt jegyezzük meg, hogy mind Schiffer és True, mind Daehnick a kísérleti matrixelemeket egységesen részecske-részecske multiplettekre adják meg.

3.1. Átlagos kölcsönhatási energiák

Feltüntetve az $\bar{E}_T = \sum_J (2J+1)E_{JT} / \sum_J (2J+1)$ átlag kölcsönhatási energiákat, mint az A tömegszám függvényét, T=0 izospin esetében sima lefutású görbe adódik, ami az

$\bar{E}_{T=0} = -(31,5 \pm 3)A^{-0,75}$ összefüggéssel jól leírható (Daehnick [4]).

Rövid hatótávolságú kölcsönhatás esetén egyébként várható is, hogy az átlag kölcsönhatás erőssége csökken a tömegszám növekedésével, mivel a hullámfüggvények nagy térfogatra terjednek ki és az átfedésük kisebb lesz. (Itt emlékeztetünk arra, hogy a magfelület gömbszerű magoknál az $R = r_0 A^{1/3}$ kifejezés szerint $A^{2/3}$-al arányos.)

A T=1 multiplettek általában pozitiv és negativ matrixelemeket egyaránt tartalmaznak és az $\bar{E}$ átlag kölcsönhatási energia számításánál ezek részben semlegesítik egymást, míg a hiba elég nagy marad. A kísérleti adatokat az előbbihez hasonló $\bar{E}_{T=1} = -(2,25 \pm 1,6)A^{-0,75}$ formulával sikerült leírni T=1 esetében is, azonban itt a kölcsönhatási együttható kb. 14-szer kisebb, mint T=0 izospinnél [4].

A proton-neutron matrixelemeknél figyelembe kell venni, hogy mindkét T érték egyenlő valószínűségű. Az $\bar{E}$ kiszámítása érdekében az $\bar{E}_{T=0}$ és $\bar{E}_{T=1}$ mennyiségek helyes összegét kell képezni. $j_1 \neq j_2$ esetén minden E_{TJ}

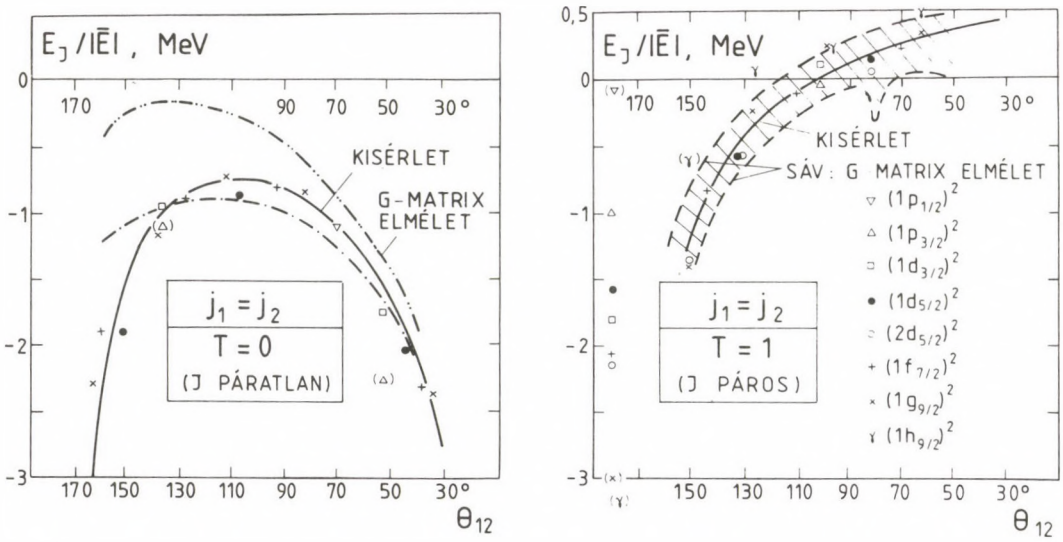
érték létezik, ekkor $\bar{E} = \bar{E}_{T=0} + \bar{E}_{T=1}$. $j_1 = j_2$ esetében azonban, ha T=0 a páros J értékek, ha T=1 a páratlan J értékek tiltottak a Pauli-elv miatt. Itt a statisztikus súlyok a T=0 és 1 komponensekre nem egyenlőek és a helyes összeg a következőképpen adódik:

$$\bar{E}(j^2) = \frac{\sum_{J\ \text{páratlan}} (2J+1)}{\sum_J (2J+1)} \bar{E}_{T=0} + \frac{\sum_{J\ \text{páros}} (2J+1)}{\sum_J (2J+1)} \bar{E}_{T=1}. \qquad (18)$$

A következőkben az $E_J(j_1 j_2)$ matrixelemeket az $\bar{E}$ átlag kölcsönhatásra normáljuk, ilyenmódon mentesíthetjük őket a durva tömegszám függéstől. A normáláshoz az $\bar{E}$ tömegszám függést leíró formulákat használhatjuk. Még egyszer hangsúlyozzuk, hogy az $\bar{E}(2)$ csak az A és T függvénye és értéke még ismeretlen multiplettekre is viszonylag könnyen számítható.

3.2. A $j_1 = j_2$ multiplettek energiafelhasadása

Az 1. ábra az $E_J/|\bar{E}|$ normált matrixelemeket mutatja a θ_{12} szög függvényében a $j_1=j_2$ multiplettekre. Látható, hogy a kisérleti adatok a J=0 ($\theta_{12}=180^0$) értékek kivételével jól korreláltak. A kisérleti adatokat ösz-



1. ábra. A normált kisérleti matrixelemek ($E_J/|\bar{E}|$) a $j_1=j_2$ multiplettekre T=0 és 1 izospineknél a csatolási szög (θ_{12}) függvényében (pontok). A kevéssé biztos adatokat zárójel jelöli. A kisérleti adatokat leíró folytonos görbék analitikusan a (19) formulákkal adhatók meg. Az elméleti eredményeket szaggatott görbék jelzik. – · · – és a vonalkázott sáv: a G-matrix elméletből nyert eredmények (Kuo és mások) különböző multiplettekre. —·— : a G-matrix elmélet eredményei héjmodell illesztéssel (McGrory és mások). Az adatok Daehnick [4] munkájából származnak.

szekötő folytonos görbék:

$$T=0 \text{ esetben } E_J/|\bar{E}| = -0{,}48 \operatorname{cotg} \frac{\theta_{12}}{2} \left\{1+1/\cos^2 \frac{\theta_{12}}{2}\right\} +0{,}60,$$

$$T=1 \text{ esetben } E_J/|\bar{E}| = -0{,}48 \operatorname{tg} \frac{\theta_{12}}{2} + 0{,}60 \qquad (19)$$

formulákkal írhatók le (Daehnick [4]). A $J>0$ esetben mért $j_1=j_2$ matrixelemek mind a jellemző kísérleti hibán belül írhatók le a (19) formulákkal. Így az empirikus formulák használhatók a még ismeretlen multiplettek diagonális matrixelemeinek jóslására is, $\Delta E_J \approx$ 100-200 keV pontossággal.

Mint a feltüntetett konfigurációkból megitélhető, az észlelt törvényszerűség széles magtartományban igaz. Az $E_J/|\bar{E}|$ értékek láthatóan függetlenek a j értéktől és a magtörzstől, ami a maradék kéttest kölcsönhatás univerzális jellegére utal.

A félklasszikus tárgyalás lehetőséget ad arra, hogy bizonyos fokig értelmezzük az 1. ábra kísérleti görbéit.

(a) $\theta_{12} \approx 180^0$ esetben a j_1 és j_2 közel ellentétes irányú. A két nukleon közel azonos síkban kering, a hullámfüggvények átfedése nagy. Mivel a magerő rövid hatótávolságú, a kölcsönhatás erős és vonzó lesz.

(b) $\theta_{12} \approx 90^0$ esetben j_1 közel merőleges j_2-re, a hullámfüggvények átfedése kicsi, ami gyenge kölcsönhatást eredményez.

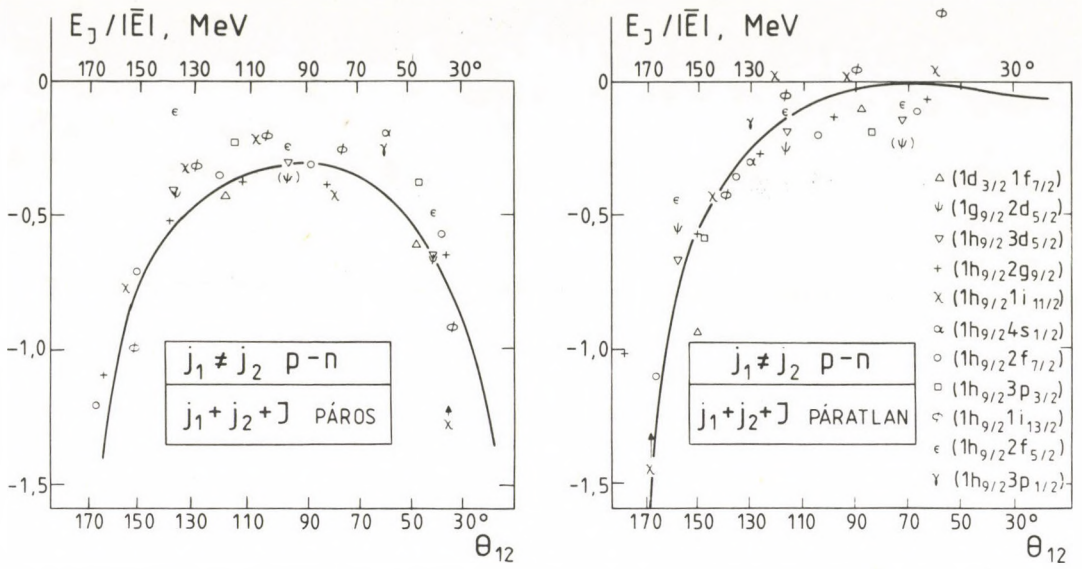
(c) $\theta_{12} \approx 0^0$ esetben j_1 közel egyirányú j_2-vel és a Pauli elv hatása érezhető lesz. Ha T=1 (két azonos részecske esetén mindig ez teljesül), a két részecske térbelileg antiszimmetrikus állapotban van, relativ távolságuk nagy (fáziseltolással keringenek), a kölcsönhatás gyenge (taszító). Ha T=0, a hullámfüggvény átfedése nagy, a kölcsönhatás erősen vonzó.

Megjegyezzük, hogy a kísérleti $J=0^+$ ($\theta_{12}=180^0$) matrixelemek nagy szórást mutatnak. Itt a kísérleti adatok hibája elég nagy, mivel a magasan fekvő 0^+ állapotok nem mind ismertek, ami az energia-súlypont számításánál bizonytalanságot okoz. Ennek ellenére durván olyan tendencia figyelhető meg, hogy a J=0 kölcsönhatás erőssége növekszik nagyobbodó j-vel (l. 1. ábrán). Rövid hatótávolságú erő esetén éppen ez várható: minél nagyobb a j érték, annál jobban vannak definiálva a pályasíkok és annál nagyobb az átfedés a hullámfüggvények között.

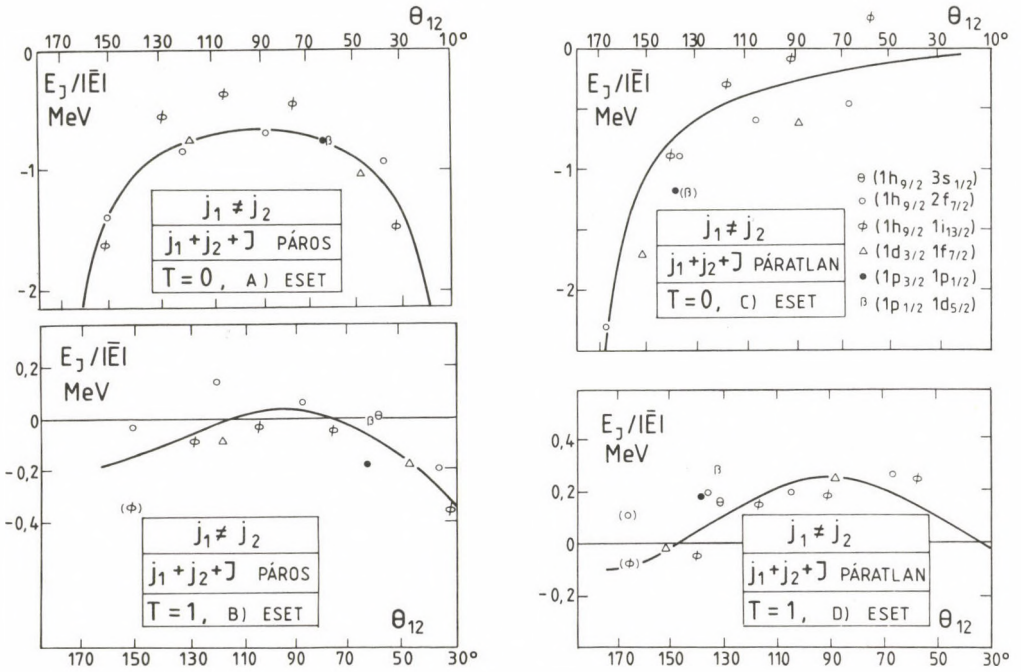
3.3. A $j_1 \neq j_2$ multiplettek energiafelhasadása

A $j_1 \neq j_2$ matrixelemeket neutron-proton kölcsönhatásra (azaz kevert T állapotra) a 2. ábra mutatja. Az adatok jól definiált függést mutatnak θ_{12}-től, és j_1+j_2+J páros vagy páratlan voltától.

Bizonyos esetekben a $j_1 \neq j_2$ matrixelemeket sikerült T=0 és 1 esetekre külön is meghatározni. Az eredményeket a 3. ábra összegzi. A kísérleti pontokat a következő formulákkal lehet közelíteni (Daehnick [4]):



2.ábra. Az $E_J/|\bar{E}_{pn}|$ normált $j_1 \neq j_2$ proton-neutron matrixelemek a pályák közötti θ_{12} szög függvényében. A görbéket külön-külön T=0 és 1 illesztések alapján számolták (l. lentebb) . A kevéssé megbízható kísérleti adatokat görög betük jelzik. Az adatok Daehnick [4] munkájából származnak.



3.ábra. Az $E_J/|\bar{E}|$ matrixelemek a $j_1 \neq j_2$ multiplettekre a pályák közötti szög függvényében. A kisérleti adatok a (20)-ban megadott megelelő formulákkal közelíthetők (görbék). Az adatok Daehnick [4] munkájából származnak.

j_1+j_2+J páros: T=0, A)eset $E_J/|\bar{E}| = -0,68/\sin\theta_{12}$,

T=1, B)eset $E_J/|\bar{E}| = -0,06\ \mathrm{cotg}\frac{\theta_{12}}{2} - 0,2\ P_2(\cos\theta_{12})$, (20)

j_1+j_2+J páratlan: T=0, C)eset $E_J/|\bar{E}| = -0,28\ \mathrm{tg}\frac{\theta_{12}}{2}$,

T=1, D)eset $E_J/|\bar{E}| = -0,24\ P_2(\cos\theta_{12}) + 0,12$.

Megjegyzendő, hogy az eltérések a javasolt görbéktől gyakran 100-300 keV értéket is elérnek, de a kisérleti adatok jellemző hibája is kb. 200 keV. Jelenleg nem látszik bizonyítható eltérés a (20) összefüggésektől.

4. A KÖLCSÖNHATÁSI MATRIXELEMEK SZÁMÍTÁSA KÜLÖNBÖZŐ EGYSZERŰ EFFEKTIV KÉTNUKLEON KÖLCSÖNHATÁSI POTENCIÁLOKBÓL

4.1. Molinari és munkatársai számításai

Molinari és munkatársai [8] egyszerűsített kéttest kölcsönhatást feltételezve megkisérelték értelmezni a kisérleti eredményeket. A kéttest részecske-részecske kölcsönhatási potenciált

$$V(1,2) = c\,\delta(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2) + V(|\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2|) \qquad (21)$$

alakban vették fel, ahol az első tag a rövid, a második a hosszú hatótávolságú kölcsönhatást jellemzi. A $V(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2)$ multipól kölcsönhatást zömmel a magtörzs közvetíti. A kölcsönhatásban a spin függést (pl. a tenzor erőket) az egyszerűség kedvéért elhanyagolták. Természetesen a V(1,2) különbözik a szabad nukleonok kölcsönhatási potenciáljától, mivel kötött rendszerekben renormalizációs effektusok lépnek fel a konfiguráció keveredés miatt, azonkívül számolni kell a magtörzs polarizációjával, a Pauli-elv érvényesülésével és talán a többtest erők fellépésével is.

A maradék effektiv kölcsönhatás matrixelemeit az

$$E(j_1j_2J) = \int \psi^*(JM)\, V(1,2)\, \psi(JM)\, d^3r \qquad (22)$$

kifejezés adja, ahol az integrálást a teljes térfogatra kell elvégezni.

A delta kölcsönhatás antiszimmetrizált matrixelemei vehetők pl. De-Shalit és Talmi [9] munkájából. A magtörzs által közvetített hosszú hatótávolságú kölcsönhatási potenciál a szokásos módon sorbafejthető a Legendre-polinómok szerint:

$$V(|\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2|) = \sum_l v_l(r_1,r_2)\, P_l(\cos\omega_{12}), \qquad (23)$$

ahol v_l az l-edik multipol kölcsönhatás erőssége,

ω_{12} a kölcsönható részecskék sugárvektorai közötti szög.

Itt nem részletezett levezetés szerint kimutatható, hogy a $j_1=j_2=j$ esetben

$$\left.\begin{aligned} T=0\text{-nál } E_J/\bar{E}(2) &= \underline{a_\delta \operatorname{cotg}\frac{\theta_{12}}{2}\left\{1+1/\cos^2\frac{\theta_{12}}{2}\right\}} + a_2P_2(\cos\theta_{12}) + \underline{a_0}\,, \\ T=1\text{-nél } E_J/\bar{E}(2) &= \underline{b_\delta \operatorname{tg}\frac{\theta_{12}}{2}} + b_2P_2(\cos\theta_{12}) + b_1P_1(\cos\theta_{12}) + \underline{b_0} \end{aligned}\right\} \qquad (24)$$

alakra hozható, ahol az a_δ, b_δ együtthatók a delta, a_2, b_2 a kvadrupól, b_1 a dipól, a_0, b_0 a monopól kölcsönhatások erősségét jellemzik. Ezeket a kisérleti adatokhoz való illesztéssel lehet meghatározni. Megjegyzendő, hogy a levezetésénél bizonyos közelítéseket alkalmaztak, amik következtében a formulák j=1/2 és J=0 esetekre nem érvényesek.

Összevetve a (19) kifejezéseket a (24) formulák aláhúzott tagjaival megállapíthatjuk, hogy delta és monopol kölcsönhatás bevezetésével a kisérleti és elméleti eredmények jó egyezést mutatnak mind T=0, mind T=1 esetben. Az elmélet nagy sikere, hogy nemcsak az $E_J/|\bar{E}|$ redukált matrixelemek univerzális voltát mutatta ki (azaz, hogy lényegében függetlenek a j-től és a magtörzstől), hanem a θ_{12} függést is helyesen adta vissza. Megjegyzendő, hogy Molinari és munkatársai a kisérleti adatokhoz való illesztésnél fontosnak találták a kvadrupól és részben dipól kölcsönhatás bevezetését (különösen (T=1 esetben), mig Daehnick nem.

A redukált effektiv kéttest kölcsönhatási matrixelemekre $j_1 \neq j_2$ esetben Molinari és munkatársai meglehetősen komplikált közelítő kifejezéseket kaptak, amelyeket a 2. táblázatban foglaltunk össze.

2. táblázat. Félklasszikus közelítésben levezetett formulák az effektív kéttest kölcsönhatás matrixelemeire. $j_1 \neq j_2$ eset.

j_1+j_2+J	T	Eset	π, J	A kölcsönhatás tipusa: δ	Kvadrupól	Monopól
páros	0	A	+1 páros -1 páratlan	$\underline{A_\delta/\sin\theta_{12}}$	$+ A_2P_2(\cos\theta_{12})$	$+ A_0$
	1	B	+1 páros -1 páratlan	$\underline{B_\delta \operatorname{cotg}\frac{\theta_{12}}{2}}$	$+ B_2P_2(\cos\theta_{12})$	$+ B_0$
páratlan	0	C	+1 páratlan -1 páros	$\underline{C_\delta \operatorname{tg}\frac{\theta_{12}}{2}}$	$+ C_2P_2(\cos\theta_{12})$	$+ C_0$
	1	C	+1 páratlan -1 páros	0	$\underline{+ D_2P_2(\cos\theta_{12})}$	$+ D_0$
stb. még négy eset, amik π és J kombinációkban különböznek a feltüntetettektől						

Összehasonlítva a kisérleti adatokat leíró (20) kifejezéseket a 2. táblázat megfelelő elméleti formuláival látható, hogy jó egyezés van, amennyiben a 2. táblázatban aláhúzással jelölt kölcsönhatási tagokat tartjuk meg.

Összefoglalóan megállapíthatjuk, hogy a $j_1=j_2$, és $j_1 \neq j_2$ esetek többségében a maradék effektiv kölcsönhatás leírható delta erővel, amihez esetenként monopól és kvadrupól kölcsönhatás járul. Ez a leírás némileg következetlen, mivel egy specifikus erőt kapcsol össze a multipol sorfejtésből adódó komponensekkel. Mindazonáltal így viszonylag egyszerű és jól működő formulák nyerhetők, amik a gyakorlatban hasznosak.

4.2. Haritonov; valamint Alexeev és munkatársai számításai

Megemlítendő, hogy más egyszerű effektív kéttest kölcsönhatások feltételezésével is történtek számítások a maradék kölcsönhatás matrixelemeire. Haritonov [10], valamint Alexeev és munkatársai [11] a proton-neutron konfigurációk energiafelhasadását rövid hatótávolságú Wigner, szingulett és tenzor erők kombinációjával számították. A kölcsönhatást a következő alakban vették fel

$$V_{p-n} = (V_o' + V_1 \pi_s + V_2 S_{12}) \exp(-r^2/r_o^2), \qquad (25)$$

ahol V_o' a Wigner erők renormált paramétere,

V_1 a szingulett erők paramétere,

$\pi_s = \frac{1}{4}\left[1 - (\sigma_n \sigma_p)\right]$ a szingulett projekciós operátor,

V_2 a tenzor erők paramétere,

$S_{12} = 3\,(\tau\sigma_n)(\tau\sigma_p)\,r^{-2} - (\sigma_n \cdot \sigma_p)$,

r a kvázirészecskék közötti távolság,

r_o hatótávolság paraméter.

Számították a ^{48}Sc, ^{88}Y, ^{90}Nb, ^{96}Nb, ^{110}In és ^{210}Bi egy-egy multiplettjének energiafelhasadását. Eredményül az adódott, hogy a kisérleti adatok körülbelül azonos maradék kölcsönhatás paraméterek mellett reprodukálhatók minden vizsgált magnál. A talált paraméterek a következők: $V_o' = -32 \pm 6$ MeV (a Wigner erők nem renormált paramétere), $V_1 = 14 \pm 6$ MeV, $r_o = 1{,}0 \pm 0{,}3$ fm.

Alexeev és munkatársai részletes számításokat végeztek az ^{116}In több multiplettjének energiafelhasadására [12]. A számítások azt mutatják, hogy a Wigner és szingulett erők mellett a tenzorerők lényegesen kisebb hozzájárulást adnak az energiafelhasadáshoz.

4.3. Moinester és munkatársai számításai

Moinester és munkatársai [7] nyolc atommagnál (^{38}Cl, ^{40}K, ^{42}Sc, ^{48}Sc, ^{50}Sc, ^{92}Nb, ^{208}Bi és ^{210}Bi) számították multiplettek energiafelhasadását a multipól sorfejtés (13) formulájának felhasználásával. Azt találták, hogy a ^{208}Bi különböző multiplettjeire nyert normalizált multipól együtthatók nagyon hasonlóak voltak egymáshoz, sőt a többi vizsgált magnál is hasonló normalizált multipól együtthatókhoz jutottak (függetlenül a szóbanforgó héjmodell pályáktól). A nyert átlag multipól sorfejtési együtthatókat sikerült reprodukálni a

$$V_{12} = K\,\delta(\tau_1 - \tau_2)\left[(1-\alpha) + \alpha P(\sigma_1 \cdot \sigma_2)\right]$$

alakban felvett delta plusz spinkicserélődési effektiv maradék kölcsönhatási potenciállal, $\alpha = 0{,}2$ értéknél.

4.4. Schiffer és True számításai

Schiffer és Tru [3] a kétnukleon maradék kölcsönhatási potenciált a következő alakban vette fel:

$$V(1,2)= U_{SO}(r)P^{SO}+U_{TrE}(r)P^{TrE} + U_{SE}(r)P^{SE}+ U_{TrO}(r)P^{TrO} + \quad (26)$$

$$+ U_{tenz}(r)\left[\frac{3(\sigma_1 r)(\sigma_2 r)}{r^2} - (\sigma_1 \sigma_2)\right] + U_{LS}(r)\,\mathbf{L}\mathbf{S},$$

ahol P^{SO} spin szingulett - L páratlan
P^{TrE} triplett - páros
P^{SE} szingulett - páros
P^{TrO} triplett - páratlan
} projekciós operátorok,

U_{SO}, U_{TrE}, U_{SE}, U_{TrO}, V_{tenz}, U_{LS} a megfelelő kölcsönhatások paraméterei,

$\mathbf{S}= \frac{1}{2}(\sigma_1+\sigma_2)$,

$\mathbf{L}$ = a relativ pályaimpulzusnyomaték a kölcsönható két nukleon között.

A kifejezés első négy tagja a centrális kölcsönhatást, az ötödik tenzor, a hatodik a spin-pálya kölcsönhatást fejezi ki.

Az általánosított Pauli elvből következik, hogy az SO és TrE állapotokhoz T=0, a SE és TrO állapotokhoz T=1 izospin kvantumszám tartozik.

A centrális kölcsönhatásoknál feltették, hogy ezek két Yukawa alakú kölcsönhatásból tevődnek össze:

$$U(r) = V_1 \frac{e^{-r/r_1}}{r/r_1} + V_2 \frac{e^{-r/r_2}}{r/r_2}, \quad (27)$$

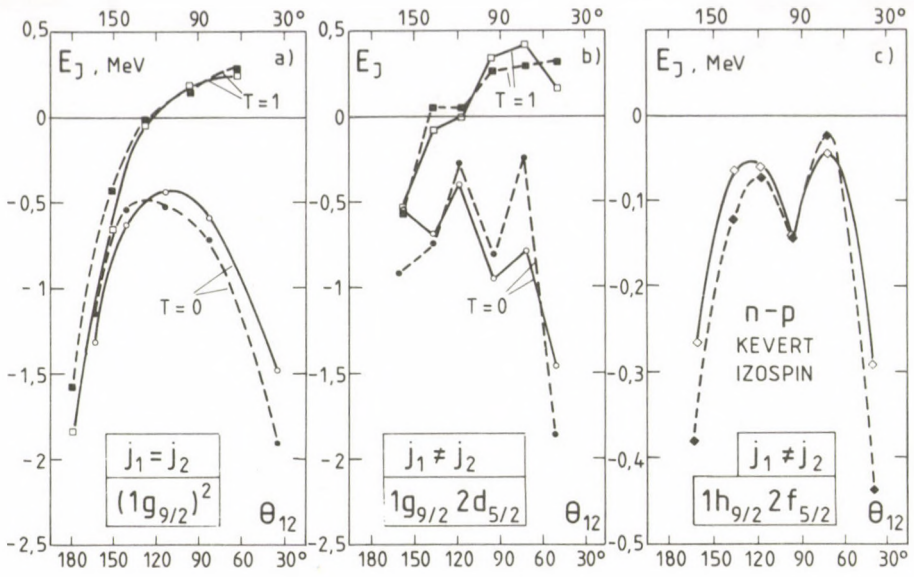
ahol az r_1 az egy pioncsere hatótávolság értéknél, 1,415 fm-nél lett rögzítve.

Schiffer és True számításai azt mutatják, hogy ha a 12 kölcsönhatási paramétert a 3. táblázatban megadott értékeknek választották, nagyszámú ($\gtrsim$100) maradék kölcsönhatási matrixelem jó közelítésben írható le széles tömegszám tartományban, mind $j_1=j_2$, mind $j_1\neq j_2$ esetben.

3. táblázat. A V kölcsönhatási paraméterek értékei MeV-ben Schiffer és True 12 paraméteres illesztésénél. r_1=1,415 fm, r_2= 2,0 fm.

SE_1	-49,32	TrE_1	-118,09	Tenz E	-42,52
SE_2	15,47	TrE_2	27,27	Tenz O	-6,10
SO_1	125,53	TrO_1	-155,82	LS E	-0,43
SO_2	-44,37	TrO_2	62,06	LS O	3,42

A 4. ábrán látható néhány multiplett kisérleti E_J matrixeleme és a (26), (27) potenciálból a 3. táblázatban megadott illesztéssel nyert elméleti értékek.



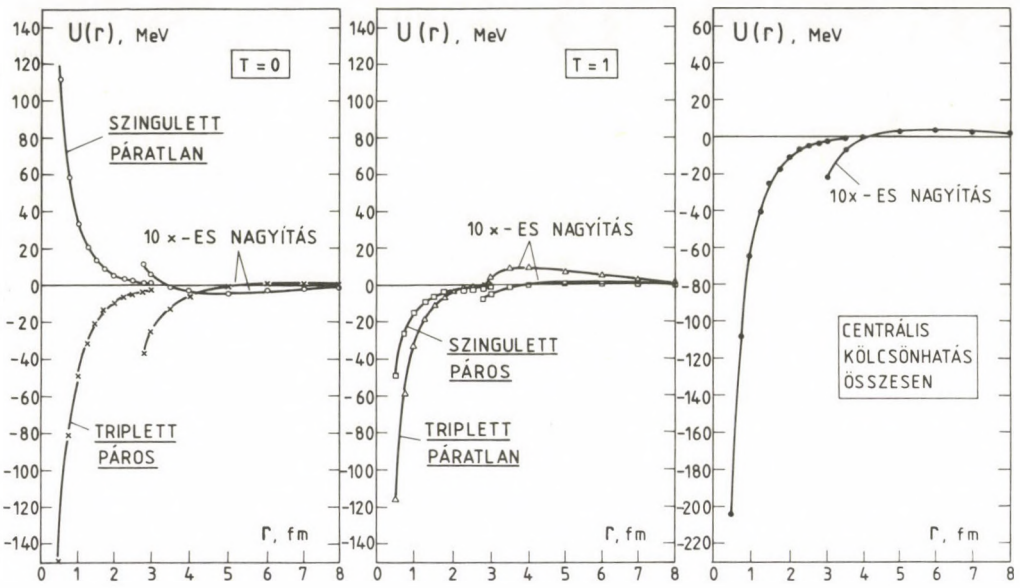
4.ábra. A maradék effektív kölcsönhatás matrixelemei a Θ_{12} szög függvényében nehány multiplettre. A folytonos görbék a kisérleti, a szaggatottak az elméleti értékeket mutatják. Az adatok Schiffer és True munkájából származnak [3].

A kisérleti matrixelemeket leíró potenciál zömét a centrális potenciálok adják; a nemcentrális tagok figyelembevétele csak ~30% javulást okoz az illesztés χ^2 értékében. A tenzor tag nehány specifikus esetben javítja az illesztést, míg a spin-pálya tag általános javulást okoz.

Az 5. ábrán feltüntettük a centrális potenciál egyes komponenseinek függését a távolságtól. Az ábrán az is látható, hogy a centrális kölcsönhatás rövid hatótávolságú része összességében vonzó, de fellép egy hosszabb hatótávolságú gyengén taszító kölcsönhatás is.

A T=1 matrixelemek leírására Schiffer és True szerint feltétlenül szükséges volt kéttagú (27) kölcsönhatást bevezetni. A T=0 kölcsönhatásnál a második komponens bevezetésének szükségessége nem annyira világos, Megjegyzendő, hogy a számítások kevéssé érzékenyek az r_2-re; így az illesztésből a Yukawa-potenciál hatótávolság paraméterét nem sikerült egyértelműen meghatározni.

A Schiffer-True 12 paraméteres effektív maradék kölcsönhatási potenciált összevetve a szabad nukleonokra levezetett Hamada-Johnston [13] potenciállal megállapítható, hogy a T=0 komponensek eléggé hasonlóak mind nagyságra, mind alakra nézve, de T=1 esetében eltérés van.



5. ábra. A maradék effektiv kéttest kölcsönhatás centrális összetevői [U(r)] a távolság (r) függvényében. A görbék a (27) formulából lettek számolva a 3. táblázat paramétereivel.

4.5. Chiang és munkatársai számításai

Chiang és munkatársai [14] az univerzális kétnukleon maradék kölcsönhatási potenciált hasonló alakban vették fel, mint Schiffer és True, és héjmodell illesztéssel meghatározták a potenciál paramétereit az ólom tartományban. Illesztésük kéttagú effektiv Yukawa-potenciál esetén átlagban 100 keV-es közepes eltérést eredményezett a kisérleti adatoktól. Ez az eltérési szint hasonló a héjmodell számításokéhoz.

5. TÖREKVÉSEK A KÉTNUKLEON MARADÉK KÖLCSÖNHATÁSI MATRIXELEMEK LEVEZETÉSÉRE A SZABAD NUKLEONOK KÖZÖTTI KÖLCSÖNHATÁSBÓL

Az előző fejezetben ismertetett maradék kölcsönhatási potenciálok paramétereit végső soron a kisérleti adatokhoz való illesztéssel határozták meg. Ha magtörzs potenciált vezetünk be a Hamilton függvénybe és a bázisállapotok számát korlátozzuk, az effektiv maradék nukleon-nukleon kölcsönhatás szükségszerűen különbözni fog a szabad nukleonok közötti kölcsönhatástól.

Történtek kifejezetten elméleti jellegű próbálkozások is az effektiv maradék kölcsönhatási matrixelemek számítására. Kuo és munkatársai a szabad nukleon-nukleon kölcsönhatásból kiindulva próbálták levezetni a maradék effektiv kölcsönhatást a reakció matrixelmélet segítségével. A héjmodell reakció matrixelemek két részből állnak: a tiszta reakció matrixelemekből és a magtörzs polarizáció miatti renormalizációs részből. Mindkettőt a Hamada-Johnston szabad nukleon-nukleon potenciálból számították.

Az 1. ábrán szaggatott vonalakkal feltüntettük a $j_1=j_2$ esetre vonat-

kozó G-matrix elméleti eredményeket, amelyek zömét a Hamada-Johnston potenciálból vezették le (Kuo és Brown [15], Herling és Kuo [16], valamint Kuo [17]).

Az ábrán látható, hogy

a/ T=0 esetében az elméleti és kisérleti görbék csak kis θ_{12} értékeknél mutatnak egyezést, $\theta_{12} > 120^{0}$ esetén lényeges eltérés van.

Az elmélet szerint a kölcsönhatás sokkal kevéssé vonzó, mint ahogy azt a kisérleti adatok mutatják. A Kuo-Brown matrixelemek héjmodell szerinti illesztésével közelebb kerülünk a kisérleti adatokhoz (Mc Grory és mások [18]).

b/ T=1 esetén az elméleti és kisérleti adatok között jó egyezés van mind a függés általános menetét, mind a numerikus értékeket illetően. Kivételt lényegében csak a $\theta_{12}=180^{0}$-nál nyert adatok képeznek.

Kuo és Brown 1966-ban megjelent úttörő munkája nyomán a dolgozatok ezreit közölték az effektiv kölcsönhatásra. Meglepő módon a Kuo-Brown kölcsönhatás adja mindmáig a legjobb egyezést a kisérleti adatokkal. Úgy tűnik, hogy az effektiv kölcsönhatás lényegét sikerült megismerni: a realisztikus szabad nukleon-nukleon kölcsönhatás nem áll messze attól, hogy reprodukálja az atommag-rendszerek adatait. Igaz, nincs mindig kielégitő egyezés a kisérleti és elméleti eredmények között, de ez részben amiatt is felléphet, hogy nem ismerjük kielégítően az alapvető nukleon -nukleon kölcsönhatást (Arima [19]). Tisztázandó pl. a tenzorerők pontos szerepe a kölcsönhatásban: a Párizs és a Bonn-Jülich potenciálokban a tenzorerők szerepe sokkal kisebb, mint a Hamada-Johnston potenciálban. A háromtest erők szerepe sem világos még teljesen, bár hatásuk a kéttest erőkhöz képest csak néhány %-nyi lehet (Vinh Mau [20]).

6. ÖSSZEGEZÉS

Összefoglalóan megállapíthatjuk, hogy a mágikus (vagy félmágikus) számok közelében a maradék effektiv kéttest kölcsönhatás matrixelemei jól definiált függést mutatnak a csatolási szögtől, ami a 2, 3 és 4. ábrákon látható. A kisérleti adatok eléggé jól közelíthetők egyszerű modell kölcsönhatásokból levezetett analitikus formulákkal. Úgy látszik, hogy az esetek többségében a maradék effektiv kölcsönhatás jól leírható delta erőkkel, amiket monopól, ill. kvadrupól kölcsönhatások némileg módosítanak. Próbálkozások történtek az effektív kétnukleon kölcsönhatás leírására teljesebb (de kompolikáltabb) nukleon-nukleon potenciálból kiindulva is (Schiffer és True stb.).

A kötött nukleonok közötti effektiv maradék kölcsönhatás univerzális alakját mindezideig a szabad nukleonok közötti potenciálból levezetni nem sikerült, de nem állunk messze tőle.

Köszönettel tartozom Végh Lászlónak, a fizikai tudomány kandidátusának értékes megjegyzéseiért.

IRODALOM

[1] P.J. Brussaard and P.W.M. Glaudemans, Shell-Model Applications in Nuclear Spectroscopy (North-Holland, Amsterdam, 1977)
[2] S.P. Pandya, Phys. Rev. 103 (1956) 956
[3] J. P. Schiffer and W. W. True, Rev.Mod.Phys. 48 (1976) 191
[4] W. W. Daehnick, Physics Reports (Rev. Sec. of Phys. Lett.) 96 (1983) 317
[5] G. Racah, Phys. Rev. 61 (1942) 186; 62 (1942) 438
[6] J. B. French in Proc. Int. School of nucl. Phys. "Enrico Fermi", Varenna, Italy, ed. by C. Bloch (Acad. Press Inc., New York, 1966), Course 36
[7] M. Moinester, J. P. Schiffer and W. P. Alford, Phys. Rev. 179 (1969) 984
[8] A. Molinari, M. B. Johnson, H. A. Bethe and W. M. Alberico, Nucl. Phys. A 239 (1975) 45
[9] A. de-Shalit and I. Talmi, Nuclear shell theory (Acad. Press, New York, 1963)
[10] Ju. I. Haritonov, Izv. AN SSSR, ser.fiz. 28 (1964) 315
[11] V. L. Alexeev, I. A. Kondurov, Yu. E. Loginov, V. V. Martynov, S. L. Sakharov, P. A. Sushkov, H. G. Börner, W. F. Davidson, J. A. Pinston and K. Schreckenbach, Nucl. Phys. A345 (1980) 93
[12] V. L. Alexeev, B. A. Emelianov, D. M. Kaminker, Yu. L. Khazov, I. A. Kondurov, Yu. E. Loginov, V. L. Rumiantsev, S. L. Sakharov, and A. I. Smirnov, Nucl. Phys. 262 (1976) 19
[13] T. Hamada and I. D. Johnston, Nucl. Phys. 34 (1962) 382
[14] H. C. Chiang, S. T. Hsieh, M. C. Wang and M. M. King Yen, J. Phys. (London) G4 (1978) 191
[15] T. T. S. Kuo and G. E. Brown, Nucl. Phys. 85 (1966) 40; A 114 (1968) 241
[16] G. H. Herling and T. T. S. Kuo, Nucl. Phys. A181 (1972) 113
[17] T. T. S. Kuo, Nucl. Phys. A122 (1968) 325
[18] J. B. McGrory, B. H. Wildenthal and E. C. Halbert, Phys. Rev. C2 (1970) 186
[19] A. Arima, Nucl. Phys. A354 (1981) 19c
[20] R. Vinh Mau, Proc. Int. Conf. on nuclear physics, Florence, 1983, ed. P. Blasi and R.A. Ricci (Tipografia Compositori, Bologna, 1983) p.61

HU ISSN 0231-3685

ATOMKI Riport X/19 (1985)

IN-BEAM GAMMASPEKTROSZKÓPIA*

Dombrádi Zsolt

Magyar Tudományos Akadémia Atommagkutató Intézete
4001 Debrecen, Pf. 51.

Ez a munka az in-beam gammaspektroszkópiában használatos elvek és módszerek összefoglalását tartalmazza. A cikk első felében a γ-spektroszkópiai információ megszerzésének a módszereiről van szó. Részletesen ismertetjük a magreakcióból várható γ-spektrum sajátosságait, a spektrométer feloldásjavitásának koincidenciamódszerét és a gyenge reakciócsatoran kiemelésének technikáját. A cikk második felében azok a módszerek kerülnek ismertetésre, amelyek segitségével a γ-sugárzás tulajdonságaira nyert adatokból a magállapotok sajátságaira - energiájára, impulzusmomentumára és paritására - lehet következtetni.

1. Bevezetés

Az atommagból kilépő γ-sugárzások vizsgálata nem sokkal a radioaktivitás felfedezése után megkezdődött, a gammaspektroszkópia azonban csak a második világháboru után, a szcintillációs detektorok elterjedésével vált a magszerkezet-kutatás hatékony eszközévé.

A *gammaspektroszkopia* célja az, hogy a γ-sugárzás tulajdonságaiból a sugárzást kibocsátó magállapot tulajdonságaira következtessünk. A γ-sugárzást kibocsátó magállapot előállhat radioaktiv bomlás során vagy magreakcióban.

A magreakció gyakorlatilag mindig közbensőmag-reakciót jelent, mivel ez teszi ki a teljes hatáskeresztmetszet (σ_τ) döntő többségét [1]:

$$\sigma_{cN}/\sigma_\tau = (0{,}945\ 0{,}055) - 2{,}7\cdot 10^{-4} Z_b Z_{ct}, \qquad (1)$$

ahol σ_{cN} a közbensőmag-reakció hatáskeresztmetszete, Z_b a bombázó részecske, Z_{ct}, pedig a céltárgymag rendszáma.

---

*Az 1985. januári Magfizikai Téli Iskola előadásának anyaga

A közbensőmag-reakciókat a γ-spektroszkópia szempontjából két csoportra szokás osztani: azokra a magreakciókra, amelyekben a vizsgálni kivánt állapot közvetlenül részecskeemisszióval áll elő; és azokra, amelyekben egy vagy több részecske emittálódik statisztikusan, majd γ-sugárzások viszik el a maradék gerjesztési energiát.

Az első kategóriába tartozó magreakciók - különösen ha a közbensőmag egy jól izolált rezoanciáján át játszódnak le - alkotják az in-beam spektroszkópia legtisztább eszközét. Ha már több rezonanciát is figyelembe kell venni, a helyzet kellemetlenebb, de a be- és kilépő csatornákra kiátlagolva sikeresen lehet vizsgálni az atommagok alacsonyan fekvő állapotait.

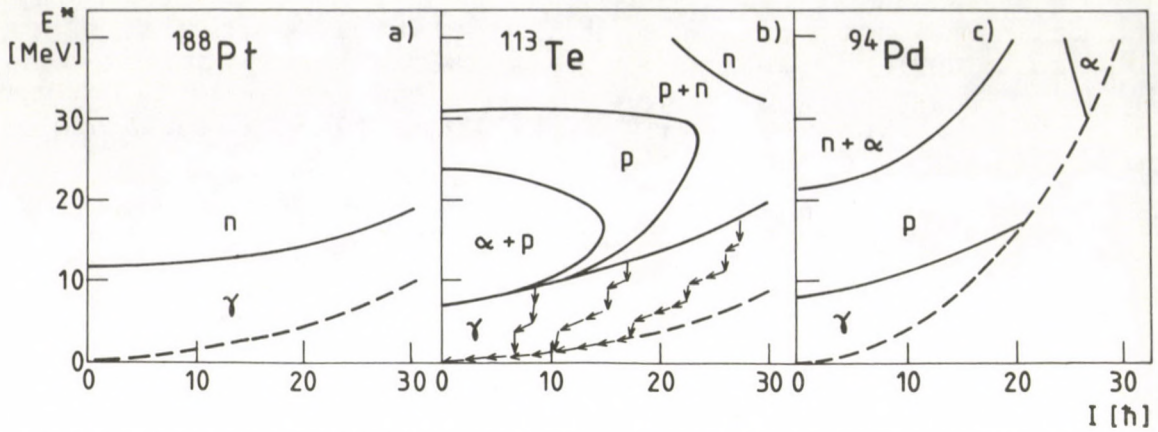
A második kategóriába eső magreakciók reménytelenül bonyolultnak tünnek a rezonancia-reakciók egyszerüségéhez képest. Ebben az esetben már nem követhető végig a magreakció lépésről lépésre, mert "megszámlálhatatlanul" sok ut vezet a kezdeti állapottól a végállapotig. Itt már csak bizonyos valószinüségi megfontolásokat lehet tenni.

Szükebb értelemben a γ-spektroszkópiának ezt az ágát tekintik az *in-beam spektroszkopiának*. Kezdetét 1963-ra, Morinaga és Gugelot uttörő munkájának [2] a megjelenésére teszik. A továbbiakban a spektroszkópia ezen ágában használatos elvekkel és módszerekkel foglalkozunk. Mielőtt ezt megtennénk érdemes egy kvalitativ képet kialakitani a *magreakcióról*, hiszen az határozza meg, hogy milyen állapotok vizsgálhatók, milyen nehézségekkel kell szembenézni és, hogy hol segithet a reakciómechanizmus ismerete.

A bombázó rész tipusától és energiájától függően a közbensőmag néhányszor tiz MeV gerjesztési energiával és néhányszor tiz ħ impulzusmomentummal áll elő. Gerjesztési energiáját n, p, α és γ emisszióval, esetleg hasadással adja le.

A közbensőmag legerjesztődésekor különböző bomláscsatornák versengenek. A csatornák versengésében dől el, hogy milyen végmagok állnak elő, és ezeknek milyen lesz a relativ sulya. Modellszámitások szerint, azok a bomláscsatornák vannak előnyben, amelyek nagyobb állapotsürüségü - az yrast-vonaltól (az adott spinhez tartozó legkisebb energiáju magállapotokat összekötő vonaltól) minél távolabbi - tartományba vezetnek. Ez indokolja egyrészt azt, hogy az elpárolgó részecske a centrifugálgát ellenére igyekszik impulzusmomentumot elvinni, másrészt azt, hogy a neutronpárolgás lesz a domináns mindaddig, amig a neutron kötési energiája olyan nagy nem lesz, mint a töltöttrész kötési energiája plusz a Coulomb-gát értéke. Protonokra ez kb. 15 %-os neutronhiány esetén következik be. Ekkor lesz a proton- és a neutronkibocsátás valószinüsége egyenlő. A részecskeemisszió statisztikus jellege miatt a végmagnak a magreakcióban előállitott állapotai egy széles, de meghatározott energia - és impulzusmomentum - tartományba esnek.

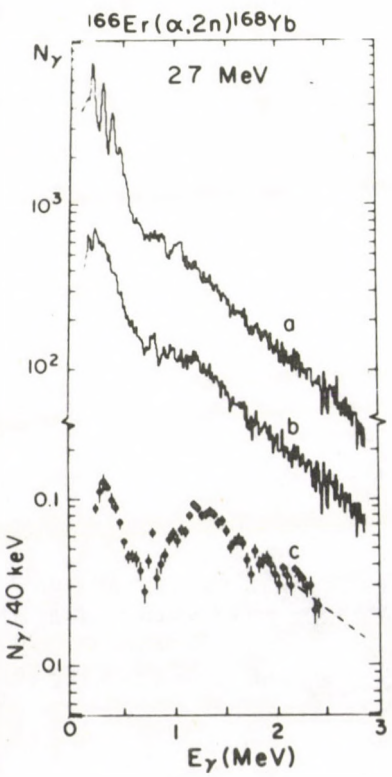
A γ-bomlás minden lépésben lehetséges, de meghatározó bomlási móddá csak a yrast-vonaltól mért egy neutron-kötésienergia alatti tartományban válik. Lényegében ebbe a sávba esnek azok a magállapotok, amelyeket in-beam spektroszkópiai módszerekkel vizsgálni lehet. A bomlási csatornák versengésére statisztikus modellel számolt példák az 1. ábrán láthatók.



1. ábra: A gerjesztési energia-impulzusmomentum sikban felvett kontur térképek. A beirt jelek a domináns bomlási csatornát jelölik [3].

2. A várható gammaspektrum

A végmag gerjesztési energiájától és impulzusmomentumától γ-emisszióval szabadul meg. Az 1.b. ábrán feltüntettünk néhány γ-bomlási utat különböző kezdeti impulzusmomentumokra. Fizikai szempontból két tipusu γ-sugárzást különböztethetünk meg: azokat, amelyek az yrast-vonallal többé-kevésbé párhuzamosak, igy főleg az impulzusmomentum elvitelében játszanak szerepet, *yrast-jellegüeknek* nevezzük, és azokat, amelyek az yrast-vonal felé haladva főleg gerjesztési energia változást okoznak, *statisztikus γ-sugárzások*nak nevezzük. A 2.a. ábrán a ^{168}Yb legerjesztődéséből származó γ-sugárzások spektrumát láthatjuk.



2. ábra: A ^{166}Er(α,2n) reakcióból származó γ-sugárzások spektruma (a), a diszkrét csucsok levonása után (b) és a detektor válaszfüggvényre korrigálva (c) [4].

A spektrum három részre bontható: diszkrét csucsokra, amik a legalsó yrast-átmeneteknek felelnek meg; alattuk egy "dudorra",

ami a fel nem oldott yrast-szerü átmenetektől származik; és egy exponenciálisan eső farokra, ami a statisztikus γ-sugárzásokból épül fel.

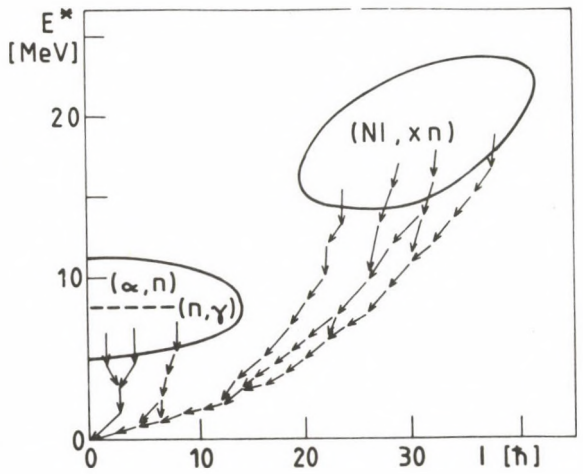
A statisztikus γ-sugárzások spektruma (lásd a 2c. ábrán a második "dudor") jól közelithető az

$$N(E_\gamma)=E_\gamma^n e^{-E_\gamma/T} \qquad (2)$$

formulával. A T maghőmérséklet nehézion-reakciókban kb. 1,5 MeV, könnyüion-reakciókban pedig kb. 0,5 MeV. Egy magreakcióban átlag 3-4 statisztikus γ-sugárzás keletkezik. Különböző mérések szerint a statisztikus γ-sugárzások szögeloszlása izotróp, multipolaritása E1. Ha ez a két állitás igaz, ez azt jelenti, hogy az átmenetek kb. 2/3-a feszitett, 1/3-a pedig nem.

Az yrast-szerü átmenetek multipolaritására nyert adatok kevésbé általánosak, erősen függenek a magszerkezettől. A deformált magtartományban ezek az átmenetek feszitett E2-jellegüek, csak alacsony energián van közöttük viszonylag kevés M1 átmenet. Gömbszerü magoknál az M1 komponens nagyobb energiákig terjed és az átmenetek mintegy 50 %-át teszi ki [5].

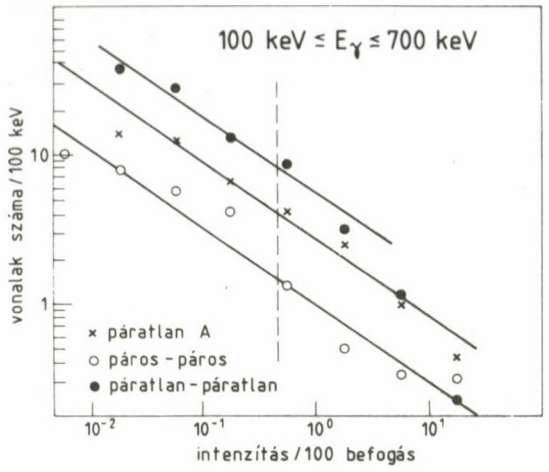
A gammasugárzásoknak egy másik, gyakorlati felosztása is lehetséges; azok a vonalak, amelyeket még fel lehet oldani és azok, amelyeket már nem. A feloldhatóság a spektrum komplexitásáról és a detektálásrendszer felbontóképességétől függ.



3. ábra: A végmag tipikus populációja (n,γ) (szaggatott vonal), (α,n) és (nehézion,xn) reakció után. Néhány tipikus gammabomlási ut is fel van tüntetve.

Az alacsonyenergiás α részecskékkel létrehozott magreakciók és a (p,xn) reakciók a végmag hasonló állapotait populálják, mint az (n,γ) reakció (lásd 3. ábra). Ennek megfelelően a fenti reakciókból származó γ-spektrumot a statisztikus átmenetek uralják és a *spektrum bonyolultsága* is hasonlónak várható mint az (n,γ) reakcióban. (n,γ) reakcióban T. von Egidy [6] vizsgálta a vonalsürüséget, a γ-sugárzás intenzitásának függvényében.

18 spektrumból átlagolással nyert eredményét a 4. ábrán mutatjuk be. Egy Ge(Li) detektorral igen kedvező esetben az átfog-



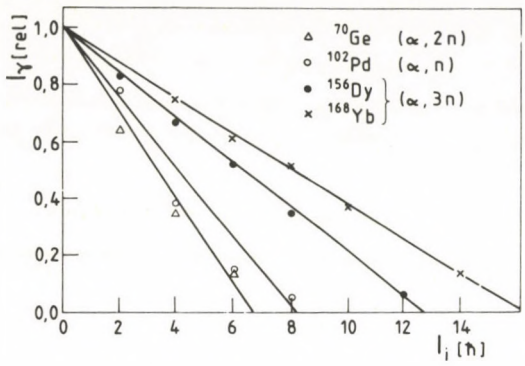
4. ábra: Átlagos vonalsürüség a 100 és 700 keV között. A kisérleti pontok 18 spektrumra átlagolt értékeket jelölnek [6].

ható intenzitástartomány kb. 2 nagyságrend (az ábrán szaggatott vonallal jelölve), ami a 4. ábra tanusága szerint azt jelenti, hogy 100 keV-enként 2-3 γ-sugárzás várható egy páros-páros atommagból és mintegy 12 egy páratlan-páratlanból. 2 keV-es feloldásu detektorra ez utóbbi esetben a vonalalaknak kevesebb, mint 40 %-a lesz egyedülálló, a többi komplex. A komplexitás azt is jelenti, hogy a csucsoknak 11 %-a mindössze 1/4 félértékszélességre lesz egymástól. Ilyenkor a komplex csucs félértékszélessége csak 9 %-kal nagyobb mint az egyszerü csucsé, még 1:1 intenzitásarány esetén is, amit már nem mindig lehet észrevenni.

A (Nehézion,xn) reakciók esetén a részecskepárolgás a végmag más energia-impulzusmomentum tartományába eső állapotokat populál (lásd 3. ábra). Ebből a tartományból főleg yrast-szerü átmenetek vezetnek az alapállapothoz. A legalsó yrast-átmenetek lesznek a legerősebbek, hiszen azokon át gerjesztődik le minden előállt állapot. A magreakció hatáskeresztmetszet-maximumánál mérve, már α indukált reakcióban is az yrast-átmenetek a legerősebbek. (α,xn) reakciókból származó yrast-átmenetek relativ intenzitását az emittáló állapot impulzusmomentuma függvényében az 5. ábrán láthatjuk néhány páros-páros mag esetén.

Meg lehet mutatni, hogy az yrast-átmenetek hozamának lineáris változását az yrast-sávval párhuzamos oldalsávokról való táplálás okozza. Az oldalsávon belüli, ill. a sávok közötti átmenetek gyengébbek az yrast-átmeneteknél [7]. Kezdetben az in-beam spektroszkópia lényegében az yrast-sáv spektroszkópiáját jelentette. Napjainkban egyre erősebb a törekvés az yrast-sávtól való távolodásra, a minél teljesebb spektroszkópiai megismerésre.

Az yrast-vonaltól távolodva (NI,xn) reakciók esetén is számolni kell a γ-spektrum tulkomplikálódásával, ha a vizsgált magok nagy (30-40 ħ) spinekig gerjesztődnek (pl. 8 sávot egyenként 15 db 1 MeV alatti átmenettel feltételezve).



5. ábra: Néhány páros-páros mag yrast-átmeneteinek relativ intenzitása. A spektrumok a reakcióhatáskeresztmetszet maximumánál voltak mérve, [7,16] alapján.

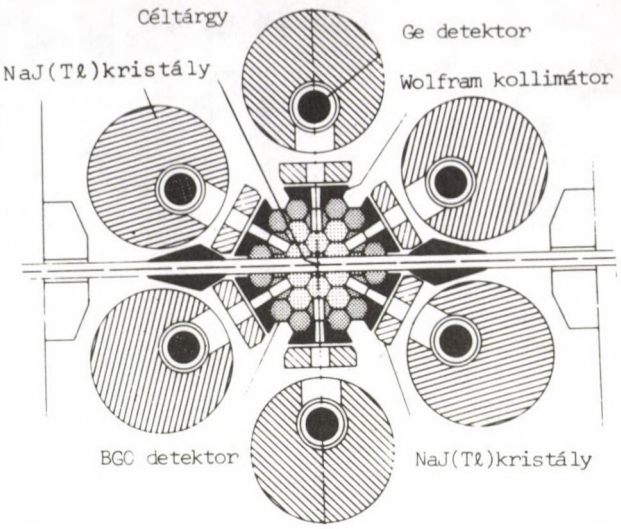
Ahhoz, hogy a spektroszkópiában tovább lehessen lépni a teljesség felé, nagymértékben javitani kellene a detektor feloldását. Mivel uj, lényegesen jobb feloldásu detektor kifejlesztése néhány éven belül nem várható, más megoldás után kellett nézni.

A detektor feloldása azt határozza meg, hogy milyen távol vannak egymástól a még megkülönböztethető pontok. Egy 3 keV feloldásu detektor esetén 1 MeV-en 333 pont különböztethető meg, ami éppen a feloldás reciproka. Egy kétdimenziós matrixban a megkülönböztethető pontok száma $(333)^2$ ami kb. $1 \cdot 10^{-5}$ "effektiv" feloldásnak felel meg [8].

Egy ilyen *virtuális feloldásjavulást* akkor lehet igazán értékelni, ha figyelembe vesszük hogy két kb. azonos energiáju γ-sugárzás (ami egydimenzióban feloldhatatlan) általában teljesen más koincidencia kapcsolatokkal rendelkezik, igy könnyen feloldhatóvá válik egy kétdimenziós koincidencia mérés alapján. Komplex séma esetén gyakran csak a séma felépitése után derül ki, hogy összetett volt-e a vonal, de közvetlenül a mérés után is megkülönböztethetők azok a vonalak, amelyeknek a poziciója hibán kivül eltér, azaz a néhány keV helyett néhány 100 eV-re lehet leszoritani a megkülönböztethetőség határát.

A *koincidenciaspektroszkopiá*nak két fő nehézsége van. Az egyik a hatásfok csökkenés. Ha egy detektornak egy vonalra az abszolut hatásfoka pl. 1 % volt, akkor koincidenciamérésnél csak $2 \cdot 10^{-4}$ lesz. De ha nem két, hanem mondjuk hét detektort használunk a koincidenciaméréshez, akkor a hatásfok 2,1 %-ra nő, ami már jobb, mint egy detektorral volt.

A másik probléma a zaj. Mig egy Ge(Li) spektrumban az események kb 5 %-a esett a fotocsucsba, addig a koincidenciaspektrumban az eseményeknek csak 0,25 %-a hordoz hasznos információt, a többi 99,75 % csak Compton-háttér, aminek az elnyomására anti-Compton spektrométereket fejlesztettek ki. Egy négyszeres háttér elnyomás a koincidenciaspektrumban 16-szoros javulást okoz, azaz a hasznos események száma eléri az egyszerü spektrumra jellemző 4 %-ot. A mindkét nehézséget kiküszöbölő sokdetektoros anti-Compton spektrométerek között klasszikusnak számitó TESSA2 berendezés vázlata a 6. ábrán látható.



6. ábra: A Daresburyben kifejlesztett TESSA2 spektrométer elvi rajza [9].

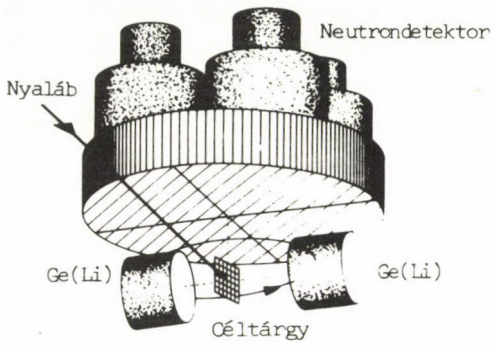
3. *A gyenge reakciócsatorna kiemelése*

A detektálhatóság vizsgálatánál feltételeztük, hogy csak egyetlen magból származó sugárzást lehet észlelni. Ez a feltételezés az in-beam spektroszkópiában szinte sohasem teljesül, de még az sem tul gyakori, hogy egyetlen csatorna a domináns. A domináns magreakció vizsgálatakor a többi csatorna jelenléte csak a spektrum komplexitását növeli, de ha egy gyenge csatornát kell választani, akkor a vizsgálni kivánt vonalak többsége a láthatósági küszöb alá kerül. Ennek elkerülésére az érdekes reakciócsatornát fel kell erősiteni.

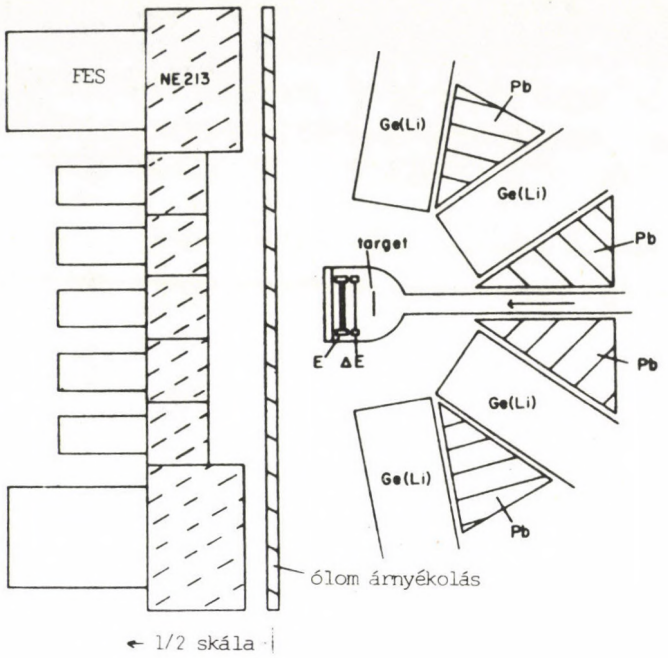
A gyenge reakciócsatornák kielemésének egyik fő módszere, a reakciótermékekkel való koincidencia mérése. Legelterjedtebb a neutronokkal való koincidencia kikötése, de lehetőség van a neutronok multiplicitásának számlálására is, több neutrondetektort használva. Ez nem csak az xn csatorna kiválasztását teszi lehetővé, hanem pl. 3n-rovására a 2pn-et, ha csak 1 neutronnal való koincidenciát követelünk meg. Egy egyszerü, neutronmultiplicitást mérő detektort a 7., egy nagyobb méretü, a többneutron-csatornára érzékenyebb berendezést a 8. ábrán láthatunk.

Csak a neutroncsatornák kiemelését lehet elérni, ha a neutrondetektálás mellett a kilépő töltött részeket is detektáljuk és antikoincidenciát követelünk meg. A töltött részekkel való koincidencia is megkövetelhető, de ilyenkor különbséget kell tenni, a különböző - pl. p,2p,α - események között. A részecske azonositásra félvezető , E-ΔE teleszkópot használnak. Egy tipikus elrendezés nehézion nyalábon a 8. ábrán van feltüntetve.

Nehézionreakciókban különbséget lehet tenni az egyes reakciócsatornák között pl. TESSA tipusu spektrométerrel, mérve a γ-sugárzások multiplicitását és a reakcióban felszabaduló össz-

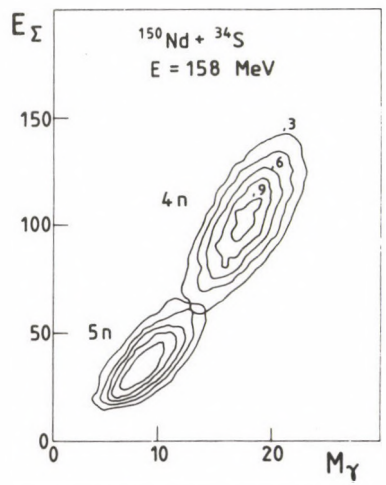


7. ábra: A Kölnben müködő neutronmultiplicitás szürő elvi rajza [10].



8. ábra: Daresburyben, a Neutron Falnál folyó kisérletek elvi elrendezése [11].

energiát.
A módszer érzékenységére egy példát a 9. ábrán láthatunk.



9. ábra: A kilépő γ-sugárzások összenergiája a γ-sugárzások multiplicitásának függvényében a 4n és az 5n csatornára [12].

A reakciócsatorna kiválasztásával el lehet érni, hogy 1 % alatti hatáskeresztmetszetü reakciócsatornákban előálló végmagok is vizsgálhatók in-beam spektroszkópiai módszerekkel. Igy a stabilitási sávtól távolabb lehet jutni a neutronhiányos oldalon, és lehet vizsgálni a proton-emittáló csatornákat a neutrontöbbletes oldalon is.

4. A γ-sugárzások azonositása

A sugárzások azonositása legalább olyan fontos, mint detek-

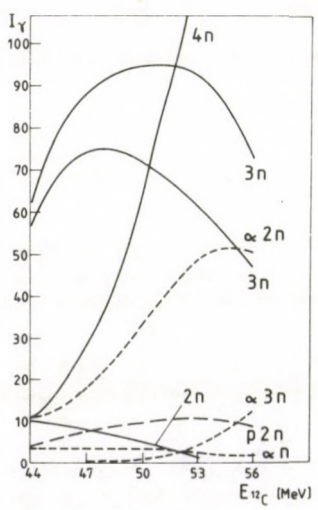
tálása, hiszen csak az azonositott vonalakra nyert adatok hordoznak használható információt. Ennek megfelelően az azonositás fő célja, hogy a spektrumból kiválogassa a vizsgált magreakcióhoz tartozó összes detektált vonalat. Célszerü azonositani a legerősebb szennyező vonalakat is, hogy a szennyező reakcióból származó egyéb vonalak esetleges bekeveredését korrekcióba tudjuk venni.

Az azonositás kettős feladatot jelent. Egyrészt azt kell megmondani, hogy milyen magon játszódott le reakció, másrészt azt, hogy milyen reakció játszódott le.

Az azonositás legegyszerübb módszere az energia szerinti azonositás. Ezzel a módszerrel megbizhatóan lehet azonositani az ismert és várt szennyező sugárzásokat. Ha egy vonal energiában egybeesik a várt szennyezővel, az még nem jelenti azt, hogy azonos is vele. Egy magból több sugárzás várható, ugyhogy meg kell keresni a többi vonalat is, sőt ezek intenzitásarányának is az adott reakcióra jellemzőnek kell lenni.

A háttérvonalak (a céltárgykeretből, hátlapból, nyaláb-csatorna elemekből stb. származó sugárzások) azonositásához nagy segitséget nyujt, ha rendelkezünk háttérspektrum-katalógussal. Mégis a legcélszerübb a mérési körülményeket ugy alakitani, hogy ezek a vonalak egyáltalán ne legyenek a spektrumban. Az in-beam spektrumok gyakori szennyezője még a keletkező végmagok radioaktiv bomlásából származó sugárzás is. Ezeket a vonalakat a legegyszerübben ugy lehet elnyomni, ha pulzált nyalábbal, csak a nyaláb pulzusok ideje alatt mérünk.

Ha nem elég nagy dusitási foku izotóppal rendelkezünk, akkor megnő a szerepe az izotóphoz rendelésnek. Ilyenkor különböző dusitási foku céltárgyak spektrumát célszerü vizsgálni. Azok a vonalak, amelyeknek a területaránya a különböző spektrumokban a dusitási foknak megfelelően változik, a vizsgálni kivánt izotópon lezajló magreakciókhoz tartoznak.

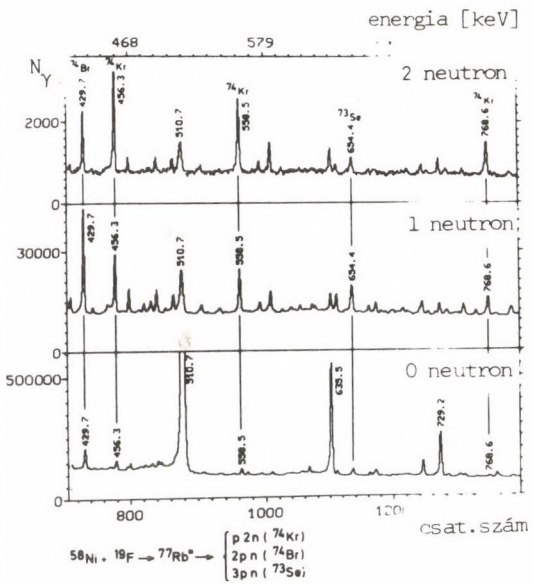


10. ábra: A $^{94}Zr+^{12}C$ reakció különböző kilépő csatornáira jellemző legerősebb γ-sugárzások relativ hozama [13].

A *magreakcióhoz azonositás* legegyszerübb módszere a ger-

jesztésifüggvények felvétele. Ezzel a módszerrel azok a magreakciók választhatók szét, amelyeknek lényegesen különböző energiánál van a hatáskeresztmetszet-maximuma. Gerjesztésifüggvény szerinti azonositásra egy példát a 10. ábrán láthatunk. Megfigyelhetjük, hogy az azonos reakcióból, de különböző gerjesztési energiáju állapotból származó sugárzások gerjesztésifüggvény maximuma különböző helyen van, ami a maximum pozíciója szerinti szelektivitást korlátozza.

A magreakcióhoz azonositás másik módszere valamelyik reakciótermékkel való koincidencia kikötése. Ezt a módszert főleg ott használják, ahol a gyenge csatorna kiválasztására ugyis rendelkezésre állnak a berendezések. Egyetlen spektrum felvétele itt sem elégséges. A különböző koincidencia feltételekkel mért spektrumokban a csucsterület arányokból lehet reakcióhoz azonositani (lásd 11. ábra).



11. ábra: Az $^{58}Ni+^{19}F$ reakcióból származó γ-sugárzások spektruma 0, 1 és 2 kilépő neutronnal koincidenciában mérve [10].

Közvetlenül végmaghoz lehet rendelni a γ-vonalakat, ha ugyanazon magot több reakcióval is elő lehet állitani. A különböző spektrumokban megjelenő azonos energiáju vonalak között vannak a vizsgálni kivántak (és néhány közös szennyező). Másik módszer az, hogy a végmag ismert γ-sugárzásaival mérünk koincidenciát. Itt azok a vonalak fogadhatók el, amelyek koincidenciában vannak a már azonositott vonalakkal. Egyetlen mérésből lehet az azonositást elvégezni, ha a csatornakiválasztást és a γγ-koincidenciatechnikát házasitjuk.

A koincidenciamérések általános problémája, hogy a véletlen koincidencia csökkentésére minimalizálják a feloldási időt, igy a néhányszor 10 ns élettartamu állapotokhoz kapcsolódó sugárzások kimaradhatnak az azonositható vonalak közül.

Az azonositás feladatát egyetlen módszerrel sem lehet teljesen megoldani. Általában 2-3 módszer együttes használata vezet megfelelő eredményre. A különböző módszerek kiegészitik és kontrollálják is egymást. Az azonositás összes módszere a viszonylag erős vonalakra ad megbizható információt, a kimutat-

hatóság határán levő vonalak azonositása nagyon nehéz.

Az azonositott volanakra nyert adatokat tekintjük a spektroszkópia primer adatainak. A továbbiakban azt fogjuk vizsgálni, hogy hogyan lehet a primer információból a magállapotok sajátságaira, nevezetesen energiájára, impulzusmomentumára és paritására következtetni.

5. A magállapotok energiájának meghatározása

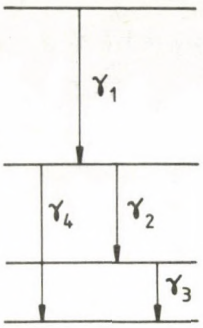
A vizsgálni kivánt magadatokat általában nem lehet egyértelmüen meghatározni egyetlen mérésből. Ilyenkor csak annyit mondhatunk, hogy a feltételezett adat nem mond ellent a kisérletnek. Az adat meghatározásához a kisérleti információk olyan halmazát kell összegyüjteni, ami csak egyetlen hipotézis érvényességét engedi meg.

A magadatok meghatározását tovább bonyolitja az, hogy a γ-sugárzás tulajdonságai nem az emittáló állapotra, hanem az emisszió során történő változásra jellemzőek. Igy pl. a γ-sugárzás energiája két állapot energiájának a különbségét adja. Az állapotok energiáját a γ-energiákból az energiák összeadogatása utján kapjuk. A probléma bonyolultságát durván alábecsüljük, ha a felállitható sémavariánsok számát az átmenetszám faktoriálisával közelitjük. Egy közepes átmenetszám pl. 50 esetén igy is kb. 10^{64} variáns épithető fel, és ezek közül csak egy jó. Csak a γ-energiákra hagyatkozva a sémát felépiteni nem könnyebb, mint megkeresni egy tüt a szénakazalban.

A sémaépités egyik elve az *energiamérleg*, - az atomfizikai Ritz elv adaptálása a magfizikára - amely szerint, ha egy nivó a sugárzások energiaösszegéből két vagy több módon is előáll, akkor a nivó léte igen valóshinünek tekinthető. Az energiaösszegek azonban véletlenül is egybeeshetnek. A véletlen egybeesés valószinüsége a γ-sugárzások számától és energiájuk bizonytalanságától függ. Ezért van jelentősége a γ-sugárzás energiájának minél pontosabb meghatározásának. Egyedül álló csucsokra - Ge(Li) detektort használva - az energiamérés pontossága elérheti az 50 eV-et. Ilyen energiapontosság mellett is általában csak néhány nivó létét lehet pusztán az energiamérleg alapján igazolni. Józan mennyiségü állapotot csak a szignifikanciaszint csökkentésével lehet elfogadni.

Az energetikailag megengedett sémák számát tovább lehet csökkenteni egy másik elv, az *intenzitásmérleg* figyelembevételével, ami megköveteli, hogy egy nivóról legalább annyi intenzitás menjen el, mint amennyi ismert sugárzások formájában táplálja. A két elv együttes figyelembevételével nyert séma még mindig bizonytalan, ugyanis az energiamérleg elve csak általában - azaz nem mindig - teljesül. Arra vonatkozóan, hogy mely átmenetek követik egymást, pozitiv információt csak γγ-koincidenciamérésből lehet nyerni.

A *koincidencia-kapcsolatok* létéből csak azt tudjuk meg, hogy mely átmenetek rendezhetők egy-egy kaszkádba. Ha egy átmenet több kaszkádban is szerepel ez bizonyos utalást jelent a poziciójára is. Ez az információ, és az intenzitásmérleg általában már elég a séma jelentős részének felépitéséhez. Egy γ-átmenetnek a kaszkádban elfoglalt helyére tett feltevést ellenőrizni lehet a koincidencaiintenzitások ismeretében.



12. ábra: Sémarészlet a koincidencia-intenzitások számolásához

Tekintsük például a 12. ábrán látható sémarészletet. Az i-dik és a j-dik átmenet között várható koincidenciaintenzitás egyszerüen megadható. Például a 2-3 kaszkádra:

$$N_{23}=I_2\varepsilon_3 \qquad (3)$$

ahol I_2 a γ_2 sugárzás intenzitása, ε_3 pedig a detektor hatásfoka $E_{\gamma 3}$ energiánál. Elágazás esetén

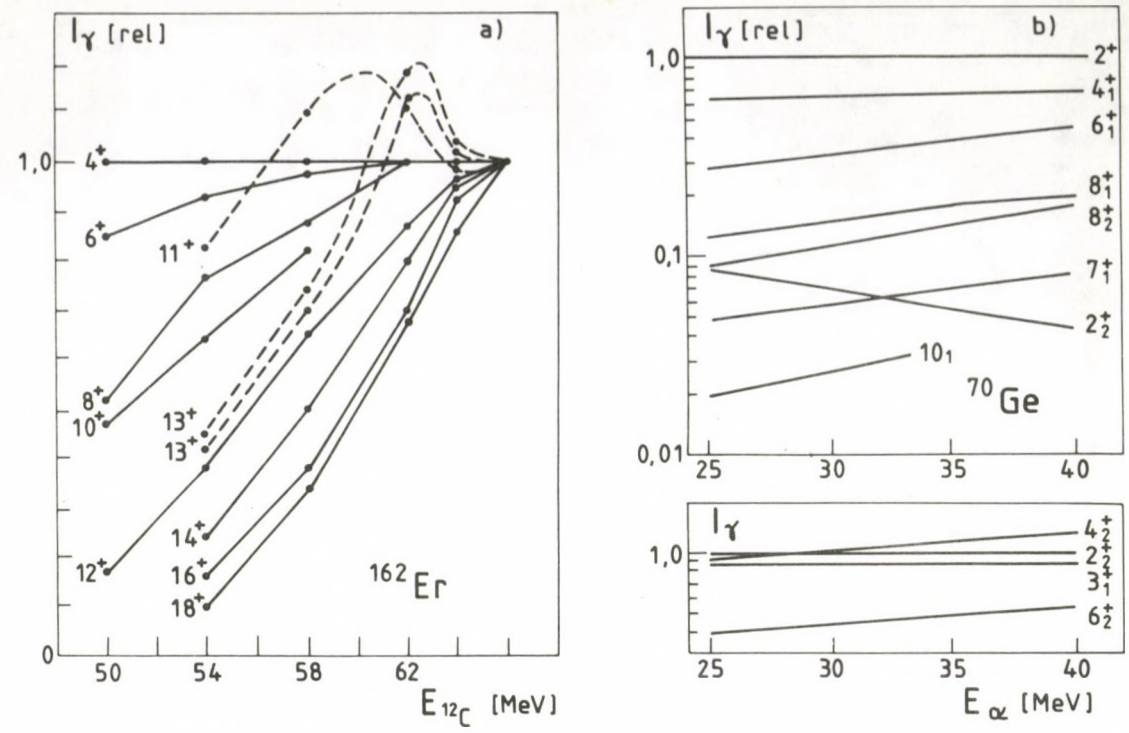
$$N_{14}:N_{12}=I_4:I_2 \qquad (4)$$

A (3) és (4) összefüggés többszöri alkalmazásával bonyolult, többszörös áttételen érvényesülő koincidenciaintenzitások is származtathatók. Ha lényeges eltérés van a mért és a várt intenzitások között, az a séma valamely fogyatékosságára utal [14].

A *séma konzisztenciájának ellenőrzését* teszi lehetővé a relativ gerjesztésifüggvények vizsgálata is. A 13. ábrán látható, hogy az yrast-kaszkád tagjai azonos módon viselkednek, bizonyos más tipusu vonalak pedig teljesen más gerjesztésifüggvénnyel rendelkeznek. Azonban, ha ezek is egy kaszkád tagjai, akkor egy belső konzisztencia ezekre a vonalakra is jellemző (lásd 13.b. ábra alsó része). Az ábráról az is látható, hogy a magasabban fekvő állapotokból jövő sugárzások intenzitása kisebb, ami sok esetben sorrendi információt is jelent. További konzisztenciatesztet jelent az az elvárás, hogy az azonos nivóról jövő sugárzások intenzitásaránya állandó legyen a bombázó energia függvényében.

A sémaépités a magszerkezeti adatok származtatásának az első lépése, és bizonyos értelemben a legfontosabb is, hiszen a továbbiakban már a kapott nivórendszer jellemzését végezzük. Éppen ezért a sémaépitésnél első szempontnak a megbizhatóságot kell tekinteni és csak másodiknak a teljességet. A beépithető γ-sugárzások számát a koincidenciamérés jósága határozza meg.

A γ-spektroszkópiai alapon történő energiameghatározásnak minden nehézsége ellenére van egy nagy előnye is, a kitünő felbontása. Két azonos energiáju állapotot is meg lehet különböztetni, mivel a bomlásukból származó sugárzások más koincidencia kapcsolattal rendelkeznek.



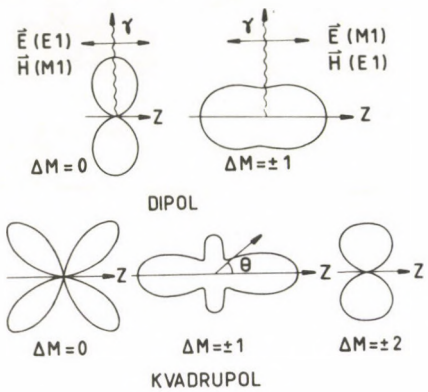
13. ábra: Relativ gerjesztési függvények (^{14}C,4n) (a) és (α,2n) (b) reakcióból. A görbék mellé irt számok a kezdeti állapot impulzusmomentumát jelölik [15,16].

6. Az impulzusmomentum meghatározása

A nivóséma felépitése után a következő lépés az egyes nivók - magállapotok - impulzusmomentumának meghatározása. Az impulzusmomentum meghatározása sem megy közvetlenül, ugyanis az átmenet által elvitt impulzusmomentum az két állapot impulzusmomentumának különbsége. További nehézséget jelent, hogy a γ-sugárzás impulzusmomentuma nem is mérhető közvetlenül.

Atomfizikában a problémát ugy oldották meg, hogy a mágneses alállapotokat felhasitották erős mágneses térben, aminek következtében a λ impulzusmomentumu átmenet is felhasadt különböző $\lambda\mu$ komponensekre, és a komponensek számából lehetett következtetni az állapotok teljes impulzusmomentumára. Mivel a magmagneton jóval kisebb mint az atomi, ezért a magfizikai Zeeman effektus gyakorlatilag használhatatlan módszer.

A sugárzás egyes $\lambda\mu$ komponenseiről azonban azt is tudjuk, hogy mindegyik sajátos sugárzási eloszlással - rendelkezik (lásd 14. ábra). Az in-beam spektroszkópiában kvantálási tengelynek mindig a nyaláb irányát szokás választani.



14. ábra: A dipól és kvadrupól sugárzások különböző komponenseinek a szögeloszlása. Dipól sugárzás esetén a Z tengelyre merőlegesen kilépő sugárzás polarizációs iránya is fel van tüntetve.

A teljes λ impulzusmomentumu sugárzás szögeloszlása a kvantálási tengellyel bezárt θ szög függvényében a következő alaku:

$$W(\theta)=\sum_{m_i\mu s} |\langle J_i,m_i,\lambda,\mu|J_f,m_f\rangle|^2 \, P(m_i)Z_{\lambda\mu}(\theta), \qquad (5)$$

ahol J_i a kezdeti - J_f a végállapot impulzusmomentuma, m_i ill. m_f pedig az impulzusmomentum z komponensei. $Z_{\lambda\mu}(\theta)$ függvény a 14. ábrán megadott eloszlások analitikus alakja, $P(m_i)$ pedig az m_i alállapot betöltési valószinüsége, ami az állapot előállitásának a módjától függ. Pl. egy páros-páros magban α befogással előállt állapotra P(0)=1 az összes többi P(m)=0, hiszen a részecske által bevitt impulzusmomentum merőleges a kvantálási tengelyt jelentő nyaláb irányára. Az ilyen állapotot teljesen orientáltnak nevezzük.

A betöltési valószinüség helyett szokás használni a ρ_k statisztikus tenzort is, amelynek értéke J impulzusmomentumu állapot esetén:

$$\rho_k(J)=\sqrt{2J+1}\sum_m (-)^{J-m}\langle J,m,J,-m|k,0\rangle P(m). \qquad (6)$$

Ebben a reprezentációban a szögeloszlás:

$$W(\theta)=\Sigma_k \rho_k(J_i)F_k(J_\gamma,\lambda,J_i)P_k(\cos\theta) \qquad (7)$$

alaku. Az összegzés k=min(2λ,2J_i)-ig megy. W(θ) egyre normált ($\rho_0=F_0=P_0=1$). F_k vektor-csatolásiegyütthatókból képezhető [15]. A paritásmegmaradás miatt csak a páros együtthatók szerepelnek. Bár a két leirási mód ekvivalens, mégis az utóbbi terjedt el, mivel nagyspinü állapotok esetén a (7) képlet csak 2 populációs paramétert tartalmaz az (5) pedig 2J+1-et.

A fenti megfontoások csak tiszta multipolaritásu átmenetekre igazak, de a magfizikába nagyon gyakoriak a multipol keveredések főleg az M1-E2 keveredés. Kevert multipolaritás esetén az

F_k együtthatók négyparaméteres $F_k(J_f,\lambda,\lambda',J_i)$ kell alkalmazni. A *szögeloszlás* képlet:

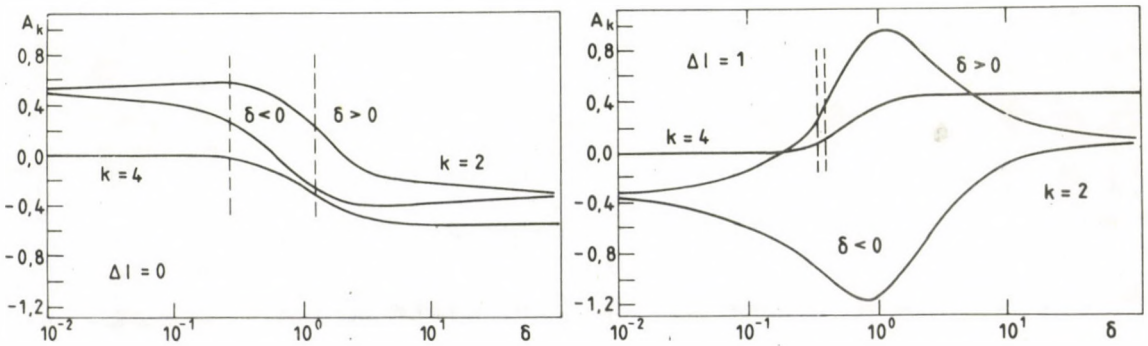
$$W(\Theta)=\Sigma_k \rho_k(J_i)\frac{1}{1+\delta^2}[F_k(J_f,\lambda,\lambda,J_i)+2\delta F_k(J_f,\lambda,\lambda',J_i)+\delta^2 F_k(J_f,\lambda',\lambda',J_i)]x$$

$$x\ P_k(\cos\Theta)=\Sigma_k A_k P_k(\cos\Theta) \qquad (8)$$

alaku lesz, ahol δ a keveredési arány:

$$\delta = \frac{\langle J_f||\lambda'||J_i\rangle}{\langle J_f||\lambda||J_i\rangle}\ , \quad \delta^2 = \frac{\lambda' \text{ intenzitása}}{\lambda \text{ intenzitása}} \qquad (9)$$

A (8) formulában szereplő A_k együtthatók illesztéssel közvetlenül meghatározhatók a kisérletileg mért szögeloszlásból. A szögeloszlási együtthatók nagysága és előjele nagyon érzékeny a γ-sugárzás által elvitt impulzusmomentumra. Tiszta multipolaritásu átmenetek esetén a $\Delta J=0$ átmenetekre a nagy pozitiv A_2 és nulla A_4 jellemző, A $\Delta J=1$ átmenetekre a negativ A_2 és nulla A_4 mig a $\Delta J=2$ átmenetekre a pozitiv A_2 és kisebb negativ A_4 jellemző. Kevert multipolaritás esetén az A_k együtthatók érzékenyek a keveredési arányra (lásd 15. ábra).



15. ábra: A_2 és A_4 szögeloszlás együtthatók a δ keveredési arány függvényében egy-egy tipikus $\Delta J=0$ és $\Delta J=1$ átmenetre [13].

A 15. ábráról az is leolvasható, hogy bizonyos keveredési arány esetén (az ábrán szaggatott vonallal jelölve) a kevert $\Delta J=0$ átmenet ugy viselkedik, mint a tiszta $\Delta J=2$ és a kevert $\Delta J=1$ mint a tiszta $\Delta J=0$. Ezért az A_2 és A_4 paraméterek ismerete önmagában nem elégséges az impulzusmomentum változás meghatározására, hanem kvantitative össze kell vetni a (8) összefüggés két oldalát. A bal oldalon legfeljebb kvadrupol átmenetet feltételezve a ρ_2, ρ_4, δ, J_i, J_f, λ és λ' paraméterek szerepelnek, amelyek értékét a jobb oldalon álló A_2 és A_4 együtthatók kisérleti értékéből kellene meghatározni. Ha az utolsó három paraméter értékét ismertnek is tekintjük, a meghatározandó mennyiségek száma még mindig tul sok.

A paraméterek közül ρ_2 és ρ_4 csak az állapot előállitásának a módjától, a reakciómechanizmustól függ. A közbensőmag orientációja a különböző impulzusmomentumu állapotokban meghatározható. A végmag egyes állapotainak orientációjára azonban még egy jó becslést is nehéz adni, mert a reakció nem követhető lépésről lépésre. A kisérletek mindenesetre azt mutatják, hogy a végállapotok is erősen orientáltak [17]. Ha az elpárolgó részecskék véletlenszerüen visznek el impulzusmomentumot, azt lehet várni, hogy az alállapotok populációja Gauss eloszlást követ:

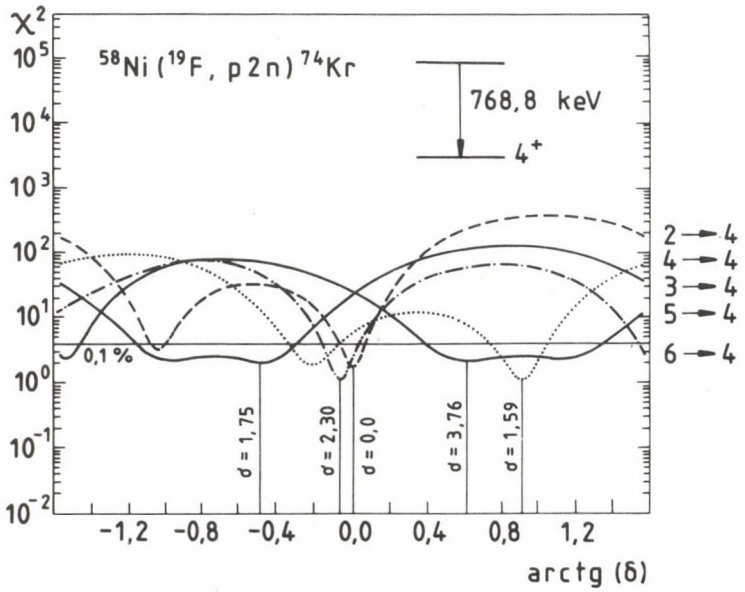
$$P(m)=N\exp(-m^2/\sigma^2) \qquad (10)$$

ahol N normálási faktor, σ az eloszlás szórása. A kisérleti adatok jó összhangban vannak a Gauss-szerü populációeloszlással. Az orientációt nem is annyira σ, hanem a σ/J érték jellemzi, hiszen ez a mennyiség adja meg, hogy mennyire terült szét az eloszlás, mennyire gyengült az anizotrópia. Az anizotrópia gyengülését az α_k gyengülési faktorral is szokás jellemezni:

$$\rho_k(J)=\alpha_k B_k(J) \qquad (11)$$

ahol B_k a teljesen orientált állapot statisztikus tenzora (a (6) formulából számolható).

A statisztikus tenzorra tett megfontolások legfontosabb következménye az, hogy a (8) szögeloszlás formula paramétereit eggyel csökkentette. Igy is maradt három paraméter - σ, δ, J_i amelyeket az A_2 és A_4 együtthatóból kell meghatározni. Kvadrupól átmenetet feltételezve J_i maximum öt értéket vehet fel. Az egyes J_i feltételezésekhez meg lehet határozni δ és σ értékét. Egy tipikus példát a 16. ábrán láthatunk. A mért szögeloszlásra (8) alaku függvényt illesztettek és az illeszkedés jóságát ábrázolták a keveredési arány függvényében. Az ábrán az optimális keveredési arányhoz tartozó σ értékek is fel vannak tüntetve.



16. ábra: A ^{74}Kr magból származó 768,8 keV-es átmenet szögeloszlásának χ^2 analizise [10].

Az impulzusmomentum (és a keveredési arány) meghatározásának feladata az öt érték közül való választást jelenti.

Ha valamely átmenetről tudjuk, hogy tiszta kvadrupól, akkor meg lehet határozni α_k értékét az adott állapotra. Ha sok kvadrupól átmenet van, akkor lehetőség van több különböző spinü állapotra meghatározni az α_k értékeket, ezeket átlagolni, köztük interpolálni ill. extrapolálni. Ilyenkor az átlagolással nyert α_k értékeket használhatjuk és σ-t nem kell illeszteni.

Valamivel gyengébb követelmény az orientáció gyengülésének megkövetelése a legerjesztődés során. A gyengülés mértékét becsülni lehet, ha egy állapot csak egy felette levő állapotból γ-átmenettel populálódik. A két állapot statisztikus tenzora közti összefüggés:

$$\rho_k(J_k)=U_k(J_i,\lambda,\lambda',J_\gamma)\rho_k(J_i) \qquad (12)$$

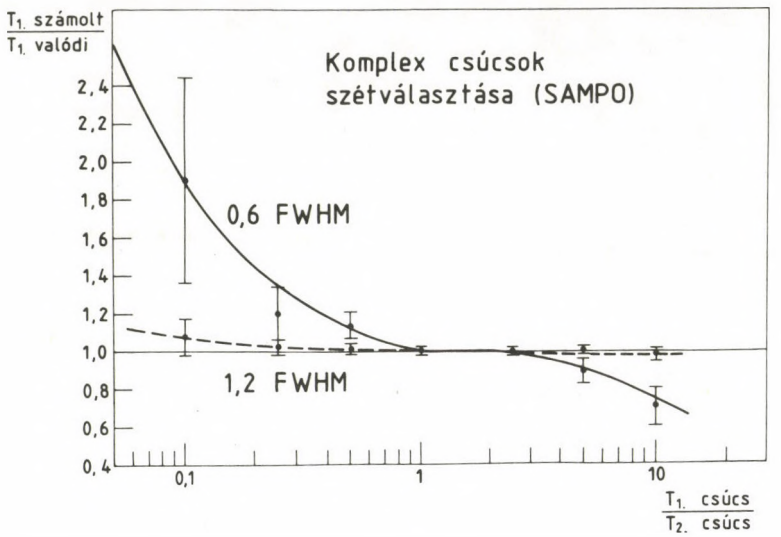
Az U_k együtthatók értékét a [17] táblázat tartalmazza. Az igy számolt gyengüléshez közelebb eső α_k változást elfogadva, gyakran lehet egyértelmü impulzusmomentum értéket kapni. Sokszor még az is elég, ha csak annyit követelünk meg, hogy az azonos állapotról induló átmenetek statisztikus tenzora azonos legyen.

A származtatott mennyiségek pontossága ill. a probléma definiáltsága a mért szögeloszlás-együtthatók pontosságától függ. Ezért különösen fontos, hogy minél pontosabban lehessen meghatározni mindkét együtthatót.

Ez a célkitüzés nem kis feladatot jelent a kisérletezők számára, ugyanis a csucsterületnek az átlagtól való eltérése a 0°-90° tartományban 10-30 %. Ha a 0° (180°) közelében nem tudunk mérni, mert pl. el kell vezetni a céltárgyon áthaladó könnyüion nyalábot akkor az effektus még ennél is kisebb. Gondos mérésnél a megfelelő korrekciókat (detektor véges térszöge, céltárgy véges mérete, nyalábirány pontos ismerete) figyelembe véve, a szisztematikus hiba (a korrekciók bizonytalansága, centrálás, a spektrumok összenormálása, reprodukálhatóság) nem haladja meg az 1-2 %-ot.

A csucsterület meghatározása általában ennél nagyobb bizonytalanságot okoz. A szokásos feldolgozó programokban használt csucsalakok megbizhatósága 1-3 %. Ennél lényegesen nagyobb hibát lehet véteni, ha a csucs Doppler kiszélesedést szenvedett. Komplex csucsok feldolgozásánál még rosszabb a helyzet. A számolt csucsterületek megbizhatóságára példát a 17. ábrán láthatunk.

A komplex csucsok problémájának megoldására a feloldásjavitás koincidencia módszerét használják, igy a szögeloszlás-mérésből *szögkorreláció-mérés* lesz. Orientált mag esetén a szögkorrelációs formulák elég bonyolultak, csak akkor egyszerüsödnek le a szokásos szögeloszlás formulára, ha az egyik detektort a nyaláb irányához képest 90°-ban vagy 0°-ban helyezzük el. A szögkorrelációs együtthatók számitása igy is viszonylag bonyolult [19]. A vonalak anizotrópiája szögkorreláció esetén nagyobb, az együtthatóknak a statisztikus tenzortól való függése pedig gyengébb. Ezen előnyök ellenére szögkorreláció mérésre viszonylag kevesen vállalkoznak. Ennek egyik oka, hogy viszonylag hosszu mérésidők szükségesek, másik ok az, hogy koincidencia spektrumban kell csucsterületet pontosan meghatározni.



17. ábra: Egy γ-dublett szétválasztásának megbizhatósága a két csucs intenzitásarányának a függvényében. A két csucs távolsága 0,6 illetve 1,2 félértékszélességnyi (FWHM) volt a számitások során. [18]

A csucsterület meghatározása komplex spektrum esetén elbonyolódik. Nem lehet olyan ablakot választani, amelyben csak egy vonallal koincidenciában levő vonalak látszódnak, a bekeveredett vonal hatását az egyes csucsokra pontatlanul lehet korrekcióba venni, azonkivül a háttérlevonás is bizonytalanná válik. A koincidenciamatrix pontos kiértékelése csak 3 dimenziós ($E_{\gamma 1}$,$E_{\gamma 2}$,$N_{\gamma\gamma}$) fedolgozástól várható, aminek a módszertana lényegében még nincs kidolgozva, bár léteznek 3 dimenziós feldolgozó programok.

A csucsterület meghatározásának bizonytalansága általában oda vezet, hogy az A_4 paramétert nem lehet meghatározni. Ha viszont csak egy paraméter származtatható annak nem kell az A_2-nek lennie, lehet pl. az anizotrópia is. A sugárzás anizotrópiáját ugy kapjuk, hogy két szögnél mérjük a sugárzás intenzitását és a két intenzitás arányát vesszük. Koincidenciamérésnél az anizotrópiából szögkorrelációs arány lesz. A nyaláb irányához képest két különböző szögbe állitjuk a két detektort és azt vizsgáljuk, hogy hányszor detektáljuk a γ_1-sugárzást az X(Y) detektorban a γ_2 sugárzással koincidenciában. A szögkorrelációs arány:

$$R_{DCO}=\frac{N_{12}(\gamma_1\rightarrow X,\gamma_2\rightarrow Y)}{N_{21}(\gamma_1\rightarrow Y,\gamma_2\rightarrow X)}\;\frac{N(\gamma_1\rightarrow X)N(\gamma_2\rightarrow Y)}{N(\gamma_1\rightarrow Y)N(\gamma_2\rightarrow X)}=\frac{A(1)}{A(2)} \qquad (13)$$

ahol A(i) az i-sugárzás anizotrópiája. Tehát a szögkorrelációs arány nem más, mint a két sugárzás anizotrópiájának az aránya. Az egyik sugárzás pl. az 1-es sugárzás anizotrópiáját akkor tudjuk pontosan meghatározni, ha a másiké pontosan ismert. Ha a γ_2-sugárzás tiszta multipolaritásu pl. kvadrupól, akkor használhatjuk az anizotrópiájára nyert elméleti értéket, igy az

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

A(1) pontosabban határozható meg, egyébként az R_{DCO} hibája és az A(2) hibája együtt határozza meg A(1) bizonytalanságát.

Természetszerüleg γ_2 nem mindig tiszta multipolaritásu, de hogy mégis ki lehessen használni, a tiszta multipolaritás előnyét tovább fejlesztették a módszert, ugy hogy csak tiszta multipolaritásu sugárzáshoz kelljen viszonyitani γ_1 anizotrópiáját Az

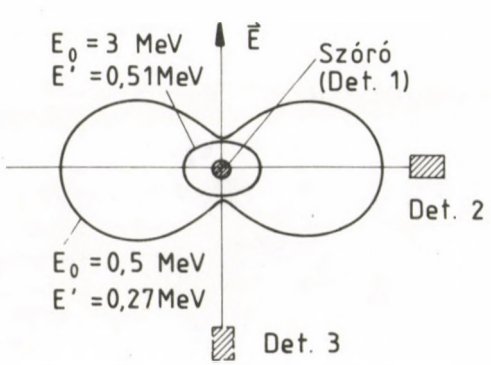
$$R_{DCOQ} = \frac{A(1)}{A(2)} \frac{A(2)}{A(3)} \qquad (14)$$

arányt tekintik, ahol γ_3 már tiszta multipolaritásu. Az arány bizonytalansága erősen csökkenthető, ha az összes lehetséges tiszta multipolaritásu sugárzással kiszámoljuk az R_{DCOQ} arányokat és megfelelően sulyozott átlagukat használjuk. Bár csak egy paramétert tudunk meghatározni, mégis gyakran lehet egyértelmü spin értéket nyerni a számolt és a mért R_{DCOQ} arányok összevetéséből [20].

A szögeloszlás- és szögkorreláció-mérésben még egy bizonytalan faktor van. A korábbiakban beláttuk, hogy a közbensőmagok a nyalábirányára többé-kevésbé merőleges impulzusmomentummal keletkeznek és feltételeztük, hogy ezt az irányultságukat csak a bomlási folyamat miatt változtatják. Ez a feltételezés azonban nem mindig teljesül. Ha céltárgy kristályrácsában elektromos tér gradiens illetve mágneses tér van, a mag elektromos kvadrupol ill. mágneses dipól momentumával kölcsönhatva elforgatja a magot - és ezzel együtt elfordul a szögeloszlás tengelye is. A mérés során ez ugy jelentkezik, hogy a valódinál gyengébb anizotrópiát lehet megfigyelni. Az anizotrópia gyengülése elhanyagolható, ha a γ-sugárzás szülőállapota elég rövid ideig él. Néhány pikoszekundumos élettartam esetén az atomi terek még nem befolyásolják a szögeloszlást, de ha a szülőállapot élettartama lényegesen hosszabb pl. 1 ns, akkor a γ-sugárzás szögeloszlása akár izotróppá is válhat.

7. Paritásmeghatározás

A paritás meghatározásának a két legelterjedtebb módszere a konverzióselektron-spektroszkópia (ami a sugárzás multipolaritására is érzékeny) és a γ-sugárzás lineáris polarizációjának, azaz az elektromos térerősségvektor irányának a meghatározása. A polarizációmérés a nyalábirányára (a kvantálási tengelyre) merőlegesen kilépő sugárzások esetén a leghatékonyabb. Ebben az esetben a dipól sugárzás egyes komponenseinek a polarizációs iránya a 14. ábrán van feltüntetve.



18. ábra: Compton-szórt fotonok szögeloszlása, ill. a Compton-szórás anizotrópiájának mérésére szolgáló 2- és 3-detektoros polariméter-elrendezés. E_o a beeső, E' a Compton-szórt sugárzás energiája.

A polarizáció irányára érzékeny pl. a Compton-szórás. A Compton-szórt fotonok szögeloszlására példát a 18. ábrán láthatunk, ahol egy két- ill. három-detektoros mérési elrendezést is feltüntettünk. Az egyes detektorba érkező γ-sugárzások egy része Compton-szóródik. A megfelelő irányba szóródott sugárzásokat pedig a kettes (ill. hármas) detektor érzékeli. A két detektor jelét koincidenciában mérve és összegezve egy diszkrét γ-spektrumot kapunk (19 ábra).

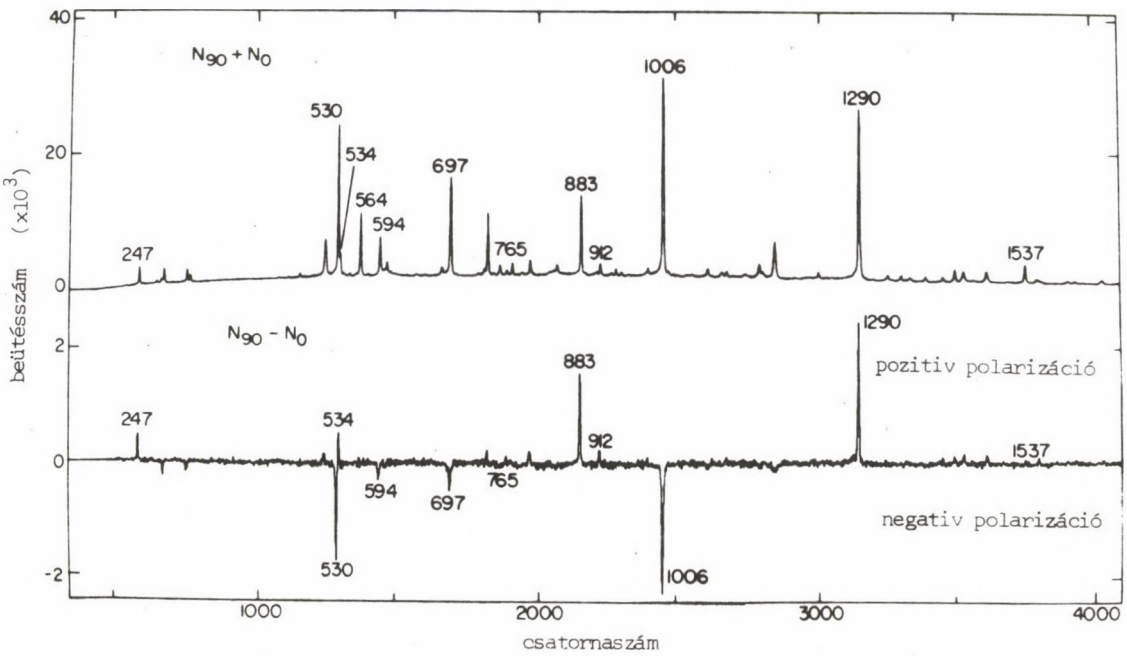
A polarizáció mértékét

$$P = \frac{N_{90}-N_0}{N_{90}+N_0} \times \frac{1}{Q} \qquad (15)$$

alakban szokás definiálni [22], ahol Q a polariméter érzékenysége, értékét ismert polarizációju sugárzásokkal kell hitelesiteni. A polarizáció mértéke szoros összefüggésben van a szögeloszlással [7]:

$$P = \pm \frac{3A_2H_2(\delta)+1,25A_4}{2-A_2+0,75A_4} \qquad (16)$$

ahol a pozitiv előjel a paritástartó átmenetekre vonatkozik. Kevert átmenet esetén a számlálóban levő A_2 egy a keveredési aránytól függő F_k együtthatókat tartalmazó szorzót is kap ($H_2(\delta)$). A polarizáció- és a szögeloszlásmérés közvetlenül alkalmas a keveredési arány és a kezdeti impulzusmomentum meghatározására a (16) összefüggés alapján. A gyakorlatban mégsem ez a módszer terjedt el, mivel a polarizációmérés - főleg a hitelesités bizonytalansága miatt általában pontatlanabb eredményre vezet, mint a szögeloszlásmérés.



19. ábra: Az $^{50}Ti(\alpha,n)^{53}Cr$ reakcióból származó γ-sugárzások spektruma két Ge(Li) detektorból álló polariméterrel felvéve [21].

A paritást egyszerübb meghatározni, mindössze a (16) formulából számolt polarizáció előjelét kell összevetni $N_{90}-N_0$ előjelével. Erre egy példát a 19. ábrán láthatunk. Az ábráról az is látszik, hogy 2-300 keV alatti átmenetekre már nem müködik a módszer, mivel koaxiális Ge(Li) detektorokat használva a koincidenciakör időzithetősége leromlik. A módszer használhatóságának másik korlátja a spektrum komplexitása. Komplex csucsokra csak nagy nehézségek árán lehet használható információt nyerni. Ez a megszoritás a konverzióselektron-spektroszkópiára is igaz.

8. Összefoglalás

Az előzőekben röviden áttekintettük az in-beam gammaspektroszkópiában a γ-sugárzásokra jellemző adatok megszerzésére és a magszerkezeti adatok származtatására napjainkban használatos technikákat és módszereket. A technikai oldalról közelitve megállapithatjuk, hogy ha a γ-spektroszkópia ma bonyolult, holnap csak még bonyolultabb lesz. Ennek az egyik oka az, hogy a domináns reakciócsatornában előálló, egyszerüen vizsgálható még ismeretlen atommagok száma erősen lecsökkent az elmult 20 év során. Egyre erősebb a kényszer, hogy a gyenge csatornákban előálló magokat vizsgáljuk, amihez elengedhetetlen a gyenge reakciócsatorna kiemelése. De utána itt vannak a nagy terhelés az alacsonyabb számlálási szint, a hosszu mérésidők, a gyors időzitések problémái , amiket a hagyományos analóg elektronikával csak nehezen lehet megoldani.

A másik technikai nehézség abból adódik, hogy a nagyobb nivósürüség ill. a nagyobb spinek felé kiterjesztve a magszerkezeti kutatást, az elért gerjesztett állapotok számával rohamosan nő a bomlásukból származó γ-sugárzások száma is. Több olyan területe is van a magszerkezet-kutatásnak, ahol a keletkező γ-spektrum már tul komplex ahhoz, hogy a hagyományos technikával pontos információt lehessen belőle nyerni. A feloldásjavitás utját ma a koincidencia-spektroszkópia kidolgozása jelenti. A koincidencia-technika az energiafeloldás javitásán tul, igen nagy segitséget nyujt a γ-sugárzások azonositásához, elengedhetetlen a sémaépitéshez és eltolja a szögeloszlás-mérésnek a spektrum komplexitásából adódó korlátait (szögkorrelációs módszer). Nagy hatásfoku elektronspektrométert alkalmazva elektron-gamma koincidenciaméréssel, ugy tünik, megoldható a komplex spektrumból való paritásmeghatározás is.

A koincidencia-spektroszkópia alapberendezése bizmutgermanát szcintillátorokból és nagyhatásfoku germánium detektorokból kiépitett anti-Compton spektrométerek rendszere. Ilyen γ-mérőrendszert a világ számos nagy laboratóriumában épitenek. A koincidenciaspektroszkópia adekvát adatfeldolgozási módszere a háromdimenziós kiértékelés még nem terjedt el, mivel hagyományos módszerekkel is sok uj információt lehet nyerni.

A magadatok származtatásában elvileg uj dolog nem történt. Az elmult 20 év során letisztultak a módszerek, az elveket egyre inkább kiszoritották a pozitiv információt adó technikiák, ami mögött az huzódik meg, hogy a többség számára elérhetővé váltak az információszerzéshez szükséges berendezések. Elfogadottá vált, hogy az egyes adatok megszerzéséhez milyen méréseket kell végezni. Az igy nyert adatok szükségesek, de gyakran

nem elégségesek. A származtatott magadatokat nagyon sok esetben csak ugy tekinthetjük, mint a kisérleti adatoknak ellent nem mondó hipotézist. Az elfogadott hipotézisnek más lehetséges feltételezésekhez viszonyitott megbizhatósága csak ritkán tisztázott.

A magadatok származtatásáról is elmondható az amit Niels Bohr a nyelvről mondott, hogy olyan mint a mosogatás, egy szennyes lében egy piszkos ronggyal lötybölünk végül mégis valami tiszta dolog jön ki. A γ-spektroszkópiában is egy szennyezett spektrumból nem egészen tiszta módszerekkel hozunk ki valami szépet - az állapotok energiáját, impulzusmomentumát és paritását. Melléktermékként pedig megkapjuk a keveredési arányt, amiből közvetlenül M1-E2, ill. E1-M2 átmenetivalószinüség arányt kaphatunk, ill. az elágazási arányt, amiből a különböző végállapotokra vonatkozó átmenetivalószinüség arányt kapjuk. Ha élettartam mérést is végzünk, akkor az átmenetivalószinüségek értékét is meg lehet határozni.

Ezen melléktermékeket figyelembe véve nemcsek az egyes modell Hamilton-operátorok mátrixelemeit, hanem közvetlenül a hullámfüggvényeket is tesztelhetjük. Ez pedig már olyan eredmény, amiért a γ-spektroszkópiát minden nehézsége ellenére érdemes müvelni. De nem csak érdemes, hanem szükséges is, mivel az adott magszerkezeti információ jó része csak gammaspektrometriai uton nyerhető.

Hivatkozások

1. E.A. Cherepanov, In-beam Nuclear Spectroscopy, szerk. Zs. Dombrádi és T. Fényes (Akadémiai Kiadó, Budapest, 1984.) 499. o.
2. H. Morinaga és P.C. Gugelot, Nucl. Phys. 46 (1963) 210
3. M. Lefort, Proc. Int. School of Phys. "Enrico Fermi", szerk. H. Farragi és R.A. Ricci (North-Holland, Amsterdam, 1976) 139. o.
4. S.H. Sie, J.O. Newton és R.M. Diamond, Nucl. Phys. A367 (1981) 176
5. R.M. Diamond és F.S. Stephens, Lawrence Berkeley Laboratory, LBL-10325 (1980)
6. T. von Egidy, Neutron Capture Gamma-Ray Spectroscopy (International Atomic Energy Agency, Vienna, 1969) 541. o.
7. H. Morinaga és T. Yamazaki, In-beam Gamma-Ray Spectroscopy (North-Holland, Amsterdam, 1976) 298. o.
8. F.S. Stephens, In-beam Nuclear Spectroscopy, szerk. Zs. Dombrádi és T. Fényes (Akadémiai Kiadó, Budapest, 1984) 205. o.
9. P.J. Twin, P.J. Nolan, R. Aryaeinejad, D.J.G. Love, A.H. Nelson és A. Kirwan, Nucl. Phys. A409 (1983) 343 c
10. J. Roth, Kölni Egyetem, Doktori értekezés, Köln (1981)
11. C.J. Lister, B.J. Varley és H.G. Prince, High Angular Momentum Properties of Nuclei (Harwood, New York, 1983)
12. R.M. Lieder, In-beam Nuclear Spectroscopy, szerk. Zs. Dombrádi és T. Fényes (Akadémiai Kiadó, Budapest, 1984) 298. o.
13. J.A. Grau, F.A. Rickey, G.J. Smith, P.C. Simms és J.R. Tesmer, Nucl. Phys. A229 (1974) 346

14. B.Sz. Dzselepov, Metodü razrabotki szlozsnüh szhem raszpada (Nauka, Leningrád, 1974) 75. o.
15. H. Morinaga, Proc. Int. School of Phys. "Enrico Fermi", szerk. H. Farragi és R.A. Ricci (North-Holland, Amsterdam, 1976) 351. o.
16. C. Morand, ISN Grenoble, Doktori értekezés, Grenoble (1978)
17. T. Yamazaki, Nuclear Data Tables A3 (1967) 1.
18. J.T. Routti és S.R. Prussin, Nucl. Instr. Meth. 72 (1969) 125
19. K.S. Krane, R.M. Steffen és R.M. Wheeler, Nuclear Data Tables 11 (1973) 351
20. J.A. Grau, L.E. Samuelson, F.A. Rickey, P.C. Simms és G.J. Smith, Phys. Rev. C14 (1976) 2297
21. A.P. Bryne és A.R. Poletti, Australian National University, ANU-P/814 (1981)
22. H. Frauenfelder és R.M. Steffen, Alpha-, Beta- and Gamma-ray Spectroscopy szerk. K. Siegbahn (North-Holland, Amsterdam, 1965) 1043. o.

Szakmai lektor: Nyakó Barna

HU ISSN 0231-3685

ATOMKI Riport X/20 (1985)

MAGÁLLAPOTOK ÉLETTARTAMÁNAK MÉRÉSE*

Krasznahorkay Attila

ATOMKI, H-4001, Debrecen, Pf. 51., Hungary

1. Bevezetés
2. Elektronikus időmérési módszerek
3. Meglökési távolság módszerek
4. A fékezési Doppler-eltolódás módszere
5. Indirekt élettartam mérési módszerek
6. Speciális módszerek
7. Összefoglalás

1. BEVEZETÉS

A magállapotok átlagos élettartamának, illetve az abból származtatható átmeneti valószinüségeknek az ismerete alapvetően fontos az atommagok szerkezetének a tanulmányozásához.

A hatvanas években a mért élettartamok száma nagyon gyorsan emelkedni kezdett, és ez a folyamat jelenleg is tart. Ezt a fellendülést az elektronikában, számitástechnikában, gyorsitótechnikában, de mindenekelőtt a félvezető detektorok terén elért fejlődés tette lehetővé. Hogy csak egyet emeljünk ki, a jó feloldásu Ge(Li) és a jelenleg elterjedő hipertiszta Ge detektorok nélkül a következőkben tárgyalandó Doppler-módszerek nem, vagy csak igen nehezen lennének müvelhetők. A fentiek miatt ma már szinte rutinná, a magszerkezetkutatás szerves részévé váltak ezek az élettartam-meghatározások.

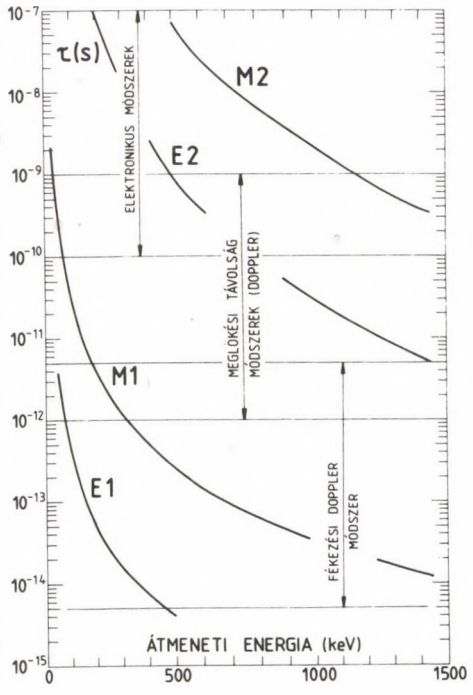
A jelen dolgozatban a módszerek gazdagsága miatt csak a legrugalmasabb, ugynevezett *direkt módszereket* tudjuk bemutatni. Ezen módszerek alapelve, hogy egy alkalmas módon létrehozott gerjesztett állapot élettartamát mérik, majd ebből (más magadatok ismeretében) kiszámitják a róla jövő sugárzások átmeneti valószinüségeit. Ezeket a mennyiségeket azonban bizonyos esetekben más módon, ugynevezett *indirekt módszerekkel* is meg lehet határozni. Ezen módszereket, mivel alkalmazhatósági körük nagyon korlátozott, csak madártávlatból fogjuk áttekinteni.

A legalapvetőbb direkt élettartammérési módszereket a következő három csoportba sorolhatjuk:

1/ elektronikus módszerek,
2/ meglökési távolság módszerek,
3/ a fékezési Doppler-eltolódás módszere.

*Az 1985. januári Magfizikai Téli Iskola előadásának anyaga

Ezekkel a módszerekkel a kötött magállapotok jelentős részének élettartama megmérhető. A fenti módszerek alkalmazhatóságának illusztrálására az 1. ábrán az átmeneti energia függvényében, Weisskopf-becslést használva, tüntettük fel a nivóélettartamokat, és az azok mérésére alkalmas módszereket. A módszerek határai csak közelitő jelleggel érvényesek. Az elektronikus módszerek alkalmazhatóságának a határa az átmeneti energiától, a Doppler-módszereké pedig még ezen kivül a meglökési sebességtől is függ. (Lásd 2, 3, 4. fejezetek.) Ennek ellenére jó közelitéssel azt mondhatjuk, hogy elektronikus módszerekkel főleg csak olyan nivók élettartamait lehet mérni, amikről dipolnál nagyobb multipolaritásu sugárzások jönnek. A meglökési távolság módszerekkel a nagyobb energiáju, gyorsabb, elektronikusan már nem mérhető E2 átmenetek élettartamai is meghatározhatóvá válnak. A fékezési Doppler eltolódás módszere pedig a szilárd anyagok gyors karakterisztikus fékezési ideje miatt, lehetővé teszi a dipol (elsősorban M1) átmenetek átmeneti valószinüségének meghatározását is.



1. ábra: Különböző multipolaritásu γ-sugárzásokkal legerjesztődő magállapotok átlagos élettartamai az átmeneti energia függvényében, (Weisskopf-becslés, A=100) és az ezen élettartamok megmérésére alkalmas legalapvetőbb direkt módszerek.

A kisérletileg megmért nivóélettartamokból meghatározhatjuk az adott nivóról jövő γ-sugárzások átmeneti valószinüségeit. Ha az a állapotnak a b-bé való, L multipolaritásu γ-sugárzással történő bomlása az egyetlen lehetséges legerjesztődési mód, ugy az a állapot élettartama egyszerü kapcsolatban van a λ(L) átmeneti valószinüséggel: $\lambda(L)=1/\tau$. Abban az esetben viszont, ha az a állapot más végállapotra is bomolhat, vagy más multipolaritásu sugárzás is megengedett, ugy ezeket a bomlásmódokat is figyelembe kell venni a λ(L) meghatározásánál (Löbner [1]). Másrészt elméletileg azon folyamat átmeneti valószinüsége, hogy az atommag egy ψ_a kezdeti állapotából egy L multipolaritásu sugárzás kibocsátásával átmegy egy ψ_b állapotba (Fossan és Warburton [2]):

$$\lambda(L) = \frac{8\pi(L+1)}{L[(2L+1)!!]^2} \frac{1}{\hbar} \left(\frac{E_\gamma}{\hbar c}\right)^{2L+1} B(L)$$

ahol a B(L) az a b átmenetre vonatkozó redukált átmeneti valószinüség:

$$B(L) = (2J_a+1)^{-1} \; |\langle\psi_a||M(L)||\psi_b\rangle|^2 .$$

Mivel a kölcsönhatási M(L) operátor általában ismert, az élettartamból meghatározott $\langle\psi_a||M\ L\ ||\psi_b\rangle$ tipusu mátrixelemek érzékeny tesztelési lehetőséget jelentenek a ψ_a és ψ_b hullámfüggvényekre [2].

2. ELEKTRONIKUS IDŐMÉRÉSI MÓDSZEREK

A különböző nehéz és könnyü ion reakciókban gerjesztődő sok érdekes gerjesztett állapot vizsgálata megnövelte az elektronikus időmérési technikák jelentőségét. A késleltetett koincidencia módszert ma már széleskörüen alkalmazzák az ezen magreakciókban gerjesztődő nukleáris élettartamok mérésére. (A µs-nál hosszabb élettartamok elektronikus mérési módszereivel itt nem foglalkozunk. Ez megtalálható például Morinaga és Yamazaki [3] munkájában.)

A módszerben az adott gerjesztett állapot létrejötte és elbomlása közötti időkülönbség eloszlását mérik. A gerjesztett állapotokra vonatkozó exponenciális bomlástörvény miatt ez az eloszlásfüggvény is exponenciális kell, hogy legyen, aminek a logaritmikus skálán mért meredekségéből a magállapot élettartama meghatározható. A helyzetet egy kicsit elbonyolitja, hogy nem tudjuk "pontosan" meghatározni sem az adott gerjesztett állapot létrejöttének, sem elbomlásának időpontját. Ez az időskálán egy adott véges feloldást eredményez.

Az időkésés szórását egymást azonnal követő sugárzások hatására, prompt feloldási függvényeknek (P(t)) nevezik. Ezen függvény alakja mind a detektoroktól, detektált sugárzásoktól és az időzitő diszkriminátoroktól függ. (A rendszer jóságát jellemző ezen függvényt a félértékszélességével (FWHM) és a logaritmikus skálán mért meredekségével szokták jellemezni ($T_{1/2}$). Lásd 3. ábra.)

A kisérletileg mérhető idő eloszlás függvény alakja egy $\tau=1/\lambda$ élettartamu állapot esetén a következő alaku:

$$F(t) \sim \int_0^\infty \lambda \cdot e^{-\lambda t'} \cdot P(t-t')dt' .$$

Ebből az F(t) függvényből a gyakorlatban kétféle módon határozhatjuk meg az állapot élettartamát. Az első és pontosabb módszer a *meredekség módszer*, mig a második a *középpont eltolódás* módszere.

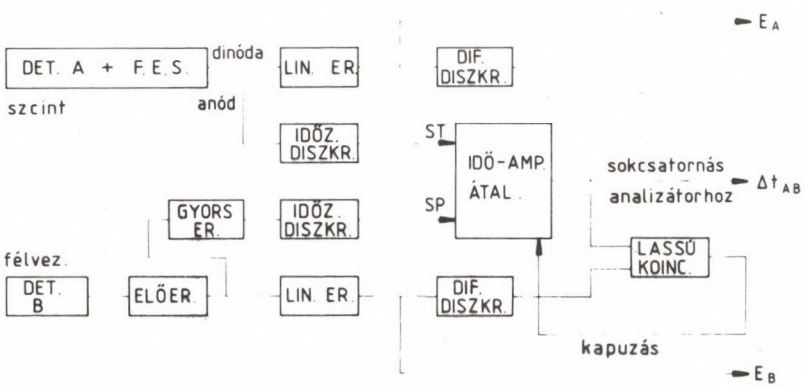
Abban az időtartományban, ahol P(t)<<F(t), az F(t) logaritmusának *meredeksége* állandó:

$$\frac{d}{dt} \ln F(t) = -\lambda \, (1 - P(t)/F(t))$$

és megadja a λ-t és ebből a $\tau=1/\lambda$ élettartamot. Megfelelő statisztika esetén az ezzel a módszerrel meghatározott élettartamok pontosságát csak az idő-amplitudó konverter hitelesitésének hibája szabja meg, amit 1 % alatt tarthatunk. Ezzel a módszerrel a P(t) meredekségénél ~30 %-kal, korrekciókat használva pedig a néhány %-kal nagyobb élettartamok is mérhetők (Fossan és Warburton [2]).

Még ennél is kisebb élettartamok mérésére a *középpont eltolódás* módszerét használják. Elméletileg megmutatható, hogy a P(t) és az F(t) maximumának távolsága éppen τ. Igy a fenti függvények gondos mérése megadja a kivánt élettartamot. Ez a módszer azonban a szisztematikus bizonytalanságok miatt közel sem olyan pontos, mint az előző, de segitségével már a P(t) félértékszélességének néhány %-át kitevő élettartamok is mérhetők [2].

A gerjesztett állapot létrejöttének időpillanatát az adott magreakcióból kilépő részecske, vagy az állapotot gerjesztő más sugárzás detektálásával, mig az elbomlás időpillanatát az állapotról jövő γ vagy konverziós elektron sugárzás detektálásával határozzák meg (Andrejtscheff [4]). (Pulzált nyalábokat szintén használnak még a gerjesztett állapotok jól időzitett előállitására (Morinaga és Yamazaki [3]).) Egy élettartammérésekre használható elektronikus rendszer egyszerüsitett blokkdiagramját a 2. ábrán láthatjuk.



2. ábra: Egy gyors-lassu késleltetett koincidencia áramkör blokksémája. (Az ábrán a F.E.S. a Foto Elektron Sokszorozó röviditése.)

Az A és B detektorokat használják az előbb emlitett sugár-

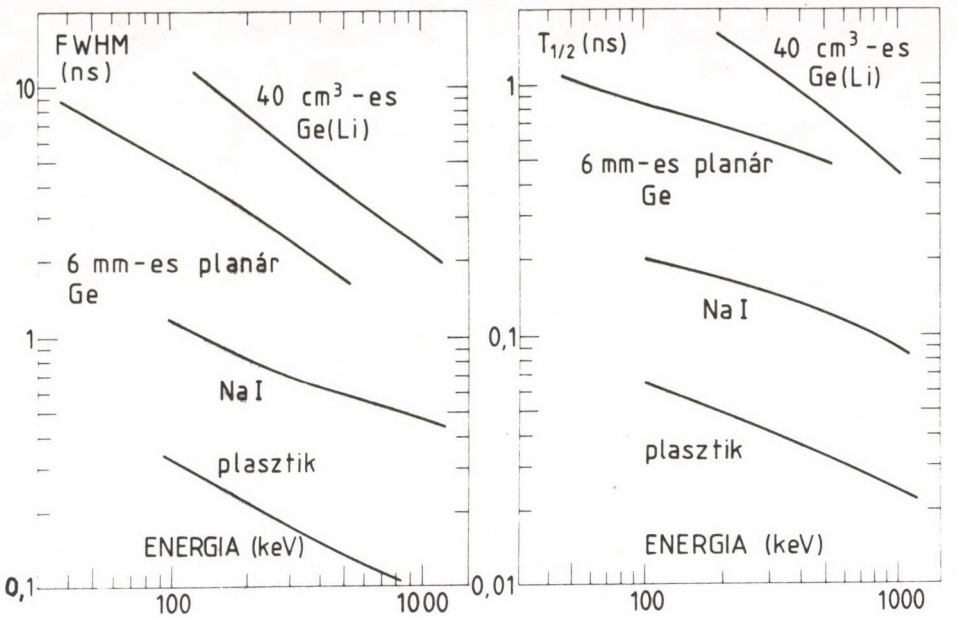
zások detektálására. (Nyaláb pulzálás esetén az egyik detektor jelét a nyaláb impulzusokkal korrelált jelekkel helyettesithetjük (Yamazaki és Ewan [5]).) A detektorokról (előerősitőről, stb.) elvezetett elektronikus jelek az időzitő diszkriminátorokba jutnak, amik standard időzitő jelekké alakitják át őket. Ezután ezen időzitő jelek közötti időkülönbséget az idő-amplitudó konverter alakitja át az időkülönbséggel arányos amplitudóju jellé, amit a sokcsatornás analizátor már fel tud dolgozni. Az utólagos amplitudófeltételt külön differenciál-diszkriminátorokkal valósitják meg, hogy kiválasszák a megfelelő energiáju start és stop sugárzást. Pulzált nyaláb használata esetén a start ágban nincs mód az energiaszelekcióra. Nagy előnye viszont, hogy igy a beütésszám nem csökken le a start detektor kis hatásfoka miatt.

Jelenleg a magfizikában a késleltetett koincidencia méréseknek ezt az "egycsatornás" változatát már csak ritkán használják. A gyors számitógépek és adatrögzitő eszközök használata jelenleg már lehetővé teszi, hogy az időkésés mellett eltároljuk minden egyes koincidencia eseményhez a start és stop detektor energiajelét is. (A két differenciál diszkriminátor ilyenkor szélesre van nyitva, vagy el is maradhat.) Ezen három korrelált adat eltárolása rendszerint ugynevezett lista üzemmódban, mágnesszalagra történik (Zolnai [6]). A feldolgozás során ezen adathalmazból kiválaszthatjuk a tetszőleges energiáju start és stop jelek közötti időeloszlást. A késleltetett koincidencia mérés ilyen módon történő "sokcsatornásitása" jelentős módon lerövidíti a mérési időt, és növeli a mérési adatok megbizhatóságát.

Az alkalmazott detektorok tipusa természetesen a kisérleti körülményektől és az állapot gerjesztésének módjától függ. A γ sugárzások detektálására használhatunk plasztik szcintillátorokat, NaI(Tl) szcintillátort vagy a jó energiafeloldás érdekében Ge(Li) vagy hipertiszta Ge detektorokat. A konverziós e^- sugárzás detektálására pedig plasztik szcintillátorokat vagy Si(Li) detektort. A felületi záróréteges detektorokat rendszerint a töltött részecskék, mig a folyadék és szerves szcintillátorokat a neutronok detektálására használják. Ezen detektorok jellemzőiről és alkalmazásairól nagyon jó összefoglalást találhatunk az irodalomban (Bromley [7]). Ezek a detektorok a különböző részecskék és sugárzások hatására véges felfutási idejü és különböző amplitudóju jeleket adnak (Bibók [8]). Bizonyos esetekben (Ge(Li), Si(Li)) még a jelek felfutási ideje is változhat.

Hogy minél jobban megőrizzük a részecske becsapódási idejére vonatkozó információt, a különböző detektorok esetén különböző időzitő diszkriminátorokat használhatunk. Ezekről részletes összefoglalót találhatunk az ATOMKI Közleményekben (Bibók [8]).

A detektorok és ezen időzitő diszkriminátorok jellemzői szabják meg alapvetően az elérhető legjobb időfeloldást, illetve a legkisebb még mérhető élettartam értéket. Optimális időzitő diszkriminátorokat alkalmazva, három elterjedten használt detektortipusra, az 1974-ben elérhető legjobb időfeloldás értékek-az irodalomból vett adatok alapján-(Fossan és Warburton [2]) a 3. ábrán vannak összefoglalva.



3. ábra: A magállapotok élettartamának mérésére leggyakrabban használt detektorok időfeloldásai, a γ-energia függvényében.

A szcintillációs detektorokra vonatkozó időfeloldás adatok lényegében azóta sem változtak. Egészen más a helyzet a félvezető detektorokkal. A hipertiszta Ge planár detektorok gyártástechnológiája ujabban jelentős fejlődésen ment keresztül. Megjelentek a nagy felületü, ezért a korábbiaknál nagyobb hatásfoku detektorok, amiknek még az energia és idő feloldás adatai is kedvezőbbek a korábbiaknál. Jelenleg már beszerezhetők olyan 15 cm^3-es planár detektorok, amelyekkel E_γ=100 keV-nél, FWHM=2ns időfeloldás is elérhető [9], ami kisebb, mint az 1974-ben elért legjobb feloldásérték fele.

Ez az időfeloldás már elegendő kisenergiás dipol (pl. M1) sugárzásokkal legerjesztődő nivók élettartamának meghatározására is abban az esetben, ha ezek a sugárzások retardáltak. Ez az eset fordul elő például a deformált magok tartományában. Ebben a magtartományban (Ho-156. Re-188) Andrejtscheff és munkatársai [4] effektiven tudták használni a késleltetett koincidencia módszert, kisenergiás nivók élettartamának meghatározására. A mért nivóélettartam értékekből következtetéseket vontak le a konfiguráció keveredések mértékére.

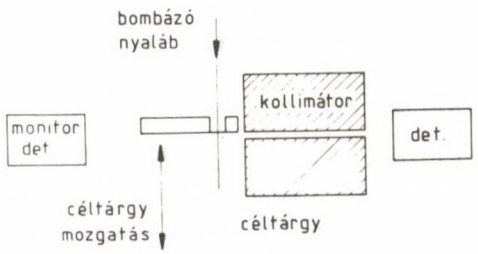
3. MEGLÖKÉSI TÁVOLSÁG MÓDSZEREK

Habár az elektronikus élettartammérések eredményei jelentősen hozzájárultak és hozzájárulnak az atommagok szerkezetének megértéséhez, objektiv tény, hogy ezekkel a módszerekkel általában az atommagnivók nagyon csekély hányadának lehet az élettartamát meghatározni. Ahhoz, hogy az élettartammméréseket a rövid élettartamok felé ki tudjuk terjeszteni, más elven alapuló mérési módszerekre, "gyorsabb órákra" van szükség.

A magreakciókban keletkező, nagysebességgel repülő végmagok egy uj mérési elvet sugalhatnak. Vezessük vissza az élet-

tartammméréseket távolságmérésekre.

A legegyszerübb meglökési távolság mérésén alapuló módszer alapelve a 4. ábrán látható (Zimmerman [10]). A kollimátorral ellátott γ-detektor csak egy nagyon keskeny térrészt "lát" a céltárgy mögött. Igy a γ-sugárzásokat csak azokból a reakció kinematika által meghatározott sebességü magokból detektáljuk, amelyek egy meghatározott, jól mérhető távolságu térrészben tartózkodtak, amikor a γ-emisszió történt. Változtatva ezen érzékeny térrész távolságát a céltárgytól, fel lehet venni a bomlásgörbét.



4. ábra: A legegyszerübb, meglökési távolság mérésén alapuló élettartammérési módszer alapelve.

A szükséges kezdeti sebességet, illetve sebesség eloszlást számitással határozzák meg. A módszer pontosságát a kezdeti sebességek nem megfelelő ismerete, alkalmazhatósági körét pedig a (jó térfeloldás érdekében) rendkivül kis hatásfok erősen korlátozza (Allen [11]).

3.1. A Doppler-effektust felhasználó meglökési távolság módszer

Egy v sebességgel mozgó mag által kibocsátott γ-sugárzás energiáját egy nyugvó detektorral, a Doppler-effektus miatt, E_o helyett, ha $v<<c$; $E_\gamma=E_o(1+(v/c)\cos\theta)$-nak észleljük. Ahol θ a detektornak a mozgásiránnyal bezárt szöge. Ez az effektus, megfelelő feloldásu detektor esetén, lehetővé teszi, hogy intenzitásveszteség (kollimátor) nélkül is el tudjuk dönteni, hogy a γ-sugárzás kibocsátásakor a mag állt, vagy mozgott, illetve mekkora volt a sebessége.

Az ezt felhasználó ugynevezett plunger módszer alapelve az 5a ábrán látható (Alexander és Forster [12]).

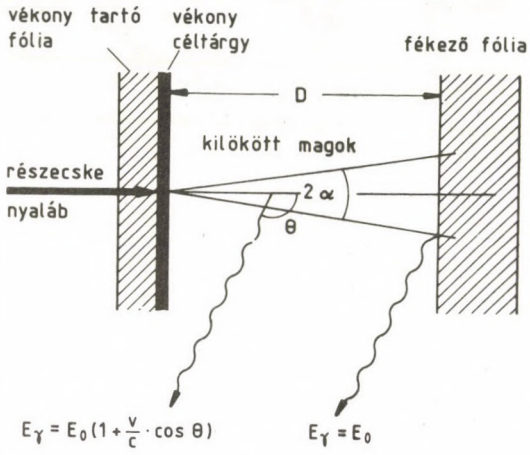
Az alkalmazott vékony céltárgyból a magreakció során gerjesztődött magok v sebességgel kijutnak a vákuumba, majd D távolság megtétele után egy megfelelően vastag fémfóliában vagy fémlapban (plungerben) fékeződnek le. Azok a kilökött magok, amik legerjesztődés nélkül elérik a fékező fóliát, lefékeződve E_o energiáju γ-sugárzást bocsátanak ki. Mig azon γ-sugarak energiája, amiket repülés közben bocsátott ki a meglökött mag, Doppler-eltolódást szenved. Jó feloldásu Ge(Li) detektorral az eltolódott és az el nem tolódott vonalak szétbonthatók, lásd 5.b ábra, és intenzitásuk (I_S,I_R) meghatározható.

Igy a két csucs intenzitásarányából

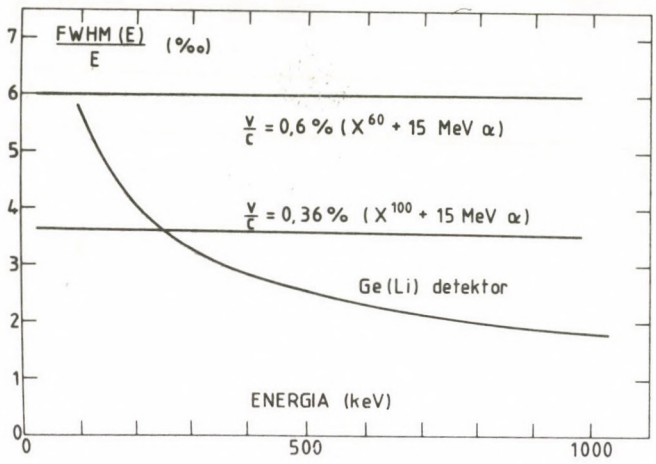
$$R = \frac{I_S}{I_S + I_R} = e^{-\tau/(D\cdot v)}$$

nemcsak a bomlásgörbe alakját kaphatjuk meg, a meglökési távol-

ság függvényében, hanem a kilökött mag sebességét is kiszámithatjuk a Doppler eltolódás mértékéből. Igy a mag gerjesztett állapotának élettartammeghatározása tisztán kisérleti adatokra támaszkodva végezhető el (Alexander és Forster [12]).



5/a.



5/b.

5. a.ábra: A plunger módszer alapelve.
5. b.ábra: Egy "kis-zaju" Ge(Li) detektor relativ feloldása az energia függvényében; összevetve A=60-as és A=100-as tömegszámu céltárgymagot, 15 MeV-es részecskékkel bombázva kapható maximális meglökési sebességekkel. ($v/c=|E_\gamma-E_0|_{max}/E_0$.)

A módszer *alsó korlátját* a meglökött ionok fékeződési ideje jelenti. Ha a mag élettartama olyan rövid, hogy megközeliti a fékeződési időt, ugy az el nem tolódott csucs kiszélesedik, és ez megnehezíti a kiértékelést. A *felső korlát* abból adódik, hogy ha a céltárgy-detektor távolsághoz képest a repülési távolság már nem lesz elhanyagolható. Ebben az esetben figyelembe kell venni, hogy a mozgó magok kiterjedt forrásként viselkednek, illetve az álló magok távolsága változik a detektortól, a fékező fólia mozgatásakor [12].

Megnehezíti a kiértékelést az is, ha a kilökött magok sebességeloszlása tulságosan széles. Ez a sebességeloszlás a következőkből adódhat [12]:

1/ a reakció kinematikából,
2/ a meglökött ionok céltárgyban történő energiavesztesége és többszörös szóródása miatt.

Az 1/ effektust egy $M_1(m_2,m_3)M_4$ magreakcióban az m_3 részecske tömege, szögeloszlása, a reakció Q értéke és az alkalmazott bombázó energia határozza meg. Ha (p,γ) vagy (α,γ) reakciót használunk, akkor $m_3=0$, ami egyirányu meglökést eredményez. Kis kupszögü meglökést kaphatunk még, endoterm pl. (α,xn) reakciók alkalmazásakor. Nehéz ionokkal létrehozott, ugynevezett inverz reakciók segitségével szintén lehetőség van a meglökött mag irányszórásának csökkentésére. Jól meghatározott meglökési irányt állithatunk be ugy is, ha a γ-sugárzásokat az m_3 részecskével koincidenciában mérjük. Ebben az esetben a beütésszám azonban nagymértékben lecsökken a részecske-detektor kis térszöge miatt.

A 2/ effektus miatti sebesség-szóródást minél vékonyabb céltárgy alkalmazásával csökkenthetjük [12]. Bizonyos kisérletekben a céltárgyban fellépő nagyszögü szórások jelentős járulékot adhatnak a fékező fólia helyzetétől függetlenül is az el nem tolódott csucs területéhez. (Ezek a magok közel 90°-os szögben szóródnak a nyalábhoz képest, és igy a céltárgyban fékeződnek le.)

Kis meglökési sebességek vagy kisenergiás átmenetek esetén, a Doppler-eltolódás kisebb lehet a detektor feloldásánál (lásd 5.b ábra). Ebben az esetben a csucsterületek szokásos meghatározásán alapuló módszer helyett csak a két csucs közös sulypontját (E(D)) lehet meghatározni a plunger távolság függvényében. Ebből, a mérni kivánt élettartam a következő képlet alapján számitható (Engmann és munkatársai [13]):

$$e^{-\tau/(Dv)}=(E(\infty)-E(D))/(E(\infty)-E(0)) \quad ,$$

ahol $E(\infty)$ a csucsok sulypontja nagy D távolság esetén, mig $E(0)$ a csucsok sulypontja D=0 esetén.

Ha a vizsgált nivó az adott magreakcióban nem csak direkt módon, hanem γ-rácsorgás utján is gerjesztődhet, ugy a kiértékelésnél ezt is figyelembe kell venni [12]. Habár kedvező esetekben ezek a kaszkád korrekciók viszonylag egyszerüen elvégezhetők, a legpontosabbak mégis azok az eredmények, ahol nem szükséges ezek figyelembevétele.

Mindent egybevetve a plunger módszerrel, korrekciókat figyelembe véve igen pontos eredményeket kaphatunk. A rutinmérések pontossága és konzisztenciája, a más módon történt élettartam meghatározásokkal, ~5 %-os szinten van.

4. A FÉKEZÉSI DOPPLER-ELTOLÓDÁS MÓDSZERE

Ha egy magreakció során keletkezett meglökött magok magában a céltárgyban, vagy egy alkalmasan választott hátlapban fékeződnek le, és az adott magállapot élettartama összemérhető ezen fékeződési idővel, ugy nem monoenergetikus, hanem egy E_o és $E_o(1+(v/c)\cos\Theta)$ között szétkent γ-vonalat fogunk kapni.

A szétkent vonal intenzitáseloszlását a meglökött magoknak a fékező közegben történő u.n. "karakterisztikus lefékeződési idejé"-nek és - a radioaktiv bomlástörvényen keresztül - a gerjesztett állapot élettartamának a viszonya határozza meg. A τ-t vagy a szétkent vonal alakjának analiziséből, vagy egyszerüen csak az E_o-hoz viszonyitott sulyponteltolódásából határozhatjuk meg. A módszer részleteit illetően l. Kiss Á. [14], [15] munkáit.

A módszerrel meghatározott élettartamok igen pontosak lehetnek ha a meglökött nehéz magnak a céltárgy vagy a hátlap anyagában való lefékeződési folyamatát (az ugynevezett dE/dx specifikus fékezőképességet) pontosan ismerjük. Nagyobb $v/c \gtrsim 2\%$ meglökési sebességeknél ezekre nagyszámu kisérleti adat áll rendelkezésre. Ennél kisebb sebességeknél általában az ugynevezett LSS elméletre vagy annak Blaugrund által kiegészitett változatára támaszkodhatunk.

A $v/c \lesssim 0,3\%$ sebességeknél a τ értékek pontosságát az LSS elmélettől való eltérések jelentősen lerontják.

A Helsinki csoport kidolgozott egy módszert (Anttila és

munkatársai [17]), amelyben a nagy fékezőképességü tantálba implantált céltárgymagokon végzik a mérést, a kiértékeléshez pedig implantálás utján kisérletileg mért hatótávolság adatokat is felhasználnak. A kisérletileg mért vonalalakot Monte Carlo számitásokkal hasonlitják össze. Ezzel vált lehetővé még az egészen rövid, néhány fs nagyságrendü élettartam adatok nagypontosságu mérése is az s-d héjba tartozó magok nagy számán (Antilla és munkatársai [30], Lappalainen és munkatársai [31]).

Megjegyezzük még, hogy gáz halmazállapotu fékező közeg esetén a karakterisztikus fékezési időt a gáznyomással 10^{-8}-10^{-11} s között lehet változtatni. Ez, a módszer hosszabb élettartamok felé történő kiterjesztését teszi lehetővé (Alexander és Forster [12]). A módszer nehéz megvalósitása és a fékező gáz helyi felmelegedése miatt azonban nem terjedt el.

5. INDIREKT ÉLETTARTAM MÉRÉSI MÓDSZEREK

Az atommag elektromágnesesen legegyszerübben egy olyan energiáju γ-*sugárzással* gerjeszthető, amely pontosan megfelelő annak alapállapotból valamely gerjesztett álllapotába való juttatásához. Ebben az esetben a rezonánsan szóródott és abszorbeálódott γ-sugárzások hatáskeresztmetszetének méréséből, az alapállapotról az adott állapotba való átmeneti valószinüséget meghatározhatjuk (Skorka [18]). A módszer alkalmazhatóságát korlátozza, hogy a mérésekhez nagy tömegü céltárgyakra van szükség.

Coulomb-gerjesztés esetén a céltárgymagot az azon szóródó bombázórészecske időben változó elektrosztatikus tere gerjeszti. Ez a folyamat elméletileg egzaktul tárgyalható, igy a mért hatáskeresztmetszetekből az átmeneti valószinüségek meghatározhatók (Alder és Winther [19]).

Nagyenergiás elektronokkal (40-1000 MeV) szintén gerjeszthetők az atommagok. Ebben az esetben a közel fénysebességgel mozgó elektronok jelentős mágneses teret is keltenek, ami az előző folyamattal ellentétben a mag mágneses jellegü átmeneteit is hatásosan tudja gerjeszteni (de Forest és Walecka [20]).

A nemkötött (rezonancia) állapotok élettartam meghatározása a *rezonancia szélesség* mérésével történhet. A jól szétváló rezonanciáknak, alacsony-energiás befogási magreakciókban történő vizsgálata, ezen állapotok élettartamának hatásos mérését teszi lehetővé, a $\tau=\hbar/\Gamma$ összefüggés felhasználásával (Rolfs és Litlerland [21]).

6. SPECIÁLIS MÓDSZEREK

Az előző fejezetekben leirt alapmódszereken kivül nagyon sok speciális módszer leirását is megtalálhatjuk az irodalomban (lásd pl. Nolan és Sharpey-Schafer [16]). Ezek közzül szeretnénk most néhányat megemliteni.

A *mikrohullámu módszer* (Blaugrund és munkatársai [22]) az elektronikus módszerek mérési tartományát terjeszti ki $\sim 10^{-11}$ s-ig. A módszerben pulzált nyalábot állitanak elő egy üregrezonátorral, majd a magreakcióban keletkező konverziós elektronok energiáját ezzel szimultán modulálják. Ez elkent vonalalakot eredményez, amiből az állapot élettartama meghatározható. Mivel a módszer csak igen jó energiastabilitásu gyorsitókkal (Van de Graaff) müvelhető, alkalmazhatósági köre meglehetősen korlátozott.

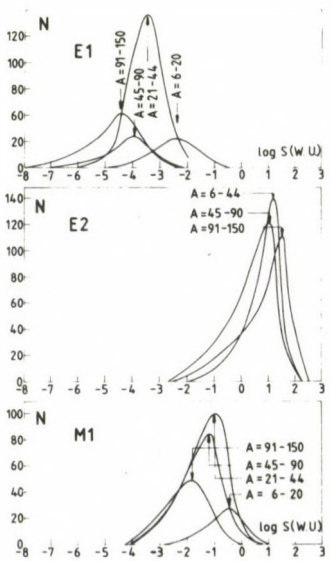
A meglökési távolság módszerekhez kapcsolódó leglényegesebb speciális módszer a *blocking módszer* (Gibson [23]). Ebben a módszerben a meglökött mag repülési távolságát a kristályszerkezetü céltárgy rácsállandója határozza meg. Ezen rendkivül kicsi repülési távolságok miatt a módszerrel 10^{-16}-10^{-18} s között mérhetők élettartamok

Végezetül szeretnék megemliteni még egy napjainkban kifejlődő módszercsoportot, ami elvileg is különbözik a fentiektől. Ezekben "atomi órát" használnak a magállapotok élettartamának mérésére (Röhl és munkatársai [24]). Ez az atomi óra általában a K elektronhéj betöltődésének élettartama, ami a 10^{-15}-10^{-18} s-os tartományba esik. Ezekkel a módszerekkel igen rövid élettartamu kötött állapotok, illetve közbenső magok élettartamának meghatározására nyilik lehetőség.

7. ÖSSZEFOGLALÁS

Amint a bevezetőben már emlitettem a nivóélettartamok mérése, illetve az azokból meghatározott átmeneti-mátrixelemek összevetése az elméletileg számitott értékekkel, a modell-hullámfüggvények tesztelésének érzékeny módja.

Jelenleg már igen sok nivóélettartammérés történt az irodalomban, lásd Endt [26], [27], [28] munkáit. A legalacsonyabb multipolaritásu átmenetekre, a Weisskopf egységekben mért átmeneti valószinüségek, erősségek, (S) eloszlása a [28] irodalom adatai alapján a 6. ábrán van feltüntetve.



6. ábra: Az átmeneti erősségek (S) logaritmusának eloszlásai E1, E2 és M1 multipolaritásu sugárzások esetén.

Ezek az eloszlásfüggvények meglehetősen szélesek, arra utalva, hogy az átmeneti valószinüségek az adott konkrét magszerkezettől erősen függnek, mint azt a következő példa mutatja. A ^{40}K alap, és első három gerjesztett állapotának energiája és J^{π}-je a héjmodell segitségével, a majdnem tiszta (~97%) $(\Pi d_{3/2})^{-1}(\nu f_{7/2})$ proton-neutron multiplett tagjaiként jól értelmezhető. Tiszta multiplett állapotokat feltételezve a héjmodell értelmében a kisérletileg mért τ nivóélettartamokból egyszerüen

származtatható egy $(M_{df})^2$ mátrixelem, aminek minden $J_a \rightarrow J_b$ átmenet esetén állandónak kell lennie.
($|M_{df}|^2 = 2.99 \cdot 10^{-13} [\tau E_\gamma^3 (2J_b+1) W^2 (J_a J_b \frac{77}{22}; 1\frac{3}{2})]^{-1}$.)
Ezeket, a fenti esetekre, kiszámítva ≈2-es faktorral eltérőnek találták (Segel és munkatársai [25]). Az eltéréseket csak a pontos konfiguráció keveredéseket figyelembe véve sikerült megmagyarázni (Arita [29]).

Tiltott átmenetek esetén ezen konfiguráció-keveredésre való érzékenység még jelentősebb. Ilyen esetekben a tiltottság mértékéből már igen csekély konfigurációkeveredésekre is következtetni lehet.

Annak ellenére, hogy minden egyes élettartam értéket az adott konkrét magszerkezet alapján értelmezhetünk, mégis bizonyos szabályszerüségeket is meg lehet figyelni az adott multipolaritásu sugárzások átmeneti valószinüségei között. Ilyenek például hogy a kisenergiáju dipol átmenetek (különösen az E1-ek) általában tiltottak, mig az E2 átmenetek, az atommagok kollektiv tulajdonságai miatt, gyakran gyorsitottak.

Végezetül megemlitem, hogy a 11. ábrán látható eloszlások alapján Endt [28] megadja minden egyes multipolaritásu átmenetre az S erősségek javasolt felső korlátját. Ezek az adatok a szögeloszlásmérések kiértékelésekor fellépő többértéküségek kiküszöbölésében nyujthatnak segitséget.

HIVATKOZÁSOK

[1] K.E.G. Löbner, The Electromagnetic Interaction in Nuclear Spectroscopy, szerk. W.D. Hamilton (North-Holland, Amsterdam, Oxford, 1975)141. o.
[2] D.B. Fossan és E.K. Warburton, Nuclear Spectroscopy and Reactions Part C, szerk. J. Cerny (Academic Press, New York and London, 1974) 307. o.
[3] H. Morinaga, T. Yamazaki, In-Beam Gamma-Ray Spectroscopy (North-Holland, Amsterdam, New York, Oxford 1976) 372. o.
[4] W. Andrejtscheff, Proc. of the 6th Int. School on Nuclear and Neutron Physics and Nuclear Energy, Varna, 1983 (Publisching House of the Bulgarian Academy of Sciences Sofia, 1984) 177. o.
[5] T. Yamazaki és G.T. Ewan, Nucl. Instr. and Meth. 62 (1968) 101
[6] Zolnai L., ATOMKI Közl. 21 (1979) 377
[7] Detectors in Nuclear Science, szerk. D.A. Bromley, Nucl. Instr. and Meth. 162 (1979)
[8] Bibók Gy, ATOMKI Közl. 17 (1975) 401
[9] Handbook of Semiconductor Radiation Detectors, Detector Systems GmbH in Gründung, 1983
[10] W. Zimmerman J.R., Phys. Rev. 114A (1959) 842
[11] K.W. Allen, The Electromagnetic Interaction in Nuclear Spectroscopy, szerk. W.D. Hamilton (North-Holland, Amsterdam, Oxford, 1975) 311. o.
[12] T.K. Alexander és J.S. Forster, Advances in Nucl. Phys. 10. szerk. M. Baranger és E. Vogt (Plenum Press, New York, London, 1978) 197. o.
[13] R. Engmann, E. Ehrmann, F. Brandolini, C. Signorini, Nucl. Phys. A162 (1971) 295
[14] Kiss Á., ATOMKI Közl. 13 (1971) 121

[15] Kiss Á., Fizikai Szemle 4 (1979) 132
[16] P.J. Nolan és J.F. Sharpey-Schafer, Rep. Prog. Phys., 42 (1979) 1
[17] A. Anttila, M. Bister és J. Keinonen, Z. Phys. A274 (1975) 227
[18] S.J. Skorka, The Electromagnetic Interaction in Nuclear Spectroscopy szerk. W.D. Hamilton (North-Holland, Amsterdam, Oxford, 1975) 283. o.
[19] K. Alder és A. Winther, Coulomb Excitation (Academic Press, New York-London, 1966)
[20] T. de Forest és J.D. Walecka, Adv. Phys. 15 (1966) 1
[21] C. Rolfs és A.E. Litlerland, Nuclear Spectroscopy and Reactions Part C, szerk. J. Cerny (Academic Press, New York, London, 1974) 143. o.
[22] A.E. Blaugrund, Y. Dar és G. Goldring, Phys. Rev. 120 (1960) 1328
[23] W.M. Gibson, Ann. Rev. Nucl. Sci. 25 (1975) 465
[24] S. Röhl, S. Hoppenau, és M. Dost, Phys. Rev. Letters 43 (1979) 1300
[25] R.E. Segel, G.H. Wedberg, G.B. Beard, N.G. Puttaswamy és N. Williams, Phys. Rev. Lett. 25 (1970) 1352
[26] P.M. Endt, Atomic Data and Nucl. Data Tables 23 (1979) 3
[27] P.M. Endt, Atomic Data and Nucl. Data Tables 23 (1979) 547
[28] P.M. Endt, Atomic Data and Nucl. Data Tables 26 (1981) 47
[29] K. Arita, J. Phys. Soc. Japan, Suppl. 34 (1973) 513
[30] A. Anttila, M. Bister, A. Luukkainen, Á.Z. Kiss és E. Somorjai, Nucl. Phys. A385 (1982) 194
[31] R. Lappalainen, J. Keinonen, A. Anttila, Á. Kiss és E. Somorjai, Nucl. Phys. A426 (1984) 287

Szakmai lektor: Kiss Árpád

HU ISSN 0231-3685

ATOMKI Riport X/21(1985)

IN-BEAM KONVERZIÓSELEKTRON-SPEKTROSZKÓPIA*

Kibédi Tibor

ATOMKI, H-4001, Debrecen, Pf. 51., Hungary

I. Bevezetés

II. A belső konverzió

III. Kisérleti módszerek és berendezések

IV. Összefoglalás

I. BEVEZETÉS

A belső konverziós folyamat vizsgálata közel olyan idős, mint maga a radioaktivitás, melyet 1896-ban fedeztek fel. Egy gerjesztett atommag elektromágneses kölcsönhatásba léphet a körülötte lévő héjelektronok valamelyikével, mely kilökődhet az atomból. Az első radioaktiv bomlásból származó monoenergetikus elektronokat von Baeyer és Hahn [1] észlelték. Rutherford és Robinson [2] építette meg az első permanens mágneses spektrografot, melyben az elektronokat fotografikus úton detektálták. 1948-ig a szcintillációs detektorok megjelenéséig a belső konverzió mérése volt a legfontosabb eszköz a magátmenetek tulajdonságainak meghatározására. A jelenség elméletének kidolgozása az 1950-es években, a klasszikus héjmodellel és a Bohr-Mottelson-féle kollektiv modellel nagyjából egyidőben történt. Az első in-beam méréseket Huus és Bjerregard [3] Ta és W céltárgyak Coulomb-gerjesztésével végezték.

A magspektroszkópia rohamos fejlődése közepette a belső konverzió vizsgálata változatlanul igen fontos eszköz a magfizikusok kezében, mivel belőle közvetlenül meghatározható a magátmenetek elektromágneses természete: multipolaritása és elektromos vagy mágneses jellege. Így a gerjesztett állapotok spinjére és paritására mindenfajta modelltől függetlenül következtetni lehet.

A fejlődés részletes leírása megtalálható Hamilton [4] és Mladjenovič [5,6] munkáiban és jó áttekintést adnak a kérdéskörről Siegbahn [7] és Dragoun [8] monográfiái is. A jelen munkában - a teljesség igénye nélkül - összefoglaljuk az in-beam konverzióselektron-spektroszkópia legfontosabb kisérleti módszereit.

II. A BELSŐ KONVERZIÓ

Egy gerjesztett magállapot, melynek energiája nem elegendő egy részecske kibocsátásához, egy alacsonyabb energiájú állapotba bomlik a következő (1)-(4) elektromágneses átmenetek valamelyikével:

(1) egy γ-foton kibocsátása,

*Az 1985. januári Magfizikai Téli Iskola előadásának anyaga

(2) egy héj-elektron kibocsátása (a γ-foton belső konverziója),
(3) elektron-pozitron pár kibocsátása (amennyiben
$E_{átm} \geq 2m_0c^2 = 1{,}02$ MeV),
(4) magasabb rendű effektusok (egyidőben két γ-foton, vagy két héj-elektron kibocsátása).

Számottevő valószínűséggel az (1)-(3) folyamatok mennek végbe. A belső konverziót vele arányos intenzitású röntgen-foton és Auger-elektron kibocsátás követi.

Legyen λ_γ a γ-foton kibocsátás, $\lambda_{e,i}$ az i-dik héjról (K, L_1, L_2, L_3,...) történő belső konverzióselektron kibocsátás és λ_{e^-,e^+} az elektron-pozitron párkeltés valószínűségei egy magátmenetre vonatkozóan. Az

$$\alpha_i = \lambda_{e,i}/\lambda_\gamma \qquad (1)$$

arány az alhéj belső konverziós együtthatója, illetve az

$$\alpha_\pi = \lambda_{e^-,e^+}/\lambda_\gamma \qquad (2)$$

arány a belső párkeltési együttható. Mivel elektromos monopol átmenet esetén nincs γ-foton kibocsátás, az együtthatókat E0 átmenetre a fenti módon nem lehet értelmezni.

Kevert multipolaritású magátmenetre a belső konverziós együttható:

$$\alpha_i = \sum_L p_L \, \alpha_i(\tau L), \qquad (3)$$

ahol L a multipolrend (2^L pólus), τ az átmenet tipusa (EL elektromos, vagy ML mágneses) és p_L a τL multipolaritás bekeveredése. A $\delta^2(L)$ keveredési arány a következőképpen adható meg:

$$\delta^2(L) = \lambda_\gamma(L)/\lambda_\gamma(L_{min}), \qquad (4)$$

ahol L_{min} a legalacsonyabb bekeveredő multipolrend. $\delta^2(L)$ kapcsolatos a p_L bekeveredéssel:

$$p_L = \delta^2(L) / \sum_{L'=L_{min}}^{L_{max}} \delta^2(L'). \qquad (5)$$

Kisérletileg csupán egy vagy két (nagyon ritkán három) alacsonyabb multipolaritás ismerhető fel. Bizonyos esetekben a belső konverzióselektron-sugárzás intenzitása nagyon érzékeny a δ^2-re, de a δ előjele csak a sugárzások (elsősorban a γ-sugárzás) szögeloszlásából határozható meg. Hasonló formulák vezethetők le a belső párkeltési együtthatóra is.

A teljes belső konverziós együttható az energetikailag lehetséges alhéjakra vonakozó együtthatók összege:

$$\alpha = \sum_i \alpha_i . \qquad (6)$$

A két magállapot közötti átmenet teljes valószínűsége jó közelítéssel:

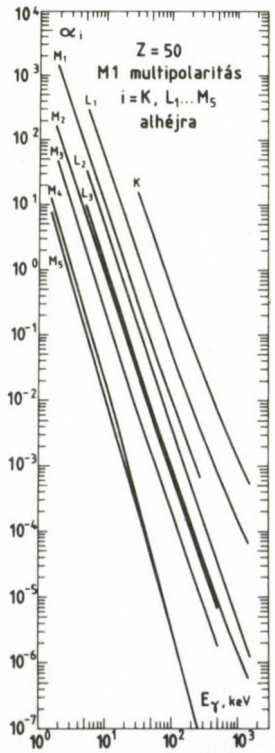
$$\lambda = \lambda_\gamma (1 + \alpha + \alpha_\pi) \qquad (7)$$

Az α_π belső párkeltési együttható értéke $Z \leq 100$ magokra, 1,1 MeV$< E_\gamma <$ 8 MeV energiájú és $L \leq 3$ multipol rendű átmenetre $< 2.8\ 10^{-3}$ (Schlüter és Soff [9]). A továbbiakban csak a γ foton és a konverzióselektron kibocsátását vizsgáljuk.

Az atommag-héjelektronok-fotonok rendszerét tekintve az energia, az impulzus, az impulzusmomentum és paritás megmaradásának elve meghatározzák a fotonok és konverzióselektronok kvantum jellemzőit. Így az energiamegmaradás elve alapján az E_i energiájú állapotból E_f energiájú állapotba való átmenet esetén:

$$E_{átm} = E_i - E_f = E_\gamma = E_{e,i} + E_{b,i}, \qquad (8)$$

ahol $E_{e,i}$ az i-dik héjról kilépő konverzióselektron kinetikus energiája, $E_{b,i}$ az i-edik héjon lévő elektron kötési energiája. A belső konverzió után visszamaradó vakancia 10^{-4}-10^{-7} sec alatt betöltődik, így a belső konverziós vonalak természetes vonalszélessége 0,07-70 eV közötti tartományba esik. A (8) egyenletben számos elhanyagolást tettünk (lásd részletesen Dragoun [8] munkájában), melyek közül kiemelkedik a magreakciótermékek, ill. α-bomlástermékek meglökődéséből eredő vonalkiszélesedés. Egy $A > 25$ tömegű szabad atomra, $E_\gamma < 8$ MeV átmeneti energiára a meglökődésből származó vonalkiszélesedés $< 2.10^{-4}\ E_\gamma$.



1.ábra Elméleti konverziós együtthatók az átmeneti energia függvényében (Hager és Seltzer [10]).

A γ-sugárzás belső konverziójának jelenlegi elmélete a kvantummechanika jól feltárt része. A belső konverziós együttható alapvetően a következő függést mutatja:

$$\alpha = \alpha(Z, \tau, L, E_\gamma, n, k) \qquad (9)$$

ahol n és k a héjelektron fő, ill. relativisztikus impulzusmomentum kvantumszáma. Az alkalmazott fizikai modellek részletei megtalálhatók például Dragoun [8] munkájában. A táblázatok formájában elérhető egyes számításokat az I. táblázat foglalja össze. A belső konverziós együttható a rendszám monoton növekvő, míg az átmeneti energia monoton csökkenő függvénye (1. ábra). A táblázott értékek pontossága belső ill. külső héjakra 10^{-1} % ill. 10 % nagyságrendbe esik, mely rendszerint kisebb mint a - különösen in-beam - mért kisérleti értékek hibája. A táblázatokban található értékek

I. táblázat Áttekintés az újabb konverziós együttható számításokról.

multipol rend El és ML	rendszám Z	atomhéj	átmeneti energia minimális [keV]	átmeneti energia maximális [MeV]	hivatkozás
1 - 4	30 - 98	K - L_3	1[c]	1.5	Hager és Seltzer (1968)
	30 - 98	M_1-M_5[c]	1[c]	0.5	[10]
1,2	16 - 98[a]	K	1 MeV	9	Trusov (1972)
	50 -100	L_1	1 MeV	4.5	[11]
	50 -100	L_2,L_3	1 MeV	3.5	
1 - 5	3,6,10,14-30	K	15	6	Band és mások (1976)
	3,6,10,14-30	L_1	15	2	[12]
	10,14-30	L_2,L_3	15	2	
1 - 4	30 -104	K	2[c]	5	Rösel és mások (1978)
	30 -104	L_1 - Q_1[b]	2[c]	1.5	[13]
	30 -103	totális	2[c]	1.5	
5	30 -104	K	2[c]	6	Band és mások (1978)
	30 -104	L_1 - L_3	2[c]	2	[14]
	30 -104	M_1 - M_5	2[c]	0.2	
1 - 5	10 - 29	K	15	6	Band és Trzhaskovskaya (1978)
	10 - 29	L_1 - L_3	15	2	[15]
	30 -104	K	2[c]	6	
	30 -104	L_1 - L_3	2[c]	2	
	30 -104	M_1 - M_5	2[c]	0.45	

a) A belső konverziós együtthatókat csak minden második Z-értékre számították ki.

b) A külső atomhéjakra a legnagyobb átmeneti energia alacsonyabb mint a többi héj esetében.

c) A belső konverzióselektron kinetikus energiája.

közötti interpoláció rendszerint <1 % pontossággal végezhető el.

III. KÍSÉRLETI MÓDSZEREK ÉS BERENDEZÉSEK

III.1. Mérési elv

Az atommag gerjesztett állapotainak (i - kezdeti; f - végső) spinje (J^i ill. J^f) és paritása (π^i ill. π^f), valamint ezen állapotok közötti magátmenet τL multipolaritása közötti összefüggés

$$|J^i - J^f| \leq L \leq |J^i + J^f| , \qquad (10)$$

illetve

$$\pi^f = \pi^i (-1)^L \qquad (EL: L=0,1,2...), \qquad (11)$$

$$\pi^f = \pi^i (-1)^{L+1} \qquad (ML: L=1,2,...). \qquad (12)$$

Az átmenet multipolaritása a belső konverzió méréséből többféleképpen is meghatározható:

1./ A γ- és konverzióselektron-sugárzások abszolut intenzitásaiból (absolute electron gamma method; AEG-method), vagy pedig a relativ intenzitásokból valamely, a spektrumokban jelenlévő,ismert multipolaritású átmenetre normálva (normalized peak to gamma method; NPG-method) képezzük az α_i (i=K,L,M,... ill. L_1,L_2 stb.) értékeket.

2,/ Az egyes alhéjakról származó konverzióselektron-sugárzásokat mérjük, s ezek intenzitásából képezzük az α_K/α_L, $\alpha_{L_1}/\alpha_{L_3}$ stb hányadosokat. Ebben az esetben elegendő a relativ intenzitások ismerete.

A kisérleti értékeket minden esetben a megfelelő elméleti értékekkel vetjük össze, melyből meghatározható az átmenet multipolaritása esetenként a multipolaritások keveredési aránya. Több más, elsősorban radioaktiv bomlásban használható módszerrel együtt ezeket Trón [16] munkája foglalja össze.

III.2. In-beam belső konverzióselektron-spektrumok mérése

Az in-beam mérési módszer azokban az esetekben használható, amikor a vizsgálni kívánt atommag igen rövid felezési idejű és csak magreakcióban állítható elő. A magátmenetek jellemzőinek mérése csak a besugárzással egyidőben történhet. A spektrométerek alapvető tipusait (Siegbahn [7]) még radioaktiv preparátumok vizsgálatára fejlesztették ki. E berendezések főleg mágneses elven működnek, mivel ~50 keV-nél nagyobb energiájú elektronok sztatikus elektromos terekkel való analízise a relativisztikus effektusok és a szükséges igen nagy feszültségű terek előállításának nehézségei miatt sok problémát okoznak. Az utóbbi évtizedben számos új - kifejezetten in-beam mérésre tervezett - mágneses spektrométert építettek.

A jelen dolgozatban nem kívánunk foglalkozni a γ-sugárzás mérésének kérdésével, erre vonatkozóan többek között Morinaga és Yamazaki [17] monográfiájára utalunk.

Amikor gyorsított részecske-nyalábbal sugárzunk be egy céltárgyat, mag- és atomfizikai ill. bizonyos esetekben másodlagos effektusok során keletkezett sugárzásokkal kell számolni.

Elektron- és pozitron-sugárzások:

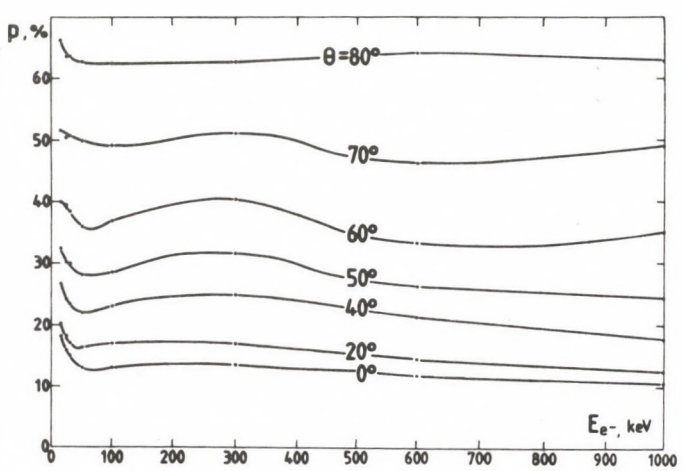
1./ diszkrét energiájú konverzióselektronok,
2./ folytonos energiaeloszlású elektron-pozitron párok,
3./ a céltárgyban kialakuló radioaktiv magok β-sugárzása,
4./ szekunder-elektronok,
5./ másodlagos folyamatokban keltett elektronok (γ-fotonok, szórt bombázó részecskék stb. kölcsönhatása a céltárgyat körülvevő anyagokkal, kamrafalakkal).

Egyéb sugárzások:

6./ szórt bombázó részecskék,
7./ magreakcióban kilépő részecskék,
8./ γ-sugárzás,
9./ röntgen-sugárzás.

Az in-beam spektrométerekkel szemben ezért számos követelményt kell támasztani:

1./ A nyaláb instabilitása és a mérési idő gazdaságossága előnyben részesíti a szélessávú mérést a pontról-pontra történő méréssel szemben.
2./ A magreakcióban kilépő részecskék szögeloszlása általában nem izotróp. Ez befolyásolja a spektrométer és a nyaláb közötti szög megválasztását, s megköveteli a szögeloszlás miatti korrekciót (Faust és mások [18]).
3./ A spektrométerbe belépő elektronok kúpszöge nem lehet túl széles, mivel a nagy szögben emittált elektronok magában a céltárgyban is jelentősen szóródhatnak, és így az energiafeloldás is leromolhat. Ez természetesen vékonyabb céltárgyra és nagyobb energiára nem ad lényeges effektust (Kövér és munkatársai [19], Seltzer és Berger [20], Špalek [21], Kaplanis [22]).
4./ A Si(Li) és újabban nagyenergiájú elektronokra használt hipertiszta Ge detektorok (Decker és munkatársai [23], Bom [24]) detektálási hatásfoka függ a felületre való beesési szögtől (Waldschmidt és Wittig [25], Kuzminik és Vorobiev [26], Kalef-Ezra és munkatársai [27]), ezért a beesési szög minimalizálására kell törekedni (2. ábra).



2. ábra Elektron-visszaszórás valószínűsége (p) sziliciumról a beesési szög (Θ) és az elektron energiájának (E_{e^-}) függvényében (Kalef-Ezra és munkatársai Monte-Carlo számításai [27] alapján).

A Si(Li) detektorok energiafelbontása általában 1.9-3.0 keV ($E < 1$ MeV). A legjobb energiafelbontást cseppfolyós nitrogén hőmérsékletre hűtött, igen vékony (< 0.5 μm) holtrétegű detek-

torral Irhad Ahmad és Wagner [28] kapták. A nagy szög alatti beesés vagy a vastag holtréteg, nemcsak a feloldást, hanem a csúcs alakját is elrontja, ami megnehezíti az észlelt vonalak számítógépes feldolgozását (Berger és munkatársai [29]). A Si(Li) detektorok sugárkárosodása Kraner [30] munkája alapján becsülhető.

5./ A pozitronok és az elektronok ellenkező irányban térülnek el, így radiális spektrométerekben nem érhetik el a detektort. Axiális spektrométerekben (mint amilyenek a lencsék, lásd III.4.1.) speciális alakú abszorbensekkel védekezhetünk.

6./ A besugárzás hatására keletkező radioaktiv magok β^--sugárzása a nyalábimpulzusokkal koincidenciában való méréssel nagyrészt kiszűrhető. Egy egyszerű elrendezés leírása megtalálható Krasznahorkay és munkatársai [31] munkájában.

7./ Az ion-atom ütközésekből kilépő szekunder-elektronok folytonos energiaspektrumú sugárzása a töltött részecskékkel végzett spektroszkópia elkerülhetetlen velejárója. A spektrum alacsony energiájú része (10-20 keV-ig) intenziv vizsgálatok tárgya. A folyamatból nagyenergiával kilépő elektronokra csak néhány számítás ismert (például Backe és munkatársai [32]), pedig az egyéb háttérkomponensek kiszűrése esetén a spektrométerek detektálási küszöbét alapvetően ezen atomfizikai folyamatok határkeresztmetszete szabja meg. A következőkben Szabó Gy. programjával [33] végzett számítások néhány megállapítását foglaljuk össze.

a./ A szekunder-elektron keltés határkeresztmetszete:
- a rendszám monoton növekvő függvénye (5 MeV-es protonokra a 3. ábrán látható),
- a bombázó részecske energiájának monoton növekvő függvénye (pl. 2-20 MeV energiájú protonokkal Zr céltárgyon az 50-500 keV tartományban $\sim E_p^4$ (MeV) szerint változik).

b./ Adott bombázó energiánál a $d\sigma/dE_e/d\Omega$ differenciális határkeresztmetszet $\sim E_e^{-9}$(keV) szerint csökken.

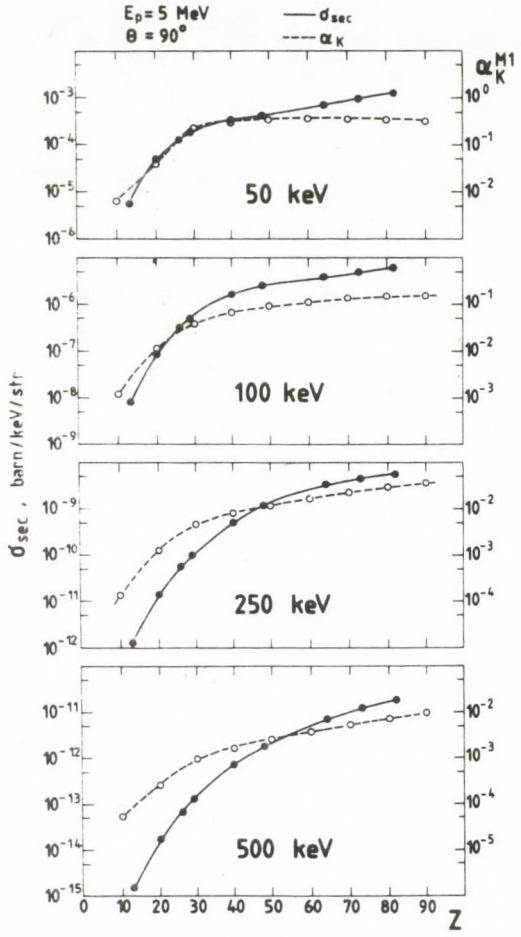
c./ Az előző határkeresztmetszetből, valamint a konverziós együtthatókból adódik, hogy 5 MeV-es protonokkal Zr céltárgyat bombázva a gerjesztett M1 átmenetek K vonalára a detektálási küszöb $\sim E_{tr}^{-3}$(keV) szerint változik.

d./ A folyamat a nyaláb irányában kb. egy nagyságrenddel valószínűbb mint az ellenkező irányban.

A szekunder-elektronok ellen a céltárgyra kapcsolt elektromos térrel és a hatásfok alkalmas megválasztásával lehet védekezni. Az egészen alacsony energiájú elektronok (E~keV) magában a céltárgyban is elnyelődnek. Hatásos lehet még a kisenergiájú konverziós elektronok mérésénél a K röntgen sugárzással koincidenciában való mérés (Blaugrund és munkatársai [34]), mivel az ilyen energiájú szekunder-elektronok elsősorban a külső héjakról származnak.

8./ A nem elektron jellegű sugárzások miatt kívánatos a nagy céltárgy-detektor távolság elérése és vastag árnyékolások használata.

9./ Törekedni kell a jó feloldásra. Egy tipikus γ- spektrumban az észlelt sugárzások intenzitása ~2-3 nagyságrendet változik. A megfelelő belső konverziós spektrumban jelenlevő vonalak száma, a különböző alhéjakon végbemenő belső konverzió miatt, megnövekszik (4. ábra). A K és L konverziós vonalak I_K/I_L intenzitásaránya



3. ábra A szekunder-elektron keltés differenciális hatáskeresztmetszete (σ_{sec}) és a belső konverzió valószínűsége (α_K^{M1}) a rendszám (Z) függvényében. A feltüntetett energiaértékek a folyamatokban kilépő elektronokra vonatkoznak.

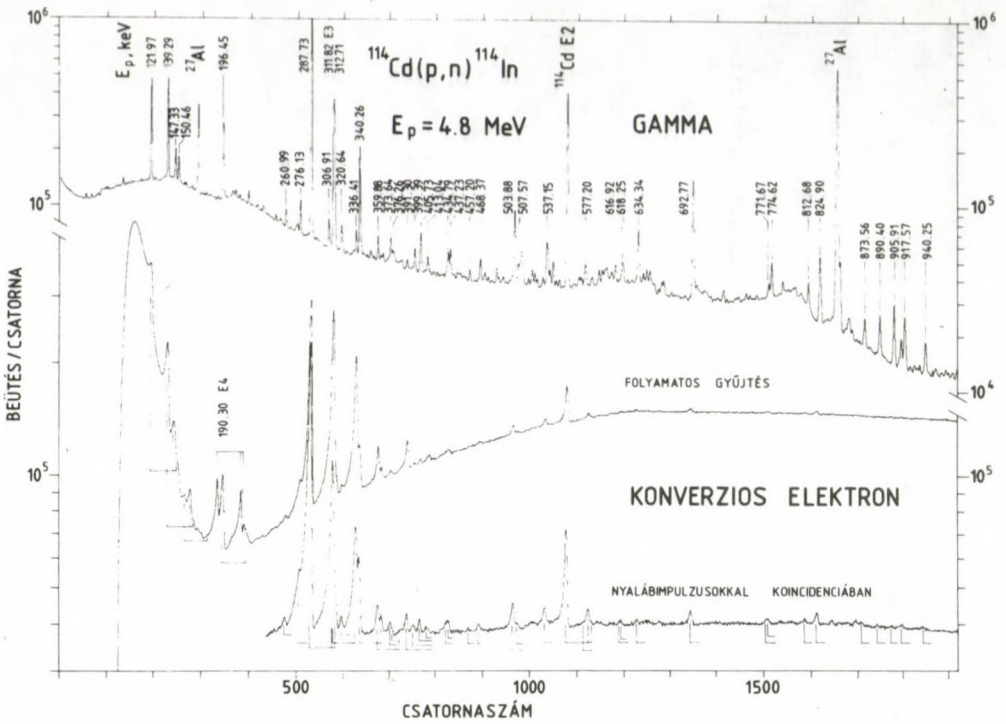
például Z=50 atommagra, 100 keV< E_γ < 1 MeV energiájú E1,M1,E2,M2 multipolaritású átmenetekre 1-9 között változik. Si(Li) detektorral rendszerint már az L_1,L_2 ,L_3 alhéjakról származó konverziós vonalakat sem lehet felbontani (7.ábra).

10./ Számos esetben szükség van a belső konverziós elektronoknak más sugárzásokkal koincidenciában való mérésére:

a./ $e^-\gamma$ - vagy e^-e^--koincidencia mérés (nívósémába való beépítés, vagy egyes vonalcsoportok kiemelése összetett spektrumokból),

b./ $e^-\gamma$-szögkorreláció és szögeloszlás mérés (keveredési arány, a konverziós elektron kibocsátás részecske paramétereinek, valamint redukált átmeneti valószínűségének meghatározására,

c./ a β-bomló magok esetében alkalmazható nyalábimpulzusokkal koincidenciában való mérés,



4. ábra A $^{114}Cd(p,n)^{114}In$ magreakció γ- és konverziós-elektron-spektruma (Fényes és munkatársai [35]). A γ- és a K konverziós vonalak azonos csatornaszámba esnek. A ^{114}In alapállapota 72 sec felezési idővel, folytonos β^--sugárzást kibocsátva bomlik. A konverziós mérések hátterének ezen összetevőjét a nyalábimpulzusokkal való koincidencia mintegy ötödére csökkentette.

d./ több reakciócsatorna nyitottsága esetén a reakciótermékek azonosítására (lásd 5. ábra és Meyer és munkatársai [36]).

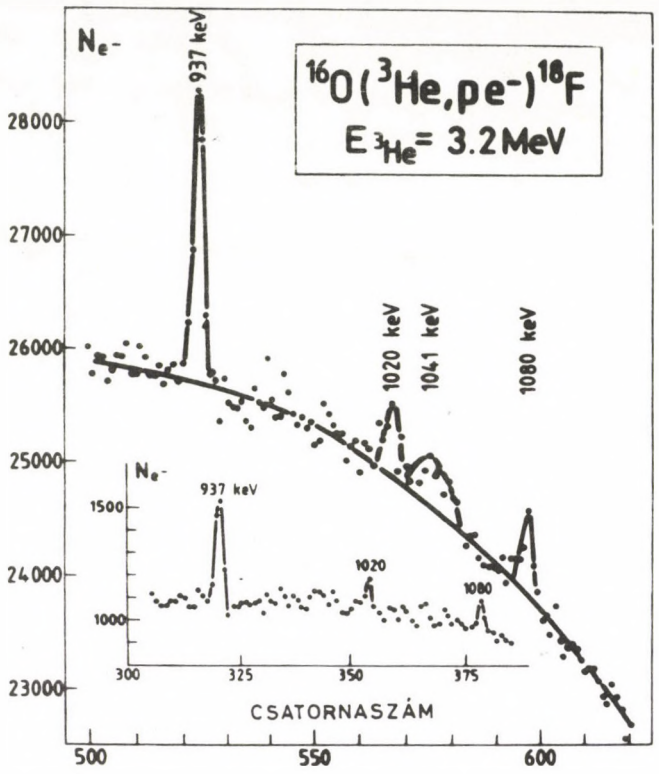
Ezek megfelelő koincidencia detektort és a jó időzítés érdekében kis céltárgy-detektor távolságot igényelnek.

11./ Különösen kisenergiájú elektronok mérésénél és alacsony mágneses terű berendezéseknél ügyelni kell a gyorsítók szórt mágneses terére.

A III.3-III. 5. fejezetekben a megvalósult spektrométerek kapcsán ezen feltételek közül számosat közelebbről is megvizsgálunk.

III.3. In-beam mágneses spektrométerek

A mágneses spektrométerek azt az elvet használják ki, hogy az elektronok nagy fajlagos töltésük miatt mágneses térben jelentős mértékben eltéríthetők és fókuszálhatók. Így az elektrondetektor a céltárgytól távol helyezhető



5. ábra. A magreakcióban emittált protonokkal koincidenciában való mérés hatása a háttérre (Krasznahorkay és munkatársai [37]). A vizsgált átmenetek konverziós együtthatói $\alpha_K \approx (7\text{-}10).10^{-6}$ nagyságrendbe esnek. Felül a kapuzatlan, alul a kapuzott spektrum látható.

el és alkalmas árnyékolással védhető az elektronoktól különböző sugárzásoktól. Az eltérülés sugara függ az elektron kinetikus energiájától (E), a mágneses indukciótól (B) valamint a sebesség és indukcióvektorok közötti szögtől. A maximális eltérítési sugár (ϱ) a következő formulából származtatható:

$$E = m_0c^2\left[\left\{\left(\frac{B\varrho}{m_0c}\right)^2+1\right\}^{1/2}-1\right] \qquad (13)$$

A spektrométerek csoportosítása a 6. ábrán látható.

Jellemzésükhöz célszerű a következő mennyiségek definiálása (minden esetben monoenergetikus és izotróp szögeloszlású elektronsugárzást és homogén aktivitáseloszlást tételezünk fel).

Térszög (Ω): 4π térszög százalékában megadja, hogy a céltárgyból kilépő elektronok hány százaléka lép be a spektrométer belépési diafragmáján.

Transzmisszió (T) Ω térszög százalékában megadja, hogy az Ω térszögbe kilépő elektronok hányad része éri el a detektort ($T \leq \Omega$). Pontos számításához figyelembe kell venni a magreakcióból származó sugárzások szögeloszlását is.

Detektálási hatásfok (η) a T transzmisszió és a detektor η_D csúcsban való detektálási hatásfokának szorzata.
Felbontás (R) megadja egy monoenergetikus vonal látható szélességét a csúcsmagasság felénél. A mágneses elven működő spektrométerek esetén ezt úgy definiáljuk, mint a $\Delta p/p$ hányadost, amely impulzustól függetlenül geometriai mértéket jelent. Az E_e energiájú elektronokra vonatkozó $\Delta E_e/E_e$ energiafelbontás a

$$\frac{\Delta E_e}{E_e} = \left[1 + \frac{m_o c^2}{E_e + m_o c^2} \right] \frac{\Delta p}{p} \qquad (14)$$

alapján számítható (7. ábra).
Luminozitás (L) a forrás A felületének és a T transzmissziónak a szorzata.
Diszperzió (D) a mágneses spektrométer szeparáló hatása két közelfekvő vonalra. Két egymástól d távolságra leképezett, p átlagos impulzusú vonalra:

$$D = ds\,(p/dp) = ds/R. \qquad (15)$$

Radiális spektrométerekre (ds=dr):

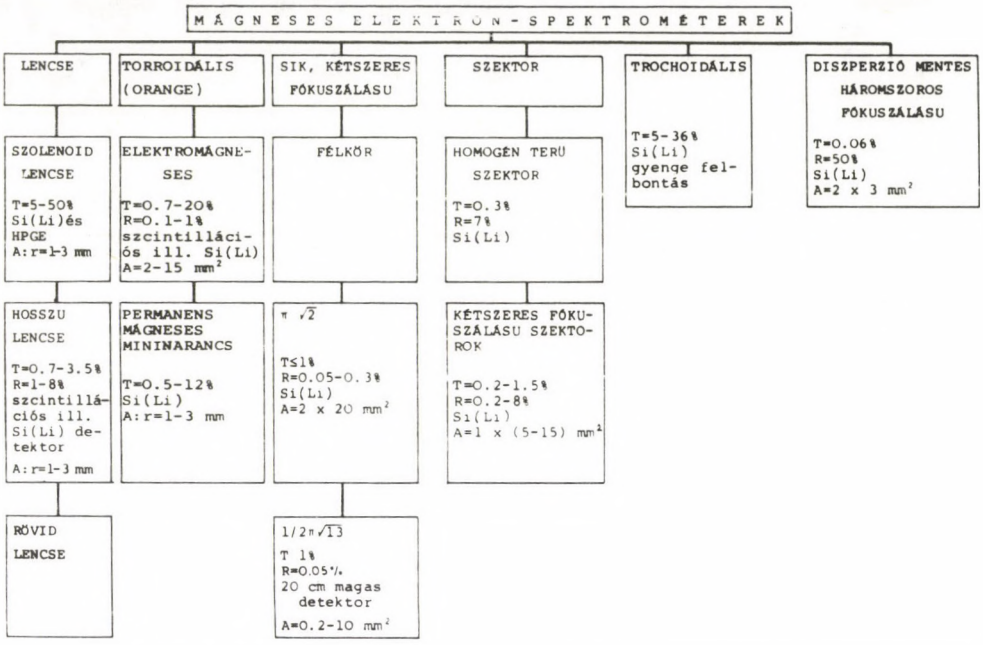
$$D_r = (dr/r)(p/dp). \qquad (16)$$

III.4. Lencse spektrométer

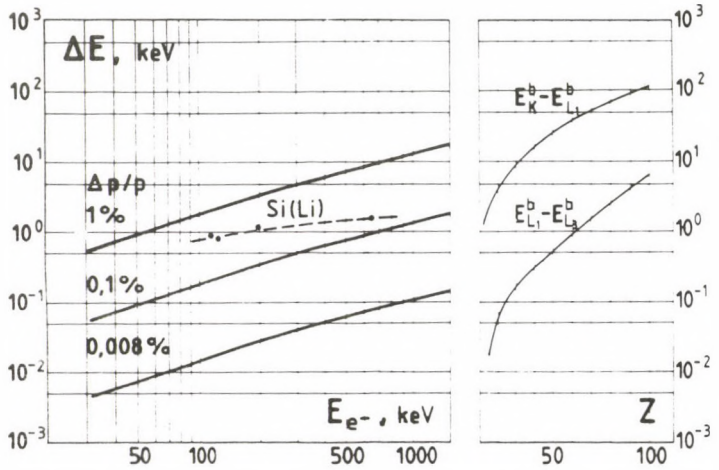
Jellemzője, hogy a mágnestekercsek axiális terében az elektronok csavarvonalú pályán haladnak (8. ábra). Három alapvető tipusa közül a szolenoid és a hosszú lencsék működési paraméterei a legjobbak.

III.4.1. Szolenoid lencse

Az in-beam berendezésekben a tekercsek tengelye és a nyaláb irány rendszerint 90°-os szöget zár be, ezért a céltárgy-detektor-távolságon a mágneses tér inhomogén (8. ábra). Ezen inhomogenitás okozta mágneses tükör meghatároz egy maximális kilépési szöget, melynél az elektronok még elérik a detektor síkját (Klank és Ristinen [38]). Adiabatikus közelítésben a mágneses tükör független az energiától. Így a mágneses tértől valamint a detektor ill. a forrás méretétől függő energiáig a transzmisszió állandó. Például az ATOMKI-ben működő szupravezető mágneses, kétdetektoros spektrométer (Árvay és munkatársai [39]) 3.2 T indukciójú mágneses tere 1.6 MeV energiáig az elektronok 76 %-át a detektorok valamelyikére transzportálja. A geometriai térszöghöz képest ez közel 400-szoros kiemelést eredményez. A kisenergiájú szekunder-elektronok azonban túlterhelhetik az elektronikus jelfeldolgozó rendszert, ami ellen a céltárgyra kapcsolt 5-50 kV-os ellentérrel [38,39], valamint a céltárgy és a detektor közé helyezett kisméretű abszorbens-koronggal [38,39,40] lehet védekezni (8.a ábra). Ekkor azonban a transzmisszió energiafüggő lesz.



6. ábra. A mágneses elektron-spektrométerek csoportosítása és in-beam használatukat jellemző adataik Mladjenovič összefoglalása [6] alapján. (T - transzmisszió; R - felbontás; A - a forrás területe; r - a forrás sugara)

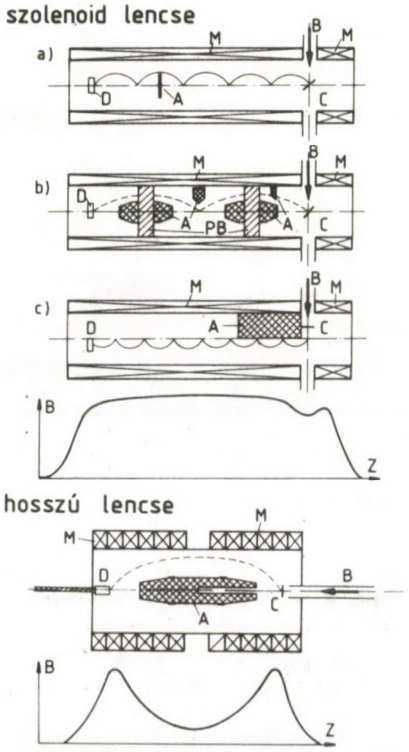


7. ábra. A mágneses spektrométerek energiafelbontása (ΔE) az elektronenergia (E_{e^-}) függvényében különböző Δp/p impulzusfelbontás értékek esetén. Összehasonlításul feltüntettük a Si(Li) detektorral elért legjobb értékeket (Irshad Ahmad és Wagner [28]). Jobb oldalon a kötési energiák különbsége látható a rendszám függvényében.

További háttércsökkenés érhető el a céltárgy és a detektor közé helyezett 2-3 szivar alakú abszorbenssel (Backe és munkatársai [32]), West [41], Stöffl és Henry [42]), mely a radiális sugárzásokat teljesen kiszűri (8.b. ábra). Adott mágneses tér esetén csak egy szűk energiatartományba eső (Δp/p 12-20 %) elektronok juthatnak a detektorra. A vizsgálni kívánt szélesebb energiatartományt a mágneses tér periódikus változtatásával lehet megmérni.

A lencse spektrométerben az elektronok és a pozitronok ellenkező irányban "csavarodnak", ezért a pozitronok ellen csavarvonalú abszorbenst (helical-baffle) szoktak alkalmazni.

A 8.c. ábrán a gerjesztett állapotok életidejének a magreakcióban kilökött magok repülési ideje alapján történő mérési elrendezése látható (Backe és munkatársai [32], Guttormsen és munkatársai [43]). A céltárgy nyaláb irányban történő mozgatásával változtatható a repülési távolság. A repülési sebesség és a szolenoid-transzporter jellemzőinek ismeretében pedig meghatározható az életidő.



8.ábra Gyorsítónyalábra telepített lencse spektrométerek működési elve (lásd szövegben) és mágneses téreloszlásuk (B) a tekercsek tengelye (z) mentén. (M - mágnestekercs; D - detektor; A - abszorbens a radiálisan haladó sugárzások ellen; PB - csavarvonalú abszorbens a pozitron elnyomására)

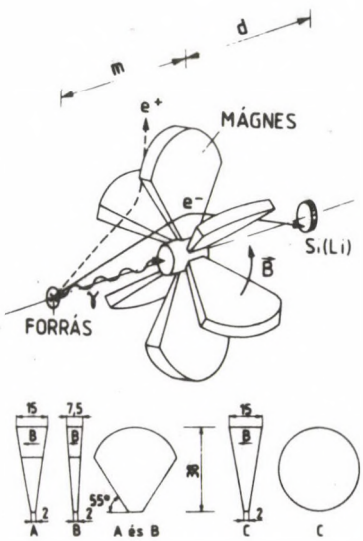
Az elektronok és pozitronok térbeli szétválasztásának egy érdekes módja az S-alakban hajlított szolenoid (Kankeleit és munkatársai [44]).

III.4.2. Hosszú lencse

A lencse spektrométerek közül a legjobb energiafeloldás mellett a legnagyobb transzmissziót az ún. Slätis-Siegbahn terűekkel [45] kapták, melyekben a mágneses tér a lencse két végén maximális (8. ábra). Az utóbbi évtizedben in-beam mérésekre használt berendezésekben az elektronok energiáját már félvezető detektor analizálja (például Kantele és munkatársai [46] spektrométere). A háttér csökkentésére az impulzusfelbontásnak megfelelő digitális ablakot "mozgatnak" a mágnesáram periódikus változtatásának függvényében. Egy lencse spektrométerrel mért spektrum látható a 4. ábrán.

III.5. Narancs spektrométer

Nevüket a felhasított narancs-szeletekhez hasonlóan elhelyezkedő mágneseknek köszönhetik. A mágneses tér a céltárgy-detektor tengelyre hengerszimmetrikus. Működési elvükből következik nagy előnyük, hogy az elektronokat fókuszálják, a pozitronokat pedig defókuszálják.



9. ábra. A permanens mágneses mininarancs spektrométer működési elve és a mágnesek mérete mm-ben (Gulyás és munkatársai [47]).

III.5.1. Permanens mágneses mininarancs spektrométer

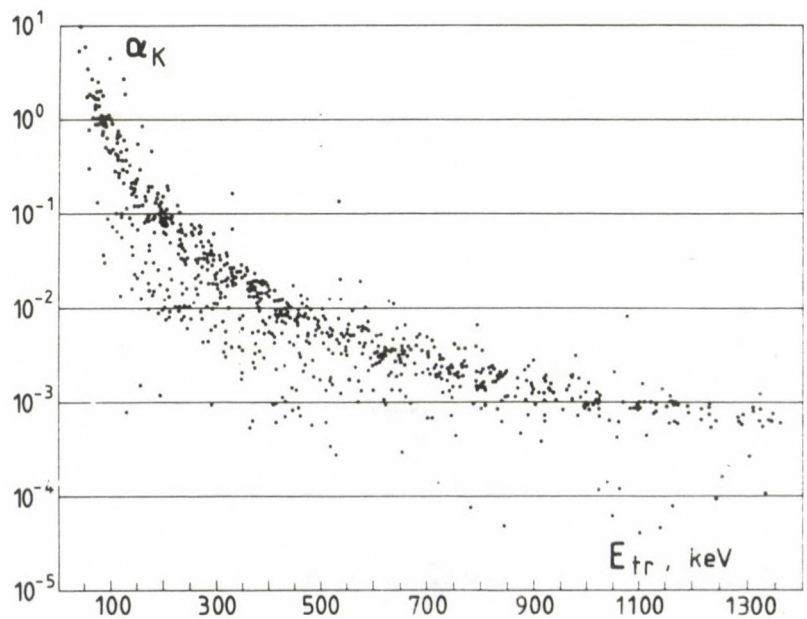
A híradástechnikai ipar számára kifejlesztett erős permanens mágnesekből (pl. $SmCo_5$) kisméretű,egyszerűen kezelhető spektrométer építhető (9. ábra) (van Klinken és munkatársai [48,49,50]). Számuk ma már meghaladja a tizet. A mágnesek számának, alakjának és a forrás-mininarancs-detektor távolságok változtatásával (9. ábrán m és d) a spektrum egy-egy tartománya jut a detektorra (maximálisan 5-10 % transzmisszióval). A spektrométer kis mérete ellenére jól használható belső konverzióselektron ill.$e^-\gamma$, e^- - töltött részecske stb. koincidencia mérésekre. A keletkezett radioaktiv magok β^+ sugárzása ellen 50-szeres elnyomást értek el 650 keV-nél [48].

Egy mininaranccsal mért spektrum látható az 5. ábrán.

IV. ÖSSZEFOGLALÁS

Az in-beam konverzióselektron-spektroszkópia legfontosabb insztrumentális kérdéseinek áttekintésében nem törekedhettünk teljességre. Az elért eredményeket és a várható fejlődési irányokat elemezve megállapíthatók a következők:

/1/ Az in-beam mért legtöbb α_K belső konverziós együttható (10.ábra) értéke 10^0 és 10^{-3} közé esik. A mért értékek pontossága 5-30 % (Hansen [51]).



10. ábra Magreakciókban mért α_K konverziós együtthatók, ($Z \leq 60$, Hansen összefoglaló munkája [51] alapján).

A 100 keV-nél kisebb energiájú átmenetek vizsgálata a szekunder-elektronok miatt nagy nehézségekbe ütközik. A 10^{-3} -nál kisebb α_K értékek észlelése (kis rendszámú magok ill. $E_\gamma > 1.5$ MeV átmenetek) a leggyakrabban használt in-beam spektrométerekkel (szolenoid és hosszú lencsék valamint mininarancs-spektrométerek) a berendezések korlátozott érzékenysége miatt csak kevés esetben sikerült. A fényerő növelése (szélessávú szolenoid lencsék) rendszerint a feloldás leromlásával és a háttér növekedésével jár.

/2/ A mérésidő gazdaságos kihasználása és a mérési adatok digitalizálása előnyben részesítette a Si(Li) félvezető detektoros berendezéseket. A Si(Li) detektorokkal az in-beam mérésekben azonban 100 keV-nél nagyobb energiájú elektronokra 1.8-2.0 keV-nél jobb energiafelbontást csak nehezen lehet elérni. Ez 100 keV esetén megfelel $R=\Delta p/p= 1\%$ felbontásnak, ami elmarad a mágneses spektrométerekkel elért eddigi legjobb 8.10^{-5} értéktől (Mampe és munkatársai [52]). Az ilyen felbontás eléréséhez igen keskeny forrásra van szükség, ami in-bem mérésekben nehezen valósítható meg, s a fényerő is igen kicsi lesz.

/3/ A félvezető detektoros spektrométerekkel végzett konverziós mérések pontosságának növeléséhez a jelenleginél pontosabb hiteleítő adatokra van szükség. A visszaszórás és az energiaveszteségek miatt a Si(Li) detektor válaszfüggvénye eltér a szimmetrikus Gauss-függvénytől (lépcső és exponenciális farok), ami még kevéssé vizsgált terület.

/4/ Számos mag szerkezetének vizsgálatában a konverziós mérések mellett γ-szögeloszlás méréseket is végeztek, ami egyúttal a kevert multipolaritású átmenetek redukált átmeneti valószínűségeire is szolgáltatott információt.

/5/ Egyes esetekben a konverziós mérés az egyetlen lehetőség a magátmenetek észlelésére (E0 átmenet), vagy azonosítására a kötési energiák különbsége alapján.

/6/ Egyre hangsúlyozottabb szerepet kapnak a különböző koincidencia mérések a háttér csökkentésére, illetve egyes vonalcsoportok vagy reakciótermékek kiválasztására.

HÍVÁTKOZÁSOK

[1] O. van Baeyer és O. Hahn, Physik Z 11 (1910) 488.
[2] E. Rutherford és R. Robinson, Philos.Mag. 26 (1913)717.
[3] T. Huus és J.H. Bjerregaard, Phys. Rev. 92 (1953) 1579.
[4] J.H. Hamilton, Internal Conversion Processes, szerk. J.H. Hamilton, (Academic Press, New York and London,1966) 1.o.
[5] M.S. Mladjenovič, Developement of Magnetic β-Ray Spectroscopy, (Springer-Verlag, Berlin and New York 1976).
[6] M.S. Mladjenovič, Nucl. Instr. and Meth. 162 (1979) 193.
[7] Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, szerk K. Siegbahn, (Nort-Holland, Amsterdam, 1965).
[8] O. Dragoun, Advences in Electronics and Electron Physics, Vol. 60 (1983) 1.
[9] P. Schlüter és G. Soff, Atomic Data and Nucl. Data Tables 24 (1979) 509.
[10] R.S. Hager és E.C. Seltzer, Nucl.Data Tables A4 (1968) 1.
[11] V.F. Trusov, Nucl. Data Tables 10 (1972) 477.
[12] I.M. Band, M.B. Trzhaskovskaya és M.A. Listengarten, Atomic Data and Nucl. Data Tables 18 (1976) 433.

[13] F. Rösel, H.H. Fries, K. Alder és H.C. Pauli, Atomic Data and Nucl. Data Tables 21 (1978) 91.
[14] I.M. Band, M.B. Trzahkovskaya és M.A. Listengarten, Atomic Data and Nucl. Data Tables 21 (1978) 91.
[15] I.M. Band és M.B. Trzhaskovskaya, Tables of Gamma-Ray Internal Conversion Coefficients for K, L and M subshells, 10-Z-104, (Leningrád Nuclear Physics Institute, Leningrád, 1978).
[16] Trón L., ATOMKI Közl. 12 (1970) 195.
[17] H. Morinaga és T. Yamazaki, In-Beam Gamma-Ray Spectroscopy, (Nort-Holland, New York, 1976).
[18] H.R. Faust, Nucl. Instr. and Meth. 213 (1983) 271 és H.R. Faust, H. Klewe-Nebenius, H. Rebel és K. Wisshak, Nucl. Instr. and Meth. 213 (1983) 277.
[19] Kövér Á., Varga D., Berényi D. és Újhelyi Cs., ATOMKI Közl. 12 (1970) 137.
[20] S.M. Seltzer és M.J. Berger, Nucl. Instr. and Meth. 119 (1974) 157.
[21] A. Špalek, Nucl. Instr. and Meth. 198 (1982) 399.
[22] S.N. Kaplanis, Nucl. Instr. and Meth. 203(1982) 359.
[23] R. Decker, K-D. Wünsch, H. Wollnik, G. Jung, E. Koglin és G. Siegert, Nucl. Instr. and Meth. 192 (1982) 261.
[24] V.R. Bom, Nucl. Instr. and Meth. 207 (1983) 395.
[25] M. Waldschmidt és S. Wittig, Nucl. Instr. and Meth. 64 (1968) 189.
[26] V.A. Kuzminikh és S.A. Vorobiev, Nucl. Instr. and Meth. 129 (1975) 561.
[27] J. Kalef-Ezra, Y.S. Horowitz és J.M. Mack, Nucl. Instr.and Meth. 195 (1982) 587.,
[28] Irshad Ahmed és F. Wagner, Nucl. Instr. and Meth. 116 (1974) 465.
[29] M.J. Berger, S.M. Seltzer, S.E. Chappell, J.C. Humphreys és J.W. Motz, Nucl. Instr. and Meth. 69 (1969) 181.
[30] H.W. Kraner, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. 225 (1984) 615.
[31] A. Krasznahorkay, T. Kibédi és J. Timár, ATOMKI Report E/4 (1984).
[32] H. Backe, L. Richter, R. Willwater, E. Kankeleit, E. Kuphal, Y. Nakayama és B. Martin. Z. Physik A285 (1978) 159.
[33] Á. Kövér, S. Ricz, Gy. Szabó, D. Berényi, E. Koltay és J.Végh, Phys. Lett. A79 (1980) 305 és Szabó Gy. személyes közlése.
[34] A.E. Blaugrund, Y. Dar és G. Goldring, Phys. Rew. 120 (1960) 1328.
[35] T. Fényes, J. Timár, T. Kibédi, A. Passoja, M. Luontama és W. Trzaska (előkészületben)
[36] R.A. Meyer, D.J. Decman, E.A. Henry, R.W. Hoff, L.G. Mann, G.L. Struble, és L.E. Ussery, Proc. Int. Symp. on In-Beam Nuclear Spectroscopy, Debrecen, 1984, szerk. Zs. Dombrádi és T. Fényes, (Akad. Kiadó, Budapest, 1984) 399.o.
[37] A. Krasznahorkay, T. Kibédi és Zs. Dombrádi (előkészületben),
[38] B. Klank és R.A. Ristinen, Radioactivity in Nuclear Spectroscopy, szerk. J. H. Hamilton és J.C. Manthunithil, (Gordon and Breach, New York, 1972) 207.
[39] Z. Árvay, T. Fényes, K. Füle, T. Kibédi, S. László, Z. Máté, Gy. Mórik, D. Novák és F. Tárkányi, Nucl. Instr. and Meth. 178 (1980) 85.
[40] K. Kotijama és R. Beringer, Rew. of Sci. Instrum. 41 (1970) 632.
[41] H.I. West Jr., Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. 223 (1984) 8 .

[42] W. Stöffl és E.A. Henry, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. 227 (1984) 77.
[43] M. Guttormsen, H. Hübel, A.V. Grumbkow, Y.K. Agarwal, J. Recth, K.H. Maier, H. Kluge, A. Maj, M. Menningen és N. Roy, Nucl . Instr. and Meth. in Phys. Res. 227 (1984) 489.
[44] E. Kankeleit, U. Gollerthan, G. Klotz, M. Kollatz, M. Krämer, R. Krieg, U. Meyer, H. Oeschler és P. Senger, Nucl. Instr. and Meth. in Phys.Res. A234 (1985)81.
[45] H. Slätis és K. Siegbahn, Ark. Fysik 1 (1949) 339.
[46] J. Kantele, M. Luontama, A. Passoja és R. Julin, Nucl. Instr. and Meth. 130 (1975) 467.
[47] Гуяш Й., Домони А., Кибеди Т., Краснахоркаи А., Фенеш Т., és Шрам Ж., Приборы и техника эксперимента № 3 (1984)53.
[48] J. Van Klinken és K. Wisshak, Nucl. Instr. and Meth. 98 (1972)1.
[49] J. van Klinken, S.J. Feenstra, K. Wisshak és H. Faust, Nucl. Instr. and Meth. 130 (1975) 427.
[50] J. van Klinken és K. Wisshak, Nucl. Instr. and Meth. 98 (1978) 433.
[51] H.H. Hansen, Physics Data,(Fachinformationszentrum, Karlsruhe, 1981) Nr. 17-1.
[52] W. Mampe, K. Schreckenbach, P. Jeuch, B.P.K. Maier, F. Braumandl, J. Larysz és T. von Egidy, Nucl. Instr. and Meth. 154 (1978) 127.

Szakmai lektor: Kövér Ákos

Kiadja a
Magyar Tudományos Akadémia
Atommagkutató Intézete

A kiadásért és szerkesztésért felelős
Dr. Berényi Dénes, az Intézet igazgatója
Készült a Kinizsi Szakszövetkezet nyomdájában
Törzsszám: 65761
Példányszám: 235
Debrecen, 1985. április

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

ATOMKI KÖZLEMÉNYEK

Volume 27/ Number 2

CONTENTS

T. Sztaricskai, L. Vasváry, G.C. Pető, B.V. Dewkin: PNG-300 a nanosecond pulsed neutron generator 105

Berényi Dénes, Máthé György: Anyagvizsgáló műszerek az ATOMKI-ban 117

Ditrói Ferenc, Takács Sándor, Tárkányi Ferenc: A debreceni ciklotron ipari alkalmazási lehetőségeinek áttekintése 123

Lovas Rezső: Mikroszkopikus kollektiv modellek 135

Cseh József: A kölcsönhatóbozon-közelités elemei 147

Fényes Tibor: A páratlan-páratlan atommagok modelljei: I. Gömbszerü magok 165

Dombrádi Zsolt: In-beam gammaspektroszkópia 183

Krasznahorkay Attila: Magállapotok élettartamának mérése 207

Kibédi Tibor: In-beam konverzióselektronspektroszkópia 221

539

HU ISSN 0004-7155

310.565

ATOMKI KÖZLEMÉNYEK

27. kötet / 3. szám

MTA
ATOMMAGKUTATÓ INTÉZETE, DEBRECEN / 1985

HU ISSN 0 3

ATOMKI Riport X/22 (1985)

CIKLOTRON DEBRECENBEN*

Berényi Dénes

az intézet igazgatója

*Megjelenés alatt a Debreceni Szemle c. folyóiratban.

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

A FIZIKA DEBRECENBEN

Nem beszélhetünk a ciklotronról, a ciklotron laboratórium beruházásáról és kihasználásáról Debrecenben anélkül, hogy ne beszélnénk a fizika, sőt általában a tudományok debreceni multjáról. Debrecen ugyanis - jól tudjuk - sajátos helyet foglal el, speciális szerepet tölt be a magyar kultura történetében. Debrecenről irja Illyés Gyula, hogy "...sárfalai közt kifejlődött városi szellem jellegzetesen magyar volt, nem vesztette el kapcsolatát a néppel, de a kultura közlekedő edényein egy nivón állt a nyugati országok városaival is, ha ugyan itt-ott nem multa felül azokat."[1] Ebben a kulturális multban fontos helye van természettudományoknak és különösen a fizikának.

Hogy éppen a fizika vonatkozásában mennyire igaza van Illyés Gyulának, azt "kézzelfogható" tények bizonyitják.

Tudjuk, a modern értelemben vett fizika és ezzel a természettudományok megalapozása Galilei munkásságával kezdődik. Ő volt az, aki egyszerü természeti jelenségek /a golyók esése, az inga mozgása, stb./ pontos vizsgálatából indult ki, az észlelt törvényszerüségeket matematikai formába öntötte és mindenekelőtt a kisérleteknek, a rendszeres megfigyelésnek alapvető és perdöntő jelentőséget tulajdonitott. A természettudományok eredményei csakis a kisérleteken és a rendszeres megfigyeléseken alapulhatnak, és csak addig természettudományok, amig legragyogóbb elméleteiknek is ez a próbaköve.

Szilágyi Tönkő Márton, a Debreceni Kollégium professzora, aki Debrecenen kivül Utrechtben és Leidenben is tanult, 1678-ban

megjelent - egyébként kartéziánus szellemü - tankönyvében hazánkban ismereteink szerint először hivatkozik Galilei eredményeire és hangsulyozza a kisérletezés fontosságát. Igy érthető, hogy mig - a feljegyzések szerint - a világon elsőként az Oxfordi Egyetemen az 1700-1701 tanévtől kezdték meg a fizika kisérletek bemutatásával történő oktatását, Debrecenben 1703-ból vannak feljegyzések - Magyarországon elsőként - fizikai kisérleti és bemutató eszközök /éggömb, földgömb, mágnesvas, mérleg/ beszerzéséről. Mindez megfelelő alapot teremtett Maróthi György, Hatvani István és Segner János tevékenységének Debrecenben az ezt követő évtizedekben.[2]

A fénykort kétségtelenül bizonyos stagnálás-hanyatlás követte, de kétségtelen, hogy Debrecenben a fizikai kultura fénye soha nem hunyt ki egészen századunkig, amikor a magfizika müvelése hazánkban Debrecenben kezdődött el Szalay Sándor uttörő tevékenysége nyomán a harmincas évek második felében.[3]

A SZALAY-ISKOLA

Szalay Sándor többéves németországi kutató munka után félévet töltött 1936-ban Cambridge-ben Rutherford mellett és az ott szerzett döntő élményekkel hazatérve kezdte el müködését a debreceni egyetemen.

Szalay Sándor kétségtelenül elsősorban kisérleti kutató, akinek igen széles a látóköre és érdeklődése, amely semmiképpen sincs behatárolva a magfizika, vagy akárcsak a fizika területére. Kutató munkáját Debrecenben egyszerü berendezések építésével kezdte és tevékenysége már a harcmincas évek végén nem-

zetközi szintü eredményekhez vezetett a könnyü atommagok közti kölcsönhatási folyamatokra, ill. az atommagok gerjesztett állapotaira vonatkozólag.

Az egyetemi intézetben kifejlesztett berendezések segitségével szinte közvetlenül a II. világháboru után hozzálát néhány lelkes munkatárs, köztük egy geológus kutató közremüködésével az uránkutatáshoz hazánkban és közvetve ezirányu tevékenységének köszönhető a mecseki urán felfedezése. Ezek a vizsgálatok vezették el az urán bedusulási mechanizmusának felismeréséhez és ebben a humin savak szerepének tisztázásához. A következő lépés a növények nyomelem éhezésének felfedezése volt tőzeges talajokon, amely az urán bedusulásához analóg folyamaton alapul. A szóban forgó nyomelemek ugyanis hasonló módon kötődnek meg a humin savakon mint az urán és igy nem juthatnak be a növényi keringésbe.

A fentiekkel párhuzamosan számos magfizikai és insztrumentális eredmény is született, de Szalay Sándor kétségkivül legnagyobb alkotása az interdiszciplináris szemléletü kisérleti fizikai tudományos iskola kifejlesztése Debrecenben.[4]

Szalay már a harmincas évek második felében elkezdte munkatársainak gondos kiválogatását, tehetséges kutatók kinevelését a fenti szellemben. Eredményei és iskolateremtő tevékenysége 1954-ben a Magyar Tudományos Akadémia Atommag Kutató Intézetének /ATOMKI/ megalapitásához vezettek Debrecenben /alapitásakor az MTA Debreceni Fizikai Kutató Intézete elnevezéssel indult/ és igy ma a Szalay iskolának két mühelye van városunkban: az ATOMKI-n kivül a Kossuth Lajos Tudományegyetem Kisérleti Fizikai Tanszéke is. Bár kétségkivül nagyságában és igy lehe-

tőségekben is, eredményekben is az ATOMKI felülmulja a Tanszéket, de mindkét intézmény alapvetően ugyanazon a szellemben működik és az utóbbinak is - éppen az egyetemi oktatás révén - igen nagy a jelentősége és messzeható a kisugárzása.

A továbbiakban elsősorban az ATOMKI-ról meg kell állapitanunk, hogy tevékenysége több szférára is kiterjed. Mindenekelőtt meg kell állnia a helyet a természet jelenségeire vonatkozó kutatások /alapkutatás/ nemzetközi versenyében. Enélkül, pontosabban az e vonatkozásban történő helytállás nélkül többi tevékenysége a "levegőben lóg", t.i. ez semmi mással nem pótolható alapvető feladata, és minden más csak ezen alapulhat, ebből forrásozik.

Elmondhatjuk, hogy ma már nemcsak a magyar magfizikai kutatások sulypontja van egyre inkább Debrecenben, de több területen is /nagyenergiáju ion-atom ütközések, rövid életü atommagok szerkezete és az ezekből eredő sugárzások spektroszkópiája vagy az un. szilárdtest nyomdetektorok insztrumentális kérdései/ a megfelelő nemzetközi kutatások fő folyamatához sikerült csatlakozni, élmezejében sikerült lábunkat megvetni. Ezt mutatják - többek között - a Debrecenben rendezett megfelelő nemzetközi konferenciák, de talán még inkább az ATOMKI munkatársainak meghivása nemzetközi rendezvények és szervezetek szervező és vezető testületeibe, továbbá az ATOMKI munkatársainak szereplése meghivott előadóként, üléselnökeként ezeken a nemzetközi tudományos összejöveteleken. Crasemann professzor /Eugene, Oregon, USA/ pl. a 2. Debreceni "Workshop" /Tudományos Mühely a Nagy Energiáju Ion-Atom Ütközésekről/ zárszavában uttörőnek /"pioneering measurements"/ nevezte az

ezen a területen végzett méréseinket. Hasonlóan értékelte ezeket Stolterfoht professzor /Nyugat-Berlin/ is felszólalásában a terület nagy nemzetközi konferenciáján Lipcsében /1984/.

Az ATOMKI tevékenységének hasonlóan fontos területe a magfizikai és a nem is kifejezetten magfizikai, de a fenti kutatások során felhasznált és kifejlesztett valamint továbbfejlesztett technikák, módszerek és berendezések /vákuumtechnika, elektronika, számitástechnika, alacsonyhőmérsékleti technika, stb./ <u>alkalmazása más tudományokban</u> /inter- és multidiszciplináris kutatások!/. Számos e területen elért eredmény szintén nemzetközi rangu, hogy csak a különböző módszerekkel elért környezetkutatási eredményeinket, tömegspektrometriával szerzett geológiai kőzet-kormeghatározási információkat, a szén 14-es technikával elért régészeti és geomorfológiai felismeréseket vagy az intézeti nukleáris analitikai lehetőségek felhasználásával orvosi jellegü problémák megoldásához való hozzájárulást emlitsem.

A harmadik fő tevékenységi terület a <u>kifejezetten gyakorlati eredményekre</u> irányuló kutatás iparvállalatokkal és más intézményekkel kötött megfelelő szerződések keretében. Ez a tevékenység igen sokrétü és sokirányu. Az elmult évtized során több mint száz vállalattal, intézménnyel volt az intézetnek ilyen irányu kapcsolata, és maga az idetartozó kutatás tipusa is igen különböző; a müszerreprodukálástól az egyedi és prototipus jellegü müszerfejlesztésen keresztül a külső forrásból finanszirozott kutatásokig terjed. /Ez utóbbi esetben a "megbizónak" "csak" adatokat adunk át pl. kőzetminták korára vagy fémminták felületi állapotára vonatkozólag, amelyek gyakorlati szempont-

ból fontosak és hasznosak, de egyuttal bizonyos természeti jelenségek megismerése szempontjából is fontos, nemzetközi szinten közölhető információkat is eredményezhetnek./ Emlitsünk egy-kettőt az igen sok "szerződéses" eredmény közül. Az ATOMKI-ben dolgoztuk ki a MEDICOR kb. egymillió Ft értékü és ma már a gyár által kis sorozatban gyártott légzésvizsgáló orvosi müszerének a prototipusát és épitettük meg a nullaszériás példányait. A székesfehérvári Szines Fémmü számára röntgenfluoreszcenciás rendszerü minőségvizsgáló berendezést fejlesztettünk ki, amely rézötvözeteknél gyakorlatilag kiküszöbölte - a korábban évenként 100 millió Ft-okra rugó - selejtet. Legutóbbi nemzetközi mércével is kiemelkedő jelentőségü sikerünk a BIOGAL részére és vele együttmüködésben készitett berendezés az üzemi fermentációs folyamatok folyamatos ellenőrzésére. A komplex, több millió Ft értékü berendezés vákuumfizikai és elektronikai-mikroprocesszortechnikai tapasztalatainkon alapul.

Az előbbi három különböző tipusu tevékenység az intézetben szorosan összefonódik, egymást többszörösen átfedi. Mégis durván körülbelül azt mondhatjuk, hogy mindegyikre egyenként a teljes intézeti kapacitás egy-egyharmada jut.

Tulmenően az ismertetett feladatkörökön - tehát ezek mellett, ezekre épülve és nem helyettük - az intézet és munkatársai bekapcsolódnak a közmüvelődési, oktatási feladatokba is. Kezdeményezték és több más szervvel, elsősorban a Kölcsey Müvelődési Házzal együtt szervezik évente a Fizikus Napokat Debrecenben. Az intézetlátogatások, a rendhagyó fizika órák révén sok száz középiskolai tanuló fordul meg az ATOMKI-ben, visz magával onnan uj ismereteket, tágitja látókörét.

Az intézet számos más szállal is kötődik a városhoz, a körülötte lévő társadalmi közeghez. A három debreceni egyetemmel szoros, szocialista szerződéssel megpecsételt együttmüködésben van, ami közös kutatásokat, az oktatásban való részvételt és egyre több vonatkozásban is kölcsönös segélynyujtást jelent.

Az ATOMKI kapcsolatai természetesen nem állnak meg a város vagy a régió határainál. A szerződéses kutatási tevékenységnél már utaltunk rá, hogy milyen nagyszámu vállalattal, intézménynyel kerültünk igy is kapcsolatba az egész országban. A debreceni egyetemekhez hasonló, szocialista szerződéses kapcsolatban vagyunk két budapesti intézettel is, a Központi Fizikai Kutató Intézettel és az Izotóp Intézettel. De tul az ország határain a világ több országában több intézettel van kutatási együttmüködésünk, közös eredményeink a Szovjetuniótól Japánig és Franciaországtól Finnországig. Ezek az együttmüködések mással nem pótolható, lényeges tényezői eredményes munkánknak.

UT A CIKLOTRONHOZ

Tulajdonképpen már eddig is a ciklotronhoz vezető utról, pontosabban azokról az eredményekről, és arról az itt létrejött kulturáról beszéltünk, amely hazánk első ciklotron gyorsitójának Debrecenben az ATOMKI-ben történő felépitéséhez, a megfelelő ciklotron laboratórium beruházásához vezettek.

Térjünk azonban most vissza Szalay és munkatársai első magfizikai kisérleteihez Debrecenben. Akkor még nem állt rendelkezésre semmiféle nukleáris gyorsitó az intézetben, a magreakciók létrehozásához rádioaktiv forrásokból származó alfarészecs-

kék szolgáltattak a bombázó részeket. A II. világháboru után még az egyetemi tanszéken kezdett hozzá Szalay Sándor munkatársaival egy 2 millió voltos, un. Van de Graaff generátor épitéséhez /előbb egy kis modell-generátor épült, amelyet azután hallgatói gyakorlatokon használtak a tanszéken/. Ugyancsak itt, ugyanezen években megkezdődött egy neutron generátor, egy 800 kilovoltos un. kaszkádgenerátor, majd egy 1,5 millió voltos, illetve egy 5 millió voltos Van de Graaff gyorsitó épitése. Ezek nélkülözhetetlenek a magfizikai kutatásokhoz és felhasználásukkal számos nemzetközi elismerést keltő eredmény született az intézetben és számos gyakorlati, alkalmazott jellegü feladatot is meg tudtunk oldani az általuk lehetővé tett nukleáris analitikai módszerek segitségével.

Az intézet megalapitása és felszerelése során természetszerüleg már viszonylag korán felmerült a gondolat, hogy jó lenne egy ciklotron gyorsitó is, ez minőségileg más és több lehetőséget jelentene mind az alapkutatás, mind az alkalmazások szempontjából.

Mintegy tizenöt évvel ezelőtt azután ez az érdeklődés kezdett konkrétabb formákat ölteni. Egyes kutatók külföldi utjaik során kezdtek a ciklotronokról rendszeresen információkat gyüjteni. Ciklotronokat előállitó cégektől árajánlatokat is kértünk. Egyre világosabb lett előttünk, hogy a ciklotron ma már messze tulnőtt a magfizika keretein, egy ciklotron Magyarországon nemcsak a magfizikai, sőt még nem is csak a fizikai vagy a tudományos kutatásokat mozditaná elő, hanem számos gyakorlati terület, igy pl. az ipari anyagvizsgálat, az orvosi diagnosztika és terápia, a növénynemesités a mezőgazdaságban, általában az

izotóptermelés stb. szempontjából sem nélkülözheti a ciklotront egy ilyen kis ország sem.

Miután - és azzal párhuzamosan, hogy - illetékes helyekre beadványokat, ismertető anyagokat készitettünk ezzel kapcsolatban, és kerestük a kapcsolatokat más szakterületek képviselőivel; a fizika különböző ágainak müvelőivel, kémikusokkal, biológusokkal, orvosokkal, ipari és mezőgazdasági szakemberekkel, 1975 augusztusában - éppen tiz évvel ezelőtt - egy országos tanácskozást szerveztünk Debrecenben a ciklotronok interdiszciplináris kihasználásáról.[5] Ezen több, mint száz igen különböző szakterületen dolgozó szakember vett részt. Bár még ekkor nem tudtuk, hogy tulajdonképpen konkrétan milyen paraméterekkel is rendelkezne a magyar ciklotron /pólusátmérő, végenergia, a gyorsitható nukleáris részek választéka, pl. proton, alfa-rész, stb./, hiszen ekkor még az sem tisztázódott, hogy lesz-e egyáltalán pénzügyi fedezet egy ilyen beruházás elindítására, és ha igen, mennyi. Mindenesetre, a tanácskozást a magyar ciklotron program előkészitésének szántuk és többféle célunk is volt vele. Részben éppen a különböző igényeket kivántuk felmérni és ennek megfelelően azt felderiteni, hogy ezeknek az igényeknek konkrétan milyen ciklotron is felelne meg, részben egyáltalán a magyar tudományos és szakmai közvéleményt egy kicsit gondolkodásra késztetni ebben az irányban. Kétségtelenül célünk volt az is, hogy a tanácskozás révén is ujabb "szövetségesekre" tegyünk szert és mintegy demonstráljuk a ciklotron sokirányu felhasználhatóságát, hogy arra milyen sok területen, hányféle feladat megoldására van szükség.

Ezt követően az is tisztázódott, hogy intézetünk nem vál-

lalkozhat a ciklotron megépitésére - bár elvben meg lenne erre a lehetőség - mert az éveken keresztül annyira igénybe venné az intézeti kutató gárda java részét, továbbá a műhelyeket, hogy az a folyamatban lévő eredményes kutatásokra és igy végeredményben az egész intézet munkájára nézve is igen káros lenne, mert a szóban forgó témákban többéves, esetleg behozhatatlan lemaradást eredményezne. A járandó ut tehát a vásárlás, amely még szintén rengeteg munkát jelent az intézetnek a beruházás lebonyolitásában és az ezzel kapcsolatos számos teendőt illetően.

Az előzetes tájékozódás szerinti pénzügyi lehetőségek szinte kizárólag csak a leningrádi Jefremov Intézet[6] MGC tipusu 103 cm pólusátmérőjü kis un. kompakt ciklotron megrendelését tették lehetővé.

Végül is a Jefremov Intézettel történt többszöri tárgyalás után, különböző feltételek vállalása esetén sikerült a szállitási készséget biztositani, bár ekkor még magyar részről semmiféle végleges döntés, a ciklotron program jóváhagyása még nem történt meg. 1978 áprilisában azután a Tudománypolitikai Bizottság elfogadta a Magyar Tudományos Akadémia, az Országos Müszaki Fejlesztési Bizottság és az Országos Atomenergia Bizottság e tárgyban tett közös előterjesztését és ezzel hivatalosan is elindulhattak az első ciklotron beruházásával kapcsolatos munkák hazánkban.

A következő években azután sokszor igy - vagy - ugy ujra kétségessé vált a ciklotron beruházás sorsa. Volt már szállitó, de nem akadt tervező az épületekre, majd kivitelezőt kellett keresni. Közben különböző szempontokból többször is ujra felülvizsgálták a beruházás szükségességét. Ezeknek nem egyszer

fenyegető sulyt adtak a világszerte sulyosbodó gazdasági nehézségek. Mindig ujra és ujra meg kellett védeni ezt a beruházást a különböző fórumok előtt, a különböző bizottságokban, de végül is ez lett VI. ötéves tervünk legnagyobb tudományos beruházása. Kétségkivül sokat segitett financiálisan is és a program megvédésében is az a nemzetközi támogatás a bécsi Nemzetközi Atomenergia Ügynökség részéről, amelyet az Országos Atomenergia Bizottság segitségével sikerült megszerezni két részletben és amely összesen magyar pénzben mintegy 50 millió forintot tesz ki.

A beruházással kapcsolatos igen komplex feladat megoldására - amely magában foglalta a leningrádi intézettel folytatott tárgyalásoktól kezdve a tervezés folyamán folyamatos együttmüködésben a kutatási alkalmazási szempontok érvényesitését, az erre vonatkozó alapvető koncepciók kialakitása után, a számitó- és mérőközpont tervezését és rendelésének, majd bemérésének biztositását, az épitőkkel való állandó munkakapcsolat fenntartását, és a ciklotron és a mérőcsatornák összeszerelését /ezt ugyanis szovjet szakemberek irányitásával a mi munkatársainknak kellett elvégezniök/ és i.t. és i.t. - először egy meglévő osztályon belül vontunk össze az intézetben néhány kutatót és más szakembert már 1978-ban. Később ez mint önálló csoport müködött, majd 1981-ben osztállyá szerveződött Dr. Valek Aladár fizikus-kandidátus vezetésével, aki a beruházás felelős vezetője. Ennek az osztálynak a feladata lesz a beruházás eredményes befejezése után a ciklotron folyamatos üzemeltetését és továbbfejlesztését biztositani. Ebből az osztályból 1983-ban kivált az az önálló csoport, amelyik felelős a ciklotron gyakor-

lati alkalmazásaiért, ill. jelenleg azok előkészitéséért.

MI IS AZ A CIKLOTRON?

Miután annyit emlegettük már e cikk folyamán a ciklotront, talán érdemes egy kis időt és helyet szánni arra, hogy mibenlétére is kitérjünk.

A gyorsitó berendezéseket sokféle szempontból lehet osztályozni és értékelni. Ennek részleteibe itt nyilván nem mehetünk bele. Annyit azonban el kell mondanunk, hogy mig Van de Graaff generátorunk /és a Központi Fizikai Kutató Intézeté is/ maximálisan 5 millió elektronvoltos protonokat tudott szolgáltatni, addig az uj ciklotron 20 millió elektronvoltos protonokat biztosit, ugyanakkor nyalábintenzitása is legalább egy nagyságrenddel /tizes faktorral/ nagyobb. Talán még annyit, hogy a Van de Graaff un. direkt gyorsitó, azaz a gyorsitandó részecskék egyszer futják be azt a potenciálkülönbséget, amelynek révén energiát nyernek, a ciklotron viszont ciklikus gyorsitó. Ez azt jelenti, hogy a részecskék azt a bizonyos potenciálkülönbséget - mágneses tér által körpályára kényszeritve - többször is befutják és igy ujra és ujra energiát nyernek.

Itt emlitjük meg, hogy a beruházás teljes összege csaknem eléri a 300 millió forintot ebből maga a ciklotron közel 60 millió forint és e beruházás eredményeként az intézet gép-müszerállománya körülbelül megduplázódik, helyiségeinek alapterülete pedit több mint egyharmaddával nő.

FELKÉSZÜLÉS A CIKLOTRON KIHASZNÁLÁSÁRA

Az előbbiekben láttuk az ATOMKI kutatási tevékenységének megoszlását három területen durván körülbelül egyenlő arányban: atom- és atommagfizikai alapkutatás, interdiszciplináris kutatások /magfizikai és modern fizikai módszerek alkalmazása a geológiában, a biológiában, a környezetkutatásban stb./ és alkalmazott, gyakorlati kutatások, fejlesztések /szerződéses alapon iparvállalatokkal, különböző intézményekkel/. Azt is láttuk, hogy ma már a ciklotron egyáltalán nemcsak az alapkutatás, különösen nemcsak a magfizikai alapkutatás eszköze, hanem működését és felhasználását egy igen széles terület igényli, amelybe beletartozik a természet felderitetlen jelenségeire vonatkozó kutatástól kezdve az orvosi gyakorlaton keresztül a modern ipari anyagvizsgálatig és az izotóptermelésig számos nagyfontosságu feladat megoldása.

A ciklotron kutatási programjának az összeállitása, ill. előkészitése ennek megfelelően történt és történik. A konkrét előkészület un. projektek készitését jelenti, amelyekből mintegy tizenöt készült és amelyek lefedik az előbb emlitett három nagy kutatási területet. Az egyes projektek kis, rövid, 10-15 gépelt oldalas anyagban tartalmazzák a kutatási cél leirását, annak jelentőségét és a megvalósitásához szükséges emberi és insztrumentális tényezőket. Minden projekt nyilvános intézeti szemináriumon került megvitatásra és elfogadásáról ezek után hoz döntést az ATOMKI Igazgató Tanácsa, illetve ujabban az un. Ciklotron Csucsbizottság. Különös figyelmet szentelünk az un.

első lépcsős projekteknek, pontosabban a projektek ilyen részének, amelyek a ciklotron nyaláb rendelkezésre állása után azonnal indulhatnak.

A projektek egy része részben vagy egészben un. külső projekt, azaz kezdeményezésük nem az ATOMKI-ból indult ki, kidolgozásuk nem itt történt. A ciklotron kihasználására ugyanis, ha az az ATOMKI-ban fog is üzemelni, tulajdonképpen az egész országban /t.i. a megfelelő intézmények és ipari-mezőgazdasági létesitmények részéről/ igény van. Igy kezdettől fogva igyekeztünk informálni az érdekelteket, sőt a legszélesebb közvéleményt is. A fizikusokat, magfizikusokat a különböző bizottsági üléseken történt tájékoztatásokon kivül körlevelekkel is felkerestük /t.i. a megfelelő intézetek vezetőit/, továbbá a megfelelő magyar konferenciákon előadásokat tartottunk az előkészületekről és lehetőségekről.[7] Számos tudományos megbeszéléseken, konferencián és cikkek formájában történt az orvosok[8], az ipari szakemberek[9] és a szélesebb közvélemény[10] tájékoztatása.

A felkészülés egy egészen más, de nélkülözhetetlen vonatkozását jelentették a rövidebb-hosszabb tanulmányutak, a megfelelő külföldi kapcsolatok képitése. A rövidebb utakat, konferenciákat szinte fel sem lehet sorolni, de huzamosabban dolgoztak munkatársaink Dubnában /Szovjetunió/, Jülichben, Essenben és Heidelbergben /NSZK/, Groningen /Hollandia/, London /Nagy-Britannia/, és több más helyen, készülve a ciklotron üzemeltetésére és továbbfejlesztésére, továbbá az izotóptermelésre és az ipari-orvosi alkalmazásokra. Ezek nagy része a bécsi Atomenergia Ügynökség támogatása nélkül nem valósul-

hatott volna meg.

A külföldi tanulmányutak, együttmüködések köréből különösen ki kell emelnünk kettőt. Az egyik a japán /Sendai/-francia /Orleans/-magyar ciklotron együttmüködés, amely különösen az ipari anyagvizsgálatra történő felkészülés szempontjából jelent sokat számunkra. Partnereinknek pedig a Van de Graaffnál szerzett és ciklotronnál is hasznositható megfelelő eredményeink, tapasztalataink hasznosak. A leghasznosabb együttmüködésünk azonban a ciklotronunk kihasználására való felkészülés terén a finnországi turkui egyetemmel /Åbo Akademi/ kialakult kapcsolatunk. Ennek az egyetemnek a ciklotronja ugyanis ugyanolyan tipusu, ugyanabban a leningrádi intézetben készült, mint a miénk. A kiépitett együttmüködés következtében munkatársaink évek óta hosszu hónapokat dolgoznak ezen ciklotron mellett a finn kollégákkal együttmüködésben. Minden bizonnyal nem kell hosszabban bizonygatni, hogy milyen jelentősége volt számunkra annak, hogy évekkel a mi ciklotronunk müködésbe lépése előtt lényegében ugyanaz a ciklotron állt rendelkezésünkre Turkuban, hogy kipróbáljuk számos elképzelésünket és módszerünket a dozimetria területétől az ipari anyavizsgálatig.

MIÉRT JÓ NEKÜNK, HOGY LESZ CIKLOTRONUNK?

A "nekünk" alatt semmiképpen sem csak az ATOMKI-t és az ATOMKI munkatársait értem, hanem ennél sokkal tágabb kört - mondjuk - hazánkat és Debrecen számos intézményét, vállalatát, a tudományos, kulturális és gyakorlati feladatokat szem előtt tartva.

A ciklotron felhasználásait, alkalmazásait többször érintettük már e dolgozat folyamán. Próbáljunk most ezekre kicsit rendszeresebben utalni itt.

Azt aligha kell részletesebben bizonyitani, hogy egy olyan uj gyorsitó, amelyből pl. Finnországban kettő is müködik és amelynek nyalábenergiája, intenzitása, egyéb paraméterei lényegesen nagyobbak és másak, mint az eddig hazánkban rendelkezésre álló gyorsitók, uj lehetőségeket teremt a magfizikai és fizikai kutatások eredményes folytatására, annak a kulturának a továbbfejlesztésére, amelynek hazánkban és éppen városunkban komoly hagyományai vannak. Az a tény, hogy az uj ciklotron viszonylag kis gyorsitó a világon máshol müködő "gyorsitóberendezésekhez" képest, nem lehet az eredményes kihasználás akadálya. A tudományos kutatásban - a mi tapasztalataink szerint is - nem egyedül a "csucsmüszerek" döntik el az eredmény nagyságát, a kutatás élenjáró voltát. Igen nagy szerepe van a témaválasztásnak, az ötletnek és koncepciónak, amelyeken a konkrét kutatások alapulnak, továbbá a gyorsitóhoz csatlakozó kiegészitő berendezéseknek, amelyeknek szintén ötleteseknek, sőt lehetőség szerint egyedieknek kell lenniök. Az ATOMKI eddigi eredményei, tapasztalatai - nyugodtan mondhatjuk - e vonatkozásban garanciát jelentenek.

Ami a ciklotron interdiszciplináris és gyakorlati kihasználását illeti, itt is mondhatjuk, hogy az ATOMKI munkatársainak kutatási magatartása, eddigi tapasztalatai képezik a jó kiindulási alapot. A szóban forgó felhasználási területet három fő szektorra oszthatjuk. Ezek az anyagvizsgálat, az izotóptermelés és a besugárzások.

Az anyagvizsgálatot illetően a ciklotron az egyik legfontosabb nyomanalitikai eszköz napjainkban. Tudjuk, hogy a nyomszennyezőknek vagy egyáltalán a mikroösszetevőknek döntő szerepe lehet az egyes ipari alkalmazásoknál. Korunk egyik jellemzője a nyomelemek és szennyezők jelentőségének felismerése az élet számos területén. Gondoljunk csak a félvezető elektrónikára vagy fémek, fémfelületek finomötvözésére, bevonataira. De a nyomelemeknek nagy a jelentősége az orvosi és mezőgazdasági kutatásokban, továbbá a környezetvédelemben, sőt még a kriminológiában vagy a régészetben is. Látjuk, hogy itt és a továbbiakban sem célszerü az interdiszciplináris és kifejezetten gyakorlati alkalmazások szétválasztása. A ciklotronról, mint nyomanalitikai berendezésről még csak annyit, hogy - többféle nukleáris módszer nem egyszer kombinált alkalmazásával - gyakorlatilag az összes elemi összetevő roncsolásmentes kormeghatározására képes a legkülönbözőbb mintákban az olyan kis koncentrációk tartományában, mint 1 grammban egy milliárdod grammnyi összetevő, vagy még ennél is kisebb mennyiségü szennyezés.

Rádioaktiv izotóp nélkül aligha lehetne ma elképzelni nemcsak a tudományos kutatást /annak egészét tekintve/, de a gyakorlati élet különböző területeit sem /ma hazánkban több száz ipari és mezőgazdasági munkahelyen alkalmaznak rádioaktiv izotópokat/. A rádioaktiv izotópok egy nagy csoportja az un. pozitron sugárzók, amelyek bizonyos feladatok megoldásánál nem helyettesithetők másféle izotópokkal, gyakorlatilag csak ciklotronnál állithatók elő. Ezek közül a hosszabb felezési idejüeket eddig külföldről vettük, részben konvertibilis devizáért /ezek egy részének hazai előállitására is lehetőség fog

nyilni/. Másik részük azonban - és ezek között vannak biológiailag-orvosilag igen fontos izotópok - olyan rövid néhány perc, esetleg óra felezési idejüek, hogy azok külföldről való beszerzése gyakorlatilag lehetetlen. Igy a debreceni ciklotronnál olyan fontos kutatásokat, és orvosdiagnosztikai vizsgálatokat is el lehet végezni, amelyekre eddig hazánkban nem volt lehetőség. Itt jegyezzük meg, hogy a ciklotron épületén belül meghatározott helyiségek kifejezetten orvosi célokra szolgálnak és ezek kialakitása a Debreceni Orvostudományi Egyetemmel egyeztetve történt.

A ciklotronnal előállitott különböző besugárzások, igy a közvetve előállitott neutronokkal történő besugárzás nemcsak különböző anyagtudományi, biológiai stb. kutatásokat szolgál majd, de nagy lehet a genetikai, pontosabban a serkentési és mutációs hatása a vetőmagvaknál a mezőgazdasági gyakorlatban. Külön meg kell emlitenünk a rákos daganatok un. neutronterápiáját, amely bizonyos daganatok esetében ujabban egyre jobban előtérbe kerül. Talán még ennél is nagyobb azonban a jelentősége bizonyos iparágakban azoknak a kopásvizsgálatoknak /pl. gördülőcsapágyaknál, tengelyeknél stb./, amelyeket a vizsgálandó alkatrész ciklotronban történő besugárzásával kell kezdeni. Ennek hatására meghatározott mélységig a kivánt rádióaktiv izotóp létrejön az alkatrész anyagában, amelynek kopását azután a rádioaktiv sugárzás révén lehet vizsgálni. Ez utóbbi alkalmazás jelentőségét gördülőcsapágy gyárral rendelkező városunkban és járműgyártásban annyira érdekelt hazánkban bizonyára nem lehet eléggé hangsulyoznunk.

Ha tehát azt kérdezzük - széles értelemben véve -, hogy jó-e nekünk, jó-e ennek az országnak és ennek a városnak az, hogy féléven belül müködő ciklotron laboratóriumunk lesz, akkor a kérdésre nyugodt lelkiismerettel igennel felelhetünk.

Berényi Dénes

JEGYZETEK

1. Illyés Gyula: Magyarok, Nyugat Kiadó, Bp., 182. lap
2. A magyar fizika kezdeteiről, a debreceni és a sárospataki fizika oktatásról és kisérleti eszközökről számos helyen olvahsatunk. Pl. J.D. Bernal "A fizika fejlődése Einsteinig" c. könyve /Gondolat K., Bp. 1977/ függelékében /ifj. Gazda István/, illetve legujabban a következő két dolgozatban: "A kisérleti fizika tanitásának kezdetei Sárospatakon" /Katona Ferenc/, Fiz. Szemle, 32, 1982. 103-109; "Debrecen és a kisérleti fizika oktatásának magyarországi kezdetei" /Szabó Botond/, Fiz. Szemle, 32 /1982/ 171-177.
3. Kétségtelenül a szóban forgó korszak meghatározó egyénisége a fizika szempontjából Debrecenben Szalay Sándor, de meg kell emlitenünk a kitünő kisérleti kristályfizikust Gyulay Zoltánt, aki közvetlenül Szalay előtt néhány évig itt müködött, valamint Tarján Imrét, az MTA Matematikai és Fizikai Osztályának jelenlegi elnökét, aki szintén dolgozott itt rövid ideig a harmincas évek második felében. Ugyancsak nyeresége a debreceni fizikának Gáspár Rezső akadémikus, aki évtizedeken keresztül vezette és ma is vezeti az Elméleti Fizikai Tanszéket. Ugyancsak utalnunk kell Szalay kiemelkedő tanitványainak debreceni müködésére.
4. Szalay Sándor tevékenységére és az általa alapitott tudományos iskolára további részletek találhatOak pl. a Fizikai Szemle 1985. évi 1. számában. Ez a szám teljes egészében ennek a témának van szentelve.
5. Szimpozium a Ciklotronok Interdiszciplináris kihasználásáról a Fizikában, Kémiában, Biológiai-Orvosi Tudományokban és a Gyakorlatban, Debrecen, 1975. aug. 25-27.
6. Elektronfizikai Berendezések D.V. Jefremovról elnevezett Intézete, Leningrád /NIIEFA/.
7. Az 1978-as nyiregyházi IV. Magyar Magfizikus Találkozón tartott előadás a Fizikai Szemlében is megjelent: Berényi Dénes: A magyar ciklotron beruházás. Fiz. Szemle, 30 /1980/ 1. szám.
8. Pl. "Felkészules a debreceni U-103 ciklotron orvosi célu alkalmazására", tudományos ülés 1978. nov. 28-án /anyaga megjelent: ATOMKI Közl., 21 /1979/ 49-88/; "A ciklotron alkalmazásának egyes kérdései", tudományos

ülés 1981. máj. 21-én; "Neutron terápiás Szimpozion" nemzetközi részvétellel, 1981. okt. 12-én /anyaga megjelent: ATOMKI Közl. 24/1982/ 1-74/; Uray István: Az első magyar ciklotron orvosbiológiai alkalmazásai. Orvosi Hetilap 123 /1982/ 3021.

9. Pl. "Gyorsitók népgazdasági alkalmazása", müszaki tudományos tanácskozás 1979. nov. 23-án /anyaga megjelent: ATOMKI Közl., 22 /1980/ 1. Melléklet, továbbá az Akadémiai Kiadó "Az atomenergia- és magkutatás ujabb eredményei" sorozatának első köteteként is /1983/; "A debreceni ciklotron ipari alkalmazási lehetőségeinek áttekintése" /Ditrói Ferenc, Takács Sándor, Tárkányi Ferenc/, ATOMKI Riport X/1. /1985/.

10. Pl. Berényi Dénes: Mit jelent a tudomány és a gyakorlat igényei szempontjából a debreceni ciklotron? Magyar Tudomány, 1979. évi 5. számában; Mahunka Imre és Uray István: Mire használható a ciklotron? Élet és Tud., 33 /1978/ 1449-1451.

Hu ISSN 0231-3685

ATOMKI Riport X/23 (1985)

KLASZTERMODELLEK*

Kruppa András

az MTA Atommagkutató Intézete, Debrecen, Pf. 51, H-4001

1. Bevezetés
2. Egy egyszerű klasztermodell
3. Az oszcillátoros klasztermodell
4. A projekciós egyenlet
5. A rezonáló csoport módszer (RGM)
6. A generátor koordinátás módszer (GCM)
7. Az RGM és a GCM kapcsolata
8. Az ortogonalitási feltétel modellje (OCM)

1. Bevezetés

A mikroszkópikus klasztermodellek (MCM-ek) feltételezik, hogy a mag jól leírható a nem-relativisztikus Schrödinger-egyenlet segítségével

$$\left[\sum_{i=1}^{A} -\frac{\hbar^2}{2m}\Delta_{\vec{r}_i} + \sum_{i<j}^{A} V_{ij}(\vec{r}_i,\vec{r}_j)\right]\Psi(\vec{r}_1,\ldots,\vec{r}_A) = E\,\Psi(\vec{r}_1,\ldots,\vec{r}_A) \quad . \tag{1.1}$$

Ekkor az (1.1) egyenletből nyerhető A-test-hullámfüggvény segítségével - a feltevés szerint - a mag minden mérhető tulajdonsága származtatható lenne. Két nehézség azonban nyilvánvaló: először is a V_{ij} kéttest-kölcsönhatás nem ismeretes pontosan, másodszor pedig az (1.1) megoldása csak közelítőleg lehetséges. A különböző magmodellek lényegében szemléletes képeket tartalmazó közelítéseket adnak (1.1) megoldására. A hullámfüggvényt rendszerint több báziselem szuperpozíciójával adhatjuk meg. Egy állapot leírására az a modell a legalkalmasabb, amely a lehető legkevesebb báziselemmel képes kielégítő közelítést adni.

Az MCM egy olyan effektív V_{ij} kölcsönhatást feltételez, amely mutatja a telítettségi jelleget és nagyjából leírja az egyszerű szerkezetű könnyű magokat (d, α stb.).

A klasztermodell olyan kollektiv tipusú állapotok leírására alkalmas, amelyekben a nukleonok koherens mozgása önállóságukat nagyrészt megőrző klaszterekét (nukleoncsomókat) hoz létre. Az MCM-ben a mag hullámfüggvényét olyképpen választjuk meg, hogy tükrözze e klaszterizációt. Nem szabad azonban elfeledni, hogy a klaszterkorreláció csupán mint valószínűség jön létre. Az atommag klaszterállapota olyan állapot, amely jól leírható az MCM által használt hullámfüggvénnyel.

Az MCM jellemzői a következőképpen foglalhatók össze: 1.mikroszkopikus megfogalmazás, amely a klaszterkorrelációt veszi figyelembe; 2. a Pauli-elvet maradéktalanul betartja; 3. a tömegközéppont mozgását egzaktul kezeli; 4. egységes módon írja le a szórási és kötött állapotokat; 5. variációs

---

* Az 1985. januári Magfizikai Téli Iskola előadásának anyaga

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

elven alapszik, ezért az eredmények pontossága javítható.

Az egyszerű klaszter modellek jellemzője az, hogy bár a mikroszkopikus jelleget feladják (ezáltal nagyon egyszerűsödnek), de az MCM legfontosabb jellemzőjét, a Pauli-elv alkalmazását igyekeznek közelítőleg figyelembe venni. Ilyen modell a Buck-féle lokális α-klaszter-modell, amelyet a 2. részben ismertetek és az ortogonalitási feltétel Saito-féle modellje (OCM), amelyet a 8. fejezet tárgyal.

A 3. részben az oszcillátoros klasztermodellt azért mutatom be, hogy a Pauli-elv megkövetelte antiszimmetrizálás hatását szemléltessem.

A mikroszkopikus rezonálócsoport- és generátorkoordinátás módszert az 5. és 6., a két módszer kapcsolatát pedig a 7. fejezet ismerteti.

2. Egy egyszerű klasztermodell

Mielőtt az MCM-et bemutatnám, szeretném a klasztermodell alapgondolatának életrevalóságát érzékeltetni. E célból most Brian Buck és munkatársai egyszerűsített modelljét ismertetem, amely a klaszterek belső mozgását explicite nem veszi be a leírásba. Az alaphipotézis az, hogy két klaszter egymás körül mozogva képes létrehozni egy (gyengén) kötött vagy egy éles rezonanciaállapotot. Relativ mozgásukat egy mély lokális potenciál határozza meg.

Meg kell oldani tehát a relativ mozgásra vonatkozó

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu}\Delta_{\vec{R}} + V(\vec{R})\right] F_{NL}(\vec{R}) = E_R F_{NL}(\vec{R}) \qquad (2.1)$$

Schrödinger-egyenletet, ahol N a fő-, L pedig a pályamomentum-kvantumszám. A klaszterállapotok gyakran csoportokba, rotációs spektrumszerű sávokba rendeződnek. Feltételezzük, hogy (2.1) azon állapotai tartoznak egy sávba, amelyekre $Q=2N+L$ globális kvantumszám azonos értéket vesz fel.

A Q értékét Buckék a következő meggondolással határozták meg. A héjmodell szellemében a nagyobbik klasztert tekintsük egy törzsnek, a kisebbiket pedig a valencianukleonoknak. A valencianukleonok a törzs Fermi-felülete fölötti alacsonyan fekvő állapotokat töltik be. Ezen egyrészecske-állapotok kvantumszámait jelöljük n_i, ℓ_i-vel. Egy ilyen pályán lévő nukleon $2n_i + \ell_i$ gerjesztési kvantummal rendelkezik, azaz oszcillátoros héjmodellben $(2n_i+\ell_i+3/2)\hbar\omega$ energiája van. Ha feltesszük, hogy a valencianukleonok egy klaszterbe tömörülnek, akkor ésszerű feltételezni, hogy e klaszter alapállapotban van. Négynél nem több nukleonos klaszterekre ($N_c \leq 4$) ez azt jelenti, hogy a héjmodellpálya összes gerjesztési kvantuma a törzs-klaszter relatív mozgásra fordítódik, tehát

$$Q = \sum_{i=1}^{N_c} (2n_i + \ell_i) \quad . \qquad (2.2)$$

Mivel a valencianukleonok n_i és ℓ_i kvantumszámainak a Pauli-elvet be kell tartaniuk, a (2.2) formula ezt az előírást valahogyan a Buck-modellbe is átmenti.

A klaszter-klaszter kölcsönhatás leírására használt potenciált megkaphatjuk az ún. "folding modell" segítségével, azaz a

$$V(\vec{R}) = V_0 \int d\vec{R}' d\vec{R}'' \, \rho_A(\vec{R}') f(\vec{R}-\vec{R}'+\vec{R}'') \rho_B(\vec{R}'') \qquad (2.3)$$

képletből, ahol ρ_A és ρ_B a klaszterek sűrűségfüggvénye és $f(\vec{r}_{12})$ a választott nukleon-nukleon kölcsönhatás. A számítások során a potenciál V_0 erősségét tekinthetjük illesztendő paraméternek. A többi paramétert úgy kell lerögzíteni, hogy a klaszterek sugarát jól kapjuk meg. A "folding" eljárással nyert potenciál sokkal jobban hasonlít egy Gauss-függvény-

hez, mint az optikai modellben megszokott Saxon -Woods-alakhoz. A Buck-féle modellben ezért szokásos $V(\vec{R})$-et Gauss-függvénnyel vagy más hasonló módon parametrizálni. Azokban az esetekben, amikor a klaszterek közül legalább az egyiknek nem zero spinje van, a tisztán centrális lokális klaszter-klaszter kölcsönhatást ki kell egészíteni spin-pálya és tenzor kölcsönhatással.

Tekintsük most már az eredményeket. A ^{20}Ne magot vizsgálva a természetes klaszter felbontás a következő: $^{20}Ne = {}^{16}O + \alpha$. Az α részecskét alkotó nukleonok számára legalacsonyabb szabad állapotok az 1s-Od héjban vannak, tehát (2.2)-ből Q=8 következik. A Q=8-cal jellemzett sávban tehát $J^{\pi}=L^{\pi}=0^{+}$, 2^{+}, 4^{+}, 6^{+} és 8^{+} kvantumszámú állapotok találhatók. Ezt a sávot azonosíthatjuk a ^{20}Ne alapállapoti sávjával. Ha 3 részecske van az 1s-Od héjban és 1 részecske az Of-1p héjban, akkor a Q=9. Ezen sáv állapotai 1^{-},3^{-},5^{-},7^{-},9^{-} kvantumszámúak. A nyert nívósémákat és más mérhető fizikai mennyiségekre kapott eredményeket ld. [1] -ben. Az egyezések az egyszerű modellhez képest igen jónak mondhatók.

További számolások igazolják, hogy a Op héj záródása környékén levő más magok is jól leírhatók a Buck-féle modell keretében. Rotációs spektrum alakú sávok azonban megfigyelhetők az sd héj záródása környékén levő magoknál is. A Buck-féle klasztermodellt alkalmazta Lovas és Pál a ^{44}Ti-re és a $^{40}Ca = {}^{36}Ar + \alpha$-ra. A ^{44}Ti-ben a ^{40}Ca törzs felett levő 4 klaszternukleon az Of héjban foglalhat helyet, így Q=12. Az eredmények [2] majdnem olyan jók, mint a Op héj környéki magokra

3. Az oszcillátoros klasztermodell

3.1 A modell hullámfüggvénye

Az oszcillátoros klasztermodell kiindulópontja a független részecskés oszcillátor-héjmodell. A Hamilton-operátor tehát a következő

$$H_0 = \sum_{i=1}^{A} \frac{\vec{p}_i^{\,2}}{2m} + \sum_{i=1}^{A} \frac{1}{2} m\omega^2 \vec{r}_i^{\,2} \quad . \tag{3.1}$$

Hogy (3.1)-ben a héjmodellbeli átlagpotenciál-térnek az oszcillátorpotenciált választottuk, annak több oka van: 1. a (3.1) operátorral felírt A-test Schrödinger-egyenlet egzaktul megoldható; 2. az oszcillátorpotenciál könnyű magokra jól közeliti az "igazi" átlagpotenciált; 3. (3.1) egzaktul olyan formára transzformálható, amelyben klaszter-koordináták szerepelnek; 4. a tömegközéppont mozgását korrektül vehetjük figyelembe.
Mivel a (3.1) operátor független egyrészecske-oszcillátorok összege, a sajátfüggvény

$$\Phi_S(\{nlm\}\{\vec{r}_i\}) = \prod_{i=1}^{A} \phi_{n_i l_i m_i}(\vec{r}_i) \tag{3.2}$$

a sajátérték pedig

$$E(\{nl\}) = \sum_{i=1}^{A} (2n_i + l_i + 3/2)\hbar\omega \quad . \tag{3.3}$$

A továbbiakban azonos típusú mennyiségek együttesét kapcsos zárójelbe tett szimbólummal jelöljük, tehát $\{\vec{r}_i\}$ jelentése pl. $\vec{r}_1, \vec{r}_2, \ldots, \vec{r}_A$.
A (3.2) egyenletben $\phi_{nlm}(\vec{r})$ a szokásos n, l és m kvantumszámokkal jellemzett egyrészecske-oszcillátorfüggvényt jelöli.

Mivel fermionokból álló rendszerünk van, a (3.2) hullámfüggvényt még antiszimmetrizálnunk kell. Legyen

$$\hat{\Phi}_S(\{nlm\}\{\vec{r}_i\}) = \mathcal{A}\left(\Phi_S(\{nlm\}\{\vec{r}_i\})\right) \tag{3.4}$$

ahol az $\mathcal{A}$ antiszimmetrizáló operátor definiciója

$$\mathcal{A} = \frac{1}{\sqrt{A!}} \sum_{i=1}^{A} \varepsilon_\alpha P_\alpha \quad . \tag{3.5}$$

Itt P_α az α permutációhoz tartozó felcserélési operátor, és ε_α az α permutáció paritása.

A (3.4)-gyel adott hullámfüggvény egy héjmodell-konfigurációnak Slater-determinánsa. Az antiszimmetrikus A-test hullámfüggvények terében a (3.4) függvények teljes rendszert alkotnak, tehát a rendszer igazi hullámfüggvénye kifejthető a (3.4) függvények szerint. Ha azonban nagyon sok konfiguráció kell egy adott állapot jó leírásához, az azt jelenti, hogy a (3.4) bázis nem a legalkalmasabb az adott állapothoz. Célszerű tehát olyan bázisfüggvényeket választani, amelyek közül egy - vagy néhánynak a lineáris kombinációja - már jó leírást ad.

Egy alternativ bázis felkutatása érdekében új koordináták bevezetésével bontsuk fel a rendszert önkényesen K számú klaszterre. Minden a_k, $(k=1,\dots,K)$ klaszter tartalmazzon a_k számú nukleont. Vezessük be a klaszterek Hamilton-operátorát

$$H_{a_k} = \sum_{i \in a_k} \left(\frac{\vec{p}_i^{\,2}}{2m} + \frac{1}{2} m\omega^2 \vec{r}_i^{\,2} \right) \tag{3.6}$$

(3.6) felhasználásával (3.1)

$$H_0 = \sum_{i=1}^{K} H_{a_i} \tag{3.7}$$

módon írható. Foglalkozzunk először a klaszter Hamilton-operátorával! Kollektiv koordinátaként vezessük be a klaszterek Jacobi-koordinátáit:

$$\begin{aligned} \hat{\vec{r}}_1^{\,k} &= \vec{r}_1^{\,k} - \vec{r}_2^{\,k} \\ \hat{\vec{r}}_2^{\,k} &= (\vec{r}_1^{\,k} + \vec{r}_2^{\,k})/2 - \vec{r}_3^{\,k} \\ \hat{\vec{r}}_{a_k}^{\,k} &= \vec{R}_k = \sum_{i \in a_k} \vec{r}_i / a_k \end{aligned} \quad . \tag{3.8}$$

Az $a_k - 1$ számú belső klaszterkoordinátát összefoglalóan $\vec{\xi}_k$-val fogjuk jelölni, $\vec{R}_k$ pedig a klaszter tömegközéppontját jelenti. Az $\hat{r}_i^{\,k}$ -hoz $(i=1,\dots,a_k-1)$ kanonikusan konjugált impulzus $\hat{p}_i^{\,k}$ az $\vec{R}_k$-hoz rendelt pedig $\hat{P}_k$ legyen. Megmutatható, hogy (3.6) az új koordinátákban így írható

$$H_{a_k} = H'_{a_k} + \frac{\hat{P}_k^2}{2ma_k} + \frac{1}{2} m a_k \omega^2 \vec{R}_k^{\,2} \tag{3.9}$$

ahol

$$H'_{a_k} = \sum_{i=1}^{a_k-1} \frac{\hat{p}_i^{\,k\,2}}{2m_i} + \frac{1}{2} m_i \omega^2 \hat{r}_i^{\,k\,2} \tag{3.10}$$

és

$$m_i = i\,m/(i+1) \quad . \tag{3.11}$$

Tehát az A db azonos ω frekvenciájú azonos tömegű független oszcillátor Hamilton-operátorának (3.1) összege kollektiv koordináták bevezetésével átírható ugyanolyan ω frekvenciájú, de különböző tömeghez tartozó független oszcillátorok összegévé:

$$H_0 = \sum_{i=1}^{K} \left(H'_{a_k} + \frac{\hat{P}_k^2}{2ma_k} + \frac{1}{2} m\omega^2 a_k \vec{R}_k^{\,2} \right) \tag{3.12}$$

ahol H'_{a_k} -t (3.10) adja meg. A kollektiv koordinátákat tartalmazó (3.12) operátor antiszimmetrizált sajátfüggvényei így írhatók

$$\hat{\Phi}_C(\{\vec{R}_i\}\{\vec{\xi}_i\}) = \mathcal{A}\left(\prod_{k=1}^{K} \hat{\Phi}_{a_k}(\vec{\xi}_k)\,\phi_{N_k L_k M_k}(\vec{R}_k)\right) \tag{3.13}$$

a klaszterek belső mozgását pedig a

$$\hat{\Phi}_{a_k}(\{\vec{\xi}_k\}) = \mathcal{A}_{a_k}\left(\prod_{i=1}^{a_k-1} \phi_{n_i^k l_i^k m_i^k}(\vec{r}_i^k)\right) \tag{3.14}$$

hullámfüggvény írja le. Itt $\mathcal{A}_{a_k}$ az a_k klaszterhez tartozó antiszimmetrizáló operátor. A (3.13) függvényhez tartozó energia-sajátérték pedig

$$E(\{n_i^k l_i^k\}\{N_i L_i\}) = \sum_{k=1}^{K}\left[2N_k + L_k + 3/2 + \sum_{i=1}^{a_k-1}(2n_i^k + l_i^k + 3/2)\right]\hbar\omega \quad . \tag{3.15}$$

A (3.13)-mal definiált függvényeket nevezzük oszcillátoros klaszterhullámfüggvényeknek.

Mivel a (3.12) operátor a (3.1) operátor ekvivalens átírása, a (3.13) függvényrendszer, hasonlóan a (3.4)-hez, teljes rendszert alkot. A mag antiszimmetrikus hullámfüggvényét tehát sorbafejthetjük a (3.13) függvények szerint is. Az, hogy a kollektiv koordinátákat tartalmazó (3.13) vagy az egyrészecske koordinátákat tartalmazó (3.4) függvényrendszer használatával tudunk egy adott állapotot könnyebben leírni, a magerőktől függ.

3.2. A kollektiv és az egyrészecskés tipusú állapotok közötti összefüggés. Az antiszimmetrizálás hatása

Határozzuk most meg, hogy milyen összefüggés van a (3.13) oszcillátoros klaszterhullámfüggvények és a (3.4) héjmodell-függvények között. Mivel mind a két függvényrendszer teljes, így bármelyikük kifejezhető a másik függvényrendszerbe tartozó függvények lineáris kombinációjaként. A lineáris kombinációban résztvevő függvények száma azonban véges, mivel ha a kifejtendő függvény a (3.1) vagy a vele egyenlő (3.12) operátor E energiasajátértékéhez tartozik akkor a sorfejtésben is csak az E sajátértékhez tartozó függvények vehetnek részt. Azt kapjuk tehát, hogy

$$\hat{\Phi}_C(\{\vec{R}_i\}\{\vec{\xi}_i\}) = \sum_{\alpha_s} C_{\alpha_c \alpha_s}\,\hat{\Phi}_S(\{\vec{r}_i\}) \tag{3.16}$$

ahol α_c a $\hat{\Phi}_C$ és α_s a $\hat{\Phi}_S$ összes kvantumszámait jelöli: $\alpha_c \equiv \{n_i^k l_i^k m_i^k N_k L_k M_k\}$ és $\alpha_s \equiv \{n_i l_i m_i\}$. A (3.16) jobb oldala véges összeg, ugyanis az előzőek szerint a (3.3)-mal és a (3.15)-tel adott energiák egyenlők, tehát

$$E(\{n_i^k l_i^k\}\{N_i L_i\}) = E(\{n_i l_i\}) \quad . \tag{3.17}$$

A továbbiakban foglalkozzunk kétklaszteres konfigurációkkal. Az n_A számú nukleont tartalmazó klasztert A -nak, az n_B számú nukleont tartalmazó klasztert B -nek nevezzük. Az $\vec{R}_A$ és $\vec{R}_B$ klaszter tömegközépponti koordináták helyett vezessük be a klaszterek közötti relativ távolságot és a teljes tömegközéppont koordinátáját,

$$\begin{aligned} \vec{R} &= \vec{R}_A - \vec{R}_B \\ \vec{R}_{cm} &= (A\vec{R}_A + B\vec{R}_B)/(A+B) \end{aligned} \tag{3.18}$$

az ezeknek megfelelő impulzusokat jelöljük $\vec{P}$ -vel, ill. $\vec{P}_{cm}$ -mel. A (3.12) operátor ekkor így írható

$$H_o = H_o' + \vec{P}_{cm}^2/2m(A+B) + \frac{1}{2}m(A+B)\omega^2\vec{R}_{cm}^2 + \vec{P}^2(A+B)/2mAB + \frac{1}{2}m\frac{AB}{A+B}\omega^2\vec{R}^2 \qquad (3.19)$$

H_o' csak a $\vec{\xi}_A$ és $\vec{\xi}_B$ belső koordinátákat tartalmazza. A (3.19) operátor sajátfüggvényeit így írhatjuk

$$\hat{\Phi}_C(\{\vec{\xi}_i\},\vec{R},\vec{R}_{cm}) = \mathcal{A}\left(\hat{\Phi}_A(\{\vec{\xi}_A\})\,\hat{\Phi}_B(\{\vec{\xi}_B\})\,F_{NLM}(\vec{R})\,Z_{N_CL_CM_C}(\vec{R}_{cm})\right) \qquad (3.20)$$

ahol tehát $\hat{\Phi}_A$ és $\hat{\Phi}_B$ a klaszterek belső állapotát, $F_{NLM}(\vec{R})$ a klaszterek relativ mozgását irja le, $Z_{N_CL_CM_C}(\vec{R}_{CM})$ pedig a tömegközéppont mozgásának leírására szolgáló oszcillátor hullámfüggvény. A továbbiakban néha a rövidség kedvéért elhagyjuk az egyes függvények kvantumszámait és argumentumait.

Az oszcillátoros klaszterhullámfüggvények segítségével kvalitativ kijelentéseket tehetünk az atommagok energiaszintjeire. A ^{8}Be magnak a legalacsonyabb héjmodell konfigurációja $(0s)^4(0p)^4$ ez $4\hbar\omega$ gerjesztési energiát jelent. Ha a ^{8}Be-ot két alapállapotú α -részecskéből építjük fel, a rendszer oszcillátoros klaszterhullámfüggvénye

$$\hat{\Phi}_{^8Be} = \mathcal{A}\left(\hat{\Phi}_\alpha^1\,\hat{\Phi}_\alpha^2\,F_{NLM}\,Z\right) \qquad (3.21)$$

ahol az α belső állapotát leíró függvények

$$\hat{\Phi}_\alpha^1 = \mathcal{A}_\alpha\left[\exp\{-a\sum_{i=1}^{4}(\vec{r}_i-\vec{R}_\alpha^1)^2/2\}\alpha_1\nu_1\alpha_2\pi_2\beta_3\nu_3\beta_4\pi_4\right]$$
$$\hat{\Phi}_\alpha^2 = \mathcal{A}_\alpha\left[\exp\{-a\sum_{i=5}^{8}(\vec{r}_i-\vec{R}_\alpha^2)^2/2\}\alpha_5\nu_5\alpha_6\pi_6\beta_7\nu_7\beta_8\pi_8\right]. \qquad (3.22)$$

Itt α -val és β -val a két spintfüggvényt, ν -vel és π -vel a két izospinfüggvényt jelöltük, a pedig az oszcillátorpotenciál paramétere.

Az α -klaszterek relativ mozgásának leírására szolgáló függvény kvantumszámait a (3.17) egyenlet korlátozza, a $(0s)^4(0p)^4$ héjmodellkonfigurációt a $2N+L = 4$ megszorításnak eleget tevő $L=0,2,4$ kvantumszámú (3.21) tipusú degenerált függvényekből lehet kikombinálni. A (3.1) operátornál realisztikusabb operátort használva ezek az állapotok felhasadnak. Klaszszikus okoskodás szerint a centrifugális megnyúlás miatt a nívók sorrendje: $0^+, 2^+, 4^+$, ami a kisérletekkel összhangban van.

Az antiszimmetrizáció szembetűnő hatása az, hogy egészen eltérő hullámfüggvényeket nagyon hasonlóvá tesz, s ezzel szemléletünket próbára teszi. Pl. a (3.21) klaszterhullámfüggvény $N=0$, $L=4$ és $M=4$ kvantumszámokkal azonosan egyenlő egyetlen antiszimmetrizált $(0s)^4(0p)^4$ héjmodell-hullámfüggvénnyel, annak ellenére, hogy az antiszimmetrizáció nélküli klaszter- és héjmodellfüggvények távolról sem azonosak. Az $N=2, L=M=0$ választás esetén viszont (3.21) 19 különböző héjmodellállapot szuperpozíciója lesz. Ezen két példából is levonható az a tanulság, hogy a klasztermodell nemcsak kollektiv, hanem egyben egyrészecske-tipusú állapotokat is leírhat, továbbá, hogy bizonyos esetekben alkalmazásuk előnyökkel járhat.

Az antiszimmetrizáció hatását illusztrálja a következő példa is. A ^{6}Li -ot leírhatjuk egyrészt a

$$\hat{\Phi}^{I.}_{^6Li} = \mathcal{A}\left(\hat{\Phi}_{^3He}(\vec{\xi}_{^3He})\,\hat{\Phi}_t(\vec{\xi}_t)\,F^{I.}_{NLM}(\vec{R}_{^3He}-\vec{R}_t)\,Z\right) \tag{3.23}$$

másrészt a

$$\hat{\Phi}^{II.}_{^6Li} = \mathcal{A}\left(\hat{\Phi}_\alpha(\frac{1}{2}\vec{\xi}_\alpha)\,\hat{\Phi}_d(\frac{1}{2}\vec{\xi}_d)\,F^{II.}_{NLM}(\vec{R}_\alpha-\vec{R}_d)\,Z\right) \tag{3.24}$$

hullámfüggvénnyel. Szemléletesen szólva az első ^3He+t, míg a második $\alpha+d$ tipusú klaszterizációt ír le. A belső klaszter hullámfüggvények legyenek (3.22) alakúak. Éljünk pl. az $N=0, L=M=2$ választással (3.24)-ben és (3.25)-ben. A nem antiszimmetrizált függvények nyilvánvalóan nem egyenlőek, de bebizonyítható, hogy az antiszimmetrizáció után a (3.24) és (3.25) függvények azonosan egyenlők lesznek.

Hangsúlyoznunk kell tehát, hogy az antiszimmetrizáció alapvetően befolyásolja a hullámfüggvény tulajdonságait. Ezért mindig fenntartással kell fogadni a nem antiszimmetrizált hullámfüggvény által sugallt szemléletes fizikai képet.

4. A projekciós egyenlet

A klasztermodellek ismertetését most megszakítjuk, és egy általános módszert fogunk ismertetni, amely alkalmas a Schrödinger-egyenlet közelítő megoldására. A különböző klasztermodellek mozgásegyenleteinek felírása ezen fejezet eredménye alapján igen egyszerűvé válik.

A $H|\Psi\rangle = E|\Psi\rangle$ Schrödinger-egyenletnek a $|\Psi\rangle$ hullámfüggvény akkor és csak akkor a megoldása, ha eleget tesz a

$$\langle\delta\Psi|\,H-E\,|\Psi\rangle = 0 \tag{4.1}$$

projekciós egyenletnek. A bizonyítás mindkét irányban triviális.
A közelítő módszer lényege az, hogy a (4.1) egyenletet csak egy adott függvényhalmazon fogjuk tekinteni, nem pedig a teljes Hilbert-téren. Azt a függvényhalmazt, amelyen a (4.2) egyenletet meg akarjuk oldani, a következő alakba írható függvények alkotják

$$|\Psi_t\rangle = \sum_\lambda c_\lambda\,|\eta_\lambda\rangle + \sum_\tau \int d\alpha_\tau\,|\Phi_\tau(\alpha_\tau)\rangle\,f_\tau(\alpha_\tau) \tag{4.2}$$

ahol η_λ és $|\Phi_\tau(\alpha_\tau)\rangle$ ismert bázisfüggvény, a c_λ és az $f_\tau(\alpha_\tau)$ pedig változik. A (4.2)-ben szereplő c_λ -t diszkrét variációs paraméternek, $|\Phi_\tau\rangle$ -t generátorfüggvénynek, $f_\tau(\alpha_\tau)$ -t pedig súlyfüggvénynek nevezzük. A (4.2) tipusú próbafüggvény lényeges sajátsága az, hogy mind folytonos, mind diszkrét variációs paramétereket tartalmaz. Hangsúlyozni kell, hogy az α_τ nem dinamikai koordináta, hanem csak egy folytonos paraméter. A bázisfüggvényektől nem követeljük meg az ortogonalitást, de azt elvárjuk, hogy lineárisan függetlenek legyenek.

A projekciós egyenletet úgy oldjuk meg, hogy a

$$|\delta\Psi_t\rangle = \sum_\lambda \delta c_\lambda\,|\eta_\lambda\rangle + \sum_\tau \int d\alpha_\tau\,|\Phi_\tau(\alpha_\tau)\rangle\,\delta f_\tau(\alpha_\tau) \tag{4.3}$$

képletet (4.1)-be behelyettesítjük:

$$\sum_{\lambda'} \langle \eta_\lambda | H-E | \eta_{\lambda'} \rangle C_{\lambda'} + \sum_{\tau'} \int d\alpha_{\tau'} \langle \eta_\lambda | H-E | \Phi_{\tau'}(\alpha_{\tau'}) \rangle f_{\tau'}(\alpha_{\tau'}) = 0$$

$$\sum_{\lambda'} \langle \Phi_\tau(\alpha_\tau) | H-E | \eta_{\lambda'} \rangle C_{\lambda'} + \sum_{\tau'} \int d\alpha_{\tau'} \langle \Phi_\tau(\alpha_\tau) | H-E | \Phi_{\tau'}(\alpha_{\tau'}) \rangle f_{\tau'}(\alpha_{\tau'}) = 0 \quad . \qquad (4.4)$$

A (4.4) csatolt egyenletrendszerben szereplő mátrixok, függvények és integrál-magfüggvények nem mások, mint a Hamilton- és az egységoperátor mátrixelemei a báziselemek között. Könnyen beláthatjuk azt a fontos tulajdonságot, hogy különböző E_k és E_e energiákhoz tartozó ψ_t^k és ψ_t^e megoldásai (4.4)-nek ortogonálisak $\langle \psi_t^k | \psi_t^e \rangle = \delta_{ke}$ és $\langle \psi_t^e | H | \psi_t^k \rangle = E_e \delta_{ek}$ feltéve, hogy a ψ_t^k és ψ_t^e megoldások normáltak.

5. A rezonálócsoport-módszer (RGM)

5.1. Az RGM bázisfüggvény

A Wheeler által a 30-as években bevezetett rezonálócsoport-módszer a MCM-ek egy változata, melyet a bázis megválasztása specifikál.

Az RGM bázisfüggvénye a következő:

$$\hat{\Phi}_{\vec{R}}(\{\vec{r}_i\}) = \mathcal{A}' \left(\hat{\Phi}_A(\{\vec{\xi}_{3A}\}) \hat{\Phi}_B(\{\vec{\xi}_{3B}\}) \delta(\vec{R}_{12} - \vec{R}) Z(\vec{R}_{cm}) \right) \qquad (5.1)$$

ahol $\hat{\Phi}_A$ és $\hat{\Phi}_B$ az A és B szabad klaszterek belső állapotának (csak belső koordinátákat tartalmazó) transzlációinvariáns normált antiszimmetrizált hullámfüggvénye, Z a tömegközéppont mozgását leíró tetszőleges normálható hullámfüggvény, $\vec{R}_{12}$ a klaszterek tömegközéppontjának relativ távolsága $\vec{R}$ a folytonos variációs paraméter és $\mathcal{A}'$ a klaszterek között antiszimmetizáló operátor $\mathcal{A}' = (A!B!/(A+B)!)^{1/2} \mathcal{A}_{12}$ és $\mathcal{A}_{12} = \sum_\alpha{}' \varepsilon_\alpha P_\alpha$. A $\sum'$ az alappermutációra, valamint azokra a permutációkra való összegzést jelöli, amelyek tartalmaznak klaszterek közötti részecskecserét.

Ha az (5.1) nem tartalmazná az $\mathcal{A}'$ antiszimmetrizáló operátort, akkor az (5.1) hullámfüggvény olyan rendszert írna le, amelyben az A és B klaszterek tömegközéppontja egymástól $\vec{R}$ távolságra van. Noha az antiszimmetrizálás után ugyanez már nem mondható el, az (5.1) hullámfüggvény mégis kifejezi azt az elképzelésünket, hogy a mag az A és a B klaszterekből tevődik össze.

Az (5.1) bázisfüggvényeket használva a 4. fejezet szellemében az RGM próbahullámfüggvénye a következő:

$$\hat{\Psi}_{RGM}(\{\vec{r}_i\}) = \int d\vec{R} \; \hat{\Phi}_{\vec{R}}(\{\vec{r}_i\}) F(\vec{R}) \qquad (5.2)$$

vagy átalakítva így írható

$$\hat{\Psi}_{RGM}(\{\vec{r}_i\}) = \mathcal{A}' \left(\hat{\Phi}_A(\{\vec{\xi}_{3A}\}) \hat{\Phi}_B(\{\vec{\xi}_{3B}\}) F(\vec{R}_{12}) Z(\vec{R}_{cm}) \right) \quad . \qquad (5.3)$$

Az (5.3)-as kifejezés a (3.20) oszcillátoros klaszterhullámfüggvénytől abban különbözik, hogy a relatív mozgás $F(\vec{R}_{12})$ hullámfüggvényét most a projekciós egyenlet megoldásával határozhatjuk meg. Láthatjuk, hogy a (3.20) az (5.3) próbafüggvény egy speciális esete.

5.2. Az RGM egyenlet

A relativ mozgás hullámfüggvényét meghatározó egyenlet (4.4)-nek megfelelően

$$\int d\vec{R}' \left(H(\vec{R},\vec{R}') - E\, N(\vec{R},\vec{R}') \right) F(\vec{R}') = 0 \qquad (5.4)$$

ahol az (5.4) egyenlet magfüggvényei a következők:

$$H(\vec{R},\vec{R}') = \langle \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \delta(\vec{R}-\vec{R}_{12}) \mathcal{Z} | H | \mathcal{A}' (\hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \delta(\vec{R}'-\vec{R}_{12}) \mathcal{Z}) \rangle$$

$$N(\vec{R},\vec{R}') = \langle \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \delta(\vec{R}-\vec{R}_{12}) \mathcal{Z} | \mathcal{A}' (\hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \delta(\vec{R}'-\vec{R}_{12}) \mathcal{Z}) \rangle \quad . \qquad (5.5)$$

(5.5) levezetésénél felhasználtuk, hogy a Hamilton-operátor felcserélhető $\mathcal{A}'$ -vel.

Vizsgáljuk most meg az (5.5) egyenlet szerkezetét. Ennek érdekében bontsuk fel az $\mathcal{A}_{12}$ operátort két részre $\mathcal{A}_{12} = 1 + \mathcal{A}'_{12}$. Világos, hogy a $H(\vec{R},\vec{R}')$ és $N(\vec{R},\vec{R}')$ két tag összege lesz:

$$H(\vec{R},\vec{R}') = H_D(\vec{R},\vec{R}') + H_E(\vec{R},\vec{R}')$$

$$N(\vec{R},\vec{R}') = N_D(\vec{R},\vec{R}') + N_E(\vec{R},\vec{R}') \qquad (5.6)$$

ahol a direkt kernelek definiciója

$$\begin{Bmatrix} H_D(\vec{R},\vec{R}') \\ N_D(\vec{R},\vec{R}') \end{Bmatrix} = \langle \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \delta(\vec{R}-\vec{R}_{12}) \mathcal{Z} | \begin{Bmatrix} H \\ 1 \end{Bmatrix} | \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \delta(\vec{R}'-\vec{R}_{12}) \mathcal{Z} \rangle \qquad (5.7)$$

a kicserélődési kernelek pedig így írhatók:

$$\begin{Bmatrix} H_E(\vec{R},\vec{R}') \\ N_E(\vec{R},\vec{R}') \end{Bmatrix} = \langle \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \delta(\vec{R}-\vec{R}_{12}) \mathcal{Z} | \begin{Bmatrix} H \\ 1 \end{Bmatrix} | \mathcal{A}'_{12} (\hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \delta(\vec{R}'-\vec{R}_{12}) \mathcal{Z}) \rangle \quad . \qquad (5.8)$$

Alakítsuk tovább a direkt kerneleket! Tegyük fel, hogy $\langle \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \mathcal{Z} | \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \mathcal{Z} \rangle_{\vec{R}_{12}} = 0$ ahol a kethez írt $\vec{R}_{12}$ index azt jelöli, hogy integrálni kell az összes változóra kivéve $\vec{R}_{12}$ -öt. Akkor (5.7)-ből azt kapjuk, hogy $N_D(\vec{R},\vec{R}') = \delta(\vec{R}-\vec{R}')$. A $H_D(\vec{R},\vec{R}')$ is explicitebb formát ölt, ha a mag (1.1) Hamilton-operátorát a következő alakba írjuk: $H = H_A + H_B + H_{AB}$, ahol H_A és H_B az A és B klaszterek belső Hamilton-operátora, és H_{AB} a klaszterek relatív mozgását meghatározó operátor, $H_{AB} = -\hbar^2 \Delta_{\vec{R}}/2\mu + V_{AB}$, ahol V_{AB} a klaszterek közötti kölcsönhatás operátora $V_{AB} = \sum_{i \in A} \sum_{j \in B} V_{ij}(\vec{r}_i - \vec{r}_j)$, és μ a klaszterek redukált tömege. Vezessük be a H_A és H_B belső Hamilton-operátorok átlagértékét, $E_A = \langle \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \mathcal{Z} | H_A | \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \mathcal{Z} \rangle$, $E_B = \langle \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \mathcal{Z} | H_B | \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \mathcal{Z} \rangle$, továbbá a klaszterek között ható ún. direkt "folding" kölcsönhatást

$$V_D(\vec{R}_{12}) = \langle \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \mathcal{Z} | V_{AB} | \hat{\Phi}_A \hat{\Phi}_B \mathcal{Z} \rangle_{\vec{R}_{12}} \quad . \qquad (5.9)$$

Akkor az (5.7)-beli direkt Hamilton-kernel így írható:

$$H_D(\vec{R},\vec{R}') = \left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta_{\vec{R}} + V_D(\vec{R}) + E_A + E_B \right] \delta(\vec{R}-\vec{R}') \quad . \qquad (5.10)$$

Az (5.4) egyenlet a direkt kernelekre kapott formulák figyelembevételével így írható

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu}\Delta_{\vec{R}} + V_D(\vec{R}) - E'\right]F(\vec{R}) + \int d\vec{R}'\, K(\vec{R},\vec{R}')F(\vec{R}') = 0 \qquad (5.11)$$

ahol $K(\vec{R},\vec{R}') = H_E(\vec{R},\vec{R}') - N_E(\vec{R},\vec{R}')$ és $E' = E - E_A - E_B$. Az (5.11) Schrödinger-tipusú egyrészecskés integro-differenciál egyenlet az egycsatornás disztorció nélküli RGM alapegyenlete.

A tényleges számítások során az (5.11) egyenletet parciális hullámokba kell fejteni, hogy jó impulzusmomentumú állapotokat írjunk le. Az (5.11) egyenletnek szórási határfeltételű megoldása az A klaszternek a B klaszteren történő rugalmas szórását írja le, míg a kötött határfeltételű megoldás az A+B mag egy kötött klaszterállapotát adja.

Ha az $\mathcal{A}'$ antiszimmetrizáló operátort elhanyagolhatnánk, akkor a klaszterek között ható effektiv kölcsönhatás a $V_D(\vec{R})$ direkt kölcsönhatás lenne. A Pauli-elv azonban a klaszter-klaszter effektív kölcsönhatást (5.11) szerint erősen nemlokálissá és energiafüggővé teszi.

Az RGM bonyolultabb, valószerűbb változataihoz jutunk ha a próbafüggvénybe (4.2) szerint $|\eta_\lambda\rangle$ diszkrét állapoto(ka)t vagy egyéb klaszterizációt leiró $|\hat{\Phi}_c\rangle$ állapoto(ka)t is beleveszünk. A $|\eta_\lambda\rangle$ függvénynek négyzetesen integrálhatónak kell lennie, és bevétele akkor kívánatos, ha a klaszterek köz. ti távolság kicsiny értékeire az egyszerű próbafüggvény nem kielégítő. Úgy célszerű tehát megválasztani, hogy az átfedő rendszer hullámfüggvényét várhatólag jól közelítse (lehet pl. egy héjmodell-függvény). Mivel ennek bevétele a kétklaszter-rendszer egymás terében való eltorzulását képes figyelembe venni, az RGM ezen változatát disztorciós RGM-nek hívják. Megmutatható, hogy az (5.11) egyenletben egy disztorciós tag egy energiafüggő szeparábilis kölcsönhatási tag hozzávételével ér fel. Ha több klaszterizációt egyszerre írunk le, többcsatornás RGM-hez jutunk. Ennek egyenletei az (5.11)-nek (4.4)-szerű csatolt általánosításai. Ez az általánosítás az RGM-et mind bizonyos fajta disztorciós hatások, mind pedig reakciók leírására alkalmassá teszi.

5.3. A redundáns állapot

A később bemutatandó ortogonalitási feltétel modelljében (OCM) alapvető szerepet játszik a redundáns és a majdnem redundáns állapot fogalma. Ez a fogalom az RGM-en belül könnyen és szemléletesen definiálható. Az $F_\tau(\vec{R}_{12})$ relativ mozgást leíró hullámfüggvényt redundánsnak mondjuk ha a klaszterek közötti antiszimmetrizációt elvégezve a fizikailag érdektelen azonosan nulla függvényt kapjuk:

$$\mathcal{A}'\left(\hat{\Phi}_A(\vec{\xi}_A)\,\hat{\Phi}_B(\vec{\xi}_B)\,F_\tau(\vec{R}_{12})\,Z(\vec{R}_{cm})\right) \equiv 0 \qquad (5.12)$$

Ha mind a $\hat{\Phi}_A$, mind a $\hat{\Phi}_B$ belső hullámfüggvény egyetlen oszcillátor-konfigurációból áll, kimutatható, hogy redundáns állapot akkor és csak akkor létezik, ha az A és B oszcillátorparamétere azonos.

Érdekes kapcsolat van az RGM kernelek és a redundáns állapotok között: egy $F_\tau(\vec{R}_{12})$ akkor és csak akkor redundáns, ha $F_\tau(\vec{R}_{12})$ az RGM normálási (és Hamilton-)kernelnek 0 sajátértékhez tartozó sajátfüggvénye. Valóban, (5.12)-ből (5.5) felhasználásával beláthatjuk, hogy

$$\int d\vec{R}'\, N(\vec{R},\vec{R}')F_\tau(\vec{R}') = \int d\vec{R}' \langle \hat{\Phi}_A\hat{\Phi}_B\delta(\vec{R}-\vec{R}_{12})Z\,|\,\mathcal{A}'\left(\hat{\Phi}_A\hat{\Phi}_B F_\tau(\vec{R}_{12})Z\right)\rangle = 0 \equiv 0\, F_\tau(\vec{R}) \,. \qquad (5.13)$$

Mivel pedig a $\delta(\vec{R}-\vec{R}_{12})$ függvény mint $\vec{R}$ függvénye teljes rendszert alkot , (5.13)-ból is következik (5.12).
Az állítást hasonlóképpen beláthatjuk a Hamilton-magfüggvényre is.

Ha a klaszterek méretparamétere nem egyezik meg, akkor a redundáns állapotok kicsiny, de nem nulla sajátértékű függvényekbe mennek át. Az ilyen sajátfüggvényeket majdnem redundáns állapotoknak nevezik.

6. A generátor-koordinátás módszer (GCM)

A generátor-koordinátás módszer a klaszterizáció szemléletes képének matematikai megformulázását az RGM-től eltérően hajtja végre. Bázisfüggvényül a következő alakba írható függvényt választja:

$$\hat{\Phi}_{GCM}(\{\vec{r}_i\}) = \mathcal{A}'\left(\hat{\Phi}_A(\vec{r}_1,\dots,\vec{r}_A,\vec{S}_A)\,\hat{\Phi}_B(\vec{r}_{A+1},\dots,\vec{r}_{A+B},\vec{S}_B)\right) . \tag{6.1}$$

A (6.1) függvény az $\vec{S}_A$ és $\vec{S}_B$ (nem dinamikai) ún. generátor koordinátákat tartalmazza. A $\hat{\Phi}_A$ és $\hat{\Phi}_B$ függvények az A és B szabad klaszterek legalacsonyabb héjmodell-konfigurációjának megfelelő $\vec{S}_A$ és $\vec{S}_B$ középpontú héjmodellfüggvények:

$$\begin{aligned}\hat{\Phi}_A &= \mathcal{A}_A\left(\phi_{n_1\ell_1m_1}(\vec{r}_1-\vec{S}_A)\dots\phi_{n_A\ell_Am_A}(\vec{r}_A-\vec{S}_A)\,\sigma_A\right)\\ \hat{\Phi}_B &= \mathcal{A}_B\left(\phi_{n_{A+1}\ell_{A+1}m_{A+1}}(\vec{r}_{A+1}-\vec{S}_B)\dots\phi_{n_{A+B}\ell_{A+B}m_{A+B}}(\vec{r}_{A+B}-\vec{S}_B)\,\sigma_B\right)\end{aligned} \tag{6.2}$$

ahol σ_A és σ_B a klaszterek spin, izospin függvényét jelöli. Ez a választás fejezi ki azt a szemléletes elképzelésünket, hogy a nukleonok két "klaszter"-be tömörülnek. Feltesszük, hogy a klaszterek teljes impulzusmomentuma nulla.

Írjuk át a (6.1) függvényt olyan alakba, amelyben különválik a klaszterek belső állapotát leíró transzlációinvariáns belső hullámfüggvény a tömegközéppont koordinátáját tartalmazó függvénytől.

Megmutatható, hogy 6.1 a következő alakba is irható

$$\hat{\Phi}_{GCM}(\{\vec{r}_i\}\vec{S},\vec{\mathfrak{z}}) = \mathcal{A}'\left(\hat{\Phi}_A(\hat{\xi}_A)\,\hat{\Phi}_B(\hat{\xi}_B)\,\Gamma(\vec{R}_{cm},\vec{R}_{12},\vec{S},\vec{\mathfrak{z}})\right) \tag{6.3}$$

ahol

$$\Gamma(\vec{R}_{cm},\vec{R}_{12},\vec{S},\vec{\mathfrak{z}}) = \exp\left\{-\alpha(\vec{R}_{cm}-\vec{S})^2-\beta(\vec{R}_{cm}-\vec{S})(\vec{R}_{12}-\vec{\mathfrak{z}})-\gamma(\vec{R}_{12}-\vec{\mathfrak{z}})^2\right\} \tag{6.4}$$

és

$$\begin{aligned}\alpha &= (Aa_A+Ba_B)/2 & \vec{\mathfrak{z}} &= \vec{S}_A-\vec{S}_B\\ \beta &= AB(a_A-a_B)/(A+B) & \vec{S} &= \frac{1}{A+B}\left(A\vec{S}_A+B\vec{S}_B\right)\\ \gamma &= AB(Ba_A+Aa_B)/2(A+B)^2 .\end{aligned} \tag{6.5}$$

A (6.4) és (6.5) kifejezésekből látszik, hogy a tömegközéppont mozgása csak akkor választódik le a klaszterek relativ mozgásáról, azaz csak akkor válik szorzófaktorrá a (6.3) függvényben, ha $\beta=0$, vagyis ha a klaszterek a_A és a_B méretparamétere megegyezik.

Szoritkozzunk most az $\alpha_A = \alpha_B$ esetre az általánosság feladása nélkül megtehetjük, hogy az $\vec{S} = \vec{0}$ választással élünk, s ekkor (6.3) így írható

$$\hat{\Phi}^{e}_{GCM}(\{\vec{r}_i\},\vec{s}) = \mathcal{A}'\left(\hat{\Phi}_A(\xi_A)\,\hat{\Phi}_B(\xi_B)\,\Gamma_e(\vec{R}_{12},\vec{s})\,Z(\vec{R}_{cm})\right) \qquad (6.6)$$

ahol $\Gamma_e(\vec{R}_{12},\vec{s}) = \exp\{-\gamma(\vec{R}_{12}-\vec{s})^2\}$ és $Z(\vec{R}_{cm}) = \exp\{-\alpha \vec{R}^2_{cm}\}$.

Az e index utal, hogy e függvények egyenlő méretparaméterhez tartoznak.

A bázisfüggvény ismeretében felírhatjuk a GCM próbafüggvényt:

$$\hat{\Psi}^{e}_{GCM}(\{\vec{r}_i\}) = \int d\vec{s}\;\hat{\Phi}_{GCM}(\{\vec{r}_i\},\vec{s})\,\tilde{F}(\vec{s}) \quad . \qquad (6.7)$$

A GCM mozgásegyenlete, amely az ismeretlen $\tilde{F}(\vec{s})$ súlyfüggvényre vonatkozik, (4.4) alapján így írható:

$$\int d\vec{s}'\left(\tilde{H}(\vec{s},\vec{s}') - E\,\tilde{N}(\vec{s},\vec{s}')\right)\tilde{F}(\vec{s}') = 0 \qquad (6.8)$$

ahol

$$\left\{\begin{matrix}\tilde{H}(\vec{s},\vec{s}')\\ \tilde{N}(\vec{s},\vec{s}')\end{matrix}\right\} = \langle \hat{\Phi}^{e}_{GCM}(\vec{s}) \,|\, \left\{\begin{matrix}H\\ 1\end{matrix}\right\} \,|\, \hat{\Phi}^{e}_{GCM}(\vec{s}')\rangle \quad . \qquad (6.9)$$

A (6.9) egyenletet szokás Hill-Wheeler-egyenletnek nevezni.

Bár az RGM (5.4) és a GCM (6.8) alapegyenlete hasonló szerkezetű, mégsem azonosak. Míg az RGM (5.4) és átalakított (5.11) egyenlete a relativ mozgás valódi dinamikai koordinátát tartalmazó hullámfüggvényére vonatkozik, addig a GCM (6.8)-as alapegyenlete a nem dimaikai $\vec{s}$ koordinátát tartalmazó $\tilde{F}(\vec{s})$ súlyfüggvényre vonatkozik. Ezzel függ össze, hogy az (5.11) integrodifferenciál-egyenlet, (6.8) viszont integrálegyenlet.

A generátorkoordináta-módszer nagy előnye, hogy az antiszimmetrizálást könnyű végrehajtani mivel a (6.9) kiszámításához az eredeti egyrészecske-koordinátákat használhatjuk, és így a Slater-determinánsokra vonatkozó szabályokat használhatjuk. A tényleges számolások során a (6.6) hullámfüggvényből és a (6.9) mátrixelemekből ki kell még transzformálni a jó paritású és adott teljes impulzusmomentumú állapotot, ezzel a kérdéssel azonban itt nem foglalkozunk.

Megemlítjük, hogy nem egyenlő méretparaméterek esetén a (6.3) függvények transzformációjával be lehet vezetni egy új GCM bázisfüggvényt, amely már nem tartalmazza a tömegközéppont koordinátáját, így alkalmas tömegközépponti gerjesztés nélküli számítások végzésére.

7. Az RGM és a GCM kapcsolata

Ebben a fejezetben a két mikroszkopikus klasztermodell, az RGM és a GCM egymáshoz való viszonyát tisztázzuk. Ez nemcsak elvileg érdekes, hanem a nyert eredmények segítik a konkrét számítások végrehajtását. Vizsgáljuk először az egyenlő méretparaméterek esetét. Próbáljuk átalakítani a GCM (6.6) próbahullámfüggvényét RGM tipusú, azaz (5.3) alakba. Induljunk ki a (6.6)-ból és az $\vec{s}$ -re való integrálást vigyük az antiszimmetrizáció mögé:

$$\hat{\Psi}^{e}_{GCM}(\{\vec{r}_i\},\vec{s}) = \mathcal{A}'\left(\hat{\Phi}_A(\xi_A)\,\hat{\Phi}_B(\xi_B)\,Z(\vec{R}_{cm})\int d\vec{s}\;\tilde{F}(\vec{s})\,\Gamma_e(\vec{R}_{12},\vec{s})\right) \quad . \qquad (7.1)$$

Az (5.3)-mal való összehasonlításból látszik, hogy a (7.1) olyan RGM tipusú próbahullámfüggvény, amelyben a klaszterek relativ mozgását leíró függvény a következő

$$F(\vec{R}_{12}) = \int d\vec{s}\; \Gamma_e(\vec{R}_{12},\vec{s})\,\tilde{F}(\vec{s}) = \int d\vec{s}\; \exp\{-\gamma(\vec{R}_{12}-\vec{s})^2\}\,\tilde{F}(\vec{s}) \quad . \tag{7.2}$$

Az $\int d\vec{s}\,\Gamma_e(\vec{R}_{12},\vec{s})$ integráloperátort Γ_e -vel jelölve a (7.2) egyenletet így írhatjuk:

$$F = \Gamma_e \tilde{F} \quad . \tag{7.3}$$

A (7.2) konvolúciós transzformáció tehát minden GCM tipusú próbahullámfüggvénynek megfeleltet egy RGM tipusú függvényt.

Vizsgáljuk meg, hogyan lehetne a (7.2)-vel és a (7.3)-mal definiált transzformáció inverzét meghatározni, azaz egy adott RGM függvényhez megkeresni a vele egyenlő GCM próbahullámfüggvényt.

Egyszerű behelyettesítéssel meggyőződhetünk róla, hogy a Γ_e integráloperátor sajátfüggvényei egyszerű síkhullámok: $\phi_{\vec{k}}(\vec{s}) = \exp\{i\vec{k}\vec{s}\}/(2\pi)^{3/2}$ a $\phi_{\vec{k}}$ -nak megfelelő sajátérték pedig $(\pi/\gamma)^{3/2}\exp\{-k^2/4\gamma\}$, tehát

$$\int d\vec{s}\;\Gamma_e(\vec{R}_{12},\vec{s})\,\phi_{\vec{k}}(\vec{s}) = (\pi/\gamma)^{3/2}\exp\{-k^2/4\gamma\}\,\phi_{\vec{k}}(\vec{R}_{12}) \quad . \tag{7.4}$$

Ezek ismeretében felirhatjuk a Γ_e operátor spektrális előállítását:

$$\Gamma_e(\vec{R},\vec{s}) = \int d\vec{k}\;\phi_{\vec{k}}(\vec{R})\,(\pi/\gamma)^{3/2}\exp\{-k^2/4\gamma\}\,\phi^*_{\vec{k}}(\vec{s}) \tag{7.5}$$

de meghatározhatjuk a Γ_e operátor inverzét is

$$\Gamma_e^{-1}(\vec{s},\vec{R}) = \int d\vec{k}\;\phi_{\vec{k}}(\vec{s})\,(\gamma/\pi)^{3/2}\exp\{k^2/4\gamma\}\,\phi^*_{\vec{k}}(\vec{R}) \quad . \tag{7.6}$$

A Γ_e inverzének ismeretében mostmár egy $F(\vec{R}_{12})$ -et tartalmazó RGM próbahullámfüggvényhez meghatározhatjuk a GCM $\tilde{F}(\vec{s})$ súlyfüggvényét: $\tilde{F} = \Gamma_e^{-1}F$ amiből maga a GCM próbahullámfüggvény is megadható. Érdemes felfigyelni azonban arra, hogy Γ_e^{-1} operátor az $\exp\{k^2/4\gamma\}$ tényező miatt szinguláris, vagyis jól viselkedő $F(\vec{R}_{12})$ RGM relativ mozgási hullámfüggvényhez tartozhat szinguláris GCM $\tilde{F}(\vec{s})$ súlyfüggvény.

Mivel a GCM (6.8) kerneljei általában könnyebben számolhatók mint az RGM (5.5) kerneljei, érdemes kapcsolatot találni az RGM és GCM kernelek között. A tényleges számításokban gyakran előbb a GCM kerneleket számoljuk ki, majd ezeket transzformálva megkapjuk az RGM kerneleket.
Operátoros jelölésben a kívánt transzformáció a következő:

$$\begin{Bmatrix} \tilde{H} \\ \tilde{N} \end{Bmatrix} = \Gamma_e \begin{Bmatrix} H \\ N \end{Bmatrix} \Gamma_e \quad . \tag{7.7}$$

8. Az ortogonalitási feltétel modellje (OCM)

A teljesen mikroszkopikus RGM vagy GCM klasztermodelleket kiterjedten és sikeresen alkalmazták mind szórási (reakció), mind kötött állapoti problémákra. A sikerek ellenére nagy tömegszámú magok és több csatorna esetén a mikroszkopikus számolások keresztülvitele még a mai számítógépek lehetőségeit is meghaladják. Szükségesek tehát az olyan klasztermodellek is, amelyek feladják a mikroszkopikus jelleget, de részben megőrzik a mikroszkopikus klasztermodellek legfőbb sajátságát, a Pauli-elv figyelembevételét. Ilyen a Saito által javasolt ortogonalitási feltétel modellje.

A modellben központi szerepet játszik az RGM normálási kernel. A továbbiakban az operátoros írásmódot fogunk használni. Jelöljük N-nel és

és H-val az RGM normálási és energiakerneljének megfelelő integráloperátorokat.

Az A és B klaszterekről feltesszük, hogy nulla spinüek, és hogy méretparaméterük megegyezik. A normálási operátor sajátfüggvényeit jelöljük χ_i -vel a hozzá tartozó sajátértéket λ_i -vel:

$$N\chi_i = \lambda_i \chi_i \quad . \tag{8.1}$$

Jelöljük a nemredundáns állapotok terére vetitő operátort Λ -val:

$$\Lambda = 1 - \sum_{i \in RS} |\chi_i\rangle\langle\chi_i| \quad . \tag{8.2}$$

A normálási kernelt és négyzetgyökét a (8.1) sajátfüggvényekkel kifejezhetjük:

$$N = \sum_i |\chi_i\rangle \lambda_i \langle\chi_i| \quad , \quad N^{1/2} = \sum_i |\chi_i\rangle \lambda_i^{1/2} \langle\chi_i| \quad . \tag{8.3}$$

Vezessük be a következőképpen definiált operátort

$$N_e^{-1/2} = \sum_{i \notin RS} |\chi_i\rangle \lambda_i^{-1/2} \langle\chi_i| \quad . \tag{8.4}$$

A (8.2)-(8.4) egyenletek felhasználásával könnyen beláthatjuk, hogy
$N^{1/2} N_e^{-1/2} = N_e^{-1/2} N^{1/2} = \Lambda$ és $N_e^{-1/2} N = N N_e^{-1/2} = N^{1/2}$

Az eddigi előkészületek után hozzáláthatunk az OCM megalapozásához. Az (5.4) RGM egyenlet operátoros írásmódban a következő:

$$\hat{H} F = E' N F \tag{8.5}$$

ahol $\hat{H} = H - (E_A + E_B) N$.
Szorozzuk meg balról (8.5)-öt $N_e^{-1/2}$ -nel, átalakítva 8.5 -re kapjuk, hogy

$$N_e^{-1/2} \hat{H} F = E' N^{1/2} F \quad . \tag{8.6}$$

Ha bevezetjük a klaszterek relativ mozgását leíró F függvény helyett az $\hat{F} = N^{1/2} F$ függvényt és felhasználjuk a $H\Lambda = H$ és $N\Lambda = N$ azonosságokat írhatjuk, hogy

$$N_e^{-1/2} \hat{H} N_e^{-1/2} \hat{F} = E' \hat{F} \quad . \tag{8.7}$$

Vezessük be a $\hat{V}$ operátort a következő definicióval

$$\hat{H} = N^{1/2} (T + \hat{V}) N^{1/2} \tag{8.8}$$

ahol $T = -\hbar^2 \Delta_{\vec{R}_{12}} / \mu$. Helyettesítsük (8.8)-at (8.7)-be és figyelembe véve Λ definicióját (8.7) így írható

$$\Lambda (T + \hat{V}) \Lambda \hat{F} = E' \hat{F} \tag{8.9}$$

vagy felhasználva hogy $\Lambda \hat{F} = \hat{F}$ a következő módon

$$\Lambda (T + \hat{V}) \hat{F} = E' \hat{F} \quad . \tag{8.10}$$

Megjegyezzük, hogy (8.10) egyenlet az (5.4) RGM egyenlet matematikailag ekvivalens átírása semmilyen közelítést nem tartalmaz. A nehézséget az okozza, hogy a (8.9) egyenlet szerint $\hat{V}$ bonyolult nemlokális energiafüggő operátor, megadásához mikroszkopikus számolást kellene végrehajtani. Az ortogonalitási feltétel modellje a $\hat{V}$ operátort egy parametrizált effektiv lokális operátorral helyettesíti, tehát az OCM alapegyenlete

$$\Lambda\,(T+V_{eff})\,\hat{F} = E'\,\hat{F} \quad . \tag{8.11}$$

A (8.11)-es egyenlettel kapcsolatban érdemes megjegyezni a következőt: az (5.11) RGM egyenletből nyert klaszter-klaszter relativmozgás-hullámfüggvénynek az az érdekes tulajdonsága van, hogy egy közel energiafüggetlen belső oszcillációt mutat. Ezt a viselkedést a Schrödinger-egyenlet a szokásos lokális potenciállal nem adja vissza, ezzel szemben a (8.11) egyenlet egyszerű lokális potenciál mellett visszaadja. Ezen csomópont rögzítettsége tehát a Pauli-elv következménye.

Érdemes felfigyelni az OCM és a 2. részben ismertetett Buck-féle klaszternodell hasonlóságára. A (2.2) kiválasztási szabály miatt ugyanis a Buck-féle mozgásegyenlet is (8.11) alakba irható, de a Λ projekciós operátor, ellentétben (8.2)-vel, a $T+V_{eff}$ valamely sajátfüggvényeire vetit.

Köszönetnyilvánitás

Köszönettel tartozom Dr. Lovas Rezsőnek a hasznos eszmecseréért és a kézirat gondos átnézéséért.

Irodalom

1. B. Buck, Proceeding of the International Symposium on Nuclear Collisions and Their Microscopic Description, Bled, 1977, szerk. M.V. Mihailović és M. Poljšak Fizika 9 (1977) Supplement 3
2. K.F. Pál és R.G. Lovas Phys. Lett 96B (1980) 19
3. Y.C. Tang, Topics in Nuclear Physics II, szerk. T.T.S. Kuo és S.S.M. Wong (Springer-Verlag, 1981) 572.o.
4. K. Wildermuth és Y.C. Tang: A Unified Theory of the Nucleus (Academic Press, 1977)
5. S. Saito, Supplement of the Progress of Theoretical Physics 62 (1977) 11.o.

ATOMKI REPORT D/1(1985)

K/Ar dating of Neogene volcanic activity in Hungary: Experimental technique, experiences and methods of chronological studies

Kadosa BALOGH

Abstract. Construction and essential parameters of an argon extraction line and a magnetic mass spectrometer developed in the Institute of Nuclear Research of the Hungarian Academy of Sciences for K/Ar dating are described. The mass spectrometer is controlled by a microcomputer and it is suitable for static measurement of noble gas isotopic ratios. The accuracy of instruments was checked by repeated analysis of the interlaboratory standards Asia 1/65 (Soviet) and GL-O (French). The sensitivity of the instruments is sufficient to measure the K/Ar age of the youngest terrestrial volcanic material if the enrichment of radiogenic argon reaches several percent, but they are still inadequate to date individual mineral grains.

Experiences of chronological studies on Miocene intermediate and acid lavas and tuffs as well as on Pliocene basalts are summarized. Great attention is paid to the ascertainment of the geological reliability or radiometric ages. Experiences concerning the frequency, character and reason of geological errors for the different rock types are reviewed and methods of sample selection used for the recognition of unreliable ages are outlined.

The isochron methods are used mostly for dating Pliocene basalts. The method introduced first by Fitch et.al. (1976) is preferred, i.e. when the isochrons are defined by different fractions of a single basalt sample. The limitations of the pure mathematical treatment of the experimental data are pointed out and geological interpretation of the isochron ages is discussed. The uncertainty of error estimation of isotopic ratio and potassium concentration measurements is emphasized. A method is described for estimating the error of the slope of the fitted straight line which does not result unacceptably precise ages when the number of measurements is great and the measurement error is overestimated.

1. *Introduction*

K/Ar method plays an important role in the study of geologic history of Hungary. This is the most suitable method for radiometric dating of Neogene volcanics, which, including the areas covered by young sediments, occur on about the 50 % of the country's territory [1]. Beside this main field of application K/Ar dating is widely used for studying age relations of Mesozoic magmatic rocks, Paleozoic plutonism and metamorphism

and the time of tectonic events.

The first instruments for a K/Ar laboratory were designed and constructed in the early 70-es in the Institute of Nuclear Research of the Hungarian Academy of Sciences (ATOMKI), Debrecen, where wide experience has accumulated in the field of nuclear instrument development. Chronological research is carried out as a close cooperation between ATOMKI and the Hungarian Geological Institute, Geological Departments of Hungarian universities and mining companies.

As a first step of instrument development a simple, small capacity argon extraction and purification line was constructed and put in operation in 1973 [2], and a modified magnetic mass spectrometer was used for measuring the argon isotopic ratios. Due to its poor vacuum system this mass spectrometer was unsuitable for static operation and the accuracy of age data on Neogene rocks was limited by the presence of mostly hydrocarbon background peaks. Still, a number of chronologic problems could be solved with these instruments and their use provided the special experiences essential in the field of argon extraction and purification and noble gas mass spectrometry. The more advanced instruments suitable for dating Pleistocene volcanic rocks were completed in 1976-77 [3,4] and a microprocessor control system was connected to the mass spectrometer in 1979 [5].

The present paper describes the main features and parameters of the instruments, summarizes the general experiences concerning sample selection and interpretation of age data obtained during the study of eruptive rocks and Pliocene basaltic volcanism.

2. *Instruments and experimental methods*

From 1973 to 1976 argon isotopic ratios were measured with a Kerwin type magnetic mass spectrometer. Due to several O-rings applied in this machine, the available vacuum was limited to 4×10^{-7} mbar. In order to increase the signal/background ratio, the ion source region and the analyser chamber were separated, and the ion beam entered the analyser through a slit which reduced the pumping speed in the ion source to about 0.2-0.3 ℓ/s. Only metal gaskets were applied in the ion source, thus this part was bakable at 200°C. This modification greatly increased the residence time of argon in the ion source and the necessary increase of signal/background ratio was achieved. Argon peaks were corrected for the background by measuring the peaks at mass numbers 37 and 39 and assuming that the background spectrum was not changed by the introduction of argon. Because of the background, the precision of $^{40}Ar/^{36}Ar$ measurements was about 3% if the analysed argon sample was no less than 10^{-5} ccSTP. In case of greater radiogenic argon enrichment this precision rendered the distinction of Miocene stages possible. The slit separating the ion source and the analyser reduced the sensitivity too, therefore the ion beam was measured after amplification with an electron multiplier.

The argon content of rock and mineral samples was extracted and purified in an apparatus of very simple construction [2].

At the same time only one sample could be placed and degassed by high frequency induction heating in this system. ^{38}Ar was added from break-seal vials during the degassing process. The purified argon was collected on activated charcoal in a vial, sealed off from the system and attached to the mass spectrometer. During the experimental process, the atmospheric argon blank of the system remained $<2\times10^{-7}$ mbarxℓ. Thus the argon extraction and purification line was suitable for dating Pleistocene rocks too, but the mass spectrometer limited the sensitivity of measurements. Regeneration of the getter materials was a time consuming process, and this restricted the number of age determinations to about 70 a year.

The accuracy of these instruments was checked by the Asia 1/65 Soviet and GL-O French interlaboratory standards. Systematic bias between the international data and our measurements has not been detected [2]. Since the radiogenic argon content of these standards is about 10 times greater than that of average Miocene rocks, systematic errors could not be excluded in the Miocene. Later, according to the measurements with the more advanced instruments, a part of these early determinations had to be revised. The ages given by us for the Lower and Middle Rhyolitic Tuff levels turned out to be too old [6,7]. The deviation was caused by small systematic errors which were difficult to detect being mostly less than the error of individual measurements.

A magnetic mass spectrometer suitable for static operation was built and put into operation at the end of 1976 [3]. Its scheme is shown of fig. 1. and was described in detail in 1978.

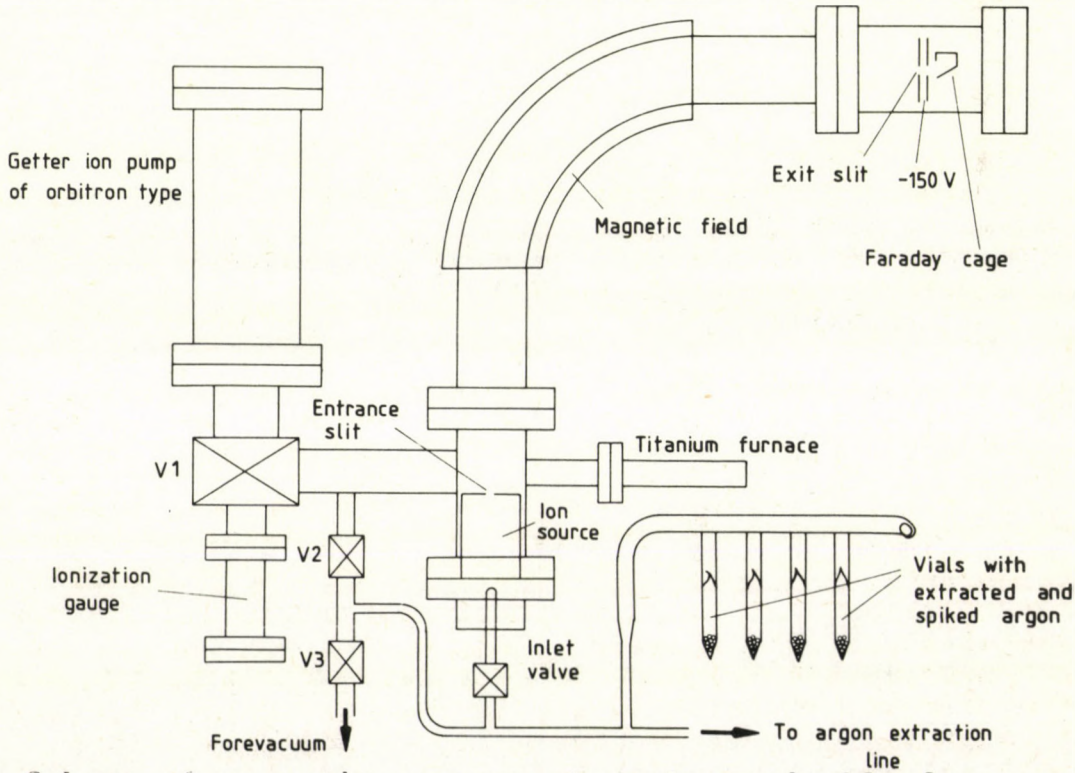


Fig.1. Scheme of magnetic mass spectrometer suitable for static operation

Fig. 2 shows the statically recorded spectrum of spiked argon,

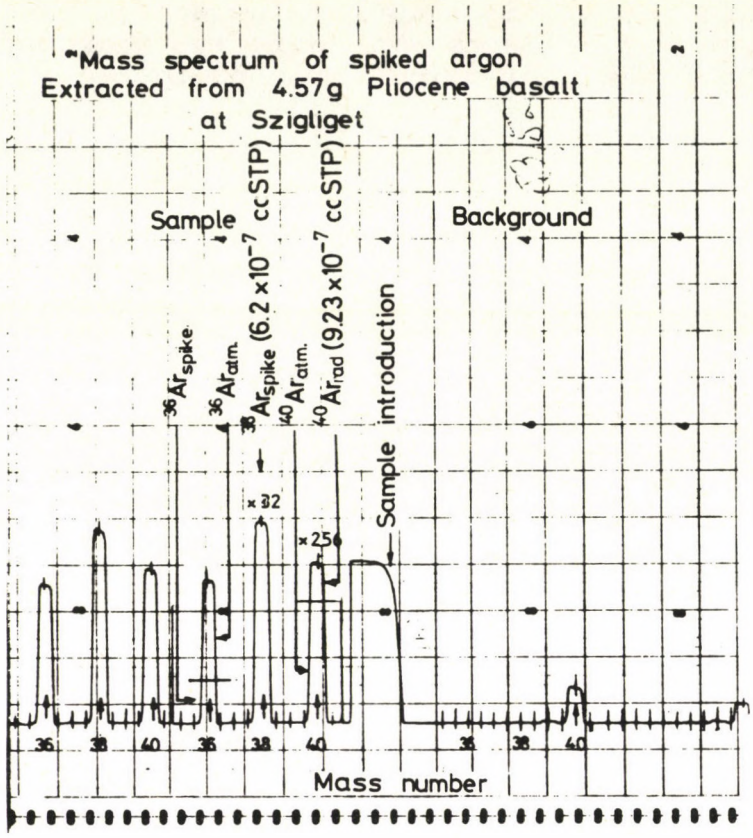


Fig.2. Spectrum of spiked argon extracted from a Pliocene basalt

extracted from a Pliocene basalt. The spectrum was recorded and evaluated with the microprocessor system. The parameters characterizing the argon spectra recorded under static conditions are shown on fig. 3. The hystograms are based on the measurements performed in 1980.

An argon extraction and purification line [4] completed in 1977 is directly connected to the mass spectrometer. Its scheme is shown on fig. 4. The samples are placed in the sample holder and can be dropped into the heating furnace without opening the vacuum system. Samples are melted in a crucible folded from a 0.05 mm thick molibdenum sheet. The practical number of samples (max. 6) that can be put at one time in the system is defined by the lifetime of the crucible. The samples are wrapped in aluminium foil or in high mesh sieve made from copper alloy, which is previously partially degassed and tempered at 700°C in vacuo. This latter way was chosen e.g. for melting micas, since in case of low melting point foils the evolving gas stream may blow the grains out of the crucible through the hole formed first in the foil. Degassing of several high melting point minerals (alunite, feldspar) was connected with the dating of Pliocene basalts [8]. In such cases for the first degassed sample a basalt was chosen, which served

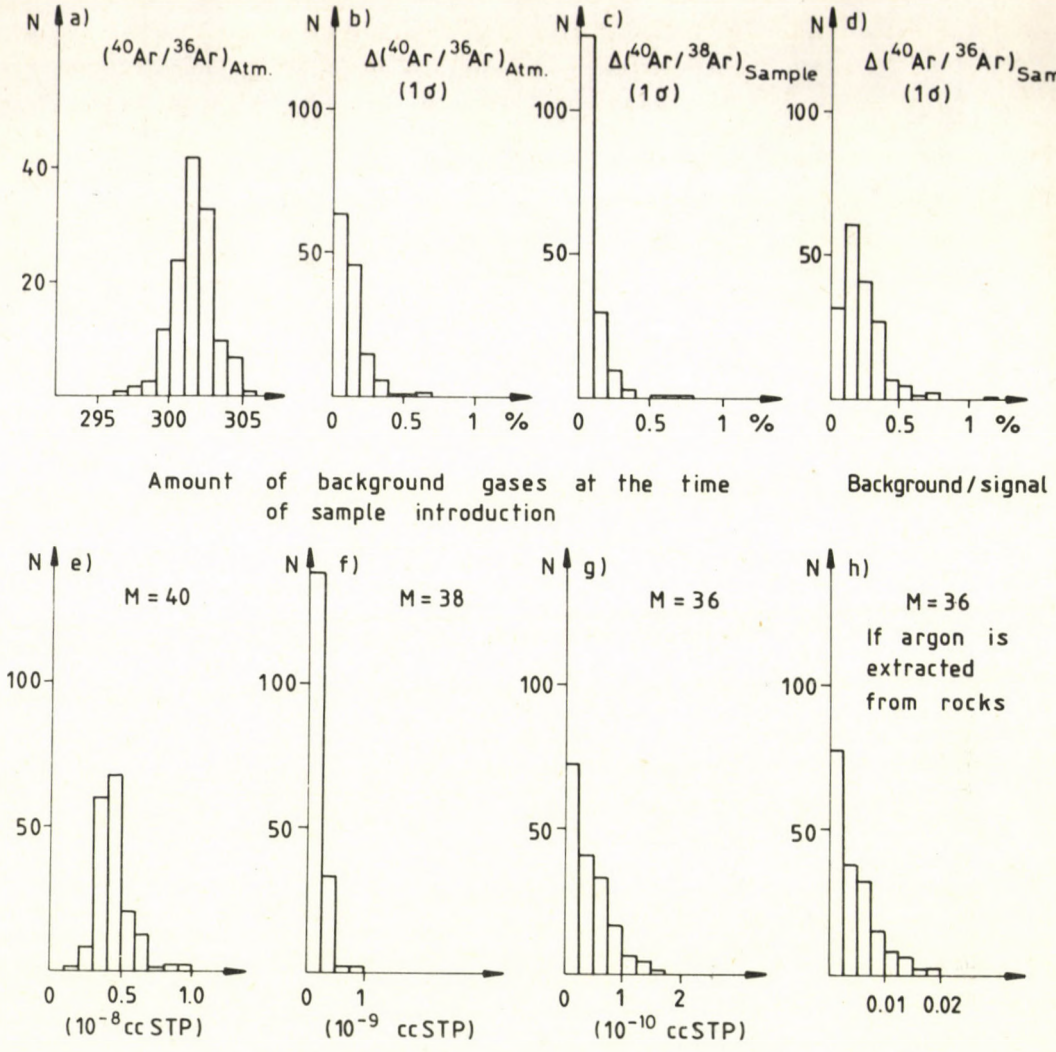


Fig.3. Parameters of the mass spectrometer according to the argon spectra recorded in 1980.

as a flux for reducing the melting point of the following samples. ^{38}Ar spike was added from a gas-pipette and calibrated either with interlaboratory standards or with a known volume of dry air. The change of the added ^{38}Ar spike, measured with the standard Asia 1/65, is shown in fig.5. The scatter of the measured values around the fitted line is about 1%. The measured volume of spike was systematically about 1% less when calibrated with dry air. For calculating the ages the volume measured by Asia 1/65 was adopted and its error was taken to be 2%. The argon blank of the extraction line is about 5×10^{-8} ccSTP and up to 15g samples can be melted in the crucible. Thus these instruments are suitable for dating rocks younger then 1 m.y.

Using the Asia 1/65 for calibrating the argon measurements (radiogenic argon content 4.441×10^{-5} ccSTP/g, L.L. Shanin, pers. comm.) the radiogenic argon content measured on GL-0 agreed well

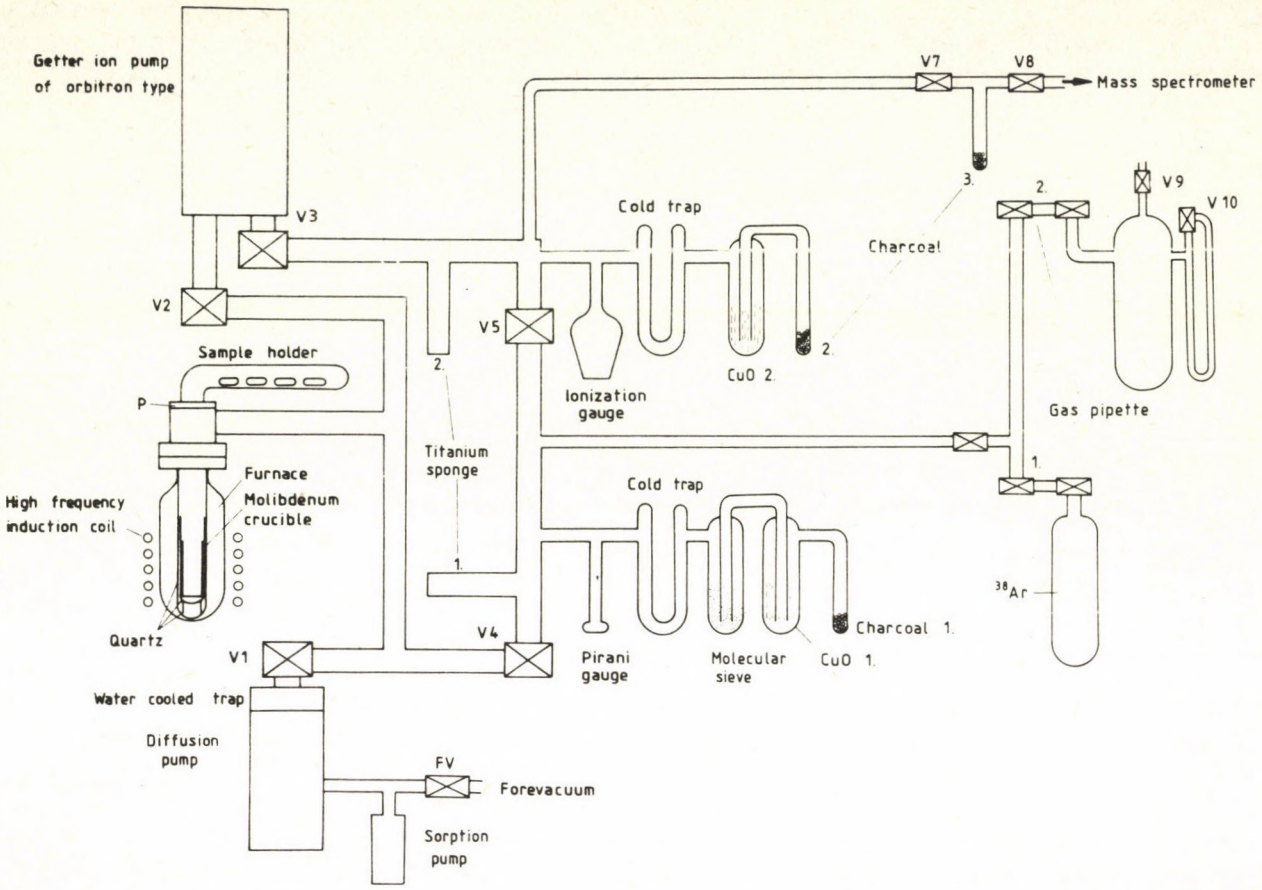


Fig. 4. Scheme of argon extraction and purification line.

with the internationally accepted value for this sample [9].

Potassium determination is made on a pulverized part of the crushed sample. 0.1 g is digested in HF + $HClO_4$ + H_2SO_4 acids, and after full drying dissolved in 100 ml 0.25 n HCl with Na buffer and Li internal standard added to it. Potassium content is measured with an OE-85 digital flame fotometer (made by OMSZÖV, Hungary).

Potassium determination were also checked with these standards. The potassium content of Asia 1/65 is 4.01 % or 4.08 % according to the average of Soviet laboratories and the IGEM, Moscow, respectively. The internationally accepted value for GL-0 is 6.56 %. Our averages are 4.12 % and 6.60 % for Asia 1/65 and GL-0, respectively. Thus it is likely that our measurements are characterized by a 1% systematic error which is similar to the precision of the individual determinations. The error of the radiometric ages is given by the equation

$$T = \{(\Delta K)^2 + (\Delta {}^{38}Ar_N)^2 + [\frac{1}{r}\Delta({}^{40}Ar/{}^{38}Ar)]^2 + [\frac{1}{s}\frac{1-r}{r}\Delta({}^{36}Ar/{}^{38}Ar)]^2\}^{1/2} \quad (1)$$

where ΔK, $\Delta^{38}Ar_N$, $\Delta(^{40}Ar/^{36}Ar)$ and $\Delta(^{36}Ar/^{38}Ar)$ are the errors of potassium and spike quantities and the argon isotopic ratios; $\underline{r}$ is the radiogenic part of the ^{40}Ar content and $\underline{S}$ the atmospheric part of the ^{36}Ar content. If there is no $^{36}\overline{Ar}$ argon in the spike, the equation (1) agrees with the formula derived by Cox and Dalrymple [10]. In case of a single measurement, ΔK

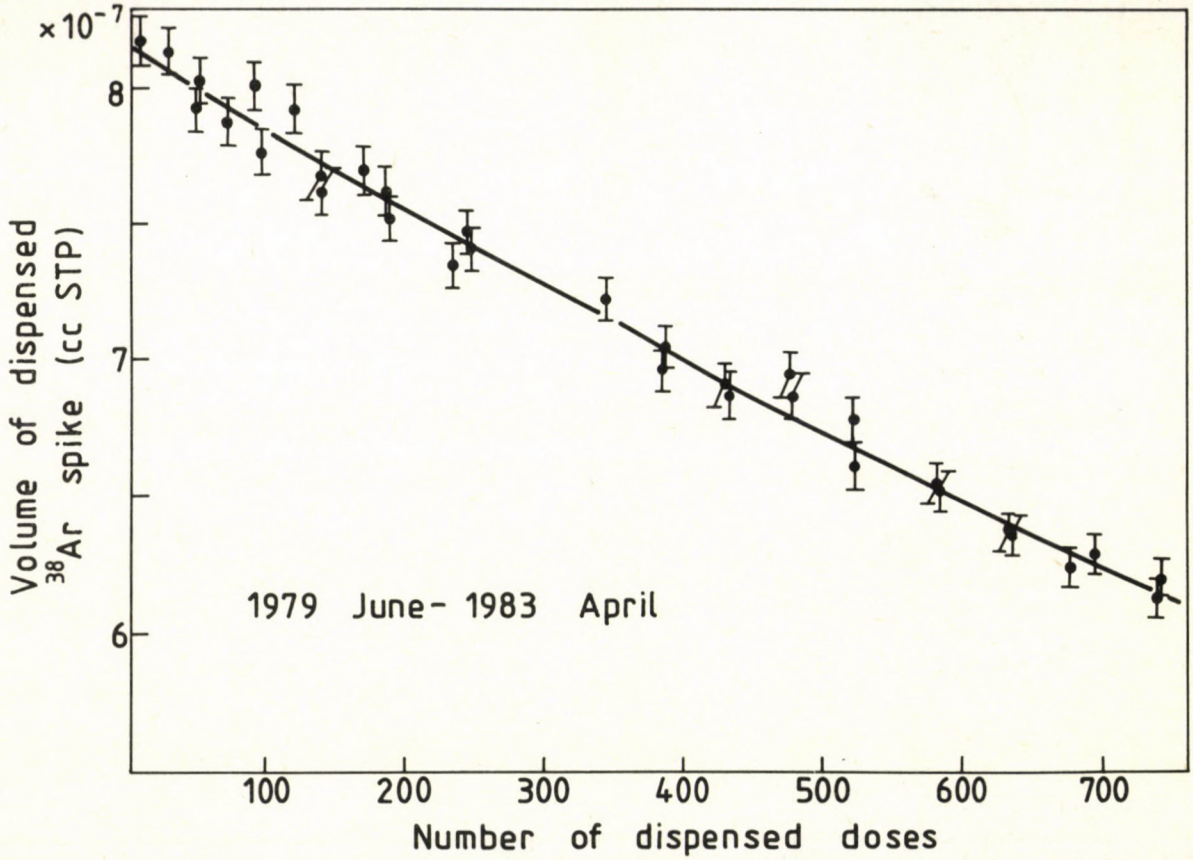


Fig.5. Volume of dispensed ^{38}Ar spike, as measured with standard Asia 1/65.

was taken to be 3%, the difference between our measurements and the average of Soviet laboratories for Asia 1/65. Accounting for the possible disturbing effect of the background, a 1% error was estimated for the isotopic ratios. This way of error calculation is likely an overestimation, but our main purpose has been to avoid misleading chronological conclusions which may arise from underestimated errors.

3. *Method and experiences of chronologic studies*

In the course of chronologic studies the K/Ar laboratory participates in the collection of samples and in the evaluation of the geological reliability of radiometric ages. Geological interpretation and the selection of chronologic problems to be solved are accomplished by the cooperating geologists.

In the following the general experiences of the K/Ar research of Neogene volcanic rocks in Hungary and the methods of approaching the problems will be shortly reviewed.

3.1. *Miocene eruptive and pyroclastic rocks*

The radiometric dating of Miocene rhyolite tuff levels plays an important role in the chronostratigraphic research in Hungary. These rhyolitic, dacitic pyroclastics cover a great part of the country. Unfortunately, whole rock samples are unsuitable for radiometric dating since they often contain older material and the unstable volcanic glass frequently loses radiogenic argon. First of all, biotite has been used for dating these tuffs, since their sanidine content is usually too low. In a number of cases, when parallel measurements were made on biotite and sanidine, the K/Ar ages showed good agreement. Plagioclase is less useful. Due to the low K content, its age has a greater analytical error, it loses argon easier than biotite and in the course of routine measurements volcanic plagioclase can not be cleaned completely from the plagioclase crystals of the basement rock, which may be also present. Therefore, plagioclase ages have been used only for confirmation of chronological results concluded from biotite dates.

Unfortunately, even biotite K/Ar ages differ often from the geological age. In a few cases preferential loss of K and increase of the radiometric age can be supposed. It is far more frequent, however, that as a consequence of radiogenic argon loss the K/Ar age turns out to be younger. This can be brought about by postvolcanic activity, tectonism, alteration caused by ground water in the permeable rock or potash metasomatism. The K/Ar age of biotites which contain K in higher concentration (approx.>6%) can never be older than the geological age. Therefore, high K content biotites are useful for the determination of reliable minimum ages. During the dating of rhyolitic tuff levels it is expedient to collect samples from different, distant localities. The oldest K/Ar ages of high K content biotites can be accepted as the minimum age of the tuff level. If samples are collected from a sufficiently great area, the minimum age will be a good approximation of the real geological age. In the light of experiences obtained in recent years our previous method of determining the age of tuff levels by averaging all radiometric data [11], which are not obviously incorrect, can be criticized, since in case of a systematic bias between the radiometric and geologic ages the average age can be misleading, too. Because of the frequent loss of radiogenic argon from the Miocene rhyolitic tuffs, it would be important to obtain $^{39}Ar/^{40}Ar$ step release spectra, too. Unfortunately, considering the young age and the sensitivity of our instruments, too large samples (i.e. too high radioactivities) would be involved in these measurements.

Andesitic tuffs have a minor stratigraphic importance. Suitable mineral for dating cannot be separated from them, dating can be attempted on whole rock samples of greater blocks and/or bombs. Interpretation of K/Ar data is ambiguous since the glassy groundmass easily loses argon and due to the fast

cooling rate, primary degassing is often incomplete.

According to our experience the K/Ar ages of Miocene lava rocks are either younger or agree with the geological age. These two possibilities are realized with similar frequency. Partially rejuvenated ages can be recognized only occasionally on biotites and amphiboles separated from lava rocks; radiometric and geological ages often agree even in cases of observable postvolcanic activity. Dating of rhyolite tuff levels can be promoted and made more reliable by dating lava rocks related to them.

It can be very difficult to date the end of the volcanic material production. If the youngest lavas, dikes or subvolcanic bodies do not contain biotite or amphibole, the interpretation of their K/Ar ages is highly uncertain, since a possibility of argon loss can never be ruled out completely.

3.2. *Dating of the alkali basaltic volcanic activity*

According to our experiences with young basalts, the deviation of radiometric and geologic ages is caused mostly by incomplete degassing, i.e. K/Ar ages are too old. Loss of radiogenic argon may be assumed only in a few cases when repeated basaltic eruptions partially mobilized argon from the older volcanic products.

The presence of excess argon can usually be discovered by analyzing a greater set of samples, since a uniform increase of age of all parts of a large-sized rock body is highly unlikely and scattering of K/Ar ages clearly points to geological error. The real age of a set of coeval samples yielding different K/Ar data can be determined by the $^{40}Ar/^{36}Ar$-$K/^{36}Ar$ [12] and/or the $^{40}Ar_{rad}$-K isochron methods [13] if the points representing the samples fit a straight line in the proper coordinate system. It should be mentioned that $^{40}Ar_{rad}$-^{40}K and $^{40}Ar_{rad}$-K methods are equivalent.

Isochron ages are most reliable if there is a great difference in the potassium content of samples defining the isochron. Namely, points representing samples of equal potassium and radiogenic argon but varying atmospheric argon concentration fit a straight line in the $^{40}Ar/^{36}Ar$-$K/^{36}Ar$ diagram, but the slope of this "mixing line" defines an erroneously old "isochron age". The $^{40}Ar_{rad}$-K method cannot be applied to samples of uniform potassium content. The real isochron and the mixing line cannot be distinguished by mathematical methods. While dating basalts, the greatest difficulty is caused not by the obviously unsuitable samples, the representing points of which are irregularly distributed in the isochron diagrams, but by those which fit a straight line ("errorchron") and thus define a misleading age.

The isochron methods can be applied to different samples of a single rock body or, as it was first used by Fitch et.al. [14], to different fractions of a single piece of rock. This latter method is considered to be superior for the following reasons:

1. Using whole rock samples the initial radiogenic argon content may be proportional to the potassium content [12].

In this case both isochrons define the same erroneous age. This error is hardly recognizable.

2. The uniformity of initial $^{40}Ar/^{36}Ar$ ratio is more likely within a single piece of rock than within a whole rock body.

3. It is unlikely that in the fractions of a single piece of rock the initial radiogenic argon content is proportional to the potassium content, since in the course of crystallization the small potassium content minerals crystallize first, when the primary degassing of the slurry is still incomplete. Therefore, for defining the isochron age, fractions of a single piece of rock have been used preferentially. The rock was crushed to 0.08-0.15 mm size and fractions were separated magnetically or, less frequently, according to their specific weight. Unfortunately, we often failed to produce fractions of remarkably different potassium content. Isochron ages defined on fractions of similar potassium content (if their reliability could not be supported by additional arguments) were regarded as maximum ages.

There is a difference between the Rb/Sr [15] and K/Ar isochrons, since significant correlation between the argon isotopic and potassium concentration data has not been found. Therefore York's method [16] has been adopted for fitting the isochrons. On the other hand, the equation given by Deming [17] and adopted by York [16] for the estimation of the uncertainty of the slope has been modified. The estimation of the uncertainty of isochron ages was not regarded as a pure mathematical problem, since from the geochronological point of view the most important is the distinction of the isochron and mixing lines. This cannot be done without petrologic-mineralogic consideration, since they are mathematically equivalent. In addition to this, exact mathematical treatment is hindered by other factors, too.

1. Representative points never strictly fit a straight line. Some excess argon or argon loss always occurs and the initial isotopic composition of argon may be modified by diffusion processes. In spite of these, if the points fit an isochron well enough, the defined age can be accepted as the geological one.

2. The estimation of error of isotopic and concentration data is uncertain. If it is based on the repeated measurement of a standard sample over a longer period, the error is likely overestimated. If it is based on the standard deviation of the values recorded during a single measurement, it is underestimated, since it does not contain the systematic errors. This uncertainty of measurement errors makes the test of goodness of fit less reliable. Since we base our measurement errors on the long time stability of instruments and on the deviation of our results obtained on standard samples from the interlaboratory mean, we likely overestimate the error of ages. Therefore small geologic errors may be unrecognized and when the isochron is fitted to a greater number of points the error of slope calculated according to York [16] may be too small. In order to avoid giving misleadingly precise isochron ages, a value characterizing the uncertainty of slope has been defined in two ways:

1./ York's expression for σ_b [16] has been multiplied by $(\Sigma w_i)^{1/2}$, max.$(w_i)=1$).

2./ The

$$\sigma_b = \left[\frac{b^2 dx_\ell^2 + dy_\ell^2}{\sum_i w_i (x_i - x)^2}\right]^{1/2}$$

equation has been used where b denotes the slope, dx_ℓ and dy_ℓ the errors of the l-th measurement ($w_\ell=1$) and x the weighted mean of the measured x_i values.

Out of these two values obtained for σ_b, the greater has been accepted for calculating the error of the isochron age.

In the author's opinion, a more precise estimation of measurement errors could only be done at the expense of far more elaborated experimental work which would thus reduce the sphere of studiable chronologic problems. This loss would not be compensated by the more reliable errors of the radiometric ages.

References

1. Pantó, G.: Cenozoic Volcanism in Hungary Guide to Excursion 40C, Hungary. Int. Geol. Congr. XXIIIrd Session, Prague, 1968. Ed. Hung. Acad. Sci., Budapest, 1968.
2. Balogh, K., Berecz, I., Bohátka, S.: Argon extraction and purification system for K-Ar dating (In Hungarian) Földt. Közl. 107 (1977) pp. 208-214.
3. Balogh, K., Mórik, Gy.: Magnetic mass spectrometer for K-Ar dating. (In Hungarian) ATOMKI Közl. 20 (1978) pp. 215-228.
4. Balogh, K., Mórik, Gy.: High capacity argon extraction and purification system. (In Hungarian) ATOMKI Közl. 21 (1979) pp. 363-375.
5. Molnár, J., Paál, A., Sepsy, K.: Microprocessor based system for control, data aquisition and processing. (In Hungarian) ATOMKI Közl. 22 (1980) pp. 369-373.
6. Hámor, G., Balogh, K., Ravasz-Baranyai, L.: Radiometric age of the Tertiary formations in Northern Hungary. Ann. Rep. Hung. Geol. Inst. of 1976. pp. 61-76. Müszaki Kiadó, Budapest, 1978.
7. Balogh, K., Árva-Soós, E., Ravasz-Baranyai, L.: Potassium-argon dating of Mesozoic and Tertiary volcanites in Hungary. Proc. XIth Congr. CBGA, Sect. Magmatism and Metamorphism. pp. 28-37. Naukova Dumka, Kiev, 1980.
8. Rakovits, Z., Balogh, K., Szaszin, G.G.: Определение возраста алунитовой минерализации Советского Закарпатя калий-аргоновым методом (In Hungarian). Földt. Közl. 111 (1981) pp. 205-220.
9. Odin, G.S. ed.: Numerical Dating in Stratigraphy. Wiley and Sons, Chichester, New York, Brisbane, Toronto, Singapore, 1982.

10. Cox, A., Dalrymple, G.B.: Statistical analysis of geomagnetic reversal data and the precision of potassium-argon dating. Jour. Geophys. Research, 72 (1967) pp. 2603-2614.
11. Hámor, G., Ravasz-Baranyai, L., Balogh, K., Árva-Sós, E.: K/Ar dating of Miocene pyroclastic rocks in Hungary. Ann. Geol. Pays Hellén, Hors Serie, Fasc. II. (1979) pp. 491-500.
12. McDougall, I., Polach, H.A., Stipp, J.J.: Excess radiogenic argon in young subaerial basalts from Auckland volcanic field, New Zealand, Geochim. Cosmochim. Acta, 33. (1969) pp. 1485-1520.
13. Harper, C.T.: Graphical solution to the problem of radiogenic argon-40 loss from metamorphic minerals. Ecl. Geol. Helv. 63 (1970) pp. 119-140.
14. Fitch, F.J., Miller, J.A., Hooker, P.J.: Single whole rock K-Ar isochrons. Geol. Mag. 113 (1976) pp. 1-10.
15. McIntyre, G.A., Brooks, C., Compston, W., Turek, A.: The Statistical Assessment of Rb-Sr Isochrons. J. Geophys. Res. 71.(1966) pp. 5459-5468.
16. York, D.: Least-squares fitting of a straight line. Can. J. Phys. 44. (1966) pp. 1079-1086.
17. Daming, W.E.: Statistical adjustment of data Wiley and Sons, 1943. New York.

Referee: Ádám Kovách

HU ISSN 0236-5359

ATOMKI REPORT E/6 (1985)

NX-28 COLLIMATOR CONTROL AND DRIVER INSTRUMENT

László Záborszky

Abstract

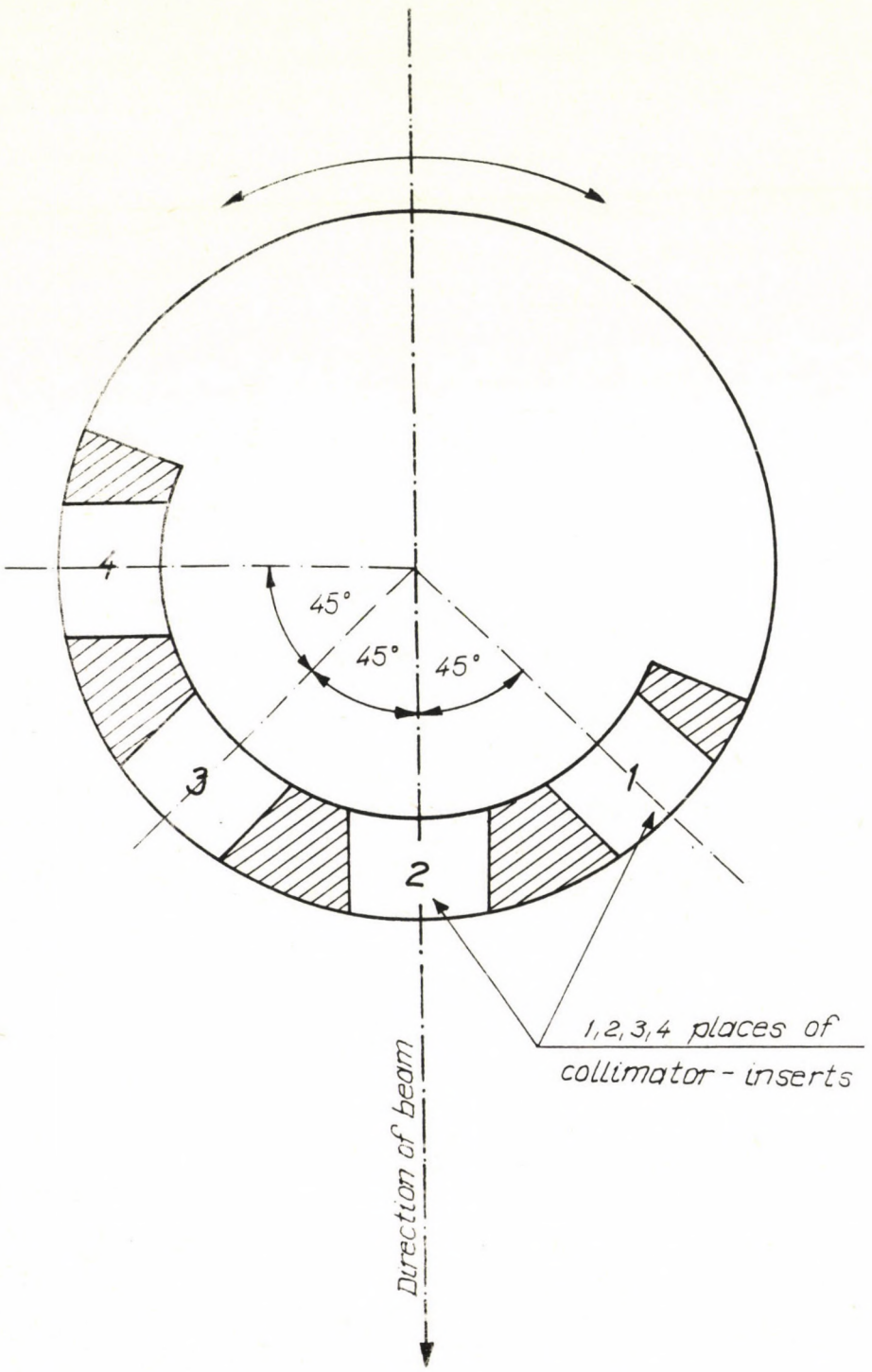
This article introduces an electronic instrument constructed for controlling and moving collimators planted on the isotope producer beam of rays of the cyclotron. 2 collimators can be set into 4 different positions independently of each other by means of this instrument.
The instrument can be controlled from 3 places, and the collimator positions are indicated by lights all in the 3 places, and the collimator positions are indicated by lights all in the 3 places. Of course the instrument is usable not only for controlling collimators of an isotope-producer beam of rays but other similar, maximum four-position collimators too. The setting-in accuracy of the collimator axle is better than ±0.75 degrees.

The NX-28 instrument is made for controlling and moving collimators planted on the isotope producer beam of rays of the cyclotron. 2 collimators can be set into 4 different positions independently of each other by means of this instrument. The collimators made to the cyclotron have four positions. In the first position the collimator stops the beam; in the other 3 positions beams of different diameters can be realized by changeable inserts. The diameter of the beam is about 30 mm without the collimator. The four collimator insert is placed on a part of the superficies of a cylinder equipped with bearing (Fig.1.).

The collimator axle is turned into the selected position by a windscreen-wiper motor, across a toothed gearing. The collimator must not make a full circle, because cooling water must be run to the collimator through flexible pipes. For this reason the turning is bidirectional. Making a full circle is not permissible because of other reasons either. (E.g.: In certain positions the collimator body would stop collimating.) The direction of the motor turning can be changed by the reverse of the polarization of the DC-voltage which is realized by a bridge-circuit made of powertransistors. The angle of the turn is measured by a helical-potentiometer (made by Gamma Works, 500 ohm; ±0.1% lin.) turned by the collimator axle, across a toothed gearing.

The collimators can be set into the selected position by a four-range ratio switch on the NX-28 instrument. This isn't possible if the "ACTIVE" light (LED) is not on. In this case setting the ratio switch is ineffective. 4-4 red-coloured LEDs indicate when the collimators reach the selected positions. When the motor has got supply voltage 1-1 yellow-coloured LED lights. The time of the setting in between two neighbouring positions is 1 sec, between the 1st and the 4th positions is about 3 sec.
During that time the motor gets voltage. The supply voltage of the motor is 7V, the feed current is about 3A, the current at starting may reach 8-10 A.

In the NX-28 instrument there is a "sequence circuit" that does not let the 2 motors work at the same time if the 2 ratio switches were set simultaneously or almost simultaneously. In this case the motor of either



Schematic drawing of the collimator

Figure 1

of the collimators starts (that one, which has got sooner the control signal) and after it has stopped, the other motor starts moving automatically into the selected position. This is necessary in order that the supply unit of the instrument may not be loaded by double motor current. In this way it was sufficient to design a supply unit and mains transformer only for one motor. This realisation does not mean any restrictions in the use, because the time of the setting in is only some seconds.

The places of the 4 positions are adjustable separately by trimmer potentiometers in an angle range of 8-12 degrees.

Depending on the inertia, the angular velocity and the friction the collimator axle does not stop immediately after switching off the motor. For this reason the motor must be switched off before the collimator reaches the selected position. This was realized by the prestress of the starter comparators, the quantity of which is adjustable by a trimmer potentiometer. The motor can be switched off a 0.5-5.0 degree angle before the selected position accordingly to the position of the potentiometer.

Possibilities of Remote Control

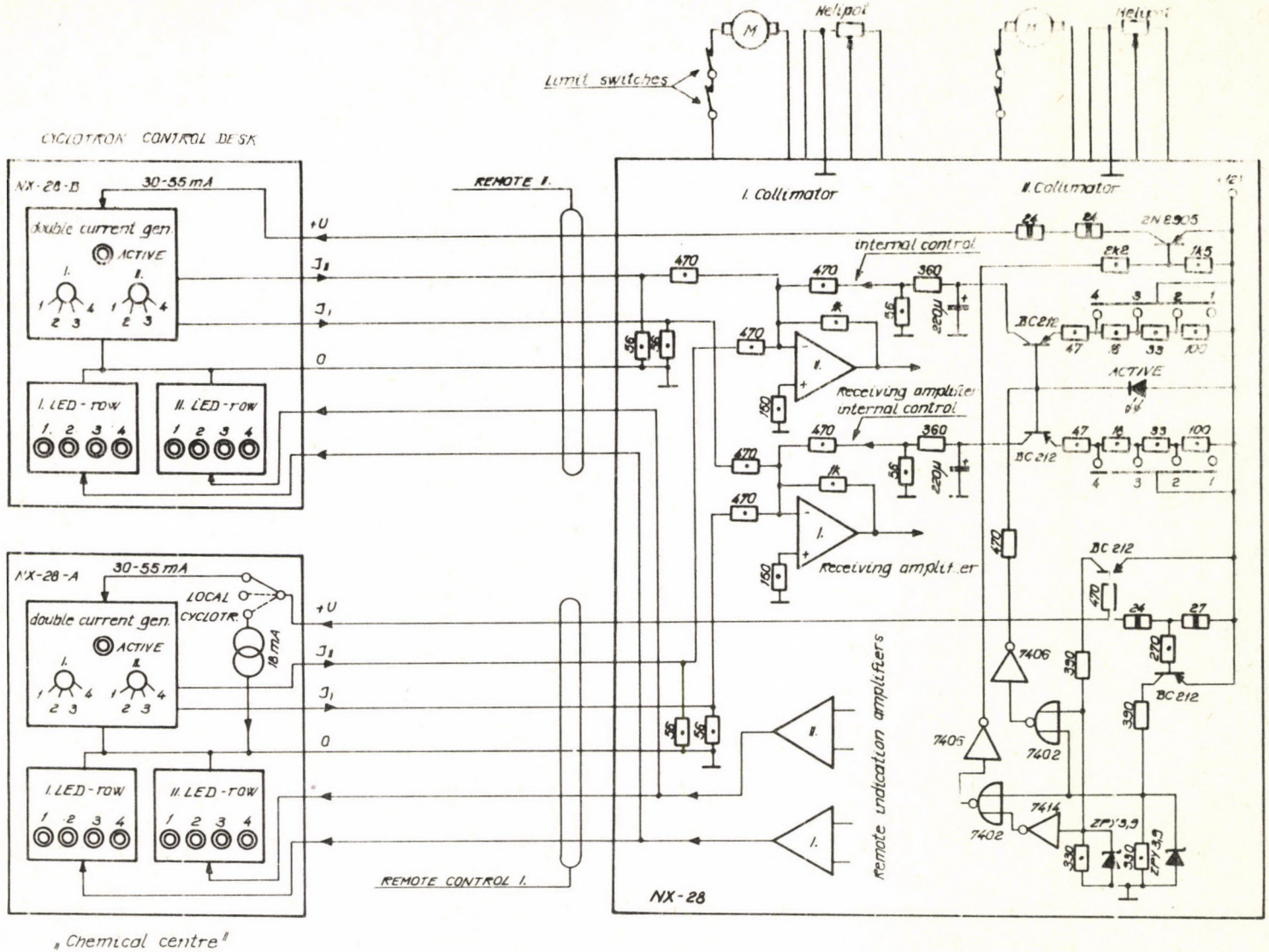
The NX-28 control and driver instrument is placed in the high-illuminator foreground, near the beam of rays. 2 remote control units can be connected to the instrument. One of them (NX-28-A) is placed in the central control room of the high-illuminator cabin (in the "chemical centre") / "REMOTE CONTROL I" connector/

The other one (NX-28-B) is placed on the control desk of the cyclotron /"REMOTE II" connector/

The remote control units have not power supply of their own, they get the action current by the cable from the NX-28 instrument. The whole system is shown in Fig.2. In this circuit diagram the principle of the remote control is drawn only. The collimators can be controlled from 3 places in all, but at the same time from the only unit, the "ACTIVE" light of which is on. Indicating the positions by the LEDs is continuous all at the 3 units.

The right of the control can be changed by a three-position switch on the NX-28-A unit in the central control room of the high-illuminator cabin. This switch changes the current consumed from the +12V power supply, for 3 well distinguishable levels (0; 18mA; 30-55 mA). In the NX-28 instrument the current runs through 2 series-connected resistors, and the voltage drop in the resistors controls 2 BC-212 transistors. If the current is zero, neither of the transistors conducts. If the current is medium (18 mA), either of the transistors, if it is high (30-55 mA) both of them conduct. The collector-current of the 2 transistors is converted into logic signals that shift the current generators. If the cable of the NX-28-A terminal equipment is taken out of the "REMOTE CONTROL I" connector, the right of the control is automatically passed to the NX-28 instrument. In this way, in case of emergency, it is possible to intervene immediately in the control in the high-illuminator foreground near the beam of rays. (For this reason the connector is placed on the front panel)

If the collimator is free of radiation and it is necessary to keep a check or to do a setting up, the NX-28-C remote control unit can be useful. It is a metal handbox of small size equipped with a 12 m long flexible cable which must be plugged in the "REMOTE CONTROL I" connector (instead of the NX-28-A unit!) when it is wanted to work. The remote control box turns active automatically by plugging.



Block diagram and principle of remote control

Figure 2.

Principle of Operation of the Motor-Control

The principle of the motor control and indication of the positions is shown in Fig.3. In this circuit diagram the circuit of the motor is not detailed.

10mA stable current runs through the helical-potentiometer measuring the angle of the turn. The helical-potentiometer is plugged in by a 4 core shielded cable. The current of the helical-potentiometer is drained to the negative supply voltage, for this reason these is no current running through the return wire. In this way the voltage drained from the helical-potentiometer is not influenced by the resistance of the return wire and the contact resistance of the connector.

The voltage being in direct proportion to the turn can be measured in the measuring point. That voltage is compared with the reference voltage by a well balanced difference amplifier (gain:5). If the two voltages are equal, on the output of the difference amplifier the voltage is 0V and the outputs of both of the starting comparators (C3;C4) are at logical 0 level, and the motor does not turn.

The output of the NOR gate is not at logical 1 level except this case.

If the reference voltage is higher than the voltage drained from the helical-potentiometer, the output of the amplifier is positive, the output of the C3 comparator is at logical 1 level, and the motor starts turning in either of the directions.

If the reference voltage is lower than the voltage deriving from the helical-potentiometer, the output of the amplifier is negative, the output of the C4 comparator is at logical 1 level, and the motor turns in the opposite direction.

The comparators are prestressed, balanced to earth. The quantity of the prestress is adjustable between 0.13V and 1.15V by a trimmer potentiometer.

Each of the positions has a reference voltage. The reference voltages are adjustable independently of each other by trimmer potentiometers. The reference voltages define where the system stops. The accuracy of the reference voltages merely on the +12V and +5V supply voltages, because the accuracy is influenced only negligibly by the residual voltage of the SN 7438 open collector gate, at logical 0 level. The stability of the reference voltage is better than the stability of the +12V supply voltage, because of the design of the supply unit. The two supply voltages are not independent of each other, but the reference of the +5V supply unit comes from the +12V. The alterations of the +12V and the +5V voltages cause adverse actions, at reference stage, and the alterations partly compensate each other.

The reference voltages deriving from internal logic signals are independent of that from where the instrument gets the control current. For this reason the control currents are not required to be very stable.

The control currents (I_{in}) can come from three places, but at the same time from one place only. The control currents get into the receiving amplifier. The output voltage (U_{out}) of the receiving amplifier is trans-

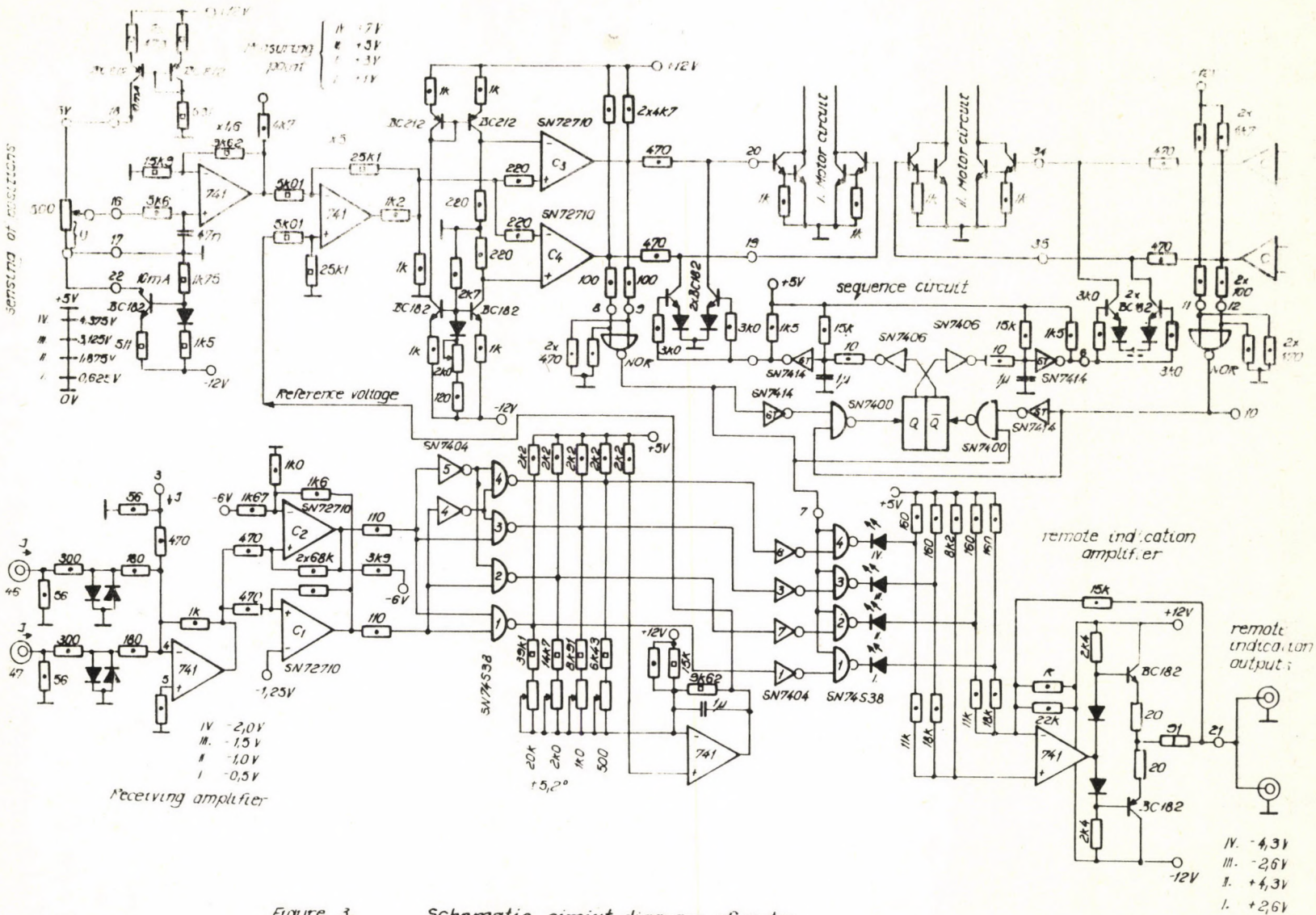


Figure 3. Schematic circuit diagram of motor control and position indication

formed into four kinds of logic signals by C1 and C2 comparators:

Position	I_{in}	U_{out}	C1	C2
1	5 mA	-0.5V	1	1
2	10 mA	-1.0V	1	0
3	15 mA	-1.5V	0	1
4	20 mA	-2.0V	0	0

The good working of the helical potentiometer is responsible in the first place for stopping the collimator. In case of an accidental defect of the helical potentiometer or the breaking of the cable the motor starts turning and knocks at the end position. In this case the motor and the gearing may get damaged. The collimators are equipped with 2 limit switches against this defect that cut off the current of the motor.

The collimator can be reversed from the end position by connecting opposed polarity voltage (6V; 3A) and short-circuiting the limit switches.

Technical Data

Number of controlled collimators	2
Number of positions	4
Accuracy of the setting in of the collimator axle:	
in positions 1. and 4.	less than ±0.5 degree
in positions 2. and 3.	less than ±0.75degree
Possibility of electronic adjustability of positions	±4.0 degrees
Time of the setting in between two neighbouring positions	1 sec
Time of the setting in between positions 1. and 4.	3 sec
Power consumption in static condition	25W
Power consumption during the motor works	60W
Type of the motor:	12V LADA windscreen-wiper motor
Turnsensing helical-potentiometer:	Gamma, 500 ohm, 0.1% lin

Data of Remote Control

Number of connectable remote control terminal equipments	2
Number of cores of a cable necessary to a terminal equipment	6
Max. resistance of a core	20 ohm

The input stages are protected against overvoltage and the output stages are protected against short-circuit.

Acknowledgements

The author thanks Dr Tamás Lakatos for the valuable advices at the beginning of the planning and Dr Ferenc Tárkányi for raising the idea of turnsensing by a helical potentiometer.

Károly Kiss design technician did excellent work (design of printed circuits and mechanic design).

The instrument was fitted together by József Bálint and László Budai mechanicians.

Referee: L. Bartha

ATOMKI Riport X/24 (1985) HU ISSN 0231-3685

INTÉZETI HIREK 1984

Kovách Ádámné

1. Kitüntetések, személyi hirek

Hazánk felszabadulásának 39. évfordulója alkalmából a Magyar Népköztársaság Elnöki Tanácsa kiemelkedő szakmai és társadalmi tevékenysége elismeréseként *dr. Somorjai Endre* tudományos főmunkatársnak a *Munka Érdemrend ezüst fokozata* kitüntetést adományozta.

A Magyar Tudományos Akadémia Főtitkára *Bagi József* gazdasági ügyintézőt és *Kertész Zsolt* müszaki ügyintézőt hosszu időn át végzett kiemelkedő munkájuk elismeréseként *Kiváló Munkáért* kitüntetésben részesitette.

MTA Ifjusági Dijat kapott *dr. Cseh József* tud. munkatárs "Könnyü magok rezonanciareakciói és magmolekulák" c. munkájáért.

Szocialista Kulturáért Érdeméremmel tüntették ki *Darin Sándorné* könyvtárvezetőt.

A Magyar Népköztársaság Elnöki Tanácsa *dr. Szalay Sándort*, az MTA rendes tagját, az intézet ny. igazgatóját, tudományos tanácsadót 75. születésnapja alkalmából kiemelkedő tudományos munkássága, eredményes iskolateremtő tevékenysége, az interdiszciplináris szemléletü kutatás meghonositásában játszott szerepe és széleskörü kutatási eredményei elismeréséül *Szocialista Magyarországért Érdemrenddel* tüntette ki.

A Magyar Népköztársaság honvédelmi minisztere a polgári védelem fejlesztése és e feladatok végrehajtása terén több éven át végzett kiemelkedő tevékenységük elismeréseként, a Fegyveres Erők napja alkalmából *Honvédelmi Érdeméremmel* tüntette ki *dr. Kovács Gyulát*, az Atommagkutató Intézet gazdasági igazgatóját, és *dr. Mórik Gyulát*, az Atommagkutató Intézet főmérnökét.

Az Eötvös Loránd Fizikai Társulat 1984. évi *Selényi Pál Diját dr. Sarkadi László* tudományos munkatárs kapta.

Dr. Berecz István tudományos osztályvezető kapta 1984-ben a MTESZ Hajdu-Bihar megyei Szervezete által alapitott *Hatvani István Dijat*.

Az 1984. évi *intézeti dijak* hazánk felszabadulásának 39. évfordulója alkalmából kerültek kiosztásra, az alábbiak szerint:

Az *ATOMKI Intézeti Dijat dr. Sarkadi László és dr. Pálinkás József* tudományos munkatársak egyenlő arányban megosztva kapták az ion-atom ütközésekben az L-héj ionizációjára kapott ujabb eredményeikért.

Az *ATOMKI Interdiszciplináris Dijat* az intézet igazgatója *dr. Hertelendi Ede* tud. munkatársnak itélte oda a radioaktiv környezetszennyezés vizsgálatában elért eredményeikért.

Az *ATOMKI Közmüvelődési Dijat dr. Kovách Ádám* tud. főmunkatárs kapta több éven át az ismeretterjesztés érdekében végzett intenziv tevékenységéért.

1984-ben az intézetben negyedik alkalommal került sor az intézeti *"Kiváló Dolgozó"* cim odaitélésére. Az intézet vezetőségének döntése alapján ezuttal ezt a cimet *dr. Halász Tiborné* kutatási asszisztens, *Juhos Sándor* müvezető és *Mosolygó János* müvezető kapták, éveken keresztül kifejtett eredményes munkájukért.

Az Intézet hagyományainak megfelelően 1984 évre is meghirdette az intézeti *Alkotó Ifjuság Pályázatot*. Összesen 13 pályamü érkezett be, valamennyi alapos, szinvonalas munkáról tanuskodott. Igy a biráló bizottság véleménye alapján az intézet igazgatója mindegyik pályamüvet dijazta. Az alábbi szerzők, illetve szerzőpárosok nyertek pályadijat: *dr. Pál Károly, dr. Kibédi Tibor, dr. Cserny István, dr. Vad Kálmán - dr. Mészáros Sándor, dr. Sarkadi László, Papp Tibor - dr. Sarkadi László - dr. Pálinkás József, dr. Kruppa András - Papp Zoltán, dr. Gácsi Zoltán, Ditrói Ferenc, Pálvölgyi Jenő, Tóth József, Fekete Sándor és Giurgiu Miklós, Bene Lászlóné.*

1984-ben is megrendezésre került a *Szakma Ifju Mestere* intézeti vetélkedő. A Szakma Ifju Mestere kitüntető cimet és az ezzel járó jutalmat az alábbiak nyerték el: *Bálint József, Papp Attila, Magyarné Gargya Éva, Budai Zoltán, Sári Attila és Petercsák Tibor.*

Dr. Szalay Sándor akadémikus, intézeti tudományos tanácsadót 75. születésnapja alkalmából a *DOTE* Egyetemi Tanácsa *Pro Universitate* emlékéremmel tüntette ki. Ugyanezen alkalomból az *MTA Központi Fizikai Kutató Intézete* Szalay akadémikusnak az *Intézet Emlékérmét* adományozta. Az ujonnan alapitott érmen, amit elsőként Szalay Sándor akadémikus kapott, Borsos Miklós Prometheusz c. alkotása látható.

2. Rendezvények

1984. május 14-18. között rendezte meg az Atommagkutató Intézet (az MTA és az OAB támogatásával) az *International Symposium on In-Beam Nuclear Spectroscopy* c. nemzetközi szimpóziumot, több mint 100 fő, többségében külföldi résztvevővel. A résztvevők között számosan a tudományterület kiváló, világszerte ismert képviselői voltak. A szimpóziumra 85 kutatóintézetből, illetve egyetemi tanszékről több mint 110 munkát nyujtottak be a résztvevők a konferencia anyagában történő közlés céljára.

1984. junius 25-én ünnepelték az ATOMKI dolgozói *az intézet alapitásának 30 éves évfordulóját*. Ebből az alkalomból házi ünnepséget rendeztek az intézetben, amelyen megjelent dr. Láng István, az MTA főtitkárhelyettese, dr. Ónosi László a megyei pártbizottság titkára, dr. Postás Sándor a Debrecen városi pártbizottság első titkára, dr. Gyarmati Kálmán a megyei tanács elnökhelyettese, dr. Ács István, a Debreceni Városi Tanács elnöke. A házi ünnepség alkalmából az intézet alapitótagjai megkapták a harmincéves törzsgárdatagságról szóló oklevelet és jelvényt. Az ATOMKI házi ünnepségén résztvett a Központi Fizikai Kutató Intézet főigazgatóhelyettese, dr. Kiss Dezső akadémikus, aki a társintézmény nevében üdvözölte az ATOMKI kollektiváját.
Az évforduló tiszteletére *intézeti muzeumot* alapitottak és rendeztek be az intézetben azokból az eszközökből és tárgyakból, amelyekkel a kutatást Szalay Sándor megkezdte Debrecenben, illet-

ve amelyeket az elmult évtizedek során használtak az intézetben. A muzeumot dr. Szalay Sándor tudományos tanácsadó nyitotta meg.

1984. augusztus 27-28-án *Second Workshop on High-Energy Ion-Atom Collision Processes* cimmel nemzetközi tudományos műhelyt rendezett az ATOMKI kb 40 fő részvételével. A debreceni rendezvényre a téma neves szakértői jöttek el, részben meghivott előadóként, az Egyesült Államokból, Japánból, Dániából, Ausztriából, a Német Szövetségi Köztársaságból és egyéb országokból. A résztvevők kb egynegyede volt meghivott előadó, ezek u.n. áttekintő előadást tartottak, a többi résztvevő 16 rövid előadásban számolt be a legujabb kutatási eredményekről. A 16 előadásból hatot az ATOMKI munkatársai tartottak.

1984. szeptember 27-én *Szalay Sándor* akadémikus 75. születésnapja alkalmából az Intézet *Magfizikai kutatások és alkalmazásaik* cimmel tudományos ülést rendezett a Debreceni Akadémiai Bizottság székházában. Az ünnepi ülésen résztvettek a megyei és városi párt- és állami szervek képviselői, valamint a társintézmények és a magyar tudományos élet számos képviselője. Dr. Szalay Sándor köszöntése után 14 tudományos előadás hangzott el az ülésen, az előadásokat Szalay Sándor volt tanitványai ill. munkatársai tartották.

1984. október 8-14. között hagyományainkhoz hiven ismét megrendeztük a *Fizikusnapok*-at, az ATOMKI, a Kölcsey Ferenc Müvelődési Központ, a Debreceni Akadémiai Bizottság, az Eötvös Loránd Fizikai Társulat és a TIT Hajdu-Bihar Megyei Szervezete közös rendezésében. A megnyitó előadást *Pál Lénárd* akadémikus, az Országos Müszaki Fejlesztési Bizottság elnöke tartotta "Tudomány - technológia - társadalom" cimmel. A Fizikusnapok keretében *"Tudomány és gyakorlat a 30 éves ATOMKI tevékenységének tükrében"* cimmel *kiállitás* is nyilt a Kölcsey Müvelődési Központ előcsarnokában, amit nagyszámu érdeklődő tekintett meg.

Az ATOMKI 1984. évi *Ifjusági Parlamentjét* 1984. október 12-én rendezték meg. Főbb témakörök voltak: ifjuságpolitikai eredmények; a fiatalok szakmai és politikai továbbképzésének helyzete; a fiatalok szociális és kulturális helyzete; a fiatalok szerepe az intézet terveinek és feladatainak megoldásában. Az intézet igazgatója az Ifjusági Parlamenten ismertette azt az intézkedési tervet, amely az Ifjusági Törvény helyi végrehajtására 1984-86. közötti időszakra vonatkozó konkrét feladatokat tartalmazza.

1984. november 13-15. között az ATOMKI, a Debreceni Akadémiai Bizottság és a Gépipari Tudományos Egyesület közös szervezésében ankétot rendezett az intézet *"Röntgenemissziós analitikai és interdiszciplináris alkalmazásai"* cimmel.

A Debreceni Orvostudományi Egyetem és az MTA Atommagkutató Intézete 1984. december 3-án rendezte meg a két intézmény évről-évre ismétlődő, sorrendben a *VIII. Évi Együttes Tudományos Ülését*. Az ülés keretében három előadás hangzott el, mindhármat az ATOMKI kutatói tartották.

3. Látogatások

Az alábbiakban - teljesség igénye nélkül - néhány kiemelkedő belföldi vendégnek az ATOMKI-ben tett látogatásáról számolunk be, időrendi sorrendben.

1984. január 18-án *dr. Szász Gábor a Debreceni Agrártudo-*

mányi Egyetem rektora az egyetem néhány vezető munkatársa kiséretében látogatást tett az ATOMKI-ben.
A látogatás alkalmával a vendégek és az ATOMKI vezetői áttekintették a két intézmény közötti együttmüködés eddigi eredményeit és megvitatták a további lehetőségeket.

1984. február 23-án látogatást tett az ATOMKI-ben *dr. Maróthy László,* az MSZMP Politikai Bizottságának tagja, a budapesti pártbizottság első titkára. Dr. Maróthy László, Sikula György, az MSZMP KB tagja, a megyei pártbizottság első titkára, dr. Ónosi László, a megyei pártbizottság titkára és dr. Postás Sándor a Debrecen városi pártbizottság első titkára kiséretében érkezett az intézetbe. A vendégeket dr. Berényi Dénes az intézet igazgatója fogadta, dr. Láng István akadémikus, a Magyar Tudományos Akadémia főtitkárhelyettese, dr. Zolnai László intézeti párttitkár és az intézet más vezetői társaságában. Berényi Dénes tájékoztatta a vendégeket az intézet történetéről, tevékenységéről, tudományos eredményeiről és azok gyakorlati hasznositásáról. A tájékoztató után dr. Maróthy László megtekintette az intézet néhány laboratóriumát.

1984. október 8-án *dr. Pál Lénárd* akadémikus, az Országos Müszaki Fejlesztési Bizottság elnöke látogatást tett az ATOMKI-ben.

1984. november 21-én az *MTA Izotóp Intézet igazgatója dr. Veress Árpád* látogatta meg az ATOMKI-t néhány vezető munkatárs kiséretében. A látogatás alkalmával a két intézet vezetői megvitatták a további együttmüködés lehetőségét, különös tekintettel az 1985. év második felében az ATOMKI-ben beinduló ciklotron laboratórium által biztositott lehetőségekre.

1984. december 13-án látogatást tett az ATOMKI-ben *dr. Krén Emil, a KFKI megbizott főigazgatója.* A két intézet vezetője a két intézet között hosszu évek óta fennálló szocialista együttmüködési megállapodás keretében folyó együttmüködés eredményeiről és további lehetőségeiről tárgyalt, majd Krén Emil megtekintette az intézet néhány kutató laboratóriumát és az épülő uj ciklotron laboratóriumot.

4. Nemzetközi kapcsolatok

1984-ben tovább fejlődtek az intézet nemzetközi kapcsolatai. E fejlődést bizonyitják egyrészről a külföldi intézetekkel folyó eredményes tudományos együttmüködések, azok tartalmi fejlődése és eredményessége, másrészről a külföldi kiküldetések illetve a külföldi látogatások számszerü emelkedése, amely már évek óta jól nyomon követhető. Az alábbiakban - a teljesség igénye nélkül - rövid áttekintést adunk az intézetben 1984. év folyamán fogadott külföldi vendégekről, az ATOMKI munkatársainak külföldi kiküldetéseiről és a fentiekhez kapcsolódóan megemlitjük az intézet néhány, különösen eredményes nemzetközi együttmüködését.

1984. folyamán az ATOMKI összesen *116 külföldi vendéget,* illetve *külföldi látogatócsoportot* fogadott.

Az intézetben hosszabb-rövidebb ideig itt tartózkodó vendégek közül név szerint az alábbiakat emlitjük meg:

Harmadik aspiránsi évét kezdte meg *Abdel Fattah Hafez Abdel Rehim* egyiptomi fizikus, aki dr. Somogyi György tud. főmunkatárs irányitása alatt dolgozik az ATOMKI-ben.

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

1984. január végétől vendégkutatóként két hónapot dolgozott az ATOMKI-ben *Dr. S.A. Katz* amerikai professzor (The State University of New Jersey, Camden College of Arts and Sciences, Camden, New Jersey, USA). Tanulmányutja alatt a röntgenemissziós analitikai csoportban hajmintáк nyomelem-vizsgálatával, illetve a korábbi ilyen jellegü vizsgálatok kiértékelésével foglalkozott dr. Bacsó József tudományos munkatárssal együttmüködésben.

Dr. Dao Tran Cao vietnámi fizikus kutató (Vietnámi Tudományos Akadémia, Fizikai Intézete, Hanoi) munkavállalással 1984. szeptemberétől két hónapot dolgozott az ATOMKI-ben az MTA és a Vietnámi Tudományos Kutatóközpont közötti együttmüködésben szereplő "Neutron és röntgenaktivációs analizis" c. témában.

1984. február közepétől egy hónapot töltött az ATOMKI-ben *M. Burkhard* NSZK fizikus tanársegéd (Institut für Kernphysik dr Johann Wolfgang Goethe Universität, Frankfurt/M) az MTA és a Deutsche Forschungsgemeinschaft közötti projekt-együttmüködés keretében.

Susanna Olivares Riemont kubai vegyésznő (Ministry of Higher Education, University of Havanna, Kuba) NAÜ ösztöndijasként 1984. áprilisától három hónapig dolgozott az ATOMKI-ben.

Dr. A.H. Khan bangladeshi vegyész (Atomic Energy Centre, Dacca, Bangladesh) 1984. április közepétől egy hónapig NAÜ ösztöndijas tanulmányuton volt az ATOMKI-ben.

A nemzetközi kapcsolatok terén fontos szerepe van a nemzetközi együttmüködéseknek, ezek közül az alábbiakban a csehszlovák, a finn és a japán együttmüködéseket emlitjük meg.

A *Csehszlovák Tudományos Akadémia* és az *MTA* között egyezmény keretében 1984. folyamán 10 csehszlovák kutató töltött egy-két hetet az ATOMKI-ben, névszerint; A. Kovalik, L. Suva, V. Brabec, J. Hoffman, K. Turek, N. Simunkova, M. Odehnal, R. Tichy, J. Fojtik, J. Frana (a Csehszlovák Tudományos Akadémia Magfizikai Intézetének (Prága, Rez), illetve a Sugárdozimetriai Intézetnek (Prága) munkatársai).

A *finn-magyar akadémiai együttmüködés* keretében öt finn kutató töltött 1-2 hetet az ATOMI-ben; Dr. N.A. Fontell (Accelerator Laboratory, University of Helsinki), Dr. A. Passoja (Department of Physics, University of Jyväskylä), Dr. Björn Fant (University of Helsinki, Department of Physics), S.J. Heselius és O. Solin (ABO Akademi Cyclotron Laboratory, Turku).

A *Japan Society for the Promotion of Sciences* (JSPS) és a *MTA közötti megállapodás* alapján, projekt-együttmüködés keretében érkezett az ATOMKI-be Dr. Keizo Ishii japán fizikus kutató (Cyclotron Radioisotope Center, Tohoku University, Sendai, Japan) két alkalommal 10-10 napos tanulmányutra, Dr. Nobuo Suzuki japán professzor (Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University Sendai) 3 napra.

A rövidebb időre érkező egyéb látogatók közül csupán néhányat emlitünk meg itt.

V. Hajkó, a Szlovák Tudományos Akadémia elnöke hivatalos akadémiai küldöttséggel érkezett az ATOMKI-be rövid látogatásra Szentágothai akadémikusnak, az MTA elnökének kiséretében. A látogatás célja a Szlovák és a Magyar Tudományos Akadémia közötti együttmüködés előkészitése volt.

G.N. Florov szovjet akadémikus, a dubnai Egyesitett Atomkutató Intézet Magreakciók Laboratóriumának vezetője 5 napos látogatást tett Debrecenben.

N. Kürti angol egyetemi tanár, az MTA tiszteleti tagja (Department of Engineering Science, Oxford) rövid látogatást tett és előadást tartott az Intézetben.

Itt emlitjük meg azt a *20 fős amerikai delegációt* (Vacuum Science and Technology Delegation to Europe), akik az USA *People to People* szervezet és az IBUSZ rendezésében néhány napos látogatásra érkeztek Magyarországra, ebből egy napot töltöttek az ATOMKI-ben.

1984 folyamán az intézet kutatói és mérnökei összesen 133 alkalommal utaztak külföldre, nemzetközi koferenciákon, szemináriumokon vagy tudományos ülésen való részvétel, illetve hosszabb-rövidebb tanulmányut, tapasztalatcsere vagy közös kutatások végzése céljából.

Az ATOMKI-ben elkezdett ion-atom ütközési kutatási programot az Intézet Atomfizikai Osztályának egyik csoportja *Dubnában* folytatja 1981 óta. E program keretében *hosszabb külföldi munkavállaláson dr. Végh János, dr. Ricz Sándor, dr. Kádár Imre* tudományos munkatársak és *dr. Varga Dezső* tudományos főmunkatárs folytatták munkájukat 1984 folyamán; eredményes méréseket végeztek a neon Auger-elektron-spektrumának vizsgálata terén, kimutatva a szatellit vonalak anizotróp eloszlását.

Dr. Pálinkás József tud. munkatárs 1984-ben tovább folytatta 1983 juniusában kezdett és 1984-ben meghosszabbitott tanulmányutját az Amerikai Egyesült Államokban, ahol a Texasi Egyetem Ciklotron Intézetében dolgozik munkavállalóként. Témája: ion-atom ütközésekből származó röntgen sugárzás tanulmányozása, lövedék és céltárgy röntgen sugárzása polarizációjának mérése.

Dr. Gácsi Zoltán tud. segédmunkatárs is meghosszabbitotta 1983-ban megkezdett ösztöndijas tanulmányutját, 1984-ben már munkavállalóként folytatta munkáját a Kentucky Egyetem Fizikai és Csillagászati Tanszékén; kutatási témája: atommagok szerkezetének vizsgálata, főként gamma-spektroszkópiai módszerekkel.

Dr. Hock Gábor tud. munkatárs három hónapot töltött munkavállalóként Dubnában, a Dubnai Egyesitett Atomkutató Intézet Magreakciók Laboratóriumában.

A *Nemzetközi Atomenergia Ügynökség* felkérésére *szakértőként Dr. Bacsó József* tud. csoportvezető két hónapig dolgozott Lusakaban (Zambia) ahol a Lusakai Egyetemen beinditotta a röntgen emissziós analitikai vizsgálatokat, beleértve a biológiai, orvosi és mezőgazdasági minták vizsgálatát. Feladata volt még a helyi kutatók kiképzése a fenti területen.

Ugyancsak NAÜ felkérésre szakértői megbizással Hanoiba (Vietnám) utazott *dr. Somogyi György* tud. főmunkatárs, ahol a "National Institute for Nuclear Research" intézetben egy hónapot töltött. Ezalatt a szilárdtest nyomdetektorok alkalmazásával kapcsolatban átadta tapasztalatait az ottani kollégáknak és segitséget nyujtott egy hosszutávu program megtervezésével kapcsolatban. A program a szilárdtest nyomdetektorok alkalmazására irányul.

Dr. Koltay Ede tudományos osztályvezetőt a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség két alkalommal kérte fel fejlődő országok szakemberei számára rendezett tanfolyam tartására. Singaporeben

4 hetet töltött, itt a "Research and application of energy dispersive X-ray fluorescence analysis" témában rendezett tanfolyam egyik meghivott előadója volt. Jugoszláviában - Ljubljanaban "Energy Dispersive X-ray Analysis" témakörben rendezett tanfolyamon tartott előadásokat. Itt három hétes volt a tanfolyam.

Dr. Mahunka Imre 1984 nyarán egyéves tanulmányutra utazott az NSZK-ba, itt a Heidelbergi Nukleáris Orvostudományi Intézetben a ciklotron orvosi alkalmazásaival kapcsolatban folytat tanulmányokat.

NAÜ-ösztöndijas tanulmányuton volt *dr. Lovas Rezső* tudományos főmunkatárs az NSZK-ban, Karlsruheban, a Kernforschungszentrumban dolgozott kétszer három hónapot, "Cluster modelek elméleti és technikai aspektusai" témában, egy korábban kialakitott együttmüködés folytatásaként. *Dr. Mahunka Imre* tudományos csoportvezető egyhónapos tanulmányutján a londoni Hamersmith Hospital-ban a ciklotron orvosi alkalmazásaival kapcsolatos kutatásokat és gyakorlati alkalmazásokat tanulmányozta.

Dr. Kövér Ákos tud. munkatárs és *dr. Szabó Gyula* tud. főmunkatárs 6 hetet töltött a frankfurti Egyetem Magfizikai Intézetében az *MTA és a DFG közötti* - már korábban is emlitett - *együttmüködés* keretében. A Debrecenben épitett ESA-13 elektronspektrométerrel az ion-atom ütközésből származó elektronokat vizsgálták a frankfurti 2,4 MV-os VdG gyorsitón. Ez a méréssorozat az ATOMKI VdG-5 gyorsitóján végzett kutatások folytatása volt.

Dr. Nyakó Barna tudományos munkatárs meghivást kapott a Daresbury Laboratórium NSF gyorsitójának igazgatójától háromhónapos kutató munkára 1984 októberétől. Témája: magszerkezeti vizsgálatok ritka földfémek tartományában a diszkrét és kontinuum gamma-sugárzás tanulmányozására. E kutatásokat Nyakó Barna még korábbi liverpooli tanulmányutján kezdte, 1982-83-ban.

Dr. Pál Károly három éves munkavállalásra utazott a Daresbury Laboratóriumba, a tanulmányut célja, ill. témája: alacsony energiáju magreakciók elméleti értelmezése terén korábbi együttmüködés folytatása.

Dr. Vertse Tamás tudományos főmunkatárs a stockholmi Research Institute of Physics-ből kapott meghivást, hogy öt hétre utazzék ki a meghivó fél költségére a stockholmi intézettel már évek óta meglévő együttmüködés folytatására. A két intézetben közös vizsgálatok folynak a nehézion optikai potenciál mikroszkópikus származtatása témában. Később ugyanez az intézet 10 hétre hivta meg Vertse Tamást, vállalva ismét a kinti tartózkodás költségeit, az együttmüködés folytatása érdekében. Viszonos látogatásokra Debrecenben 1985 év folyamán kerül majd sor.

Dr. Berényi Dénes intézeti igazgató meghivott előadóként résztvett az Aarhus-ban (Dánia) rendezett Symposium on Physics of Electron Ejection in Ion-Atom and Ion-Solid Interaction c. szimpóziumon, valamint a Lipcsében (NDK) rendezett X-Ray and Inner-Shell Processes in Atoms, Molecules and Solids c. konferencián, amelynek ugyancsak meghivott előadója és a szervező bizottság társelnöke is volt. Meghivott előadóként utazott Berényi Dénes int. igazgató a Brassói Nemzetközi Iskolára is.

Dr. Koltay Edéné tudományos csoportvezető, főmunkatárs a Herakleion-ban (Görögország) rendezett Európai Magfizikai Konferencián vett részt mint meghivott előadó, költségeit a meghivó rendezőbizottság fedezte.

Dr. Máthé György tudományos osztályvezető résztvett a Pekingben rendezett INTERNEPCON-84 kiállitáson, amelyen több intézeti tervezésü és kivitelezésü spektroszkópiai berendezés is bemutatásra került. A müszerek iránt komoly érdeklődés nyilvánult meg. Dr. Máthé György kiutazásának költségeit a METRIMPEX (Budapest) fedezte.

Ezen kivül az intézet több, itt név szerint fel nem sorolt kutatója és mérnöke is résztvett tudományos rendezvényeken a meghivó fél költségére, az ilyen jellegü támogatás az intézeti munkatársak, a külföldi társintézmények részéről megnyilvánuló megbecsülésének és munkájuk elismerésének a jele.

ATOMKI Report C/2 (1985)

SECOND HUNGARO-ITALIAN SYMPOSIUM ON SPECTROCHEMISTRY: NATURAL MATERIALS AND SPECTRAL ANALYSIS

Proceedings

Edited by

J. Bacsó and

K. Zimmer

Budapest

10-14 June 1985

SECOND HUNGARO-ITALIAN SYMPOSIUM ON SPECTROCHEMISTRY: NATURAL MATERIALS AND SPECTRAL ANALYSIS

Organized by

Magyar Tudományos Akadémia Spektrokémiai Munkabizottsága /MTA/, Budapest
Nemzetközi Kulturális Intézet /NKI/, Budapest
Eötvös Loránd Tudományegyetem /ELTE/, Budapest
MTA Atommag Kutató Intézete /ATOMKI/, Debrecen
ALUTERV-Fémipari Kutató Intézet /FKI/, Budapest
Instituto Superiore di Sanita /ISS/, Roma
Instituto Italiano di Cultura per l'Ungheria /IICU/, Roma
Ministero degli Affari Esteri-Direzione Generale delle Relazioni Culturali /MAE/, Roma
Consiglio Nazionale delle Ricerche /CNR/, Roma

Honorary Committee

M. Beck /MTA/
G. Mazzei /CNR/
K. Medzihradszky /ELTE/
Gy.Nádor /NKI/
F. Nagy /ELTE/
F. Pocchiari /ISS/
E. Porsia /IICU/

Organizing Committee

A. Alimonti /ISS/
S. Caroli /ISS/, co-chairman
E. Gegus /VVE/
G. Grazioli /CNR/
T. Guma /MAE/
Gy.Heltai /GATE/
L. Pólos /BME/, secretary
É. Rázsó /NKI/
M. Takács /MTA/
Gy.Záray /KFKI/
K. Zimmer /ELTE/, chairman

CONTENT

List of participants 310
PREFACE 312

Contributions:

S. Caroli, A. Alimonti, F. Petrucci /Rome/, K. Zimmer /Budapest/, K. Florián /Kosice/: A Versatile Approach to Trace Analysis: The Microwave-coupled Hollow Cathode Source 313

L.Papp, Z. Kovács /Debrecen/: Elektrothermische und Hohlkatoden-Strahlungsquellen neuerer konstruktion und deren Anwendung zur Untersuchung Biologischer Materialien 318

N. Omenetto, G. Rossi /Ispra/: Laser Spectroscopy: Highlights on the Activity at JRC-ISPRA 324

P. De Gregorio, R. Falessi, C. Petretto, G. Savastano /Rome/: Direct Spectrometric Analysis of Metal Surface by Glow Discharge and Spark Emission Sources 329

K. Danzer /Jena/, K. Zimmer /Budapest/, K. Flórián /Kosiče/: Classification of spectrographic Data by Means of multivariate statistical Methods 334

T. Kántor /Budapest/: On the Mechanism of Releasing Effect of Alkaline Earth and Lanthanum Chlorides in Flame Spectrometry 340

I. Lakatos /Miskolc/: Direct FAES and FAAS Analysis of Macromolecular Solutions 343

A. Liberti, I. Allegrini /Rome/: Analytical and Spectrochemical Possibilities for the Evaluation of the Atmospheric Environment 350

L. Boniforti, M. Terracciano /Rome/: Environmental Applications of Mass Spectrometry: Identification and Evaluation of Organic Pollutants 355

K. Dittrich, B. Hanisch und H.J. Stärk /Leipzig/: Spurenanalyse durch nichtthermische Anregungsverfahren 361

M. Ottaviani, P. Magnatti /Rome/: Atomic Absorption Spectrometry as Applied to the Determination of Environmental Pollutants in Vegetable Tissues 368

J. Borszéki /Veszprém/, G. Knapp /Graz/: Spurenelementen-Bestimmung in organischen Materialien unter Anwendung der HPA /Hochdruck-Aufschluss/ - ICP kombinierten Methode 373

B.V. Pavlović /Belgrade/: Spectrochemical Research of Nonconducting Materials 379

L. Vecsernyés /Budapest/: Optimum Excitation of Trace Elements in Natural Materials 384

K. Flórián /Košice/, K. Zimmer /Budapest/, S. Caroli /Rome/: Optimierung einer spektrographischen Analysenmethode für pulverförmige biologische Proben 388

A. Gogala /Ljubljana/: Some Experiences With the D.C. Arc Excitation of Geological Materials 393

E. Plško /Bratislava/: On the Accuracy of Spectrochemical Analysis of Geological Materials 398

E. Sabbioni /ISPRA/: Radioactivation and Radiation Tracer Methods for Research Related to the Protection of the Environment and Human Health * Not received before deadline.

C. Battistoni, G. Mattogno, E. Paparazzo /Rome/: X-ray Photoelectron Spectroscopy /XPS/ and its Applications to Surface Quantitative Analysis 406

L. Alagna, T. Prosperi, A.A.G. Tomlinson /Rome/: EXAFS and XANES Spectroscopies: Application to Biological Molecules 411

J.Bacsó /Debrecen/: On Determination of Ca in Hair and its use for Investigation of Coronary Heast Disease and Ca-metabolic Rate 416

Round Table Contributions

A. Alimonti, S. Caroli, S. Petrucci /Roma, I/: Applicability of ICP Spectrometry to Determination of Platinum in Biological Materials

Á. Bálint, Gy. Heltai, M. Sajgó /Gödöllő, H/: System for Emission Spectrometric N^{15}-Analysis of N^{15}-Labelled Amino-Acids

G. Carelli, S. Caroli /Roma, I/: Atomic Emission and Atomic Absorption Spectrometry for the Determination of Inorganic Arsenic and Organo-Arsenical Compounds in the Biological Fluids

J. Kardos, K. Zimmer /Budapest, H/: Spectrochemical System for Classification of Archaeological Ceramics

H. Lieth, B. Market /Osnabrück, BRD/: Concentration Cadasters of Chemical Elements in Contrasting Ecosystems

M. Madaro, A. Moauro /Roma, I/: Application of Thermal and Epithermal Neutron Activation Analysis to Rock and Sediment Samples

O. Senofonte, N. Violante, O. Falasca, S. Caroli /Roma, I/: Some Further Comments on the Microwave Couplet Holow Cathode Discharge

T. Träger /Budapest, H/: Matrix Correction in XRF Spectrometry

List of participants

SECOND HUNGARO-ITALIAN SYMPOSIUM
ON SPECTROCHEMISTRY

Italy

Dr. L. Alagna, Róma
Dr. A. Alimonti, Róma
Prof. L. Boniforti, Róma
Dr. M.C. Calicchia, Róma
Prof. S. Caroli, Róma
Dr. P. de Gregorio, Eur-Róma
Dr. M. Ottaviani, Róma
Dr. E. Paparazzo, Róma
Dr. F. Petrucci, Róma
Prof. A. Liberti, Róma
Prof. G. Rossi, Ispra
Prof. E. Sabbioni, Ispra
Dr. A. Farina-Mazzeo, Róma
Prof. G. de Gregorio, Róma
Dr. M. Madaro, Róma
Dr. P. Magnatti, Róma
Prof. P. Mazzeo, L'Aquita
Dr. M. Rubbiani, Róma
Dr. O. Senofonte, Róma
Prof. S.K. Shukla, Róma

Hungary

Dr. András Erzsébet, Budapest
Dr. Bacsó József, Debrecen
Dr. Bartha András, Budapest
Dr. Béres Tünde, Százhalombatta
Dr. Bertalan Éva, Budapest
Dr. Bezur László, Budapest
Dr. Billes Ferenc, Budapest
Dr. Borszéki János, Veszprém
Dr. Bozsai Gábor, Budapest
Dr. Fodor Péter, Budapest
Dr. Fodorné Szörényi Márta, Bp.
Dr. Fonyó Zsoltné, Budapest
Dr. Gadó Pál, Budapest
Dr. Gegus Ernő, Budapest
Dr. Győrfiné Buzási Anna, Bp.
Dr. György Józsefné, Budapest
Dr. Heltai György, Gödöllő
Dr. Ikrényi Károly, Budapest
Ihászné Horváth Márta, Budapest
Járó Márta, Budapest
Dr. Jeney Florence, Debrecen
Kardos József, Budapest
Dr. Kántor Tibor, Budapest
Dr. Karmacsi Árpád, Budapest
Dr. Kocsárdy Éva, Budapest
Dr. Lakatos István, Miskolc
Dr. Lásztily Alexandra, Budapest

Dr. Nagy Béláné, Budapest
Dr. Paksy László, Miskolc
Dr. Papp Lajos, Debrecen
Pólos László, Budapest
Dr. Szabó Zoltán László, Budapest
Dr. Szakács Ottó, Budapest
Dr. Szilvássy Zoltánné, Veszprém
Dr. Träger Tamás, Budapest
Dr. Vajda Ferenc, Budapest
Dr. Vecsernyés Lajos, Budapest
Dr. Záray Gyula, Budapest
Prof. Zimmer Károly, Budapest

Other countries

Prof. Dr. Klaus Danzer, Jena, DDR
Doz. Dr. Klaus Dittrich, Leipzig, DDR
Karol Flórián, Kosice, CS
Dr. Alenka Gogala, Ljubljana, YU
Dr. Günter Hanschmann, Leipzig, DDR
Prof. Dr. Bosko Pavlovic, Beograd, YU
Prof. Eduard Plsko, Bratislava, CS

PREFACE

The second Hungaro-Italian Symposium on Spectrochemistry was held in Budapest on 10-14 June 1985 and dealt with the central topic of spectrochemistry of non-conducting materials. The results of the joint research work between the Spectrochemical Laboratories of the Institute of Inorganic and Analytical Chemistry of the Loránd Eötvös University in Budapest and of the Istituto Superiore di Sanita in Rome were again presented on the symposium. The 23 years old cooperation between the mentioned institutions led to this series of biennial symposia in the field of the spectrochemical applications, held alternately in Italy and Hungary, with varying themes.

The symposium was timed so that it coincided in time with the Italian Cultural and Economic Days in Budapest and with the celebrations of the 350th anniversary of the foundation of the Eötvös University. These proceedings gave a worthy frame to the scientific discussions.

Twentyone plenary lectures were delivered in the scientific programme of the Symposium in English and German languages. There were discussed in details on the one side the development in various thermal and non-thermal excitation sources, in the first line these of atomic emission spectrometry, e.g. direct current arc, hollow cathode, flame,inductively coupled plasma, as well as laser induced fluorescence and ionization, atomic absorption, X-ray fluorescence, extended X-ray absorption fine structure, X-ray absorption near edge structure, X-ray photoelectric spectroscopy, neutron activation analysis, isotope analysis,mass spectrometry and radiation tracer methods, on the other side their analytical application in non-conducting materials: in the biology, geology, human health, environment, archaeology, trace element analysis in organic materials, further on surface analysis, investigation of accuracy, matrix effect and last but not least the application of the up-to-date evaluation and valuations methods, e.g., optimation and multivariate statistical method.

Short communication were given on two round-table sessions. This volume also contains the titles of these papers.

The second Hungaro-Italian Symposium on Spectrochemistry was as successful as the first one in Rome. Its scientific level and atmosphere in the Hungarian capital at least achieved the same as in Rome.

We express our sincere gratitude and acknowledgement to all participants. We hope that the symposium and this volume give a further impact on a fruitful collaboration between Italian and Hungarian spectrochemists.

K. ZIMMER and S. CAROLI
Chairmen of the Symposium

A VERSATILE APPROACH TO TRACE ANALYSIS: THE MICROWAVE-COUPLED HOLLOW CATHODE SOURCE

Sergio Caroli*, Alessandro Alimonti*, Francesco Petrucci*, Károly Zimmer** and Károly Flórián***

* Istituto Superiore di Sanità, Viale Regina Elena 299, 00161 - Rome, Italy;

** Institute of Inorganic and Analytical Chemistry, Eötvös Loránd University, Múzeum krt. 4/B, Budapest VIII, Hungary;

*** Department of Chemistry of the Metallurgical Faculty, Technical University, CS-04385 Košice, Švermova 9, CSSR.

Introductory Considerations

There is no doubt that all atomic spectroscopists are familiar with some of the main applications of the Hollow Cathode Discharge (HCD), at least with its role in Atomic Absorption Spectrometry (AAS). Already described by Paschen at the beginning of this century (1), the vitality of this low-pressure source is such that it still affords new perspectives which are by no means confined to the analytical field: this is confirmed by the increasing importance this source is gaining in laser technology or mass spectrometry.

This lecture, however, shall be limited to further exploitation of this discharge in Atomic Emission Spectrometry (AES), where properties such as sharpness, stability and reproducibility of spectra, low influence of matrix composition and reduced background intensity are well known (2, 3). Trace, minor and major elements in metal alloys, refractory powders, solution dry residues and even gaseous mixtures can equally well be quantified. On the other hand, the HCD has one major disadvantage, i.e. the fact that the absolute emission intensity is not comparable with that of most radiation sources as a consequence of the rather mild conditions necessary to operate the discharge to maintain its characteristics. The prolonged residence time of analyte atoms and the enhanced Signal-to-Background (S:B) ratio due to the absence of local thermodynamic equilibrium do not thus give favourable detection power as would be expected. Therefore it is understandable that there have been so many efforts to augment the emission output of the HCD without compromising its basic features. The problem has been tackled from different standpoints. To recall the most significant

mention should be made of the magnetic field-coupled HCD (4, 5), or the pulse-operated lamp by various authors (e.g. 6). Whilst in the former an increase occurs in the relative concentration of slow electrons in the central part of the plasma, which in turn causes an enhancement in the emission intensity of lines of low excitation potential, the latter mode permits a net increase in the S:B ratio mainly due to lessening of noise level. More recently, Araki and colleagues (7) have illustrated the consistency of the radiofrequency-boosted pulsed-HCD approach. Other modifications of the conventional set-up, which are of great interest in this respect are the microcavity (8), conical bottom (9) and auxiliary discharge-boosted (10) lamps. Over the last few years we have also developed a Microwave-coupled Hollow Cathode Discharge (MW-HCD), which appears to possess wide analytical potential (11-13).

A Theoretical Outline

In recent years low-pressure microwave-supported discharges have become of renewed interest (14). The break-down of an MW plasma occurs when an electric field at a frequency of 10 to 2500 MHz is applied to the noble gas contained in a sealed tube. Energy is transferred from the electric field to the gas atoms which thus ionize and excite through their collisions. The low particle density characterising plasmas at pressure not exceeding a few hundred Pascals is responsible for the absence of local thermodynamic equilibrium. It is also generally acknowledged that two groups of electrons can be identified under such conditions, one with low density and high energy and the second, much more abundant than the former, with high density and low energy. It can be assumed therefore that the HCD plasma and the MW plasmas share many important aspects. The idea of combining them in a single discharge in order to arrive at a mutual reinforcement is consequently quite justifiable. We do not intend here to give an extensive treatment of the processes taking place in a hollow cathode, as we assume these are already known in detail. One of the features of the HCD which deserves a special mention since it is unique, is that an aliquot of the electrons released from the cavity surface and accelerated across the dark space undergo a number of collisions small enough to cross the whole distance from wall to wall and thus revert the movement passing more than once through the glow region. These oscillating electrons do not obey the Maxwellian energy distribution and have an elevated ion- and photon-producing effectiveness. The working conditions adopted, as well as the nature of the support gas and cathodic material strongly influence the type and extent of the processes occurring in the plasma. The experience gained so far by our group in investigating the characteristics of the MW-HCD lamp support the opinion that the mutual reinforcement of the two discharges is the consequence of a more extended excitation of the atomic vapour. This would imply an increase in the

concentration of the fast electrons, as these are originally present in both discharge types. The population of gas metastables would thus increase and cause a higher excitation of the analyte species.

On the other hand, the number of rare gas atoms likely to undergo excitation not via metastable state would decrease, thus leading to lower emission and lower continuous background of the radiative recombination process. When using argon as the filler gas, the variations induced by the MW irradiation in the HCD are in full agreement with these hypotheses, while with helium this tendency is much less evident. The main effect of the MW superposition can be summarized as follows: i) increase of analytical emission; ii) diminution in background intensity; iii) decrease in carrier gas emission; iv) reduced self-absorption; v) improved sensitivity; and vi) improved detection power.

Experimental Set-up

The simplest way to couple the two excitation modes within one and the same tube is to separate the anodic and cathodic blocks of an HCD demountable lamp by a quartz cylindrical chamber through which the MW field can be transmitted from an external parabolic antenna. In order to achieve a more efficient coupling, a resonant cavity has been designed which becomes an integral part of the lamp and is connected to the MW generator by a coaxial cable. Whichever the coupling system adopted, the macroscopic effect is an increase in luminescence in the whole space inside the lamp and in particular of the glow within the cathode, the intensity of which depends on either applied HCD current or MW power.

Examples of Analytical Applications

The composite excitation source described above has been employed for the determination of minor and trace elements in solid conducting samples. The metal sample can be directly machined in the form of a hollow cathode, so that its entire inner surface can provide analyte atoms to the plasma, or shaped as flat discs to be placed at the bottom of hollow cylinders of other materials (mostly graphite). The second option is obviously less time-demanding insofar as the sample preparation is concerned, but has the disadvantage of a reduced surface available for analysis. This can be counterbalanced by the enhanced emission output of the composite source. Quantitation of some minor elements (Cr, Cu, Mn, Mo and Ni) in steel has given a gain of roughly one order of magnitude in detection power also accompanied by improved sensitivity and precision (13). Qualitatively identical results have been obtained by investigating a set of Cu specimens doped with Ag, Al, As, Bi, Fe, Mn, Ni, Pb, Se, Sn and Zn in the ppm range (15). A further representative example is the quantitation of some minor constituents (Cu, Mg, Mn)

in a series of Al alloys (16). Special interpretation would be given to this application, since aluminium is one of the few exceptions as regards MW influence. In fact, the intensity of its spectral lines is normally negatively affected by the MW irradiation. No acceptable explanation can be found so far for this phenomenon and therefore it is of interest to experimentally ascertain that the combined discharge is beneficial for other elements notwithstanding the presence of an aluminium matrix.

Nonconductive powders, such as airborne dusts or ashes from biological materials can profitably be assayed by the composite source (17). Provided that the particle average size is less than 40 μm and that the polarization of the analyte refractory granules is avoided by pulse operation of the discharge, highly reproducible results can be obtained with both the conventional and MW-coupled discharge. Again, enhancement of the analytical signal is accompanied by improved precision and linearity of the calibration graphs. A third typical area of application of the HCD is the analysis of solution dry residues. This type of determination could be assimilated to the preceding one, as in both instances nonconductive materials are to be sputtered. The basic difference is that the salt layer deposited from the solution is thin enough to be quickly etched and transported into the discharge zone despite its insulating nature. A latency period is generally observed before the analytical signal fully develops. Additional proof that the MW do not sensibly alter the sputtering rate but act essentially by more efficaciously exciting the available analyte atoms can be found in that the burn-off curves in both operation modes have substantially the same duration, which would not be the case if a more rapid vaporization took place with the coupled discharge. Insofar as metalloids are concerned, we would like to stress that the HCD, already inherently suited for their analysis, further benefits from a coupling with MW irradiation. Successful experiments have been carried out even with helium as the carrier gas. In fact, it has been possible to determine P in salt films deposited onto Cu supporting cathodes under steady and reproducible discharge conditions which in the conventional mode generated too faint a spectrum (18).

To conclude this inevitably incomplete survey, some general though certainly not definitive trends can be identified, i.e.:

- the enhancement of the analytical signal obtained in most cases with this combined source permits smaller samples or samples with a more convenient form (e.g. flat discs) to be easily investigated this being of great advantage in metallurgy, toxicology, etc.;
- the possibility of operating the discharge at moderate electric parameters is in turn a key factor for preserving its basic characteristics at the optimal level, thus overcoming present limitations of conventional tubes;
- reduction in background and self-absorption as well as the expected prolonged lifetime of the composite lamp are further features of undeniable value from an analytical point of view with promise

in both atomic absorption and atomic emission spectroscopy.

Additional beneficial consequences might be inferred in other fields in which the HCD is of practical value, such as the generation of emission spectra from organic compounds.

References

1. F. Paschen, Ann. Phys. IV, 50 (1916), 901.
2. S. Caroli, Progr. Anal. Atom. Spectrosc., 6 (1983), 253.
3. P. J. Slevin, W. W. Harrison, Appl. Spectrosc. Rev., 10 (1975), 201.
4. E. Badareu, C. Popovici, H. Somesau, Rev. Roum. Phys., 12 (1967), 3.
5. N. K. Rudnevsky, D. E. Maksimov, T. M. Shabanova, Zh. Prikl. Spektrosk., 13 (1970), 199.
6. R. Djulgerova, Bulg. J. Phys., 4 (1977), 459.
7. T. Araki, J. P. Walters, S. Minami, Appl. Spectrosc., 34 (1980), 33.
8. J. Czakow, Kém. Közlem. 45 (1976), 159.
9. R. Djulgerova, D. Zhechev, Spectrosc. Lett., 16 (1983), 765.
10. A. Buzási, Zs. Szilvássy, Acta Chim. Hung., 113 (1983), 285.
11. S. Caroli, A. Alimonti, F. Petrucci, Anal. Chim. Acta, 136 (1982), 269.
12. S. Caroli, F. Petrucci, A. Alimonti, Trends Anal. Chem., 1 (1982), 368.
13. S. Caroli, F. Petrucci, A. Alimonti, Can. J. Spectrosc., 28 (1983), 156.
14. C. I. M. Beenakker, Spectrochim. Acta, 31B (1976), 483.
15. S. Caroli, O. Senofonte, N. Violante, F. Petrucci, A. Alimonti, Spectrochim. Acta, 39B (1984), 1425.
16. S. Caroli, A. Alimonti, F. Petrucci, Spectrosc. Lett., 1985 (in press).
17. S. Caroli, A. Alimonti, K. Zimmer, Spectrochim. Acta, 38B (1983), 625.
18. S. Caroli, O. Falasca, O. Senofonte, N. Violante, Can. J. Spectrosc., 1985 (in press).

ELEKTROTHERMISCHE UND HOHLKATODEN-STRAHLUNGSQUELLEN NEUERER KONSTRUKTION UND DEREN ANWENDUNG ZUR UNTERSUCHUNG BIOLOGISCHER MATERIALIEN

L. Papp und Z. Kovács

Lehrstuhl für anorganische und analytische Chemie der Lajos Kossuth Universität, H-4010 Debrecen, Hungary

1. Einleitung

Forschung und Industrie stellen in den letzten Jahrzehnten immer grössere Anforderungen an die Spurenelementenanalytik. Diese Anforderungen offenbaren sich in erster Linie darin, dass aus einer Probe in der Grössenordnung µg-mg eine Spurenanalyse im Bereich von ppb-ppm Konzentrationen von Multielementen simultan vorgenommen werden soll.

Im Rahmen obiger Aufgaben befassen wir uns seit 10 Jahren mit der Weiterentwicklung von emissions-spektralanalytischen Strahlungsquellen. Wir haben Elektrothermischen-, Hohlkatoden-, Glimmentladung-Strahlungsquellen nach Grimm, mit Gleichstrom arbeitende inverse Y-Argonplasma-, und ICP-Plasma-Strahlungsquellen konstruiert. In weiterem berichte ich über unsere, mit Elektrothermischen- und Hohlkatoden--Strahlungsquellen erreichten Ergebnisse.

Mit der elektrothermischen Strahlungsquelle ist die Untersuchung der niederen, mit der Hohlkatoden-Strahlungsquelle diejenige der mit höherem Anregungspotential emittierten Spektrallinien möglich.

2. Die elektrothermische Strahlungsquelle

OTTAWAY und seine Mitarbeiter [1-4] haben gefunden, dass mit den im Handel für Atomabsorptionsanalyse erhältlichen Graphitrohr-Atomisatoren auch monoelementen Emissionsuntersuchungen von sehr grosser Nachweisbarkeit durchgeführt werden können. Wir haben seit 1975 eine Graphitrohr-Strahlungsquelle und dazu eine Methode ausgearbeitet [5-8], die für eine simultane Bestimmung von Multielementen mit Hilfe der Emissions-Spektralanalyse geeignet ist. Diese Strahlungsquelle sichert hauptsächlich die Anregung der Übergänge, die zum Zustandekommen der über 300 nm liegenden Spektrallinien mit einem niederen Anregungspotential (≤ 4 eV) notwendig ist. In der, im Vortrag vorgeführten Abb.1. ist die Strahlungsquelle, in Abb.2. die daran geschlossene elektronische Steuerungs- und Stromversorgungseinrichtung abgebildet.

Die aufeinander folgenden Stufen des Heizungsprogrammes (Geschwindigkeit, Bereich und Zeitdauer) können von einander unabhängig eingestellt werden, und nachher kann eine Reinigung (clean out) nach Bedarf vorgenommen werden. Das bis zu 3300 °C aufheizbare, auf pyrolytischem Wege beschichtete Graphitrohr eigener Herstellung wird von aussen durch einen Ar-Gasstrom

vom raschen Verbrauch geschützt. Auf diese Weise können - bei einer Temperatur von max. 3000 °C - ungefähr 60-80 Analysen mit einem Graphitrohr durchgeführt werden.

Diese Einrichtung kann natürlich auch bei Atomabsorptionsspektrometern als Graphitrohr-Atomisator gebraucht werden.

Mittels dieser Strahlungsquelle - bei optimierten Parametern - und mit Hilfe der spektrographischen Methode (Spektrograph vom Typ Zeiss Q-24) ergaben sich aus wässrigen Lösungen für die Nachweisgrenze (3 δ) der technisch wichtigen Metalle folgende Werte:

Tabelle 1. Nachweisgrenze (3 δ) einiger Metalle bei elektrothermischer Anregung mit dem Spektrograph vom Typ Zeiss Q-24

Element	Wellenlänge (nm)	Nachweisgrenze (ppm)
Mg	285,2	0,015
Li	323,2	0,411
Cu	327,3	0,008
Ag	328,0	1,622
Na	330,2	0,241
Co	340,5	1,030
Ru	343,6	0,095
Ni	352,4	0,083
Ti	365,3	0,008
Fe	371,9	0,004
Mo	390,2	0,011
Al	396,1	0,006
Mn	403,0	0,017
K	404,4	0,917
Ca	422,6	0,004
Cr	425,4	0,005
V	438,4	0,009
Ba	455,4	0,009
Sr	460,7	0,010

In Tabelle 2. zeigen wir die Nachweisgrenzen, die mit dieser Strahlungsquelle - mit Hilfe der simultanen spektrometrischen Methode für Multielemente - im Falle von 12 Metallen aus biologischen Medien (Serum, Urin, Lymphozyten, Granulozyten, usw.) erreicht wurden.

Tabelle 2. Nachweisgrenze einiger, biologisch wichtiger Elemente aus zersetzten biologischen Proben

Element	λ, nm	Nachweisgrenze ⌘ μgcm^{-3}	RSD % • 0,05 μgcm^{-3}	(n=5) □ 5,0 μgcm^{-3}
Al	396,2	0,01	9,5	2,9
Ba	614,1	0,03	12,1	6,3
Ca	422,7	0,005	10,7	3,0
Co	353,0	0,08	33,0	7,2
Cr	425,4	0,03	29,0	4,8
Cu	327,4	0,02	11,2	5,9
Li	670,8	0,001	21,6	6,7
Mn	403,4	0,03	14,3	4,2
Mo	317,0	0,03	15,4	4,8
Na	589,0	0,005	24,7	6,1
Ni	341,5	0,01	24,3	2,7
V	437,9	0,02	17,8	5,4

⌘ 40 µl Probe, 3 Werte

• Ca 0,025 μgcm^{-3}; Co 0,1 μgcm^{-3}; Li 0,001 μgcm^{-3}

□ Ca 2,5 μgcm^{-3}; Co 10,0 μgcm^{-3}; Li 0,2 μgcm^{-3}

Aus den Angaben der Tabelle ist ersichtlich, dass die untersuchten Elemente mit einer Konzentrationsgrenze von 0,001-0,08 μgcm^{-3} nachgewiesen werden können.

Da diese Einrichtung so konstruiert wurde, dass in der Periode der Zersetzung auch eine sehr langsame (schonende) Heizung möglich ist (die Zersetzung der Probe kann auch 30 Minuten dauern und die Temperatur steigt inzwischen auf 300 °C), wurden auch Versuche zur Analyse von biologischen Flüssigkeiten ohne vorangehende Zersetzung (die Zersetzung geht im Rohr vor sich) durchgeführt.

Bei dieser direkten Zersetzungsmethode erhielten wir nahezu zweimal grössere Signale als aus den Proben die gesondert zersetzt wurden. Dies kann so erklärt werden, dass sich die zu untersuchenden Elemente auf der recht grossen Oberfläche des aus den organischen Stoffen entstandenen Kohlenstoffes verteilten. Ausserdem kommt auch die Plattformwirkung zur Geltung, d.h. die Anzahl der freien Atome (und der aus ihnen entstehenden angeregten Teilchen) erreicht augenblicklich eine sehr hohe Konzentration und steigert dadurch die Höhe der Emissionsspitzen. Der einzige Nachteil dieser Methode besteht darin, dass die kleine, im Rohr entstandene "Kohlenplattform" nach jeder Untersuchung entfernt werden muss.

3. Hohlkatoden-Strahlungsquelle vom neuen Typ^{R}

Hohlkatoden-Strahlungsquellen gibt es seit fast einem Jahrhundert. (PASCHEN hat im Jahre 1916 die erste Strahlungsquelle mit Glimmentladung konstruiert [9].) In den darauf folgenden Jahren haben sie viele Fachleute untersucht und weiterentwickelt. CAROLI [10] hat in seinem zusammenfassenden Bericht (The Hollow Cathode Emission Source: A Survey of the Past and a Look into the Future) einen ausgezeichneten Überblick über diese Art der Strahlungsquellen gegeben.

Mit der Verbreitung der Atomabsorptionstechnik hat bei der Konstruktion dieser Strahlungsquellen eine recht dyanamische Entwicklung eingesetzt, die Resultate haben sich aber nur in den für diese Zwecke hergestellten Hohlkatodenlampen realisiert. Im Falle der emissions-spektralanalytischen Strahlungsquellen für eine simultane Analyse von Multielementen bestehen aber heute noch viele ungeklärte theoretische Probleme, ausserdem ist ihre Handhabung etwas schwerfällig.

Trotzdem sehen die auf diesem Gebiete arbeitenden Fachleute darin grosse Möglichkeiten; so z.B. ausgezeichnete Reproduzierbarkeit, eine grosse absolute Empfindlichkeit als Folge der cyklischen Anregung, ein minimaler Materialbedarf - von cca. 1 mg - zur Untersuchung, kleine Linienhalbwertbreite, Möglichkeit der Anregung von Elementen mit hohem Ionisierungspotential (z.B. nicht-Metalle) usw.

Alle diese Vorteile inspirieren die Forscher den Mechanismus der sich in der Strahlungsquelle abspielenden Vorgänge zu untersuchen und dadurch der Klärung dieser Vorgänge näher zu kommen. Weiterhin, dass sie eine Strahlungsquelle schaffen, die leichter zu handhaben ist als die bisherigen, denn ihre Verbreitung wird am meisten z.B. durch die schwerfällige Einführung der Proben gehindert.

Wir befassen uns auf unserem Lehrstuhl seit 15 Jahren mit der Weiterentwicklung von Hohlkatoden-Strahlungsquellen, worüber wir schon öfters berichtet haben [11,12,13].

Ich möchte sie jetzt mit einer Hohlatoden-Strahlungsquelle neuen Typs bekannt machen, die zur Untersuchung von elektrisch leitenden festen Stoffen und Lösungen (bzw. von nichtleitenden Pulvern) dient und im Vergleich zu den früheren Strahlungsquellen folgende Vorteile besitzt:

1./ Ort und Vorgang der Verdampfung und der Anregung sind in der Strahlenquelle praktisch getrennt worden, und sind daher einzeln regelbar. (Siehe Abb.3.) Die Verdampfung geschieht auf der kleinen Endplatte des vom Katodenzylinder isolierten und über ein negativeres Potential als dieser Zylinder verfügenden Stabes. (Hier tritt auch eine geringe Anregung neben der Verdampfung auf infolge der in grossen Massen und mit grosser Geschwindigkeit einschlagenden Ar^{+}-Ionen.)

2./ Das Anregen mit Ar^{+}-Ionen der am Ende des Stabes befindlichen Probe (oder des aus dieser Probe hergestellten Stabes bzw. Stab-Endes) - also das Ausmass der Verdampfung - kann mit dem Wiederstand R_1 auf das gewünschte Werte eingestellt werden.

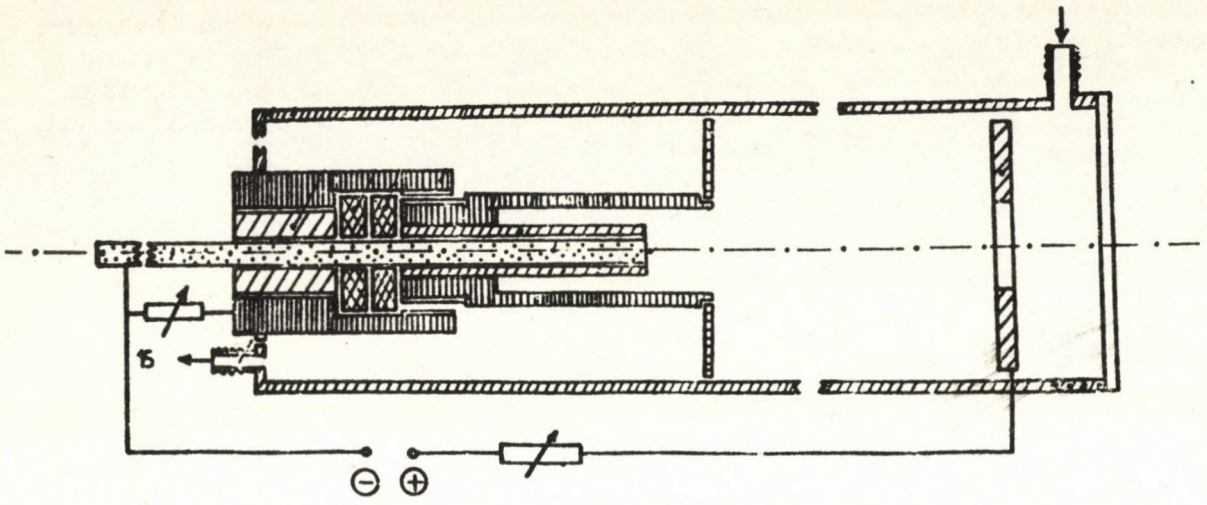


Abbildung 1. Neue Typ Hohlkatoden-Strahlungsquelle

3./ Die Anregung geschieht weiterhin - hauptsächlich - im Katodenhohlraum, und die Struktur der Spektrallinien steht nahe zu jener der früher mit Glimmentladung gewonnenen Spektrum. (Am Ende des Stabes ist die Anregung bogenartig, im Zylinder tritt hingegen hauptsächlich Elektronen- und Ionenanregung auf.)

4./ Durch entsprechende Auswahl der Potentialdifferenz zwischen Katodenzylinder und Stäbchen, kann erreicht werden, dass der Stoff des Zylinders nicht verdampft, bzw. nicht angeregt wird.

5./ Der Probenwechsel geschieht ausserordentlich schnell, er benötigt 1-2 Sekunden und ist ohne Zerlegung der Strahlungsquelle mittels eines Silikongummi-Septumpaares durchführbar, während dessen in den Entladungsraum keine Luft eindringen kann. (Die Silikonsepten spielen hier die Rolle von doppelten Stopfbüchsen, demzufolge kann mit diesem System der Edelgasverbrauch vermindert werden.)

Diese Methode ist für die Untersuchung von Metallen, Metallegierungen und Dünnschichten geeignet. Im Laufe des Vortrages zeigen wir die Untersuchungsergebnisse eines Eisenstäbchens von 2 mm Durchmesser, dessen Oberfläche in 2-50 nm Dicke mit Ni und Ag überzogen ist. Es ist ersichtlich, dass die Spektrallinien aller drei Elemente schon zu Beginn der Untersuchung erscheinen, die Intensität der aus Metallfilmen - die mittels Vakuumverdampfung oder Elektrolyse aufgetragen wurden - stammenden Spektrallinien nimmt aber schnell ab und hält zu Null, diejenige der Linien des Grundmetalls hingegen nimmt dem Ablauf einer Sättigungskurve folgend zu.

Im Falle von Lösungen wird das Ende des Stäbchens aus Spektralkohle hergestellt und in diese saugen wir die Probe auf, bzw. trocknen wir sie ein, der Methode von CAROLI [141 folgend.

Bei der Untersuchung von festen, nichtleitenden Stoffen wurden in erster Linie qualitative Bestimmungen durchgeführt. Wir haben die Methode so angewendet, dass das nichtleitende Pulver mit Silberpaste, und nachher mit einer Hitzebehandlung bei niederer (200-280 °C) Temperatur fixiert wurde.

Zwecks quantitativer Analyse der nichtleitenden Pulver planen wir dieselben mit spektralreinem Graphitpulver zu homogenisieren, dann zu Tabletten zu formen und so auf die Endfläche des Stäbchens aufzutragen.

Im Laufe der bisherigen Arbeit untersuchten wir in erster Reihe die in der neuen Hohlkatoden-Strahlungsquelle auftretenden wichtigeren Vorgänge, in den gegenwärtig laufenden Versuchen untersuchen wir die Möglichkeiten ihrer Anwendung bei Rutineanalysen.

Literatur

[1] J.M. Ottaway, F. Shaw: Analyst 100, 453 (1975)
[2] J.M. Ottaway, F. Shaw: Appl. Spectr. 31, 12 (1977)
[3] J.M. Ottaway, R.C. Hutton: Analyst 101, 638 (1976)
[4] D. Littlejohn, J.M. Ottaway: Analyst 103, 662 (1978)
[5] L. Papp: XXI MSZEV 25 Szeged (1978)
[6] L. Papp: Magyar Kémiai Folyóirat 87, 234 (1981)
[7] L. Papp: MTA Müszerügyi és Méréstechnikai Közlemények 31, 43 (1981)
[8] L. Papp: Spectrochim. Acta 38B 9, 1203 (1983)
[9] F. Paschen: Ann. Phys. 50, 901 (1916)
[10] S. Caroli: Progress in Anal. Atomic Spectr. 6, 253 (1983)
[11] L. Papp: XIX MSZEV VIII/11 Győr (1976)
[12] L. Papp, L. Rácz: XXIV MSZEV 91 Miskolc (1981)
[13] L. Papp: Hung. Patent 3827/84 (1984)
[14] S. Caroli, O. Senofonte, P.D. Femmine: Analyst 108, 196 (1983)

LASER SPECTROSCOPY: HIGHLIGHTS ON THE ACTIVITY AT JRC-ISPRA

Nicolo' OMENETTO and Guglielmo ROSSI
Chemistry Division, Joint Research Centre, Establishment of Ispra - 21020 ISPRA (VA), ITALY

The lecture will discuss the diagnostic and analytical potential of the techniques of laser induced fluorescence and ionization in flames and plasmas at atmospheric pressure. The excitation is provided by two tunable dye lasers which are pumped simultaneously by a single excimer laser operated with XeCl. The two laser beams are made coincident, both temporally and spatially, in the atomization cell, i.e. an air/acetylene flame supported by a three slot or a Meker-type burner as well as an Argon ICP operated at 27 MHz. This is accomplished by a prism retroreflector sliding on a rail and inserted in the optical path of one of the two beams to provide a suitable optical delay at the nanosecond time scale.
The laser pulses are of the order of 5 ns full width at half maximum and, depending on the dye selected, can provide up to 100 MW/cm^2 of irradiance if focussed down to approximately 1 mm^2 in the flame or plasma. The repetition frequency can be varied up to 100 Hz, although 50 Hz has been the maximum value used in practice.
Single lasers tuned at appropriate frequencies provide the excitation of selected atomic (ionic) levels which, as a result of radiative deactivation, generate atomic (ionic) fluorescence transitions, this process being known as single resonance atomic (ionic) fluorescence spectrometry. (1) The excitation of higher levels by means of two steps provided by two laser beams tuned at two transitions sharing a common level forms the basis of the technique which can be called double resonance atomic or ionic fluorescence (2-4).
The signals from the flame or plasma are monitored with a photomultiplier wired for pulsed operation and processed with a boxcar integrator.
Essentially the same excitation scheme underlies the technique variously called Laser Enhanced Ionization (LEI), Optogalvanic Spectroscopy or Laser Atomic Ionization (5) in which the thermal energy provided by the flame assists the ionization from the excited states populated radiatively by the laser(s). A water-cooled Mo electrode immersed in the flame and kept at -1300 V is used for the ionization measurements, the signal collected at the burner being amplified by a pulse amplifier and averaged by a boxcar integrator.
Fig.1 presents the lay out of the experimental facility which

has been assembled in view of exploiting some of the many approaches offered by laser sources in a spectroscopic laboratory. As shown in the Figure an independent excimer-dye system can be used to monitor the thermal lensing effect induced by the laser in an absorbing solution. The technique is investigated as a sensitive detection and characterization of aqueous solutions of actinides (6). In addition, two flame set-up are shown, one being primarily used for diagnostic studies (1).

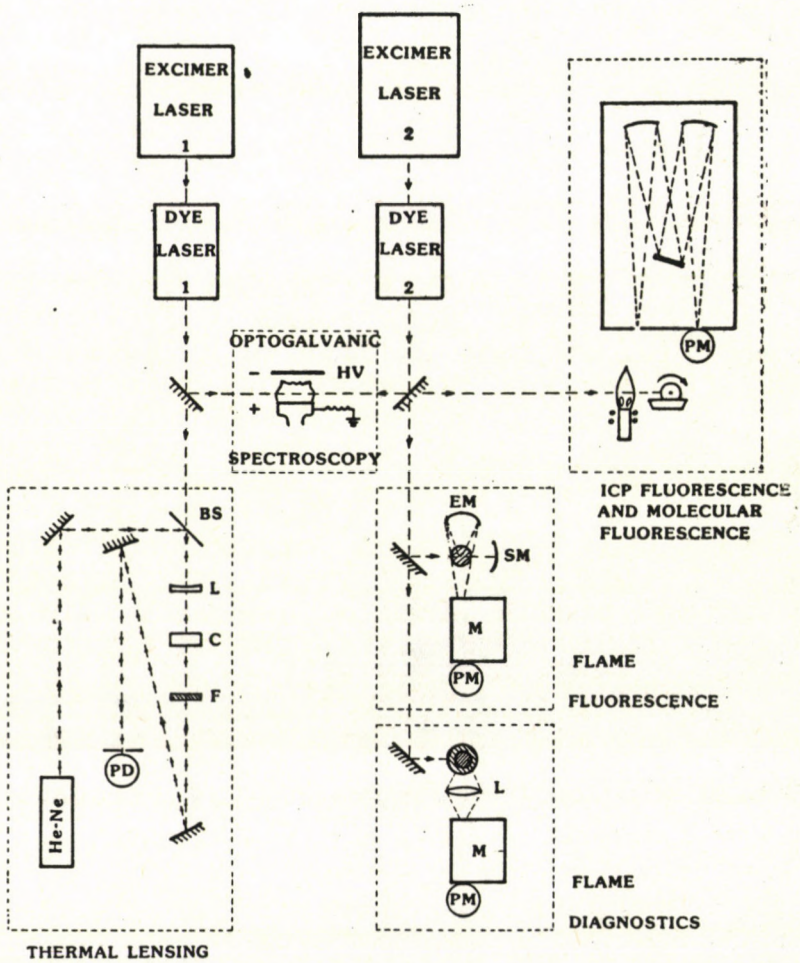


Fig. 1 Layout of the experimental facility for laser-excited fluorescence and ionization studies.

Fluorescence studies

Laser-excited single resonance atomic or ionic fluorescence spectrometry has been shown to constitute a powerful analytical tool due to its inherent characteristics of high spectral selectivity and excellent detection limits. As an example of these potentialities, the direct determination of Cd at ppb levels in blood samples is presented.
Recent efforts in our laboratory have been directed towards the characterization from the analytical point of view, of the fluorescence resulting from the double excitation technique where two bound states of the atom (or ion) are stepwise excited by the two laser beams.
So far the study has considered the alkaline-earth ions in the inductively coupled plasma and has allowed the following conclusions to be drawn (7) :

(i) the technique offers high spectral selectivity and sensitivity;
(ii) in contrast with conventional single resonance fluorescence, it offers a unique way of correcting the scattering signals;
(iii) it can best be exploited in the inductively coupled plasma where ionic levels can be efficiently populated;
(iv) it offers the possibility of monitoring high lying states not accessible by conventional emission spectroscopy.

Ionization studies

The two-step excitation process followed by collisional ionization in the flame has been characterized from the analytical point of view (8,9). This involves the tuning of the two lasers at two optical transitions having in common an intermediate level. The temporal behaviour of both excitation steps is of paramount importance with nanosecond laser pulses and both transitions must be saturated to approach a unity ionization yield. Further complications can be introduced, as a consequence of the very high irradiance, by multiphoton excitation processes, with the result that very complex ionization spectra, whose interpretation is difficult, are observed (9).
Analytical studies have confirmed the excellent characteristics of the technique in terms of sensitivity and accuracy as shown by the results in the direct determination of trace amounts of

Tl in three Lead metal standard reference materials (10) (Table I).

TABLE I DETERMINATION OF Tl IN THREE REFERENCE MATERIAL LEAD METAL SAMPLES

SAMPLE	Tl CONTENT (ug/g) L.E.I. VALUES (a)	CERTIFIED VALUE (b)
BCR 286 Electrolitically Refined Lead	2.4 ± 0.2	2.5 ± 0.1 (8)
BCR 287 Thermally Refined Lead	0.78 ± 0.09	0.73 ± 0.04 (9)
BCR 288 Lead with Added Impurities	2.3 ± 0.2	2.3 ± 0.1 (8)

(a) average of three independent determinations
(b) values in brackets indicate the number of sets of data (different participating laboratories and/or analytical methods) accepted for the certification.

The conclusions which can be drawn from the above studies can be summarized as it follows:

(i) the two-step excitation reching levels close to the ionization potential is an extremely sensitive technique even with short laser pulses, and detection limits (aqueous solutions) in the pg/ml range have been obtained for several elements;
(ii) ionization proceeds very fast once the excited level reached by the second laser photon is close to the ionization potential of the atom; as a consequence double resonance atomic fluorescence in the flame is not suitable from the analytical point of view;
(iii) the sensitivity of the technique allows the study and identification of many levels and transitions which are not reported in standard wavelength tables.

References

1) N.Omenetto and J.D.Winefordner, Progr.Anal.Atom. Spectrosc. 2, (1/2) (1979)
2) A.W.Miziolek and R.J.Willis, Opt.Lett. 6, 528 (1981)
3) J.E.M.Goldsmith, Opt.Lett. 10, (1985)
4) J.E.M.Goldsmith, and R.J.M.Anderson, Appl.Opt. 24, 607 (1985)
5) Optogalvanic Spectroscopy and its Applications" P.Camus ed. Colloque C7. Suppl. n°11 Journal de Physique, 44, (1983)
6) T.Berthoud, P.Mauchien, N.Omenetto and G.Rossi, Anal.Chim. Acta, 153, 265, (1983)
7) N.Omenetto, B.W.Smith, L.P.Hart, P.Cavalli and G.Rossi "Laser induced double resonance atomic and ionic fluorescence in an inductively coupled plasma". Submitted to Spectroch. Acta.
8) N.Omenetto, T.Berthoud, P.Cavalli and G.Rossi Anal.Chem. in the press.
9) L.P.Hart, B.W.Smith and N.Omenetto, Spectrochim. Acta B, submitted.
10) A.Marchandise and S.Vandendriessche "The certification of the Impurity Content (Ag, As, Bi, Cd, Cu, Ni, Sb, Se, Sn, Te, Tl and Zn) in three grades of Lead" EUR Rept. 9665, (1985).

DIRECT SPECTROMETRIC ANALYSIS OF METAL SURFACE BY GLOW DISCHARGE AND SPARK EMISSION SOURCES

Piero De Gregorio, Roberto Falessi, Carlo Petretto, Guerino Savastano

Centro Sperimentale Metallurgico - C.P. 10747 ROMA-EUR, Italy

1. INTRODUCTION - Spectroscopic measures for surface analysis have been rapidly growing in the last years; among these glow discharge optical emission spectrometry (GDS) is becoming particularly important due to its capability to analyse surface and near surface layers of metallic materials very rapidly (1).

Surface quality is particularly important in the steel industry where surface reactivity of cold rolled steel sheets must be strictly kept under control. Mainly surface reactivity depends on surface chemical composition of the final product, which in turn will vary as a consequence of both bulk composition and process parameters. If surface reactivity is to be predetermined, the surface composition must be analytically followed during relevant manufacturing steps such as hot rolling, pickling, annealing, cold rolling and skin-pass. So we need a relayable analytical tool characterized by the following essential features: rapidity, semplicity and low cost.

In this report we will first consider some quantification problems in connection with reference data from other analytical techniques such as EPMA, XPS and we shall then present a new procedure which utilizes individual pulses of a conventional spark sources.

2. SURFACE ANALYSIS BY GD - The practical use of GDS is rather simple. Fig. 1 gives a sketch of the instrumental apparatus and an example of profiles showing how the emission intensity of some elements varies from the surface to a depth of about 2 μm (1 min of erosion at a power of 80 W; 1 constant KV, 80 mA).

A specific example regards a set of cold rolled steel sheets characterized by a high variability of surface reactivity; such a surface reactivity is mainly due to surface segregation extending for a depth of less then 1 μm. Graphic integration of the recorded profiles pointed out the predominant role of Manganese in determining surface reactivity (Fig. 2). In this way it was possible to confirm rapidly and efficiently, over a large number of samples, preliminary results obtained by EPMA.

The essential feature of GDS is then its semplicity and its rapidity with respect to the information obtained: a suitably computerized spectrometer can be utilized in industrial control to monitor deviations from standard operating conditions. In this example the bulk concentration of Manganese was about 0.3% and therefore it does not give any information on sensitivity. For low concentration elements, sensitivity may be too low for a meaningful recording. The problem becomes more difficult with a conventional spectrometer where the selected optical lines may not be the best suited for this kind of excitation.

3. SURFACE ANALYSIS BY SPARK SOURCE - The starting point of this new procedure was a spectrometric method for the determination of different phases of the same element: for example an element which is partly dissolved in the matrix and partly present as precipitated inclusions. This method is called PDA and utilizes the statistic analysis of the intensity of emission pulses generated by the train of all individual sparks which form the discharge (2). A further simplification of this procedure utilizes the initial period of the electrical discharge, the so called pre-spark, as the essential component to quantify the insoluble phase (3).
This concept of a different sensitivity of the material to spark discharges can be applied to situations where surface enrichments take place. In the presence of a chemical inhomogeneity, individual sparks which follow each others, hit layers at a variable concentration. Even if the point of impact on the surface of the sample is irregular, material evaporated and the subsequent emission will reflect the average surface composition at that time and will discriminate it from that of the underlying material which on the average will be reached later. Therefore the initial spark sequence can be utilized to reproduce the variation of surface concentration with respect to the average matrix concentration.
4. INSTRUMENTATION - The base instrument is an ARL 31000 spectrometer.
A) In order to perform spectrometric analysis by GD, the spectrometer was connected to a 6 channels high speed recorder. The continuous signals from the photomultipliers amplified and recorded on photo-sensitive paper represent the intensity (concentration) variations of the elements considered as long as the atomic erosion goes into the depth of the material (fig. 1).
B) For the analysis by spark source the spectrometer was connected to an acquisition system operated by a Motorola minicomputer (Exorset 100). The acquired signals are electrical pulses generated by the photomultipliers having characteristics which depend on the electrical parameters of the spark generator (600 V, 360 mH, 25 μF, 6 Ω, 50 Hz). The radiation pulse lasts about 1 msec with a peak value ranging 150÷400 μsec from the beginning of the corresponding spark. Intensity maxima are first reported in the range 0.1-10V as a function of both the element concentration and the analytical radiation sensitivity. The practical capability to store data on floppy-disks is 1920 measurements per channel (38 seconds discharge) on 16 channels at the same time.
A specific software permits to display and to record points as a sequence, as groups, as averages of points; further scale expansions and profile data integration between two mobile arrows.
5. WORKING OUT OF THE RESULTS AND APPLICATIONS - Fig. 4 showes some emission curves at different degree of smoothing. Despite the high dispersion of the individual point the subsequent operations clearly indicate the shape of the intensity profile. The intensity ratio profile normalized to iron makes the amount of surface enrichment more evident. Some Manganese/Iron ratio profiles on the same scale in fig. 4, confirm the existence of a relationship between the surface enrichment area and the concentration calculated through the GDS.

A first application was the analysis of cold rolled steel sheets submitted to a different heat treatment. The analysis was performed on the same material both before and after the two heat treatments which differ in the soaking period at temperature. On the basis of the value of the Mn/Fe ratio in the interval where the enrichment is apparent, concentration data were worked out for both surface and bulk contents. For some elements the whole of the results is collected in fig. 3 where all concentration levels are given on the same scale. The different behaviour of elements and the amounts of surface concentration gradient as a consequence of heat treatment, is clearly apparent from the graphic.

Some of the variations are correlated with physical parameters such as the free energy of oxide formation. It is thus evident that a wide range of information can be obtained in a short time by means of a traditional instrumentation, even if each result has not a high accuracy.

6. GD OR SPARK? - GDS profiles on the same samples obtained by the computerized system are reported in fig. 4 for comparison purposes. Spark profiles reproduces with sufficient accuracy those obtained by GDS, except the depth size.

Depth profiling through ion bombardment is chronologically correct as far as the sampling process is concerned, but it might produce artifacts such as selective erosions and surface diffusions which could modify the assessment of the chemical composition of the layer being analyzed; these effects could be become relevant in the case of low sputtering rate. In the case of GDS erosion rate are of the order of 1 μm/min: profile artifacts should be due to the variation of the geometry of the surface being sputtered and these should take place only at depth of several microns.

On the contrary a spark profile has not good physiognomic characteristics. It should be noted however that in this case the important fact is to assess the total segregation effects and the over all shape of the profile is efficiently accurate.

Other practical aspects are favourable to the spark. The spark reaches the inner layers more rapidly so that it is possible to store both surface and bulk data in less than one minute. In the case of GD many minutes may be necessary. Secondly the spark utilizes its own characteristic lines and finds therefore its best optical conditions in traditional spectrometers. Thirdly the spark has a better spectroscopic sensitivity and this is an advantage for the analysis of elements at low concentration. It is apparent from fig. 4 that for the same surface/bulk concentration ratio, the corresponding intensity ratio is much more favourable in the case of the spark.

7. RECENT DEVELOPMENTS - The procedure described, is still susceptible of instrumental developments and still needs a better assessment of its real precision and accuracy including an evolution of all the contributing factors. A first factor is the availability of adequate reference samples i.e. samples having homogeneous and constant surface layers taking into account that profiles obtained by GD indicate a certain variability among narrow points of the same sample. A second factor is given by the spark power parameters: more or less energetic conditions have different effect on surface evapora-

tion.

A third factor is represented by the concept of surface enrichment or depauperation: surface segregation of a specific element can be either very high but limited to a depth of a few nanometers or at level just above the bulk content but extended to depth of the order of a micron. Surface enrichment data measured by integrating the segregated layers does not specify what kind of segregation is being examined and therefore does not give any information on its possible cause.

8. CONCLUSIONS. A part from the improvements to be expected in future experiment, the method still has its own validity in measurement of surface concentration values and ratio especially in the case of large segregation; as such it is a suitable technique for the rapid surface quality control, suitable to be added to spectrometers already in service.

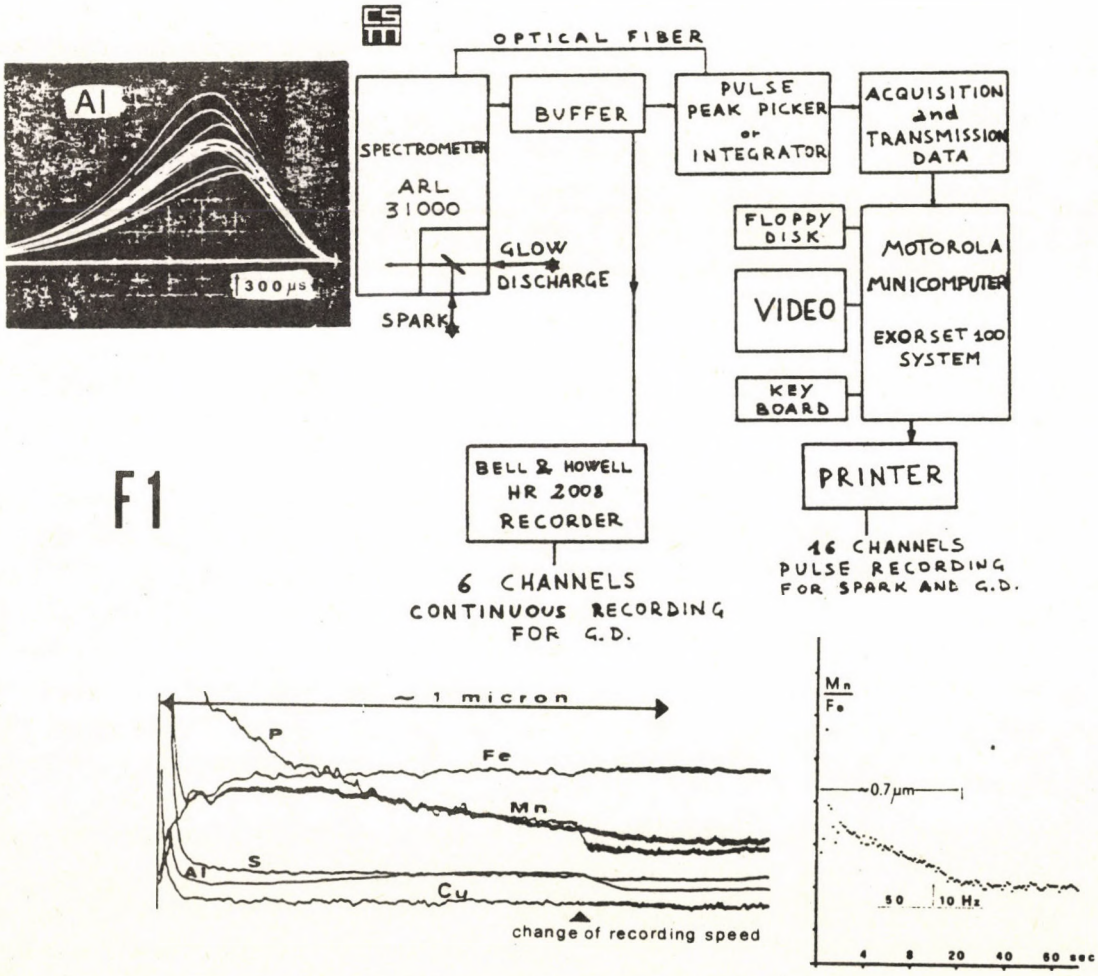
After all this new procedure looks promising for the further possibility of cross-checked analysis comprising bulk analysis, surface analysis and PDA phase analysis.

REFERENCES

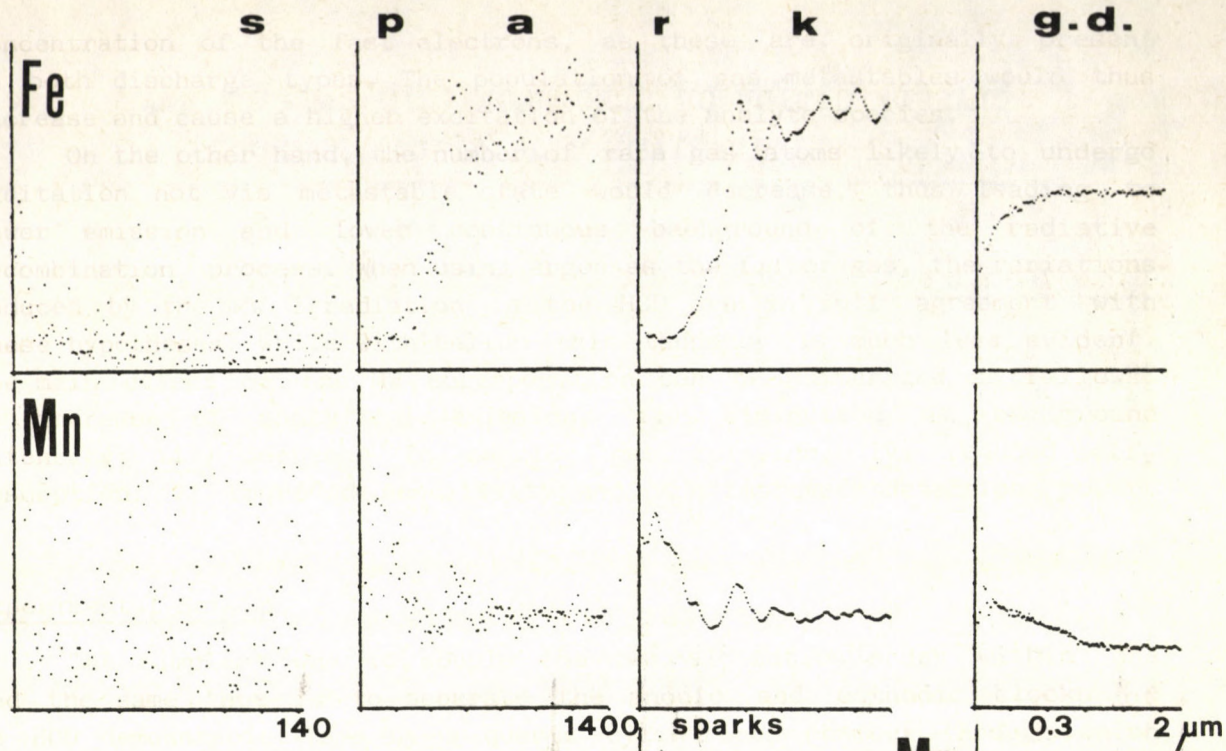
(1) Berneron R. - Spectrochim. Acta, 338, 665, 1978

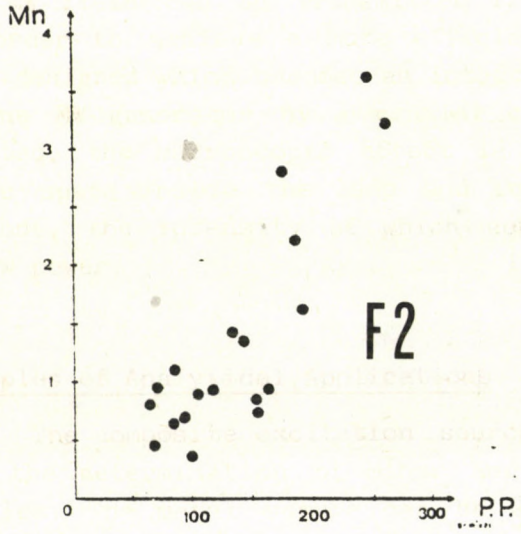
(2) Imamura N., Fukui I. - Paper 225, CSI XXI, Cambridge, 1979

(3) Slickers K., Gruber I. - Stahl U. Eisen 104, 293, 1984

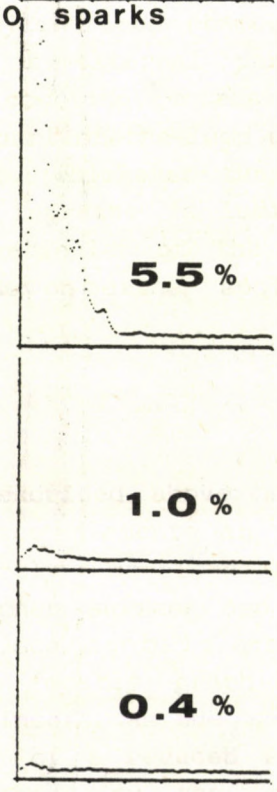


F1

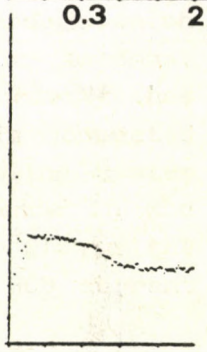

s p a r k
g.d.
Fe
Mn
140
1400 sparks
0.3
2 µm


Mn
4
3
2
1
0
100
200
300
P.P.

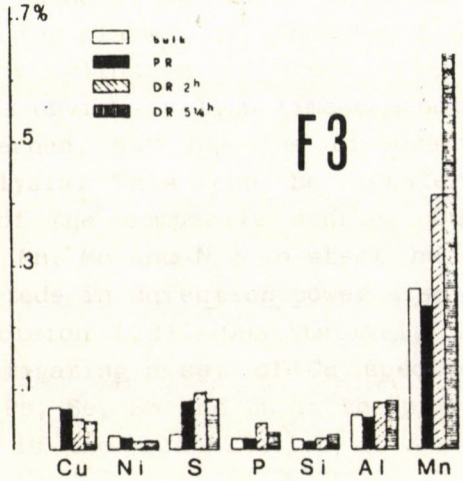
F2


5.5 %
1.0 %
0.4 %

Mn/Fe



F4


.7%
.5
.3
.1
bulk
PR
DR 2h
DR 5½h
Cu
Ni
S
P
Si
Al
Mn

F3

CLASSIFICATION OF SPECTROGRAPHIC DATA BY MEANS OF MULTIVARIATE STATISTICAL METHODS

Klaus Danzer [1], Károly Zimmer [2], Károly Flórián [3]

[1] Friedrich Schiller University Jena, Department of Chemistry, Steiger 3, DDR - 6900 Jena, German Democratic Republic

[2] Lorand Eötvös University Budapest, Department of Inorganic and Analytical Chemistry, P.O.B. 123, H - 1443 Budapest, Hungary

[3] Technical University Košice, Department of Chemistry, Svermova 9, CS - 04385 Kosice, Czechoslovakia

For the determination of connections between the quality of natural materials and artificial products on the one hand and analytical data on the other hand multivariate statistical methods become increasingly important.

Analytical investigations frequently serve to clarify non-analytical questions. That means, qualitative decisions have then to be made from quantitative analytical data. The interpretation of the data required for this has become more and more difficult over the past few decades because:

(i) the complicated multi-dimensional connections between structure/composition and the properties of objects can be more and more thoroughly researched and have proven that these relationships are of an extremely complex character, and

(ii) the gathering analytical data has become possible on an increasingly large extent, and relatively quickly as a result of improved and automated measuring instruments.

An interpretation of multi-dimensional analytical data analogous to the classical way by means of repeating the univariate operations many times is not recommended for the

following reasons:

(I) The risk of error propagates according to $1 - \prod_{i=1}^{n} (1-\alpha_i) = \alpha$ from the risks of error α_i in the case of univariate tests (with just 6 parameters, and $\alpha_i = 0.1$ would become $\alpha = 0.47$, already far too high).

(II) In cases of multivariate problems correlated quantities have to be dealt with. This forbids the application of univariate tests.

(III) Interactions between these quantities, which are of importance in many cases in analytical chemistry cannot be considered univariately and remain unknown.

A solution for multivariate problems can be achieved mathematically, P a t t e r n R e c o g n i t i o n Methods having been developed specifically to this aim.

Pattern recognition methods enable, above all, the disclosure of complex connections between multi-dimensional data, for example m features (analytical results) for each of n objects (samples). In a m x n data matrix every object represents mathematically a point in a m-dimensional hyperspace, so-called pattern space.

It is now the aim of pattern recognition

(i) to find or to form, respectively, areas in this hyperspace corresponding to groups of similar objects amongst each other,

(ii) to determine functions enabling these groups (classes) to be distinguished,

(iii) to reduce the redundance of the data set and therefore the dimensions of features, too,

(iv) to weight the extracted features according to their importance for the separability of the varying data classes,

(v) to plot obtained classes in a two-dimensional display,

(vi) to interprete and to classify in further steps unknown data sets on the basis of the found discriminant function.

For classifying data and plotting results so-called non-elementary discriminant functions representing linear combinations of the original data in the form

$$df_i = a_{i1}\, x_1 + a_{i2}\, x_2 + \ldots + a_{im}\, x_m \quad (i = 1 \ldots k,\ k \leq J - 1)$$

a_{ij} coefficients to be considered as weights of the original variables x_j (e.g. concentrations); J number of classes;

are used. The df_i are obtained by means of solution of an Eigenvalue problem. Of all determined discriminant functions, df_1 has the greatest power, and further one separates more weakly than the previous one, i.e. for separation power we have $df_1 > df_2 > df_3 > \ldots > df_k$. Since both first discriminant functions contain as a rule 80 ... 95 % of the information amount of all data, accordingly the data classification can be represented in a two-dimensional display df_1 against df_2.

For the actual data classification, supervised learning and unsupervised learning methods are principally distinguished between.

In Supervised Learning, the number of classes is given (normally for selfevident reasons) for which one determines discriminant functions in a so-called learning and training phase programme, respectively. With the help of this, unknown objects can be classified into the given classes during the actual working phase. The separation of the classes from one another is achieved by means of 95%-confidence areas.

Example 1 deals with the classification of historical glass bead findings by their spectroscopically determined trace contents of colouring elements. Figure 1 shows the obtained classes. A share of uncertain objects can be arranged

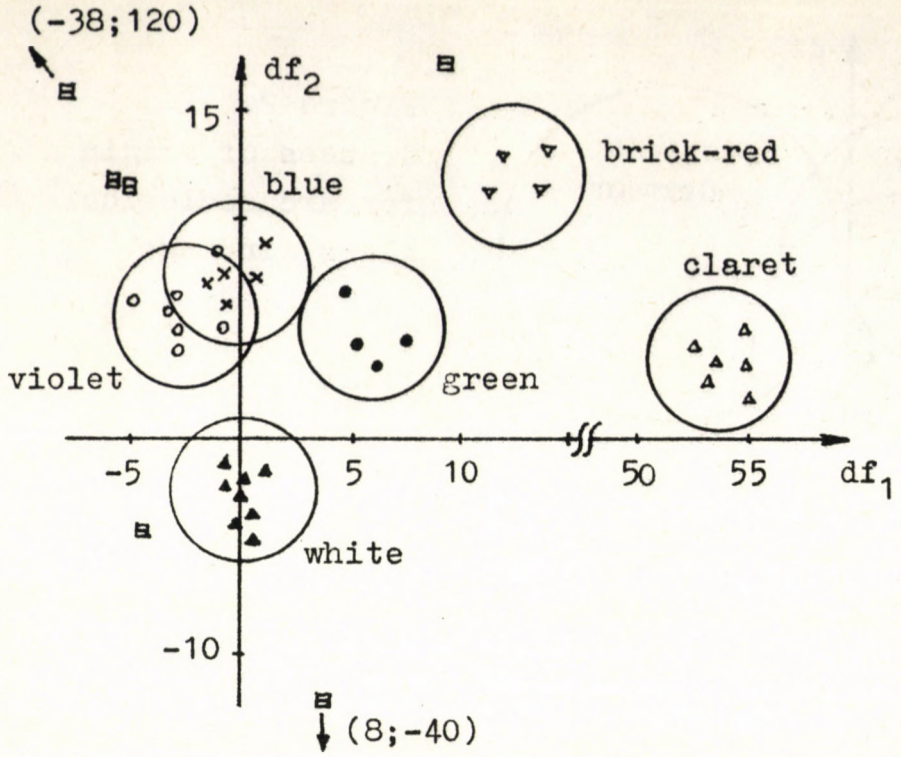


Figure 1.
Classes of coloured glass beads
⊟ non-arrangable objects

into the classes, another portion lies outside and therefore it is to suppose that these objects are descended from another epoch or manufactoring method, respectively.
For the classification the Multidimensional Variance and Discriminant Analysis (MVDA) /1/ was applied.

Example 2 concerns a more difficult problem, the classication of archaeological glass finds to their origin (Byzantine, Venetian, German, Hungarian, and made in Hungary according to Venetian models). Although the classes are widely overlapped (because the trace elements pattern alone is not significant for the origin) it was possible to classify 66 out of 69 samples correct or plausible from the archaeological point of view. The classification result is represented in Figure 2.

Pattern recognition methods also are suitable for investigation of homogeneity of solids. The basis of the decision over homogeneity or inhomogeneity is founded on the possibility or impossibility to form point classes having significantly different constitution /2/. In practice, each sample

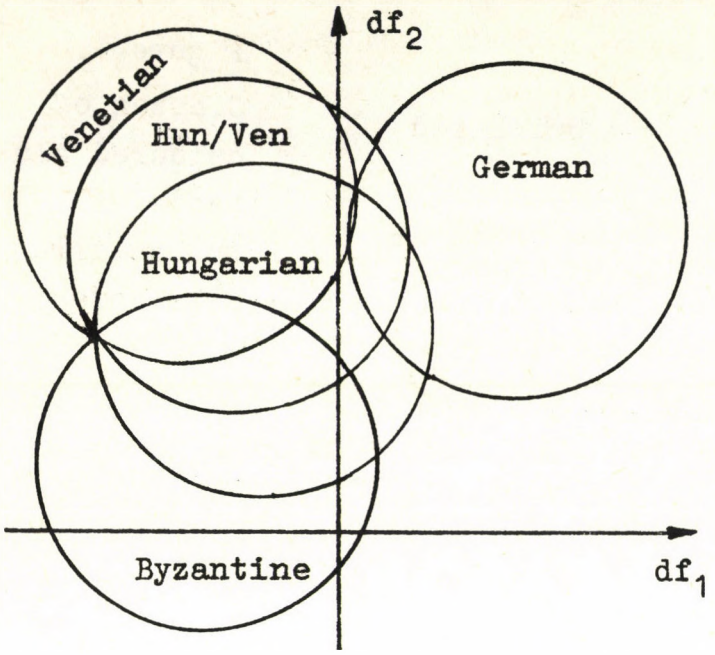
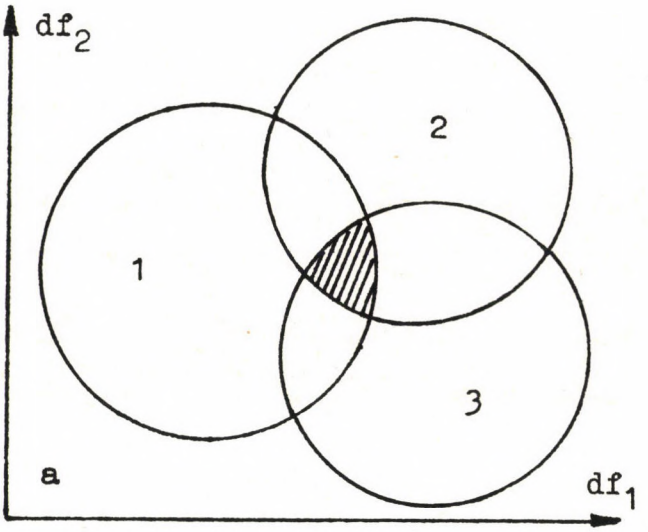


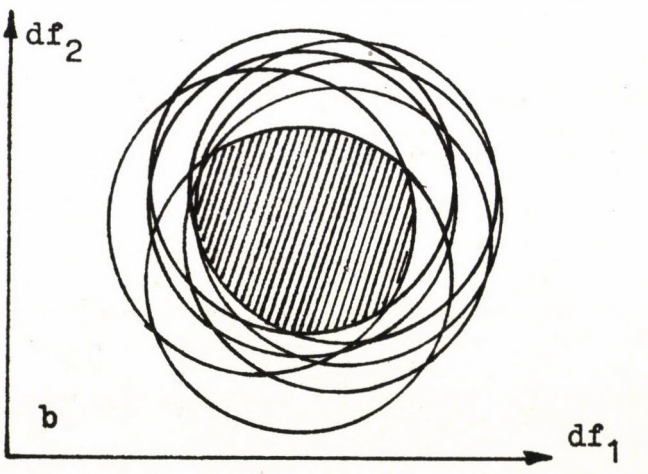
Figure 2.
Classes of origin for archaeological glass findings.

Figure 3.
Confidence circles (95 %) of position-classes in the two-dimensional pattern space

a inhomogeneous case: distribution of iron nickel and phosphorus in a metallic glass /3/

b homogeneous event: distribution of silicon and manganese in steel /2/.





point is regarded as one class and the replicates in each point are considered as the objects in this class. The data set serves first to form classes in the learning phase. After that it is tried to rearrange the points into these classes. If the rearrangement is carried out succesfully, each point has its own characteristic concentration level and the sample is found to be inhomogeneous (Figure 3 a). If the rearrangement yields many misclassifications and the confidence circles are much overlapped, then there are no different levels of concentration discernible, and the sample is homogeneous (see Figure 3 b).

With U n s u p e r v i s e d L e a r n i n g M e t h o d s the number of classes is not given, but it is attempted respectively to find and to form classes on the basis of the relations of multidimensional similarities between the objects. The Euclidian distance is often used as a measure of similitude. Expected classes from such cluster analyses should be confirmed by submitting the point classes to MVDA as done in the example shown in Figure 3 a. Modern cluster methods are, like discriminant analysis, statistically supported and not rely on geometrical similarities alone. Decision criteria have recently been deduced from information theoretical basis, with the help of which the optimal number of clusters can be judged /4/.

Additional examples are given of investigation the cause of faulty glass melting-charges and of testing the quality of innovated materials.

References

/1/ Läuter, J., Hampicke, J., M V D A (PP Mehrdimensionale Varianz- und Diskriminanzanalyse), Berlin-Buch 1973

/2/ Danzer, K., Singer, R., Mikrochim. Acta, in print

/3/ Danzer, K., Ehrlich, G., 4. Tagung Festkörperanalytik, Tagungsberichte Techn. Hochsch. Karl-Marx-Stadt 12/1984

/4/ Wienke, D., Danzer, K., Anal. chim. Acta, in print.

ON THE MECHANISM OF RELEASING EFFECT OF ALKALINE EARTH AND LANTHANUM CHLORIDES IN FLAME SPECTROMETRY

Tibor Kántor

Institute for General and Analytical Chemistry
Technical University of Budapest, 1521 Budapest
Hungary

According to the definition recommended by the IUPAC /1/, the "releasers reduce solute-volatilization interferences by forming a compound preferentially with the interferent, thus preventing the analyte from entering a thermally stable compound". This definition represents also the generally accepted mechanism of releasing effects of lanthanum and strontium, which are often used for eliminating the interference effects of aluminium and phosphates on the determination of alkaline earth elements when using acetylene-air flame /2/.

There exist, however, such observations which make questionable the validity of the mechanism as above. The most representative contradiction found in this laboratory is that the nitrate salts of lanthanum and strontium do not work as releasers for the elimination of the interferences of aluminium and phosphoric acid, the chloride salts of these elements on the otherhand are indeed effective as such additives. It is not likely that e.g. the formation of the lanthanum aluminate /the compound of the releaser and the interferent/ is hindered by using the nitrate salt instead of the chloride salt of lanthanum.

Because of the problems of the direct experimental investigation of the vaporization processes taking place in the flame, model experiments may be used to find essential information. For this purpose we used a combined graphite furnace and flame technique and studies were performed on the chloride and nitrate salts of Mg, Mg+Al and Mg+Al+Ca elements /3/. It was demonstrated that by increasing the mass of magnesium chloride sample in the furnace to a certain level, the hydrolysis of this salt becomes incomplete and thus the evolution of magnesium chloride vapour at lower temperature and the thermal dissociation-vaporization of solid magnesium oxide at higher temperature take place. Similar results have been found with calcium chloride, barium chloride, strontium chloride and lanthanum chloride applied to the graphite furnace in the form of aqueous solutions /to be published/. It was shown /3/ that the excess of calcium chloride in the mixture of Mg+Al+Ca resulted in a low temperature evaporation of the major part of magnesium as a minor constituent.

In the present experiments calcium was selected as minor constituent and the effects of Al, La and Al+La /nitrates and chlorides/ were studied. The characteristic temperature data found under the conditions used also in the previous work /3/ are shown in Table 1, among which the initial observation temperatures are the most informative. According to

these data a small amount of calcium chloride vaporizes at the same temperature as the calcium nitrate, which suggests that calcium oxide is formed from calcium chloride by hydrolysis. The vaporization temperature of calcium is increased by aluminium nitrate matrix which must be the consequence of the formation of the refractory calcium aluminate. Addition of lanthanum chloride in excess to aluminium, the calcium vaporizes at a temperature only slightly higher than without the presence of aluminium. When relative high amount of calcium chloride is applied alone, evolution of calcium chloride vapour is indicated at low temperature. However, a part of the calcium chloride undergoes hydrolysis on heating and the calcium oxide formed vaporizes in the temperature range similar to that shown in the first line of the table.

Table 1. Temperature data characteristic to the volatilization of calcium without salt additive and in the presence of Al, La and Al+La salt matrices

Sample, µg, 1 M acid		Temperature, °C		
		T_i	T_m	T_f
0.3 Ca; $CaCl_2$ or $Ca/NO_3/_2$		1520	1960	2240
0.3 Ca + 50 Al /HNO_3/		1800	2040	2320
0.3 Ca + 50 Al+100 La /HCl/		880	1400	1800
0.3 Ca + 100 La /HCl/		840	1320	1700
3.0 Ca /HCl/	first peak:	720	1120	1400
	second peak:	1520	2000	2400

Temperatures relevant to the initial observation /T_i/, to the maximum rate /T_m/ and to the final observation /T_f/ of volatilization

If we assume that similar vaporization patterns prevail for the desolvated particles formed from the spray droplets in the analytical flames, the releasing effect of lanthanum chloride /e.g./ may consistently be explained as follows: the excess of this additive promotes the evolution of calcium chloride vapour at relative low temperature and thus the formation of calcium aluminate /the thermostable compound of the analyte and the interferent/ is prevented. In general, the hydrolysing chloride salts can work as releasing agents mutually to each other. The efficiency in this respect depends on the relative rate of hydrolysis and on the relative volatility of the particular chlorides.

References

1. IUPAC: Nomenclature, Symbols, Units and Their Usage in Spectrochemical Analysis - III. Analytical Flame Spectroscopy and Associated Non-Flame Procedures.
Pure and Appl. Chem., 45, 105 /1976/,
Spectrochim. Acta, 33B, 247 /1978/.

2. I. Rubeška and J. Musil: Prog. Analyt. Atom. Spectrosc., 2, 309 /1979/.

3. T. Kántor, L. Bezúr, E. Pungor and J.D. Winefordner: Spectrochim. Acta, 38B, 581 /1983/.

DIRECT FAES AND FAAS ANALYSIS OF MACROMOLECULAR SOLUTIONS

István Lakatos

Chemical Research Laboratory for Mining
Hungarian Academy of Sciences
Miskolc-Egyetemváros, P.O.B. 2.
H-3515

Introduction

Few data are available in the literature dealing with analysis of trace elements in macromolecular solutions by AAS methods. BILLS et al. [1], further CATON and BREMNER [2] were the first reporting on deterioration of the analytical efficiency in presence of gelatin and sugar. Later a great number of papers have been published on analysis of biological samples containing natural macromolecular substances /e.g. serum, plazma, whole blood etc./. To eliminate the matrix effect precipitation of high molecular weight materials, ashing, digestion, decomposition and dilution of samples or electrothermal volatilization and atomization were used. As was stated by MERMET and HUBERT [3] the direct sample introduction is usually problematic and therefore must be avoided.

The same trend may be observed in connection with polymers and plastics. Ashing and FAAS analysis of the dissolved residue were proposed by SLAVIN [4], DRUCKMAN [5], OLIVIER [6] and TRUSCOTT [7]. Electrothermal atomization using both solid or liquid sampling is, however, considered as a best solution by many authors [8-13]. Convention sample introduction was applied only by MUSHA [14] and OLIVIER [15,16] who made also references to the influence of macromolecules in the analytical light source. Recently a detailed study [17,18] has been done concentrating on the effect of water-soluble polymers on direct analysis of trace element in solution by FAES and FAAS and the present paper is aimed to summarize the results obtained.

Experimental

The measurements were performed on a single-beam Zeiss AAS-1 spectrophotometer, in flame emission and atomic absorption mode of operation. Data were recorded on Zeiss K-200 recorder and digital printer made in the laboratory.

A concentric nebulizer was used to study the nebulization phenomena. In measurements carried out at controlled take-up rate, the liquid was introduced with an automatic micropump. The mass balance of the nebulization process /$F_1=F_a+F_v+F_w$/ was determined by the direct measurement of F_1, F_a, F_w and from these F_v was determined. Nebulization efficiency was calculated from F_a and F_1. For direct measurement of the solvent vapour getting into the flame, the filter method was applied. A modified Andersen's cascade impactor was

applied for approximative determination of size distribution of the aerosol particles.

The polyacrylamides in Table 1 were used as models.

Table 1. Characterization of polymers

Polymer	Average molecular mass, 10^6	Hydrolysis, %
NP-10	1.0	2-7
AP-30	3.5	30
AN-34	9.5	40

The rheological properties of the polymer solutions were determined with Contraves Low Shear 30 viscometer in rotational and oscillation mode of operation.

Structure and rheological properties of macromolecular solutions

The rheological properties of macromolecular solution is a consequence of solution structure. At very low shear rates the dynamic viscosity of the solutions is essentially independent of shear rate and the polymer solutions reveal a Newtonian flow behaviour. The solutions are characterized in this range by unoriented asymmetric molecular coils and by maximal intermolecular interaction. Depending on concentration a loose network is formed in the solution consisting of entangled molecules or associates.

From a certain shear rate the dynamic viscosity diminishes with increasing shear rate and the system shows a typical non-Newtonian flow behaviour /Fig. 1/. The changing of rheological properties of polymer solution can also be traced back to its structure. By action of shear forces the orientation of coils is getting parallel to the plane of flow and desintegration of the network begins. Ideal entanglements and isolated associates characterize the solution in this case.

On further increase of the shear rate the polymer solution behaves again as a Newtonian liquid. On account of the maximal orientation and by the ceasing of intermolecular forces the polymer solution becomes a particle system.

The polymer solutions, however, show elastic properties too. Since the mechanism of aerosol formation /formation of liquid bridges, filaments and bags, then their disintegration/ in pneumatic nebulization can be brought into connection with cohesive forces, the rapture of intermolecular network requires an additional energy in case of viscoelastic solution. As it is illustrated on Fig. 2 the complex dynamic modulus being proportional to energy loss in shear deformation is increasing with the molecular mass, hydrolysis and polymer concentration.

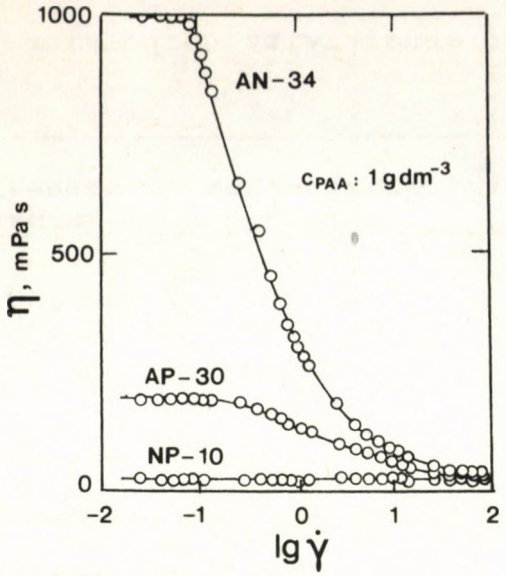


Fig. 1.

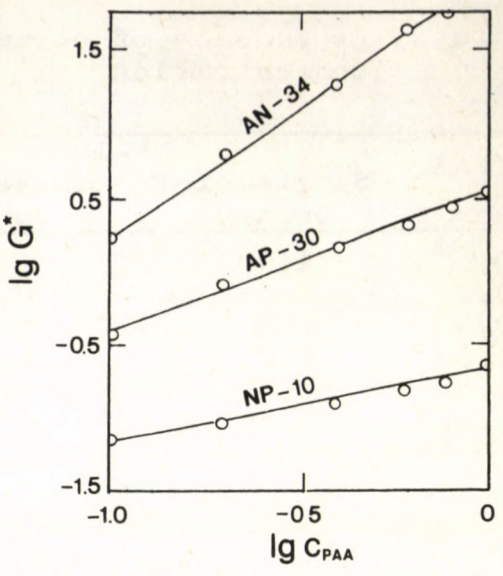


Fig. 2.

General feature of matrix effect

Experimental results show that the normalized intensities and absorbances decrease to a near identical extent with polymer concentration /Fig. 3/. In general sense the polyacrylamides and biopolymers /Fig. 4/ have the same matrix effect. The higher the molecular mass, chain ionization and concentration, the greater the unfavourable deterioration of analytical signal.

The decreasing line intensities and absorbances are coupled with worsening of background noise and R.S.D. These jointly result in a significant deterioration of relative sensitivity and detection power of the analytical procedure /Fig. 5; Table 2 and 3/.

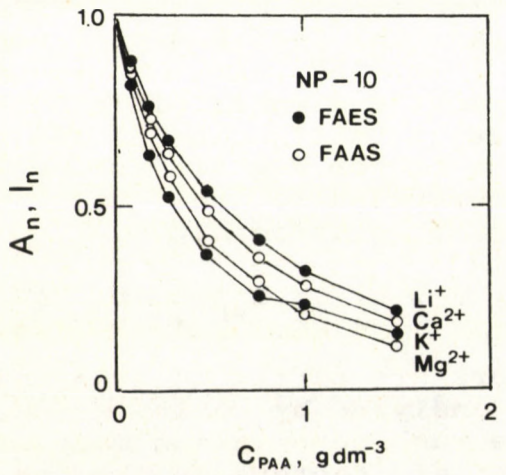


Fig. 3.

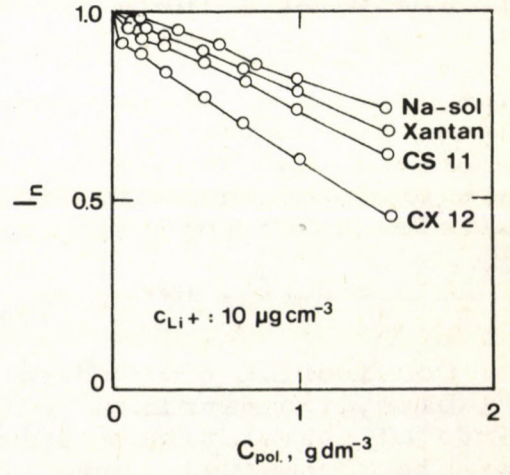


Fig. 4.

Table 2. Dependence of normalized sensitivity on polymer concentration

c_{PAA} g dm^{-3}	NP-10 Single-slot burner	NP-10 Three-slot burner	AP-30 Single-slot burner	AP-30 Three-slot burner
0	1.00	1.00	1.00	1.00
0.2	0.85	0.83	0.75	0.59
0.4	0.74	0.64	0.54	0.34
0.6	0.63	0.46	0.46	0.23
0.8	0.53	0.38	0.26	0.16
1.0	0.44	0.33	0.77	0.11

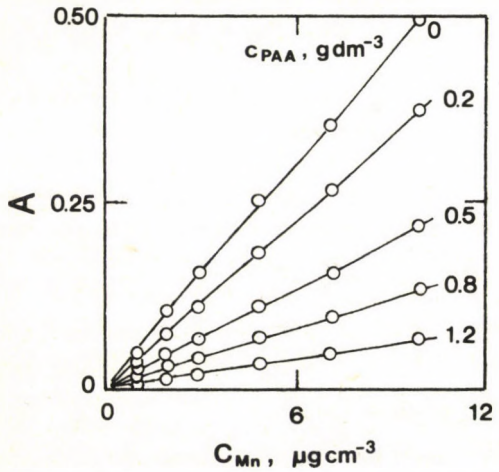


Fig. 5.

Table 3. Limit of detection and quarantee for Mn in polymer solution

c_{PAA} g dm^{-3}	AP-30 c_k µg cm^{-3}	AP-30 c_g
0	0.28	0.57
0.2	0.47	0.95
0.5	0.88	1.77
0.8	2.30	4.61
1.2	9.00	18.00

Analysis of matrix effect

The water soluble polymers decrease to a rather different extent the analytical signals. The fact has the consequence that unknown error can be committed, if the type and concentration of polymer changes in the sample. This circumstance made necessary an intensive investigation of the matrix effect, and the selection of a factor for its correction. Therefore, the investigation was extended to the qualitative analysis of the following functional relationship:

$$A,\ I = f\ /\bar{M}_r,\ \text{Hyd.},\ c_{PAA},\ F_1,\ F_a,\ c_{gel},\ D_{ekv.},\ c_{NaCl}/$$

Considering that these factors are partly interdependent variables, the matrix effect was analyzed by calculation of the total correlation matrix. The rank correlation made also possible the mutual correlation of all factors in the relationships. Of the results of statistical calculations the most important are given in Table 4 in which the rank correlation coefficients of absorbance are summarized.

Table 4. Rank correlation coefficients of absorbance

	c_{NaCl}=0 g/l	c_{NaCl}=2 g/l	c_{NaCl}=0-2 g/l	n_{PAA}=2
c_{AP-30}	-0.9726	-1.000	-0.9430	-0.762
F_1	0.9726	1.000	0.9759	0.8035
	-0.9726	-1.000	-0.8719	-0.7114

On the basis of data in Table 4 it can be stated that the absorbance is well correlated with take-up rate, polymer concentrations and dynamic viscosity of the solution, if both the type of the polymer and the salt content are constant. However, the matrix effect cannot be brought in direct correlation /at best under analysis of NaCl-free solutions/ with the characteristics of solutions structure which presumably exert an important effect on nebulization processes. The correlation coefficients are poorer somewhat, if the test solutions contain also foreign electrolytes and the type of polymer is also an independent variable.

Problems of sample introduction

The aerosol flow rate getting into the atomization system is a function of take-up rate, initial aerosol drop size distribution and of the processes proceeding in the mixing chamber. On elucidating the reasons of the matrix effect, comparison of take-up rates is a logical step at first. E.g. Fig. 6 shows the dependence of the take-up rate on polymer and NaCl concentration. It can be seen that the character of both curves follows the change in absorbance, i.e. the matrix effect of polymers can be partly traced back to a decrease in take-up rate. In connection with the phenomena the question

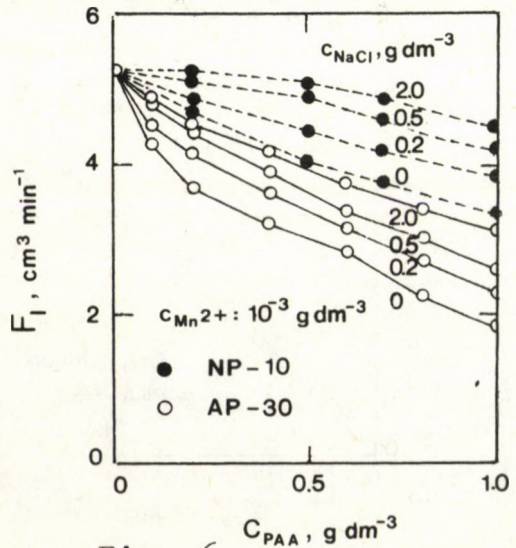


Fig. 6.

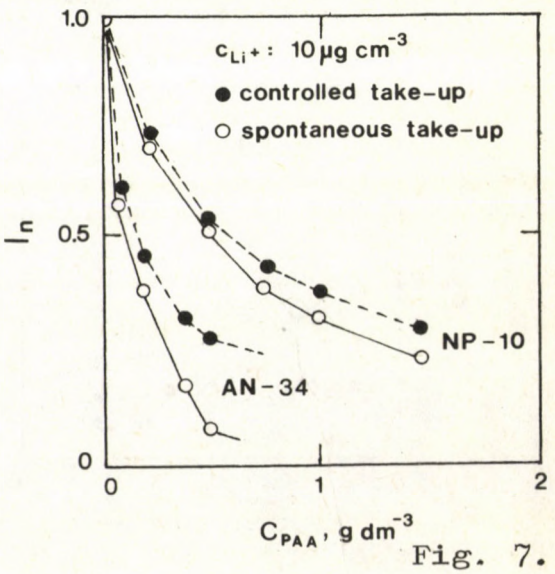


Fig. 7.

of applicability of the Hagen-Poisseuille's equation may arise. Definitely the take-up rate decreases with the dynamic viscosity of solutions and proportionally increases with pressure of nebulization and shortening of the capillary length. But analysing the measured and calculated viscosities, and considering the gradual increas of product of take-up rate and viscosity, one can conclude, that only apparent validity may exist for the equation.

It is evident that the apparent validity of the Hagen-Poisseuille relationship holds true for a solution of given concentration of a distinct polymer, and in the case, when the modification of take-up rate occurs via changing L or ΔP. However, in nebulization of polymer solutions of different types and concentrations it is erroneous also in principle to use relationships valid for perfectly viscous systems of Newtonian flow properties for the description of the flow of liquids having structural viscosity or viscoelasticity. If the reduced take-up rate is responsible for the matrix effect, the compensation of the flow resistance would cure the problem. Using micropump for controlled sample introduction, a negligible improvement was attained as seen on Fig. 7 and it is shocking that the role of highly reduced take-up rate is less then 10 % of the total matrix effect.

The quantity of material introduced into the flame is also influenced by the nebulization efficiency. On the basis of the rheological properties of the polymer solution it is expected that the higher is the polymer concentration the lower is the nebulization efficiency. This was unequivocally proved by the experimental findigs /Fig. 8/. The solution structure /network character/ plays an important role in the phenomena. This is proved by the fact, that the nebulization efficiency and the lg c_{PAA} /or complex dynamic shear modulus/ is inversely proportional. At identical nebulization /deformation/ energy and liquid flow rate the number of torn off liquid drops decreases with increasing elasticity of the solution. A natural consequence of this is the increase in drop size and the decrease in nebulization efficiency, expected also qualitatively on the basis of Nukiyama and Tanasawa's relationship.

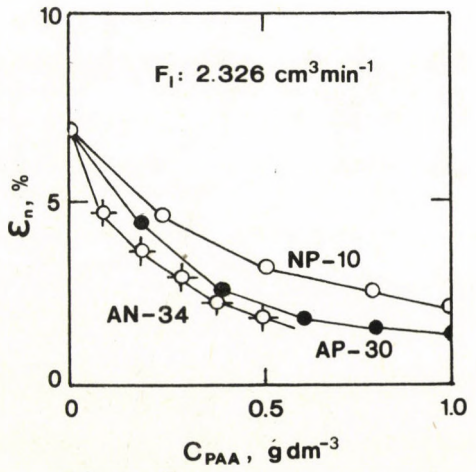


Fig. 8.

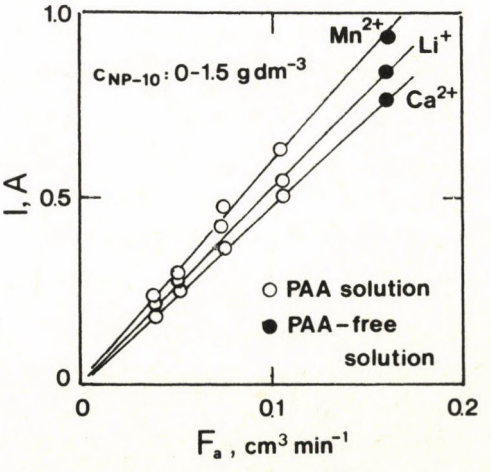


Fig. 9.

This indirectly supports our hypothesis, according to which the cause of the matrix effect is to be primarily attributed to the non-Newtonian, viscoelastic character of polymer solutions and as a consequence to the decrease in nebulization efficiency. If the amount of sample introduced into the flame /F_a/ was determined by correct data /F_1, ε_n, etc./ a direct proportionality was found between the analytical signal and F_a /Fig. 9/. Namely, the matrix effect is of feeding character, and the phenomenon is of general validity for all those atomic spectroscopic methods, where the solution is introduced into the light source via pneumatic nebulization.

Other considerations

The effect of polymers on atomization processes is generally negligible, and the distribution of atoms along the height of the flame reflects the matrix effect using three-slot burner. In case of single-slot burner quite different distribution curves were obtained and the flame character has also a significant impact on the signal at a given height. The interelement effect highly depends on type and concentration of the matrix. The mono- and divalent elements /H^+, Na^+, Ca^{2+} etc./ exert their effect influencing the dissociation equilibria of ionized polymers, while the multivalent cations may cause cross-linking or precipitation of manomolecular substances. Both effects iniciate a fundamental change in solution structure, consequently the modification of sample introduction. In spite of the difficulties, the FAES and FAAS techniques are suitable for direct analysis of trace elements in macromolecular solutions if strongly acidic media and special chemicals are use to bring the polymers into colloid form in the sample.

References

[1] Bills, C.E. et al.: Anal. Chem., 21, 1076 /1949/
[2] Caton, R.D., Bremner, R.W.: Anal. Chem., 26, 805 /1954/
[3] Mermet, J.M., Hubert, J.: Prog. Anal. Atom. Spect., 5, 1 /1982/
[4] Slavin, W.: At. Absorpt. Newsl., 4, 192 /1965/
[5] Druckman, D.: At. Absorpt. Newsl., 6, 113 /1967/
[6] Olivier, M.: Z. Anal. Chem., 248, 145 /1969/
[7] Truscott, E.T.: Anal. Chem., 42, 1657 /1970/
[8] Kerber, J.D.: At. Absorpt. Newsl., 10, 104 /1971/
[9] Kerber, J.D. et al.: At. Absorpt. Newsl., 12, 104 /1973/
[10] Menshikov, V.I. et al.: Zh. Anal. Khim., 29, 2132 /1974/
[11] Henn, E.L.: Anal. Chim. Acta, 73, 273 /1974/
[12] Robinson, J.W. et al.: Anal. Chim. Acta, 78, 285 /1975/
[13] Girgis-Takla, P., Chroneos, I.: Analyst, 13, 330 /1964/
[14] Musha, S. et al.: Japan Analyst, 13, 330 /1964/
[15] Olivier, M.: At. Absorpt. Newsl., 10, 12 /1972/
[16] Olivier, M.: At. Absorpt. Newsl., 11, 106 /1972/
[17] Lakatos, I.: Acta Chim. Hung., 103, 313 /1982/
[18] Lakatos, I., Lakatos, J.: Acta Chim. Hung., 116, 389 /1984/

ANALYTICAL AND SPECTROCHEMICAL POSSIBILITIES FOR THE EVALUATION OF THE ATMOSPHERIC ENVIRONMENT

Arnaldo Liberti[+] and Ivo Allegrini[++]

[+]Dipartimento di Chimica - Università di Roma I - La Sapienza - 000185 Roma

[++]Istituto Inquinamento Atmosferico C.N.R. - C.P. 10 - 00016 Monterotondo Stazione (Roma) ITALY

Measurements of minor constituents of the troposphere are essential for undestanding the chemistry of environmental problems such as photochemical smog and acid deposition.

In recent years atmospheric air pollution researchers have increasingly looked beyond conventional species to identify and measure species such as nitric (HNO_3) and nitrous (HONO) acids, the hydroxy radicals and others to assess their roles in the chemical cycles of the clean and polluted troposphere as well as their impacts on biological systems including human health and vegetation. Of particular concern have been the trace nitrogenous species, related to the problem of atmospheric acidity.

Measurement of these species, which may be present at ppb-ppt level in the complex atmospheric systems, presents a challenging analytical problem and different approaches have been attempted also to evaluate temporal and geographical distribution.

It is necessary to emphasize that as the species which have to be determined are in very small concentrations either sophisticated optical instruments have to be used or enrichment processes have to be applied. In the former procedure interferences due to other gases may play an important role whereas in the latter by using conventional filter procedures and wet chemical methods artifacts may occur which prevent to obtain meaningfull results.

Two main approaches can be applied to determine minor components of the atmosphere: the development of optical devices making use of a very long path to follow the variation of a suitable source selected either in the IR or in the UV region and the combined use of the principle of diffusion selective sampling coupled with the adoption of suitable analytical techniques.

Spectroscopic Approach

For the past 25 years long-path infrared (LP-i.r.) absorption spectroscopy has played an important role for the identification and quantitative determination of trace pollutants in both ambient air and synthetic smog systems. Among the most significant contributions made with this technique were the first spectroscopic proof of ozone formation in photochemical smog, the discovery of the highly toxic secondary pollutant peroxy-acetylnitrate (PAN), evaluation of auto exhaust, halogenated pollutants and others. These results were obtained with prism i.r. spectrophotometers and White-type multiple reflection cells at path lenghts of 40-400 m.

In recent years the evolution and application of the LP-i.r. method has proceeded on two fronts: first the development of more sophisticated multiple reflection systems of greater total path lengths, and second, the replacement of dispersive i.e. prism and grating i.r. spectrophotometers by Michelson interferometers equipped with minicomputers for carrying out fast Fourier

transforms of the resulting interferograms. The latter development has added high spectral resolution and good time-resolution to the strengths of the LP-i.r. method cited above.

An instrument designed according to these lines which may operate with an optical path-length up to 2 Km has been realized by Tuazon et al. (1). It consists of a multiple reflection cell coupled with a interferometer and a FourierTransform Spectrometer. The collimated i.r. beam from a Nernst glower is modulated by a Digilab Michelson IR interferometer capable of spectral resolution as high as 0.5 cm^{-1} and is imaged at the entrance aperture of the cell. The beam exiting from the cell is sent to suitable detectors. Though strong absorptions due to the H_2O and CO_2 content render certain regions of the IR spectrum unsuitable for the detection, the majority of pollutant molecules have "fingerprint" absorptions in the accessible I.R. regions which can be used to determine NH_3, HCHO, HCOOH, HNO_3, HNO_2, N_2O_5, O_3 and PAN.

Another technique used for the detection and analysis of micro component of the atmosphere is the DOAS (differential optical absorption spectroscopy) in the U.V. region. The basic principle of the instrument used is shortly described. Light from a xenon high pressure lamp is passed over a distance up to 10 Km and received by a high resolution spectrograph equipped with a grating which gives a dispersion of 3,2 nm/mm. A thin spinning metal disc with radial slits is placed in the focal plane scanning a section of about 24 nm of the spectrum repetitively. The signal is averaged for a period of about 40 u second, digitized and stored by a microprocessor. This time interval of 40 u sec corresponds to 0.1 nm in spectral terms and is sufficient for monitoring the theoretical spectral resolution of the apparatus of 0.32 nm.

The scanned spectral section of 24 nm is recorded in 230 channels. By using this technique Perner and Path have detected in the atmosphere from two bands at 354.1 and 368.1 nm nitrous acid. With the same experimental set the same authours have been able to detect other pollutants and evaluate the detection limit (50 ppt: HNO_2; 300 ppt: CH_2O and 300 ppt: NO_2). (2)

Recently tunable diode laser absorption spectrometers (TDLAS) have been used for measuring trace gases in tropospheric air. This technique takes advantage of the narrow line width, tunability and frequency modulation characteristics of diode lasers made of crystals of lead salt semiconductors of general composition $Pb_{1-x}Sn_xTe$ and $Pb_{1-x}Cd_xSe$. These lasers available in the frequency range 500-3500 cm^{-1} are able to measure accurately small absorbances (10^{-3} - 10^{-5}) due to a single rotational line in the vibrational band spectrum of a molecule.

To measure this small absorbance the absorption band must have a resolved rotational fine structure. Pressures less than 35 torr are used to substantially lower collisional broadening but even at these pressure, large molecules such as organic aromatics PAN, N_2O_5 have so many rotational lines that the spectrum resembles a continuum.

All heteronuclear diatomics and some polyatomics have regions where the spectrum is resolved, even at atmospheric pressure; NO, NO_2 and HNO_3 fall in these category. As typical line strengths are in the range 6×10^{-20} - 2×10^{-19} cm^{-1} $molec^{-1}$ cm^2 and therefore a path length of 20-50 m is sufficient to measure sub ppbv levels of these molecules with a TDLAS capable of detecting absorbances of 10^{-5}, the long paths is provided by directing the beam through the atmosphere and returning it to the detector by a retroreflector. A tropospheric air monitoring system based on this principle can measure nitrogen oxide and nitric acid in ambient air. The limit of detection for the latter is below 10 ppbv. (3)

Diffusion Approach

The complexity of the optical instrumentation, its cost and its operation are limiting factors for its use for routine monitors. This conclusion implies that the enrichment process required to obtain detectable amounts of various specie, has to be favoured but it is required that has to be performed to yield reliable results. It is moreover a requisite that in the same time a simple instrumentation and methodology has to be realized which might be used extensively in several areas. This aim seems to be reached by the use of high efficiency annular denuders (HEAD) combined with reliable analytical techniques. It has been well established that artifacts relative to sampling and interactions among gases and between gas and aerosols occurring in the sampling can be prevented by the use of tubular diffusion tubes defined as denuders. The separation of gaseous components and particles from a laminar atmospheric stream is achieved by diffusion as diffusion coefficients of the former are about 0.1-0.2 cm^2 sec^{-1} whereas for the latter vary according to the diameter range (0.01-1 um) being between 5.2×10^{-4} to 2.7×10^{-7} cm^2 sec^{-1}.

As there is a difference of various order of magnitude there is a sharp separation between gases and aerosols providing the former are selectively absorbed on the glass walls which have to be coated with a suitable reagent, to act as an irreversible sink for these species while the latter proceed unaffected through the denuder and are recovered by filtration. The behaviour of a cylindrical denuder is shown in Fig. 1. After sampling the denuders can be extracted with water and analyzed.

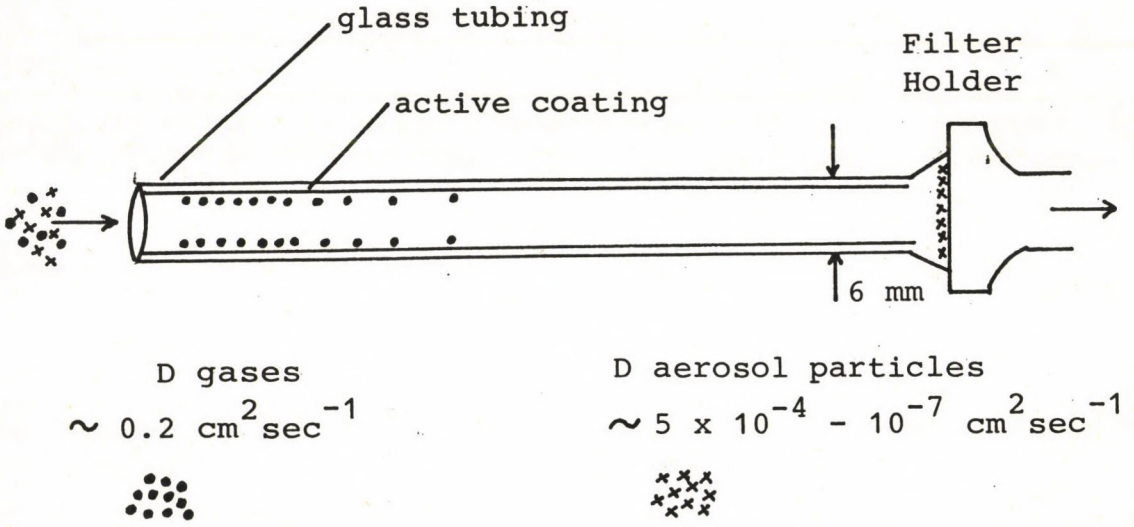


Fig. 1 - Cylindrical Denuder.

The limitations of conventional cylindrical denuder (i.e. low capacity and very low flow rate required to realize laminar conditions) have been overcome by the adoption of the annular geometry which has been realized by drawing air through the annular space of two concentric glass cylinders, kept at defined distance by suitable devices and coated with a specific reagent. (4)

The diffusion of a species i through a channel is given by the following equation

$$C/C_o = \sum \alpha_i e^{-\lambda_i \Delta}$$

where α_1 and λ_1 are coefficients of the series expansion and C_o and C are respectively the mean concentration of the species entering and leaving the channel,and

$$\Delta = \frac{\pi DL}{V_o d^2_{eq}} = \frac{\pi DL}{R_e \gamma d_{eq}}$$

where D is the diffusion coefficient of the species, L is the length of the channel, V_o is the mean velocity of the air in the channel, d_{eq} is equivalent diameter of the channel, R_e is the Reynolds numnber and γ is the kinematic viscosity of the air.

In asymptotic conditions ($C << C_o$) the fractional penetration C/C_o for an annular and a cylindrical denuder is given by the following expressions

Annular

$$\frac{C}{C_o} \simeq 0.82 \exp(-22{,}53 \Delta_a)$$

$$\Delta_a = \frac{\pi DL}{4F} \frac{d_1 + d_2}{d_2 - d_1}$$

Cylindrical

$$\frac{C}{C_o} \simeq 0.819 \exp(-14.63 \Delta_c)$$

$$\Delta_c = \frac{\pi DL}{4F}$$

where F is the air flowrate.

In the annular geometry the sorption efficiency, $E = 1 - C/C_o$, depends not only upon the air flowrate and the tube length but also on the proper choice of the inner, d_1 and outer d_2 diameters of the annulus; in addition as both surfaces, which define the annulus act as a sink, a larger adsorption surface is available and therefore a much larger capacity is obtained. The glass surface of the annulus is frosted in order to ensure a smooth coating of the active layer and to furtherly increase the capacity.

The interesting features offered by the annular configurations permits to obtain effective devices on air ambient measurement even for short term sampling. Air is denuded by reactive molecules so that if particles are collected on a back up filter, positive and negative artifacts will not longer occur.

The annular denuder method (ADM) can be used to determine acids as well as alkaline components in the atmosphere and the use of two equal denuders set in series is recommended. This device is used to evaluate the magnitude of effects, which have to accounted for a correct determination of a species.

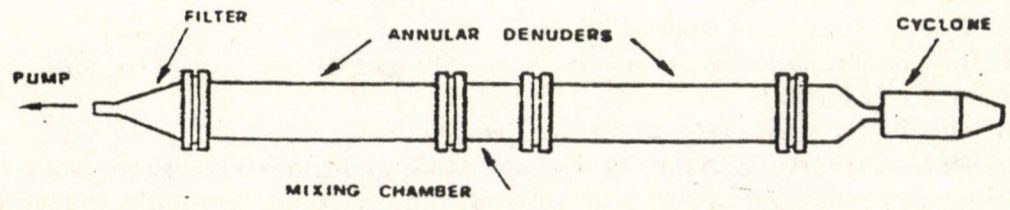


Fig. 2 - Annular denuder system for sampling gaseous acidic species and particulate matter in the atmosphere. Denuder sizes: L = 22 cm; d_1 = 30 mm; d_2 = 33 mm.

Measurement of acidic components of the atmosphere can be performed on two HEADs coated with a 1% solution sodium carbonate and glycerine. The device, set up in a vertical position to eliminate any sedimentation, and which operated at a flow of 15 L/min ensures a complete collection of acid gases in the first denuder. After sampling the tubes are extracted with water and analyzed by ion chromatography to obtain from the measurement of Cl^-, NO_2^-, NO_3^- and $SO_4^=$ the air content of HCl, HNO_2, HNO_3 and SO_2. A sodium carbonate denuder is a poor sink for NO_2 and PAN and both species yield a constant trace of nitrite in both tubes, which is measured to obtain a correct value for nitrous acid. (5)

Some experimental results obtained by ADM and ion chromatography to obtain a detailed information on the composition of gaseous and aerosolic compounds are shown in Table I.

TABLE 1

Amounts of ionic species measured by the annular denuder method during 24-h sampling and relative atmospheric levels in the gas and particle phases.

Date	Ion content (μg)												Atmospheric Concentration (μg/m^3)					
1985	Denuder 1				Denuder 2				Filter				Gas phase				Particle phase		
	NO_3^-	NO_2^-	Cl^-	$SO_4^=$	NO_3^-	NO_2^-	Cl^-	$SO_4^=$	NO_3^-	Cl^-	$SO_4^=$		HNO_3	HNO_2	HCl	SO_2	NO_3^-	Cl^-	$SO_4^=$
2-6	3.0	52.0	7.0	149	1.0	8.0	1.0	3.1	73.8	37.2	73.6		0.09	1.9	0.26	4.2	3.2	1.6	3.2
2-8	2.0	32.0	10.0	165	0.7	3.0	1.3	2.4	37.0	18.6	51.6		0.10	2.4	0.72	9.0	3.1	1.5	4.3
2-12	2.7	37.6	2.1	134	1.0	0.6	2.0	2.8	46.8	29.4	39.6		0.14	3.1	n.d.	7.2	3.9	2.4	3.3
2-14	3.8	23.0	4.7	171	1.9	7.0	1.2	3.9	71.1	19.2	73.8		0.10	0.9	0.19	6.2	3.9	1.1	4.1
2-15	3.2	37.0	2.0	139	2.6	6.4	2.0	3.8	73.5	33.4	92.8		0.03	2.0	n.d.	5.6	4.6	2.1	5.8
2-25	7/8	17.0	3.7	186	2.0	4.1	2.3	2.4	79.0	22.0	86.4		0.48	1.0	0.11	9.9	6.2	1.8	7.2
2-26	5.4	55.6	5.4	197	1.9	7.7	1.6	4.0	99.0	31.0	84.6		0.19	2.7	0.21	7.2	5.5	1.7	4.7
2-27	14.2	44.0	23.3	170	2.6	6.5	3.5	2.2	36.0	57.2	96.8		0.52	1.7	0.81	5.1	1.6	2.6	4.4
3-29	6.5	21.5	12.3	102	1.4	6.5	1.6	3.1	47/1	38.6	99.0		0.23	0.7	0.48	2.9	2.1	1.7	4.5
4-2	5.7	51.0	10.5	126	2.6	4.8	4.6	1.0	74.0	68.1	62.1		0.13	2.2	0.25	3.4	3.2	2.9	2.7

It is worth noting that the coupling of ADM and ion chromatography permits to obtain the simultaneous determinatin of most acids responsible of acid deposition and that the detection and analysis of species such as HNO_2 have been so far realized only by the over mentioned spectroscopic techniques. It is also worth to emphasize that on account of the high sampling rate typical time concentration profile of HNO_2 and HNO_3 may be obtained on 2h sampling periods.

REFERENCES

1) Tuazon E.C., Graham R.A., Winer A.M., Easton R.R., Pitts J.N. and Hanst P.L.. Atm. Env. 12, 865, 1978.
2) Perner D. and Platt U.. Geophysical Research Letters; 6, 917, 1979.
3) Schiff H.I., Hastie D.R., Mackay G.I., Iguchi T. and Ridley B.A.. Env. Sci. Technol., 17, 8, 1983.
4) Possanzini M., Febo A. and Liberti A.. Atm. Environ., 17, 2605, 1983.
5) De Santis F., Febo A., Perrino C., Possanzini M. and Liberti A.. Proceeding ECE Workshop on Advancements in Air Poll. Monit. Equip., Freiburg 1985, in press.

ENVIRONMENTAL APPLICATIONS OF MASS SPECTROMETRY: IDENTIFICATION AND EVALUATION OF ORGANIC POLLUTANTS.

Luigi BONIFORTI, Maria TERRACCIANO

Istituto Superiore di Sanità, Viale Regina Elena, 299 - 00161 Rome, Italy

INTRODUCTION

Pollution has become a serious problem not only from an environmental point of view but also because many pollutants are dangerous for human health. Intense legislative activity over the last decade has culminated in a dramatic rise in the role of analytical chemistry for public health protection. Clearly the emphasis has been placed on trace analysis. Pollutants such as polychlorinated biphenyls (PCBs), polychlorinated dibenzodioxins (PCDDs) and polychlorinated dibenzofurans (PCDFs) are present in complex mixtures; in addition some of them are dangerous even at ppt levels. Analysis of environmental samples is a very difficult task; a single technique must have the capacity of resolving power, detection power and specificity. Mass spectrometry (MS) as GC-MS or LC-MS has these possibilities. Coupling MS with GC and the specificity of mass spectrometer as a detector permits the analysis of one or more pollutants in complex mixtures; in addition the detection power is excellent when mass fragmentography is used. The rapid development of stable electronics and advanced software, and the introduction of new ionization techniques, has resulted in the widespread use of the GC-MS or LC-MS system to quantify pollutants in environmental samples. In these analyses, MS can be used in two ways: either directly or as a confirmatory method. Analysis of pollutants by MS has been widely reviewed (1-5).
EPA (Environmental Protection Agency) has proposed MS as an official method for the analysis of some pollutants such as PCDDs (6) and also for the analysis of prioritary pollutants in wastes (6-7). We wanted to emphasize the advantages of MS in solving some particular analytical problems connected with particular classes of compounds in well determined matrices. Following these assumptions we have divided this review into two sections: in the first one we mention the problems related to sampling and clean-up methods of the matrices where a particular class of polluntants can be found. In the second section we report a few examples of analytical evaluations obtained by using MS.

SAMPLING AND CLEAN-UP METHODS

MS used as GC-MS or LC-MS has the advantage of simplifying clean-up procedures. However, these procedures are often necessary to eliminate any possible false positive results. Commonly analyzed matrices are air, water, soil; we have dealt particularly with them; because these are the ones most commonly analyzed. We have also reported some examples concerning animal tissues expecially tissues from fish and birds, (indicating particular types of pollution) and examples concerning human biological samples. Generally, two types of sampling and clean-up methods are used for air: dynamic and static sampling; each of them is followed by thermal or solvent sorption(8). In dynamic sampling a well specified quantity of air is sucked in a glass or

metal tube, where strong adsorbents such as charcoal or quite weak ones such as carbopak B and Tenax are present. Thermal absorption has the advantage in respect to solvent desorption that it is possible to repeat the analysis. Static sampling is less used: it often gives lower evaluations in the results. EPA has proposed static and dynamic devices, reported in Federal Register (7). Examples of gas-solid sorption in air samples are reported by Fox and Jeffries (3). Advantages and disadvantages of the main sampling and clean-up procedures in water such as vapor stripping, liquid liquid extraction and absorption were dealt by Hites (9). Vapor stripping is the most widely used method. It is similar to the dynamic sampling method used in air sample. It is used when organic solutes in vapor samples are volatile or can be volatilized. The principal advantage of this technique is that large water volumes can be processed: the organics are separated from water before the introduction into the GC. There are two common limitations: 1) compounds with much higher than 100°C boiling point are not effectively removed from aqueous phase; 2) water vapor can saturate and inactivate charcoal. Grob has solved these problems by using a closed circuit gas recirculating system for the stripping and by using charcoal at room temperature as stripping agent. With this technique, he analyzed the drinking water from the city of Zurich and the surface from lake Zurich. He found some pollutants at inferior levels to ppt (10). Another problem encountered with vapor stripping techniques is the difficulty of calibration since stripping efficiency is a function of the solute and ion strength together. To overcome this an internal calibration compound consisting in an isotopically labeled version of the compound of interest could be used. Vapor stripping can use the same absorbents used in chromatographic techniques. These materials are very efficient being lipophilic. This particularity is very important as it is just these compounds which can be bioaccumulated and this is most interesting for whatsoever environmental studies. These absorbents being partially soluble in many organic solvents, it is possible to use only the thermal desorption. Several examples are reported: Poropak Q and S has been used for sorption of small halogenated hydrocarbons. Also the series of Chromosorb 100 has been widely emplojed. The union of this sorption technique using GC-MS has consistently showed the presence of chloroform, bromodichloromethane, and dibromochloromethane in drinking waters. In addition has been showed that the concentration of these compounds depends on chlorination treatments of waters. Over 130 methods have used these solid absorptions in sampling organic. As for the liquid liquid extraction this technique is useful for preliminary screening. In fact, it provides satisfactory result for many classes of compounds such as halogenated hydrocarbons, and the petroleum (paraffinic) distillates. This technique is operationally very simple, and furthermore aliquots of the resulting extract can be analyzed many times with different techniques if necessary. Because of the evaporation stage, compounds too volatile cannot be measured by solvent extraction; ultra pure solvent must be used. In analyses of waters from different geographical areas, many types of solvents were used. In these analyses the $CHCl_2$ appeared to be the best solvent (9). The extrac-

tion has been used not only for waters samples, but also from soil (1-2-5) and biological samples (1-19-20) and animal tissue extracts (9-22). One meaningful example of application by GC-MS concerns PCBs, not only in aqueous but also gaseous and solid samples. In the analysis of the PCBs, the extraction is a very critical step. Different compounds can be eluated; this problem can be solved by using hexane as a solvent. As for the soil, clean-up is a very critical step. Extraction of pesticides from soil but also from plants and air has been critically evaluated (5). The extraction has been used prior introduction into the GC-MS system for analyses of prioritary and non-prioritary pollutants (11). These analyses were performed by EPA protocol (6). In this protocol and in other official analytical methods, the best conditions of extraction were reported.

ANALYSIS

We have reported some examples concerning particular classes of pollutants such as aromatic hydrocarbons, polycyclic compounds and chlorinated compounds.

Hydrocarbons

Analyses are performed particularly in motor exhaust. The compounds identified fall largely into homologous series of normal and branched alkanes, alkenes, and various alkyl series based on cyclopentane, cyclohexane, benzene, styrene, indan, naphthalene, and decalin. Compounds not associated with homologous series include indene, divinylbenzene, phenylacetylene, benzaldehyde, phenol, and a few halocarbons (12). Analysis is very important, because many compounds have a potential of mutagenicity. The gas chromatografic techniques are widely used. Their disadvantage is the possibility of false positive results; however the GC-MS system solves this problem. In two studies (13-14) about 100 pollutants were found in motor exhaust. The evaluation in Allenghey tunnel (12) in Pennsylvania was particularly interesting. In fact this study was performed on the road where a lot of pollutants, in addition to the coming ones from engine exhaust were present. Their identification has been carried out by NBS/NIH EPA library containing 31000 compounds. The number of identified compounds was below the statistically expected one, according to the literature.

Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs)

PAHs are ubiquitous in our environment, resulting from incomplete combustion of organic materials; they are often associated with particulate material from various sources, such as urban dust, motor exhaust, cigarette smoke, incinerator emission and water sediments. Analytical significance of these compounds arises from their known or suspected mutagenic and cancerogenic power. Mutagenic and cancerogenic activity is connected with chemical structure, which varies with substituting group and also with isomeric differences. Schuetzle (15) has widely studied PAHs and their derivatives. One of the major difficulty in their analyses arises from the presence of trace levels in complex matrices. Another problem consists in fact that PAHs have many isomers. Multi-step clean-up procedure is generally necessary. Chemical Ionization - Mass Spectrometry (CI-MS) often shorts clean-up procedure (16). CI permits also identification of isomeric forms. Nevertheless EI-MS shows several advantages in respect to other analytical techniques such as GC and HPLC.

In fact GC cannot certainly identify high M.W. compounds and HPLC cannot distinguish all isomers. Many atlases of PAHs mass spectra have been compiled. EI get characteristic mass spectra: molecular ion is always present, often as base peak, M+1 ion is also important for the identification. Nevertheless we cannot differentiate isomeric forms by EI (15). Same derivatives of PAHs and their transformations products or metabolites, for their mutagenicity are also analyzed by using MS. Polycyclic ketones (PAKs) have been identified also in diesel exhaust, in carbon black and in urban air. The Negative Ion Chemical Ionization (NICI) which as a certain selectivity even if emphases only the molecular ion, has proved to be of great advantage in its use for these compounds. On the contrary the EI gives a lot of informations but lacks of selectivity: in fact anthracene and phenanthrene derivatives have similar fragmentation patterns. Beside the molecular ion there are other characteristic ions due to the loss of one or two CO; other interesting derivatives are the carboxyaldehydic derivatives. One of their characteristic in EI is the $M-H^+$ which is in the quantity of 60% respect to the molecular ion due to the loss of one or two H^+ in the aldehydic group.

Chlorinated Compounds

They are very heterogeneous class of pollutants such as chlorinated solvents, chlorinated pesticides, (PBCs), (PCDDs) and (PCDFs). Their common characteristic are: ubiquity, persistence in environment and accumulation in mammalian tissue. Solvents used in little and middle industry and in handicraft have been identified especially in air for their chemical and physical properties. Nevertheless they are present also in soil and in waters. It is owing either to the rain or to casual or intentional emission. The occurence of halogenated hydrocarbons and their metabolites has been studied. Biological samples and surrounding environment near industrial wastes have been studied: chlorotoluenes, PAHs and their derivatives, PCBs and others were found (17-18). In 1982 in Finland the presence of DDT, its metabolites and PCBs has been found in human milk (19). It's interesting to underline that DDT in that country has been banden since 1977. In likewise derivatives from chlordane have been found in the milk of women in Danmark, U.S.A., Japan, Finland(20). An interesting example of research about air pollution by aliphatic fluoro--compound has been reported. These pollutants lower the concentration of ozone in higher atmospheric layer; $CHCl_2$ and CCl_3F by using Selected Ion Monitoring (SIM)-GC-MS have been estimated at ppt levels (21). Recently, the increase of urban wastes has created big worry to the health authorities. Their elimination is a very difficult problem. To solve this problem some discharges, where a selected collection of wastes is carried out, have been constructed in suitable areas. In addition selection and recycle of a part of wastes is used; in recent years the incineration of wastes is being also widely used. Incineration permits also the recovery of thermal energy. In Italy the number of incinerators used is about one hundred. Suitable abatement systems of emission are employed, however some combustion products (gases, vapors, ashes) are brought in the surrounding environment. These immissions have pollutants such as nitrogen oxides, carbon monoxide, sulfur dioxide, heavy metals, PAHs, chlorinated organic compounds. The environmentalists are particularly interested in heavy metals in Fly-ashes and in some

organo-chlorinated compounds such as PCDDs and PCDFs in vapors and in Fly-ashes(22-23).Their production during incineration has been ascribed to pyrolysis and burning of precursors such as polyphenols and chlorine containing substances (PVC plastics). Sampling and clean-up methods have already been mentioned. The analysis of PCDDs and PCDFs are generally carried out by SIM-GC-MS because these substances are present at trace levels and because also substances interferring with GC-ECD system are present. EPA recommendation suggest the use of high resolution mass spectrometer to get unambigous results. Nevetherless even by using Gas Chromatography with high resolution capillary columns, low resolution mass spectrometers give reliable analytical results.

ESTIMATED CONCENTRATIONS OF $PCDD_S$ AND $PCDF_S$ IN MUNICIPAL INCINERATOR EMISSIONS IN SOME COUNTRIES

NG/Nm^3

COMPOUNDS	ITALY	NETHERLANDS	U.S.A.	SWITZERLAND
2,3,7,8-TCDD	0,5-2	1-10	0,3-0,5	0,1-0,4
TCDD	10-20	10-50	5-7	4-6
PCDD	10-30	50-150	—	10-15
HCDD	200-500	150-500	10-20	20-30
H_pCDD	10-150	150-350	7-8	20-30
OCDD	70-400	30-300	2-3	40-60
TCDF	30-350	50-150	85-95	20-30
PCDF	(*)	100-200	—	20-30
HCDF	(*)	200-500	40-80	15-25
H_pCDF	(*)	150-300	7-8	10-15
OCDF	30-90	20-60	0,5-0,7	5-10

FROM: CASSITTO L., ING. CHIM. ITAL., 20 (10) 1984

(*) DATA STATISTICALLY NOT SIGNIFICANT.

Table I summarizes the results of the analyses carried out also in our Institute, compared to those one carried out in other countries. In the environment near municipal incinerators the risk for public health, due to Fly-ashes follout, appears to be reasonably low from a toxicological point of view; nevertheless in Italy the health authorities foresee for the new incineration plants improved systems such as post-combustion chambers and electrofilters to lower pollutant concentration in incinerator emission.

REFERENCES

1. A. Alford, Biomed. Mass Spectrom. 5 (1978), 259.
2. A.L. Burlingame, A. Dell, D.H. Russel, Anal. Chem. 54 (1982), 363R.
3. D.Fox, H.E. Jeffries, Anal. Chem. 55 (1983), 233R.
4. M.J. Fishmann, D.E. Redmann, J.R. Garbarino, Anal. Chem. 55 (1983),102R.
5. J. Sherma, G. Zweig, Anal. Chem. 55 (1983), 57R.

6. Fed. Regist. 48 n. 65 (1983), 14514.
7. Fed. Regist. 44 n. 233 (1979), 69464.
8. Proc. of "Controllo dell'inquinamento ambientale da solventi e da composti organo-clorurati". Padua, 30 may-1 june 1983, 26.
9. R.A. Hites, Advan. Chromatogr. 15 (1984), 69.
10. K. Grob., G. Grob, J. Chromatogr. 90 (1974), 303.
11. G.T. Hunt, M.P. Hoyt, HRC & CC 5 (1982), 291.
12. C.I. Hampton, W.R. Pierson, T.M. Harvey, W.S. Updegrave, R.S. Marani, Environ. Sci. Technol. 16 (1982), 287.
13. R.S. Marani, Private communications to Pierson, 1977 (Ford Motor Co.).
14. W.R. Pierson, W.W. Brochaczek, D.E. Mc Kee, Air Pollut. Contr. Ass. 29 (1979), 255.
15. D. Schuetzle, F.S.C. Lee, T.J. Prater, S.B. Tejada, Interim J. Environ. Anal. Chem. 9 (1981), 93.
16. M.J. Avery, J.J. Richard, J.A. Junk, Talanta 31 (1984), 49.
17. V.A. Elder, B.L. Proctor, R.A. Hites, Biomed. Mass Spectrom. 8 (1984), 400.
18. J. Barkley, J. Bunch, J.T. Bursey, N. Castillo, S.D. Cooper, J.M.Davis, M.J. Erickson, B.S.H. Harris III, M. Kirkpatrick, L.C. Michael, Biomed. Mass Spectrom. 7 n. 4 (1980), 139.
19. J. Mes, Pui-Yan Lan, Bull. Environ. Contamin. Toxicol. 31 (1984), 639.
20. K.W. Strom, H. Pysalo, M.A. Simes, Bull. Environ. Contamin. Toxicol. 31 (1983), 251.
21. F. Bruner, G. Crescentini, F. Mangani, E. Brancaleoni, A. Cappiello, P. Ciccioli, Anal. Chem. 53 (1981), 798.
22. H.Y. Tong, D.L. Shore, F.W. Karasek, P. Holland, E. Jellem, J. Chromatogr. 285 (1984), 423.
23. G.A. Eiceman, H.O. Righel, Environ. Sci. Technol. 16 (1982), 53.

ACKNOWLEDGEMENT

The Authors wish to thank Mrs. M.T. Simeoni for her assistance.

SPURENANALYSE DURCH NICHTTHERMISCHE ANREGUNGSVERFAHREN

Klaus Dittrich, Bernd Hanisch und Hans-Joachim Stärk
Karl-Marx-Universität Leipzig, Sektion Chemie, WB Analytik
DDR-7010 Leipzig, Talstr. 35, DDR

1./ Einführung

Zu den nichtthermischen Anregungsverfahren der analytischen Atomspektroskopie gehören die Atomabsorptionsspektrometrie (AAS), die Atomfluoreszenzspektrometrie (AFS) und einige Verfahren der Atomemissionsspektrometrie (AES) (z.B. Glimmentladungen, HF- und MW-Entladungen). Diese Verfahren sind besonders für die Spurenanalyse geeignet. Betrachtet man die Entwicklung der Mikroanalyse im Spurenbereich, so kann man feststellen, dass sich in den letzten 15 Jahren die elektrothermische Atomisierung in der AAS zur führenden Methode entwickelte. Die Gründe dafür liegen im ausgezeichneten Nachweisvermögen (pg-Bereich), in der ausreichenden Reproduzierbarkeit (1-5%) und in der Möglichkeit des Einsatzes von Mikroproben (5-50 µl). Allerdings gibt es auch einige Nachteile und Probleme:
Mangelnde Richtigkeit der Ergebnisse bzw. viele Matrixeffekte; Nachweisvermögen im fg-Bereich nicht erreichbar; Multielement--Techniken sind auf der Basis der AAS nur mit grosser Schwierigkeit entwickelbar und typische Nichtmetalle bereiten aus unterschiedlichen Gründen (Resonanzlinien im UV, hohe Flüchtigkeit, hohe Dissoziations- und Anregungsenergien) einige Schwierigkeiten.
Diese Probleme sollen in dieser Arbeit behandelt werden.

2./ Möglichkeiten für die Verbesserung der Richtigkeit in der AAS-ETA

Die Hauptursachen für Richtigkeitsabweichungen liegen im nichtisothermen Charakter des Plasmas und den komplizierten chemischen Wechselwirkungen zwischen Gas, Kohlenstoff und Matrix.
In den vergangenen Jahren wurden mit der Entwicklung der Plattformtechnik (1), der Stab-in-Rohr-Technik (2) und der Anwendung hoher Aufheizraten wesentliche Beiträge zur Verbesserung des thermischen Gleichgewichts im Plasma der Graphitrohre erzielt.
Wir entwickelten einen neuen Atomisator auf der Basis von Graphitpapier (3) (Wandstärke 0,1-0,2 mm), welcher sich durch extrem hohe Aufheizgeschwindigkeiten (>10000 K/s) auszeichnet. In Kombination mit der Plattformtechnik konnten Verbesserungen der Richtigkeit erzielt werden.
Hinsichtlich des Graphitrohrmaterials haben sich cie pyrolytisch beschichteten Graphitrohre durchgesetzt. Obwohl die Technik der Abscheidung des Pyro-Kohlenstoffs schon den spezifischen Bedingungen der AAS-ETA angepasst worden ist, sind in Zukunft noch Verbesserungen zu erwarten.
Besondere Aufmerksamkeit verdienen die Matrixmodifikationen, mit deren Hilfe Spur-Matrix-Trennungen und Thermische Stabilisierungen vorgenommen werden. Als Beispiel verweisen wir

auf unseren Beitrag zur Stabilisierung von GeO_3 als $BaGeO_3$ durch $Ba(NO_3)_2$ (4). Sowohl Empfindlichkeit (30x) als auch Richtigkeit konnten verbessert werden.

3./ Anwendung der laserangeregten Atomfluoreszenzspektrometrie (LAFS) zur Verbesserung des Nachweisvermögens (im Vergl.) der AAS-ETA

3.1. Allgemeine Bemerkungen

Theoretische Betrachtungen und auch experimentelle Resultate ergeben, dass man mit der LAFS hinsichtlich des Nachweisvermögens in den lg-Bereich vordringen kann (5-9). Vielfach konnten die theoretischen Möglichkeiten noch nicht ausgeschöpft werden. Eine Hauptursache für diese Tatsache besteht in der Unzulänglichkeit der verwendeten Atomisatoren (7). Als Atomisatoren wurden bisher vorwiegend chemische und physikalische Flammen (6,9,10) und offene elektrothermische Atomisatoren eingesetzt.
Infolge der niedrigen Zerstäubungseffektivität sind Flammen für die extreme Spurenanalyse nicht gut geeignet. Offene elektrothermische Atomisatoren haben den Vorteil, dass die Bestrahlung und die Beobachtung der Fluoreszenz des Atomdampfes relativ einfach möglich sind (s. Abb.1).

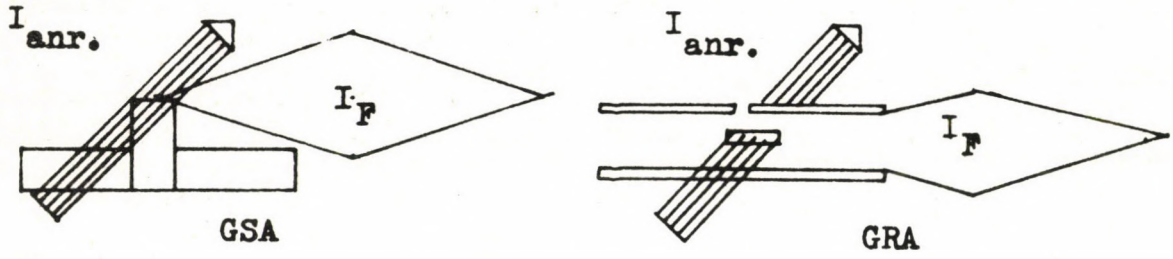


Abb.1
Atomisatortypen in der LAFS-ETA

offener Graphitstabatomisator: GSA
geschlossener Graphitrohratomisator: GRA

Der Hauptnachteil dieser Technik besteht in den ungünstigen thermischen Bedingungen dieses Atomisators. Der stark negative Temperaturgradient führt zur Molekülbildung und Kondensation.
Inhalt dieser Arbeit ist deshalb die Verbesserung der thermischen Atomisierungsbedingungen durch Einsatz eines Graphitrohratomisators für die LAFS-ETA (s. Abb.1). Der Hauptvorteil eines solchen Systems sollte in den besseren thermischen Bedingungen liegen. Ein Nachteil besteht darin, dass die ungehinderte Bestrahlung und Beobachtung erst nach Modifizierung möglich ist.

3.2. Experimentelles

Apparatur:

LAFS-Spektrometer:

N_2-Impulslaser (IGT 1000) (ZWG Berlin, DDR);
Farbstofflaser (FLGR-2) (Carls Zeiss Jena, DDR);
Spiegelmonochromator (SPM-1) (Carls Zeiss Jena, DDR);
Boxcarintegrator (BCI-280) (ZWG Berlin, DDR).

Der Arbeitsbereich des Systems liegt zwischen 260 und 800 nm. In Abhängigkeit von den verwendeten Farbstoffen können im UV-Bereich Impulsenergien his 10 µJ mit einer Dauer von ∿ 4 ns und einer Halbwertsbreite von ∿40 pm bei einer Folgefrequenz von 7 Hz erzielt werden. Sättigung der angeregten Niveaus ist meistens nicht möglich.

Atomisatoren:

Graphitstabatomisator GSA (Eigenbau);
modifizierter Graphitrohratomisator GRA (Typ 1268, Beckman, USA);
modifizierter Graphitrohratomisator GRA (Typ EA3, Carl Zeiss Jena, DDR; HGA 500, Perkin-Elmer, USA).

Folgende Parameter wurden untersucht und optimiert: Aufheizgeschwindigkeit, Endtemperatur, Gasströmung, Probevolumen, Bestrahlungsrichtung.

3.3. Ergebnisse

In der Tabelle 1 wurden die untersuchten Elemente, die benutzten Wellenlängen und in der Tabelle 2 die mit GSA und den besten GRA (EA3, HGA 500-Typ) erzielten Resultate dargestellt (11,12).

Tabelle 1

Charakterisierung der durch LAFS-ETA untersuchten Elemente

Element	Siedepunkt °C	Wellenlängen in nm		Fluoreszenztyp	Laserenergie µJ
		Anregung	Fluoreszenz		
Pb	1750	283.307	405.782	DLF	8
In[x]	2300	303.936	325.856	DLF	5
Ga	2344	287.424	294.418	DLF	3
			294.364		
Al[x]	2467	308.216	308.216	RF	3
			309.271	DLF	
V	3500	264.771	354.350	DLF	1
Ir	4800	284.972	357.372	DLF	7

Farbstoffe: C 462; [x]) Rhodamin B

Tabelle 2

Analytische Resultate der LAFS-ETA mit GSA und GRA

Element	Nachweisgrenzen (3s-Krit.)in pg GSA	GRA	Verbesserungsfaktor im GRA
Pb	1.5	0.075	20
In	5.5	0.14	40
Ga	70	10	7
Al	45	4	11
V	530000	22200	240
Ir	600000	475	1260

Zur Vermeidung von Störungen durch Streulicht wurde nach Möglichkeit die Direktlinienfluoreszenz genutzt (Tab.1).
Wie aus Tabelle 2 hervorgeht, konnten durch Einsatz des GRA gegenüber dem GSA besonders bei schwerverdampfbaren Elementen starke Verbesserungen erzielt werden.
Hinsichtlich des absoluten Nachweisvermögens konnte im Fall ausreichender Laserenergie (Pb, In) der fg-Bereich erreicht werden. In den anderen Fällen wäre dies erst bei Einsatz leistungsfähigerer Laser möglich (vgl. auch Tab. 1 und 2).

4./ Anwendung der FANES-Technik (furnace atomic nonthermal excitation spectrometry) zur Spurenanalyse im Mikrobereich

4.1. Allgemeine Betrachtungen

Die FANES-Technik wurde von Falk und Mitarbeitern (13,14) entwickelt. Das Prinzip der FANES besteht darin, dass eine Probe wie in der AAS-ETA getrocknet und verascht wird. Danach wird der Atomisator evakuiert und mit Edelgas (Ar, He) von ∿ 10 Torr gefüllt. Nach Zünden und Stabilisieren einer Glimmentladung, bei der das Graphitrohr als Hohlkathode dient, wird der trockene Proberückstand atomisiert. Die Strahlung der durch Elektronenstossprozesse angeregten Atome wird vermessen.
Diese Methode besitzt ähnlich der bereits seit längerer Zeit bekannten Carbon-rod-emission (15) den Vorteil, dass mit einem Mehrkanal-Spektrometer Multielement-Spurenanalyse im Mikrobereich betrieben werden kann. Anliegen dieses Teils der Arbeit war es, die Einsetzbarkeit der FANES-(ETA) für die reale Analytik im Vergleich zur AAS-ETA und LAFS-ETA zu prüfen und Bedingungen für die Bestimmung von Nichtmetallen zu finden (16,17).

4.2. Experimentelles

Apparatur:

FANES-Anregungsquelle (Carl Zeiss Jena, ZOS, Berlin, DDR);
Spiegelmonochromator SPM-2 (Carl Zeiss Jena, DDR) mit Gitter 1300 Str./mm - SI; 2600 Str./mm - UV;
Schnellschreiber: Oscilloreg-Recorder (Siemens, BRD);
Hohlkathodenlampen (als Hilfsmittel für die λ-Einstellung)

Die Rohrdimensionen sind die gleichen wie beim EA3- (Carl Zeiss Jena, DDR) und HGA 500- (Perkin-Elmer, USA) Atomisatortyp der AAS-ETA.

Folgende Parameter wurden untersucht und optimiert: Veraschungs- und Atomisierungstemperatur, Edelgasdruck und -art, Entladungsstromstärke, optische Bedingungen.
Zu berücksichtigen ist, dass das hier vorgestellte Spektrometer nur ein Einkanalgerät und somit nicht zur Multielementspurenanalyse geeignet ist.

4.3. Ergebnisse

In der Tabelle 3 sind die untersuchten Elemente, die optimierten Bedingungen, die intensivsten Linien und die erhaltenen Nachweisgrenzen dargestellt.

Tabelle 3

Analytische Resultate und Bedingungen der FANES-(ETA)

Element	Wellenlänge in nm	relative Empfindlichkeit	thermische Bedingungen	Nachweisgrenzen in ng
Al (I)	396.2	4	2500 °C	0.015
	394.4	1.5		
	309.3	2.5		
	308.2			
Ga	417.2	11	1500 °C	0.020
	403.3	6		
	294.4	2.5		
	287.4	1		
In	451.1	5	1100 °C	0.025
	410.2	2.5		
	325.6	2.5		
	303.9	1		
Cl (I)	725.6	9	1500 °C	8
	438.9	3.5		
	741.3	1.5		
	452.7	1		
Br (I)	452.3	2.5	1100 °C	12
(II)	477.6	2		
(I)	451.2	1.5		
(I)	734.6	1		
I (II)	533.8	7	1100 °C	9
(I)	511.9	5		
(I)	542.7	1.5		
(I)	740.2	1		

Für die metallischen Elemente war Argon, für die Nichtmetalle war Helium als Anregungsgas am günstigsten.
Daraus kann man schlussfolgern, dass die Energieübertragung im wesentlichen durch die Edelgasatome erfolgt. Die höhere Energie der metastabilen Anregungsniveaus des He ($\sim$ 21 eV) ermöglicht die direkte Anregung der Halogenatome.
Aus Tabelle 3 geht hervor, dass es trotz optimaler Bedingungen erhebliche Unterschiede im Nachweisvermögen für Metalle und

Nichtmetalle gibt. Trotzdem muss man einschätzen, dass gerade in der Bestimmbarkeit der Nichtmetalle ein wesentlicher Vorteil der FANES-(ETA) gegenüber der AAS-ETA besteht. Aus Tabelle 3 geht weiterhin hervor, dass unterschiedliche Atomisierungstemperaturen zu optimalen Ergebnissen führten. Trotz dieser für die Multielementanalyse un ünstigen Bedingung muss eingeschätzt werden, dass mit nur geringem Empfindlichkeitsverlust Multielementbedingungen geschaffen werden können (z.B. 2500°C für Al, Ga, In).

5./ Vergleich der analytischen Resultate der AAS-ETA, LAFS-ETA und FANES-(ETA)

In der Tabelle 4 werden die Schlussfolgerung und die optimalen Ergebnisse zusammengefasst.

Tabelle 4

Vergleich der analytischen Resultate der Spurenbestimmung von Al, Ga, In durch AAS-ETA, LAFS-ETA und FANES-(ETA)

Element	Methode	Wellenlänge in nm	Nachweisgrenzen in pg
Al	FANES	396.2	15
	AAS/ETA	308.2	200
	LAFS/ETA	308.2 / 308.2 309.3	4 (3 µJ)
Ga	FANES	417.2	20
	AAS/ETA	294.4	45
	LAFS/ETA	287.4 / 294.4	10 (3 µJ)
In	FANES	451.1	25
	AAS/ETA	303.9	30
	LAFS/ETA	303.9 / 325.6	0.15 (5 µJ)

Schlussfolgerung: FANES ist die beste Methode für Multielementanalytik

Aus Tabelle 4 geht hervor, dass die LAFS-ETA trotz z.T. unzureichender Laserleistung die besten absoluten Nachweisgrenzen besitzt. Die FANES-(ETA) ist der AAS-ETA hinsichtlich des Nachweisvermögens leicht überlegen, besitzt jedoch durch ihren Multielementcharakter einen eindeutigen Vorteil. Ein weiterer Vorteil ist in der Bestimmbarkeit der Nichtmetalle zu sehen.

Mit den erzielten Vorteilen wurde bewiesen, dass eine Verbesserung der eingangs erwähnten Unzulänglichkeiten der AAS-ETA durch Einsatz der gennanten Verfahren möglich ist.

Literatur

(1) B.V. L'vov, Spectrochim. Acta 33B, 1978, 153
(2) W. Frech und S. Jonsson, Spectrochim. Acta 37B, 1982, 1021
(3) B. Findeisen und K. Dittrich, W.P. 2005892, DDR
(4) K. Dittrich, R. Mandry, W. Mother und J.G. Judelevic, Analyst 110, 1985, 169
(5) H. Falk, Progr. anal. atom. Spectrosc. 3, 1980, 181
(6) S.J. Weeks, H. Haraguchi and J.D. Winefordner, Anal. Chem. 50, 1978, 360
(7) M.A. Bolschov, A.V. Zybin und I.I. Smirenkina, Spectrochim. Acta 36B, 1981, 1143
(8) J. Tilch, H.J. Paetzold, H. Falk und K.P. Schmidt, Analytiktreffen 1981 (Atomspektroskopie), Neubrandenburg (DDR), Abstract, DV 55
(9) H.G.C. Human, N. Omenetto, P. Cavalli und G. Rossi, Spectrochim. Acta 39B, 1984, 1343
(10) N. Omenetto und H.G.C. Human, Spectrochim. Acta 39B, 1984, 1333
(11) K. Dittrich und H.J. Stärk, J. anal. atom. spectrosc., im Druck
(12) K. Dittrich und H.J. Stärk, J. anal. atom spectrosc., in Vorbereitung
(13) H. Falk, E. Hoffmann und Ch. Lüdke, Spectrochim. Acta 36B, 1981, 767
(14) H. Falk, E. Hoffmann, Ch. Lüdke und J.M. Ottaway, Analyst 108, 1983, 1459
(15) D. Littlejohn und J.M. Ottaway, Analyst 103, 1978, 595
(16) K. Dittrich und B. Hanisch, J. anal. atom. spectrosc., in Vorbereitung
(17) K. Dittrich und B. Hanisch, Spectrochim. Acta, in Vorbereitung.

ATOMIC ABSORPTION SPECTROMETRY AS APPLIED TO THE DETERMINATION OF ENVIRONMENTAL POLLUTANTS IN VEGETABLE TISSUES.

Massimo Ottaviani and Paola Magnatti

Laboratorio di Igiene del Territorio - Istituto Superiore di Sanità - 00161 Roma (Italy).

Environmental hygiene problems have aroused great interest for some years, but they have not been solved yet. Therefore, environmental hygiene care through the utilization of vegetables as indicators of air pollution appears to be of utmost importance. In fact, the possibility of utilizing specific symptoms of plants to have indications of air pollution has been assumed for quite a number of years. This field of research has found real application, also on a vaste scale, in many countries (U.S.A., Great Britain, Israel, Holland,...), where systems for biological air-pollution surveys have been carried out.
In Italy, pollutant impact on vegetables has rarely been studied till now. Consideration has mainly been given to phytotoxic effects of plants, rather than to the possibility of utilizing them for pollutant surveys.
The actual trend in the application of vegetable use is chiefly to study the presence and distribution in time and space of environmental pollutants. Therefore, spontaneous and cultivated plants responding to very low pollutant concentrations with a specific symptomatology can be defined as "indicator" plants. Data obtained from these plants can very well integrate the results of qualitative and quantitative analyses of air pollutants through chemical-physical methods. In fact, vegetables are more sensitive to a large number of pollutants than men and animals. Pollutant action is revealed by visible sympotoms (1). Sometimes symptoms are so conspicuous that they can be utilized to visualize the extent of pollution in a given area and provide evidence of the pollution's diffusion pattern. Effects on vegetation can be mapped also in time, because pollutant bio-concentration in vegetable tissues makes plants capable of revealing pollution patterns over a period of time, denoting previous espisodes, too (2).This makes it necessary to use suitable chemical--analytical techniques for the diagnosis of pollutant presence in vegetable tissues (3). The above techniques require comparatively short times, especially compared to chemical-physical analyses of atmosphere and soil. These, in fact, have to be executed continuously in time to give the same information. Heavy metals are among those pollutants which can surely be identified by analytical determination: a) because they are contained in very small quantities in uncontaminated plants, and b) because they are concentrated in vegetable tissues and don't participate in metabolic plant processes.
The Atomic Absorption Spectrometry is the best suited technique for analytical determination of heavy metals (4). It has not presented big problems in the case under study, as matrix effect has proved to be very contained either for the kind of metals taken into consideration or for their concentrations. On the contrary, sampling and sample preparation need the greatest attention because vegetable samples are extremely heterogeneous.

This heterogeneity may be caused by:
-presence in the sample of leaves of different age which can differently behave in pollutant absorption;
-irregular pollutant distribution on the leaf surface;
-screening effect by leafy branches of the same plant.
In the case of samples coming from different units of the same species, the heterogeneity is mainly caused by biological factors, which can differently affect the plant possibility of absorbing metallic pollutants. Therefore, the different physiological state of plants, even if they are subject to a similar kind of contamination, leads to a different intensity of pollutant absorption.
To make this kind of analytical research reliable, it is essential to estimate the reproductivity of preparation and etching of the vegetable sample to be then analyzed by atomic absorption. Leaves of different kinds of vegetable (Quercus pubescens, Pinus maritima, Rubus fructicosus, Bergenia sp., Rosa sp., Matthiola incana) have been taken into consideration. These plants are easily retraceable locally either inside or outside the perimeter of industrial installations. Sample preparation involves the organic matter decomposition and the conversion of metals into inorganic forms.
For each sampled unit, about 500 g of leaf samples have been collected in the outside middle point of foliage, always at the same height above ground. After washing and drying, vegetable leaves have been cut in small pieces, ground and passed through a 70-mesh sieve. The washing procedure is necessary to remove the particulate matter adhering to the surface, which may contain heavy metals to be distinguished from the heavy metals concentrated in the tissue. In fact, tests on unwashed tissue have given heavy metal concentration values between 22%-96% higher than bioconcentrated heavy metals (5).
For grinding a mill has been used, which utilizes an intense air current to throw pieces of leaves on an abrasive surface. The powder is then passed through a 70-mesh sieve. In fact, the grinding procedure is pushed at most to increase the degree of sample homogeneity, which is an essential factor for a good reproductvity. Afterwards, three sub-samples of 1g have been drawn from each sample. Acid digestion has then been carried out in tertiary acid mixture of nitric acid, sulphuric acid and perchloric acid (60% v/v) in the ratio of 10:1:4.
The reproductivity of sample preparation and etching appears to be good, as pointed out in tables 2 and 3. In fact, all concentration values have a maximum deviation from the mean $\leqslant \pm 8\%$ and their relative standard deviation are $\leqslant \pm 9\%$. Vegetable samples being extremely heterogeneous, they may be considered satisfactory. In the line of the results obtained it may be asserted that sample preparation, as proposed by the authors, and heavy metal determination by atomic absorption are suited to the vegetable tissues examined. For this reason it is to be assumed that they can be applied to any vegetable for a correct and rapid monitoring of heavy metal pollution.
Background (4) concentration (To) and critical concentration (Tc) values are reported. They may be compared to concentration values of polluted tissues.

Table 2. - Heavy metal content (μg/g) of the vegetable tissue under examination.

VEGETABLE TISSUE / ELEMENTS	QUERCUS PUBESCENS	PINUS MARITIMA	RUBUS FRUCTICOSUS
V	6,88 ± 0,30	-	-
Fe	492,50 ± 29,70	175,50 ± 15,08	128,50 ± 13,05
Co	24,00 ± 2,04	8,50 ± 1,05	6,45 ± 0,72
Ni	74,00 ± 4,93	25,75 ± 2,04	36,00 ± 3,21
Cu	176,50 ± 12,10	58,34 ± 4,42	82,50 ± 7,80
Zn	88,50 ± 4,45	35,50 ± 3,51	39,70 ± 3,79
Sb	11,67 ± 1,04	4,10 ± 0,36	3,69 ± 0,28
Mn	431,67 + 20,05	155,05 ± 12,59	77,50 ± 6,34

Note. - Means and standard deviations are based on 10 analyses.

TAble 3. - Heavy metal content (μg/g) of the vegetable tissue under examination.

VEGETABLE TISSUE / ELEMENTS	ROSA sp.	BERGENIA sp.	MATTHIOLA INCANA
V	-	-	4,80 ± 0,30
Fe	187,00 ± 12,35	114,50 ± 8,61	372,50 ± 21,75
Co	8,50 ± 0,90	6,00 ± 0,58	18,50 ± 1,25
Ni	16,50 ± 1,76	19,50 ± 2,24	40,00 ± 1,86
Cu	48,00 ± 3,80	49,50 ± 3,85	72,00 ± 4,75
Zn	45,50 ± 3,71	36,00 ± 2,75	61,50 ± 5,90
Sb	3,69 ± 0,28	3,40 ± 0,31	9,75 ± 1,25
Mn	80,50 ± 7,35	76,00 ± 5,73	97,50 ± 7,65

Note. - Means and standard deviations are based on 10 analyses.

Table 10. -

Emitted elements	Prevailing origin	Characteristics
Fe	Phase of metal manufacture pickling	-
Cu - Ni - Co	Ground enamel (passed on all metal manufactures)	Elements acting as agents between enamel and metal surface
Zn	Covering enamel	Element giving transparency and present in the base-formula of the covering enamel
Sb	Covering enamel	Element present in the formula of the pigment which gives the classical white colour at the rate of 1%
Al - Si	Ground enamel and covering enamel	Elements giving the chemical resistance to the enamel
V	Kiln fuel Covering enamel	Element present in the fuels Element present in the formulation

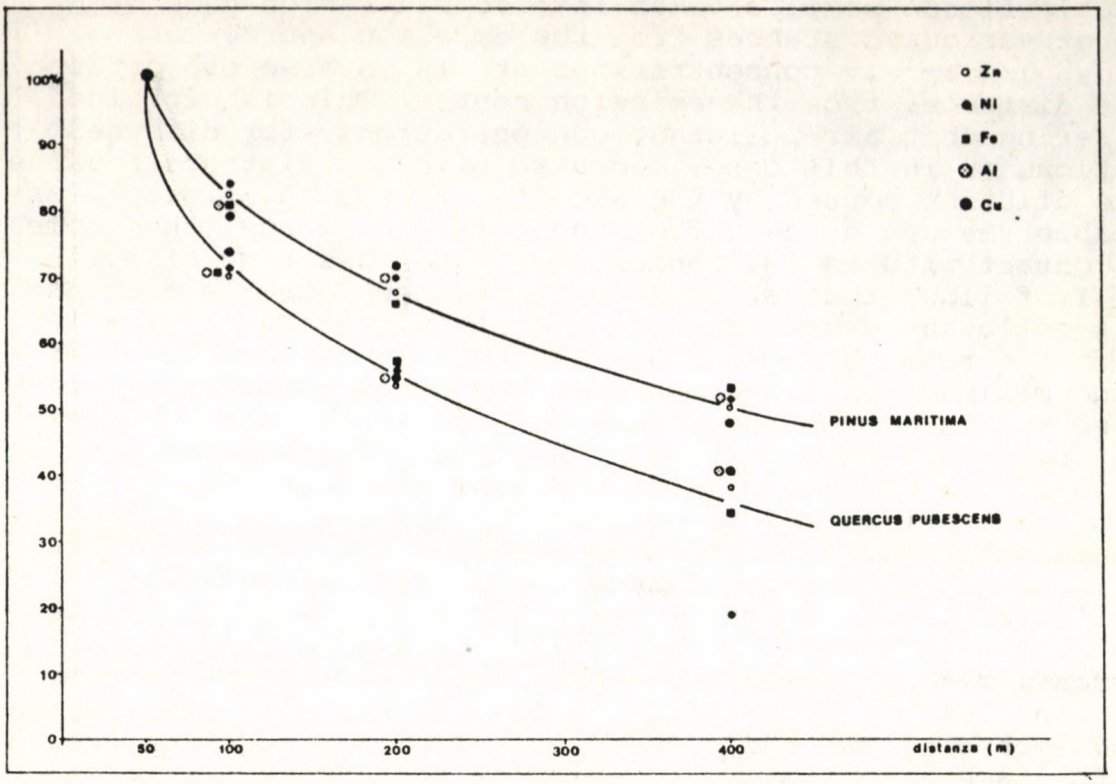


Fig. 1. - Andamento percentuale del rapporto tra le concentrazioni di alcuni metalli a varie distanze e le concentrazioni rilevate nel punto più vicino alla fonte d'emissione (50 m) ed assunte uguali al 100%.

Table 11. - Heavy metal concentrations in QUERCUS PUBESCENS leaves before and after installing fume purificatiom system.

ELEMENTS	100 m		200 m	
	a (µg/g)	b (µg/g)	a (µg/g)	b (µg/g)
Fe	347,50	55,60	280,00	25,20
Ni	52,50	10,50	41,50	4,15
Cu	130,50	23,50	97,50	9,07
Zn	62,00	8,68	47,50	3,80
Al	295,00	56,05	228,50	21,48

Note. - a = concentrations before installing the fume purification system (1982);

b = Concentrations after installing the fume purification system (1984)

Vegetable tissue samples taken into consideration have been drawn at various distances from the emission source.
As shown in fig. 1 concentrations are in inverse proportion to the distances from the emission source. This is explained considering that air-pollutant concentrations, for diffused pollutions as in this case, decrease with the distance because of the dilution caused by the air itself. For this reason, as vegetable tissues go away from the emission source, they come into contact with an environment less and less rich of pollutant. It follows that absorption diminishes with the decrease of air-pollutant concentration. It is interesting to note (fig. 1) that the ratio between concentrations at various distances and the maximum concentration obtained at 50 m from the emission source is of the same order for all the metals under examination. This points out the proportional response of biological tissues to the impact with the considered pollutants. Further considerations may be carried out through the analysis of the data obtained. In fact, some elements turn out to be present in larger quantities than others. This may be related to the emission source which is connected with the technological cycle of the industrial installation. Such a hypothesis has been confirmed by drawings executed into the factory chimney stack. In fact, as shown in table 10, the critical processings of the technological cycle under examination produce emissions with the same quantitative priority of the analyzed vegetable tissues. This might be utilized, with due caution, in the search of a possible emission source of an unknown pollutant event.
A subsequent screening in the considered area makes it possible to estimate, as a general rule, the fitness of the industrial installation's purification systems. This is done comparing the data obtained from samples of the same vegetable units before and after installing the purification systems (table 11).

LITERATURE.

1 - G. Dojmi di Delupis, M. Ottaviani, P. Magnatti, E. Sbardella: "Effects of industrial-source airborne fluorine in woodlands: a case study".
Environ. Pollut. (1985), in press.
2 - C.S. Brandt: "Plants as indicators of air quality".
In: Indicators of environmental quality, Plenum Press, N.Y. (1972), 101-107.
3 - M. Ottaviani, P. Magnatti, G. Dojmi di Delupis, S. Mazzola: "Determinazione del fluoro nei tessuti vegetali"
Ann. Ist. Super. Sanità, vol. 19 n. 2-3 (1983), 467-470;
4 - M. Ottaviani, P. Magnatti, G. Dojmi di Delupis: "Inquinamento da metalli pesanti in un querceto".
Ann. Ist. Super. Sanità, vol. 19 N. 2-3 (1983) 471-474.
5 - M. Ottaviani, P. Magnatti, G. Dojmi di Delupis: "Fluorine determination in different vegetal tissues".
Mikrochim. Acta, vol. III (1984), 313-316.

SPURENELEMENTEN-BESTIMMUNG IN ORGANISCHEN MATERIALIEN UNTER ANWENDUNG DER HPA /HOCHDRUCK-AFSCHLUSS/ - - ICP KOMBINIERTEN METHODE

J.BORSZÉKI, G. KNAPP

Institut für Analytische Chemie, Mikro- und Radiochemie
Technische Universität Graz

Einführung

Durch Kombination von chemischen und atomspektroskopischen Methoden erhält man Verbundverfahren zur Bestimmung von Spurenelementen. Die Konzentrationsbereiche in der Spurenelementanalyse verschieben sich ständig nach unten. Die Spurenelementbestimmungen haben auch grössere Bedeutung bei der Qualitätskontrolle verschiedener organischer Materialien, u.a. bei pharmazeutischen Produkten. Weil derzeit die Spurenelementanalyse durch die wichtigsten atomspektroskopischen Methoden /Flammen-AAS, ETA-AAS, ICP-AES/ im allgemeinen in Proben flüssiger Form durchgeführt werden, ist der am häufigsten eingesetzte chemische Probenvorbereitungschritte- der Nassaufschluss.

Probenaufschluss

Beim Nassaufschluss im allgemeinen werden feste Proben auf verschiedene Weise in Lösung gebracht. Das Auflösen kann entweder einfach mit Wasser, Laugen, oder Säuren durchgeführt werden, bei organischen Proben muss jedoch meistens ein oxidativer Abbau der Probenmatrix erfolgen.

Wie bereits erwähnt, zählen Aufschlussverfahren zu den wichtigsten chemischen Methoden, welche mit atomspektroskopischen Messtechniken kombiniert werden können. Unter den vielen vorhandenen Aufschlussmethoden entsprechen aber nur wenige den Erfordernissen der Spurenanalyse. Als Aufschlussmethode werden in Verbindung mit atomspektroskopischen Verfahren vielfach Nassaufschlüsse in PTFE - Druckgefässen eingesetzt. Die Vorteile sind der Einsatzt geringer Säuremengen und die Verwendung eines abgeschlossenen Systems. Nachteilig ist, dass PTFE in manchen Fällen Elemente aufnimmt, oder an die Aufschlusslösung abgibt. Ein weiterer Nachteil ist die geringe Aufschlusstemperatur von maximal 180 °C - bis 250 °C. Bei diesen Temperaturen verbleibt eine Reihe schwer oxidierbarer organischer Substanzen zersetzt in der Aufschlusslösung.

Eine Erhöhung der Leistungsfähigkeit dieses Verfahrens bietet das von KNAPP entwickelte Aufschlussgerät /1/. Quarzglas ist für die meisten spurenanalytischen Probleme das am besten geeignete Gefässmaterial. Mögliche Aufschlusstemperaturen von über 300 °C, keine Kontamination und keine Diffusionserscheinungen sind die wichtigsten Parameter, die für eine Verwendung dieses Materials sprechen.

In Abb.1. ist das Prinzip dieses neuen Hochdruck-aufschlussverfahrens /HPA/ dargestellt. Die Gefässe und Deckel sind aus Quarzglas. Damit die Quarzgefässe dem bis auf 100 bar ansteigeinden Innendruck standhalten, werden sie in einem beheizbaren Autoklaven einem entsprechenden Aussendruck ausgesetzt. Durch den hohen Aussendruck wird der Deckel auf das Gefäss gepresst. Zwischen Deckel und Gefäss wird eine dünne PTFE-Dichtung gelegt. Abb. 2. zeigt den schematischen Aufbau der Druckaufschlussvorrichtung. Dieser Hochdruckverascher ist mit einer Mikroprozessoreinheit verbunden. Die Mikroprozessoreinheit gestattet die Vorwahl jedes beliebigen Zeit-Temperaturverlaufes. Die maximale Veraschungstemperatur beträgt 320 °C. Auf einem Bildschirm werden der Soll- und Istwert des Temperaturverlaufes sowie der Druckverlauf im Autoklaven angezeigt. Mit dem Hochdruckverascher können auch Druck-Temperatur-Kurven von Veraschungsreaktionen aufgenommen werden. Die daraus resultierenden Daten werden für die Optimierung der Aufschlussparameter für unbekannte Substanzen herangezogen.

Die mit Hilfe des HPA-Gerätes aufgeschlossenen organischen Proben /Probenmenge je 1 g/ wurden auf 10 ml gefüllt und die Bestimmung der Spurenelementen wurde mittels einer leistungsfähigen atomspektroskopischen Methode, nähmlich mit der ICP-AES durchgeführt.

Superelementbestimmungen

Die ICP - AES ist für die Bestimmung von Spurenelementen eine sehr leistungsfähige analytische Methode, die besonders im Verlauf der letzten zehn Jahre immer grössere Bedeutung erlangt hat. Unsere Untersuchungen wurden mit einem sequentiellen ICP - AES Gerät von Perkin-Elmer, dem ICP-6000 durchgeführt.

Einige technische Daten des P-E ICP-6000:

Plasmaanregung: Leistung: 1,25 kW; 27,12 MHz

Zerstäuber: cross-flow
Probenverbrauch: cca. 1 ml/min /regelbar/

Spektrometer: Wellenlängebereich: 170-900 nm

Monochromator: Czerny-Turner f= 4o8 mm

UV-Gitter: 2880 Linien/mm
λ_{blase} =210 nm
RLD = 0,65 nm/mm

Gitter im sichtbaren Bereich: 1440 Linien/mm
λ_{blase} = 580 nm
RLD = 1,3 nm/mm

Steuerung und Datenverarbeitung:

Perkin-Elmer 7500 Professional Computer

Je 1 g organische Probe wurden mit Hilfe des HPA-Gerätes in einem 70 ml Quartzgefäss mit einer Säuremischung von 5 ml conc. HNO_3 und 1 ml conc. HCl aufgeschlossen. Bei der Untersuchung der auf 10 ml Endvolumen aufgefüllten Probe wurde ein Analysenprogram entwickelt, wobei die verwendeten Analyselinien in Tabelle 1. zusammengestellt sind.

Tabelle 1: Analyselinien, nm

As	197,197	Ni	231,604
Cd	228,802	Pb	220,353
Co	228,816	Sb	2o6,883
Cr	267,716	Se	2o3,985
Cu	324,754	Sn	189,989
Fe	238,2o4	V	292,4o2
Mn	257,61o	Zn	213,856

Es wurden bei jeden Proben drei Parallelbestimmungen durchgeführt. Die Messergebnisse werden in Tabelle 2.gezeigt.

Die Richtigkeit der kombinierten analytischen Methode wurde durch die Untersuchung folgender organischer Standardreferenzmaterialien kontrolliert:

IAEA	Code No. - A -		6/1975 Fish Solubles
NBS	SRM	1571	Orchard Leaves
NBS	SRM	1573	Tomato Leaves
NBS	SRM	1575	Pine Needles
NBS	SRM	1577	Bovine Liver

In Tabelle 3.sind gemessene und zertifizierte Werte gegenübergestellt, wobei zwischen den gemessenen und zertifizierten Daten gute Übereinstimmung zu erkennen ist /2/ .

Zusammenfassung

Es wurde eine schnelle kombinierte Methode für die Bestimmung der Spurenelemente in verschiedenen organischen Proben entwickelt, wobei ein neues leistungsfähiges Aufschlussverfahren /Hochdruck-Aufschluss-System/ und eine rasche atomspektroskopische Analysenmethode /sequentielle ICP-AES/ eingesetzt werden.

Die Reproduzierbarkeit der kombinierten Methode wurde durch 7 Parallelbestimmungen ermittelt /Tabelle 4./. Die Nachweisgrenze wurde durch die Streuung des Untergrundes /3σ/

berechnet /Tabelle 5./Auf Grund der Messergebnisse,der Reproduzierbarkeit und der erreichten Nachweisgrenzen ist ersichtlich, dass auch bei geringem Zeitaufwand ein vollständiger Aufschluss organischer Proben erreicht werden kann. Die ICP-AES als eine sequentielle Multielementmethode erlaubt eine entsprechend rasche Bestimmung der Spurenelemente in organischen Materialien.

Literatur:

/1/ G.Knapp, Fresenius Z.Anal. Chem. 317, 213 /1984/.
/2/ G.Knapp, J.Borszéki, B.Schreiber,European Winter Conference on Plasma Spectrochemistry, Jan.7-11, 1985. Leysin, Switzerland.

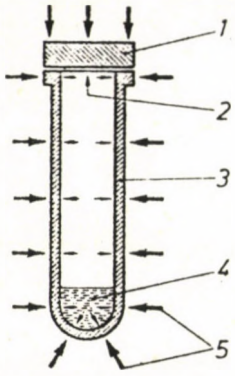
Tabelle 4: Reproduzierbarkeit der HPA-ICP-AES-Methode
Probenmaterial: Ethylcellulose

Nummer der Analyse	Elementgehalt, µg/g			
	Cu	Fe	Ni	Zn
1. Analysis	0,3	8,0	36,5	/2,7/
2. Analysis	0,4	7,5	38,9	1,3
3. Analysis	0,5	6,7	40,4	1,4
4. Analysis	0,3	7,3	36,0	1,6
5. Analysis	0,3	7,0	40,4	1,2
6. Analysis	0,4	7,0	40,8	1,2
7. Analysis	0,3	7,3	36,9	1,6
$\bar{X}$	0,36	7,40	38,56	1,38
RSD, %	22,2	8,5	5,3	13,0

Tabelle 5: Nachweisgrenzen bei der HPA-ICP kombinierten Methode, µg/g Probe

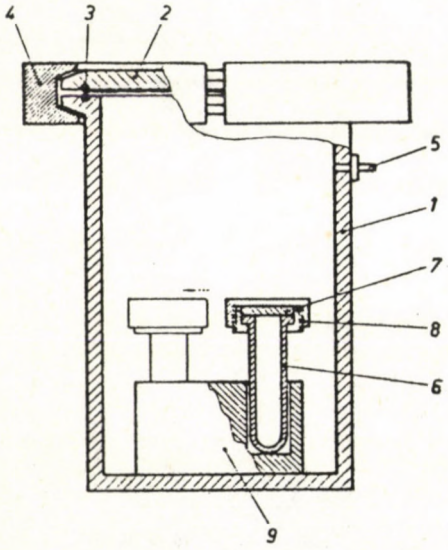
As	4,5	Ni	0,4
Cd	0,2	Pb	1,0
Co	0,3	Sn	1,0
Cu	0,3	V	0,3
Fe	0,3	Zn	0,3

Abbildung 1: Prinzip des Hochdruckaufschlussverfahrens in Quarzgefässen



1 Quarzdeckel
2 Innendruck
3 Quarzgefäss
4 Probelösung
5 Aussendruck

Abbildung 2: Schematische Darstellung der Druckaufschlussvorrichtung



1 Druckgefäss
2 Deckel des Druckgefässes
3 Dichtung
4 Versclussvorrichtung
5 Anschluss für Druckgas
6 Quarzgefäss
7 Quarzdeckel
8 Verschlussvorrichtung für Quarzgefäss
9 Heizblock

Tabelle 2: Konzentration der Spurenelemente in pharmazeutischen Proben, µg/g Probe

Probe	As	Cd	Co	Cu	Fe	Ni	Pb	Sn	V	Zn
Na-cyclamat	<4,5	<0,2	<0,3	<0,3	<0,3	<0,4	<1,0	<1,0	<0,3	<0,3
Sennaglycosid 1.	<4,5	<0,2	<0,3	27,2	119	2,1	<1,0	<1,0	<0,3	11,8
Sennaglycosid 2.	<4,5	<0,2	<0,3	29,6	540	4,7	<1,0	3,4	<0,3	15,7
Thioridozin-HCl	<4,5	<0,2	<0,3	0,8	23,4	2,9	<1,0	<1,0	<0,3	0,4
Carboxymethyl-cellulose	<4,5	<0,2	<0,3	0,8	2,1	2,1	<1,0	<1,0	<0,3	0,9
Ethylcellulose	<4,5	<0,2	<0,3	0,4	7,4	38,6	<1,0	<1,0	<0,3	1,4

Tabelle 3: Analyse der Standardproben unter Anwendung der HPA-ICP-AES Methode
M : Messdaten, C: Zertifizierte Werte, µg/g Probe

Element	Angabe	IAEA Code No.A-6/1975	NBS SRM 1571	NBS SRM 1573	NBS SRM 1575	NBS SRM 1577
As	M	17,0	7,7	<4,5	<4,5	<4,5
	C	14,5 ± 1,8	10 ± 2	0,27 ± 0,05	0,21 ± 0,04	0,055 ± 0,005
Cd	M	-	<0,2	<0,2	<0,2	<0,2
	C	-	0,11± 0,01	/3/	/<0,5/	0,27 ± 0,04
Co	M	<0,3	0,3	<0,3	<0,3	0,3
	C	0,22 ± 0,09	/0,2/	/0,6/	/0,1/	/0,18/
Cr	M	0,76	2,7	4,5	2,3	<0,1
	C	0,71 ± 0,29	2,6 ± 0,3	4,5 ± 0,5	2,6 ± 0,2	0,088± 0,012
Cu	M	4,20	10,4	10,0	2,9	185
	C	5,25 ± 1,20	12 ± 1	11 ± 1	3,0 ± 0,3	193 ± 10
Fe	M	547	307	689	209	271
	C	565 ± 93	300 ± 20	690 ± 25	200 ± 10	268 ± 8
Mn	M	5,0	82,1	230	695	10,4
	C	4,7 ± 1,o	91 ± 4	238 ± 7	675 ± 15	10,3 ± 1,0
Ni	M	-	1,1	-	2,9	-
	C	-	1,3 ± o,2	-	/3,5/	-
Pb	M	-	35,3	4,3	9,2	<1,0
	C	-	45 ± 3	6,3 ± 0,3	10,8 ± 0,5	0,34 ± 0,08
Se	M	3,5	<0,8	-	-	1,0
	C	3,1 ± 0,6	0,08 ± 0,01	-	-	1,1 ± 0,1
Sb	M	-	2,8	-	<0,3	<0,3
	C	-	2,9 ± 0,3	-	/0,2/	/0,005/
Zn	M	18,6	25,5	61,8	-	128
	C	18,9 ± 29	25 ± 3	62 ± 6	-	13o ± 13

SPECTROCHEMICAL RESEARCH OF NONCONDUCTING MATERIALS

Boško V. Pavlović

University of Beograd, Faculty of Technology and Metallurgy

Karnegijeva 4; 11000 Beograd, Yugoslavia

INTRODUCTION

Although the optical emission spectroscopy has today its widest application in the analysis of metals, that is conducting materials, its application is also very significant in the analysis of nonconducting materials such as: geological specimens. ores, soils, slags, refractory materials, ash of different origin, cement, sinter, glass, ceramic, graphite etc. Besides other spectroanalytical techniques, in the first place that of atomic absorption, OES techniques can be also sometimes very successfully used for analyses of aqueous solutions, oils, biological liquids, further, for the analyses of trace elements in the food, beverages, body tissues, plants and other miscellaneous materials (1-7).

In the recent years, the proportion of liquid materials analysed by OES, by using ICP and DCP excitation sources gas been increased significantly. With the exception of routine analyses in the manufacturing of cements, or in the line production analyses of ores or other nonconducting raw materials, where X-ray fluorescence spectroscopy is very competitive with OES techniques, OES techniques are more frequently applied for the nonserial analyses of various other types of nonconducting materials (8-11).

TREATMENT OF NONCONDUCTING MATERIALS AND PREPARATION OF THE SAMPLE FOR SPECTROCHEMICAL ANALYSIS

a) General problems

The consideration of sampling of nonconducting materials, as well as the preparation of these materials for purposes of spectral analysis is beyond the scope of my lecture. But, it is necessary to dedicate a few words also to this problem.

Once the crude nonconducting material to be analysed has been received at the laboratory it is necessary to prepare a representative homogeneous sample of that material. This is one of the very complex aspects of every analysis. In the corresponding references it is possible to find the directions for solving this problem, but, in principle, the preparation of representative sample from the crude material is very difficult and responsible task for every analyst. This is very complex step in the analytical procedure and the preparation of representative sample depends on the available quantity and physical state of crude material (12,13).

We must have in mind that the unified concept for preparing the nonconducting crude material in the appropriate representative sample for spectrochemical analysis does not exist. After preparing the representative sample of nonconducting material, the

sample has to be subjected to the next step of analytical procedure. This step involves the preparation of sample in an adeqate form for the excitation and spectrochemical analysis. It would be very advantageously if we would have on disposal the unique procedure which would be equally good for preparation of for example, geological samples, biological materials, petroleum products and other nonconducting materials. But we know that it is not the case. Due to very different matrix, interelement and other influences in these materials it is necessary to use different methods for preparing adequate sample for spectrochemical analysis and to choose appropriate spectroscopic technique for performing spectral analysis of given sample. But in spite of all these unsuitabilities it is desirable to know in principle how the spectrochemical analysis of specific nonconducting samples should be directed (14).

b) Treatment of solid, liquid and powdered nonconducting materials

Nonconducting materials, or those with a poor electric conductivity cannot normally be investigated directly by the electric excitation methods of spectral analysis. Materials of this type can only be analysed in this way after thorough pretreatment and using auxiliary electrodes. It is true that the electric conductivity of certain ores may be sufficient for direct excitation and thus they can be excited in an electric discharge against a counter electrode. In principle, this is not the case with the samples of other nonconducting materials. Such types of nonconducting materials must be either previously chemically decomposed, or ashed. Methods involving chemical decomposition are time consuming. There is also a possibility of contaminating the sample with the elements present in the substances used for decomposition. The aforementioned disadvantages can however be partially eliminated by the use of a "blank".

Ashing methods are relatively faster and more simpe, but they can be used only for organic materials. In the case of ashing the danger exists of losing the more volatile elements and compounds. This can be avoided by calcination of the sample, i.e. by the addition of substances which can retain traces and prevent their evaporation.

With the exception of biological materials and substances whose preparation for spectral analyses will not be considered here, other types of nonconducting materials to be analysed can be divided into three groups: solid, liquid or powders. These groups are not rigid since alterations of the form can be readily accomplished. Thus for example, powders of refractory, ceramic or slag materials may be converted into solid by fusion with lithium tetraborate, or e.g., titanium dioxide may be fused with potassium acid sulphate.

In the practical laboratory work spectrochemists less frequently meet the requirment to convert powdered or liquid samples in the solid form and to analyse the solid sample spectroscopically. More frequently spectrochemists need to analyse the samples either in powdered or liquid form. The nonconductive powdered samples can be made conductive after mixing with conducting gra-

phite or copper powder.To improve the feasibility and reliability of powder analysis, a phenolformaldehyde plastic binding electrode was successfully applied to the determination of main components and trace elements in minerals, biological samples and other materials (15).

In spite of the fact that spectral analysis of liquid samples, obtained either by dissolving solid or powdered specimens in the appropriate solvent, offers many advantages in comparison with the spectral analysis of solid and powdered samples, it is certain that the dissolution procedure may often be a time-consuming step in the preparation of the liquid sample. Also, very frequently, there are difficulties in choosing a solvent which is capable to keep all components in the solution.

Depending on the kinds, the nonconducting materials may be converted into liquid solution with acid, alkali or organic solvent. The solubility of all nonconductive materials in inorganic solvents is often incomplete. Then a fusion of the residue, its dissolving and readdition to the original solution is required. The major advantages of the use of solutions are the guaranty of homogeneity, the diminishing or elimination of matrix effects, the cancellation of mineralogical effects in the case of analyses of geological, ore, soil and crystal materials, and the ease of providing synthetic standards.

SELECTION OF A SPECTROSCOPIC TECHNIQUE

Depending on the physical styte of sample for analysis, the selection of the appropriate spectroscopic technique, as well as the excitation source for performing the corresponding analysis can be accomplished. To select the appropriate excitation source and to develop a proper procedure for spectral analysis of certain nonconducting sample is not a simple task. It is not possible to recommend the unified concept for performing spectrochemical analyses of very different forms and kinds of nonconducting materials. It is necessary to have great spectroanalytical experience and practice. In spite of the fact that the spectrochemical literature is full of directions for performing the spectral analysis of certain materials, the application of known principles to a specific problem is often very difficult since neither the described equipment nor the specific problem are quite identical. To all of us it is familiar that every spectroanalytical method represents a series of mutual concessions depending on the type of sample and available equipment, involving concentrational ranges, detection levels, accuracy and available time for analysis. Here it is necessary to take into account that due to a variety of materials to be analysed, every spectrochemist meets different problems with matrix, interelement and other effects (1-4). Therefore when the concepts of appropriate excitation source and spectroscopic technique are discussed for spectrochemical analysis to be performed of any type of nonconducting material, it is necessary to bear in mind that for each generalization there are always exceptions.

In the scheme given in Fig. 1, the sample handling and preparation of nonconducting materials for optical emission spectroscopic analyses are presented.

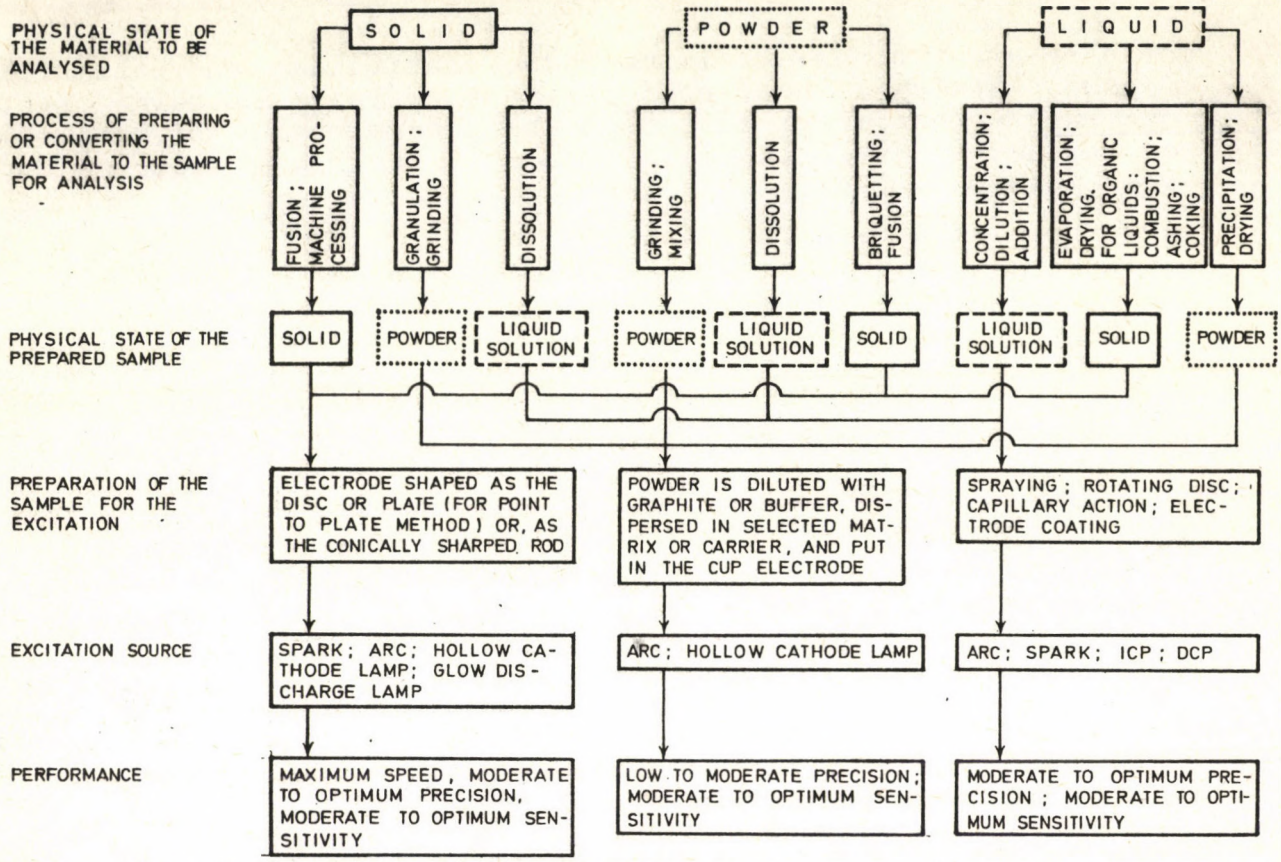


Fig. 1. Sample handling and preparation of nonconducting materials for optical emission analysis

PROBLEM OF REFERENCE SAMPLES FOR SPECTRAL ANALYSES

The lack of corresponding, internationally verified spectroscopic standards or reference samples for a great number of nonconducting materials causes exceptional problems in spectral analyses of these materials and intercomparisons of results. Reference or standard samples for spectral analyses of solid and powdered nonconducting materials may be prepared in principle in two different manners: either by choosing the same or equivalent type of specimens that were previously accurately and carefully analysed and which have very close characteristics as test samples; or by preparing synthetic reference samples composed of adequate, thoroughly homogenized basic materials.

In general, it is easier to prepare the spectrochemical standards or reference samples from the group of samples of identical type and of an appropriate concentration range than to prepare synthetic ones which will have a character and composition very close to those of the test sample and show the same interelement and other effects (16).

One of the important advantages of the spectral analysis of solutions is, that in principle any desired reference sample with the adequate range of concentration can be prepared from the stock solutions of the elements. Though the solubility of certain compounds represents some limits to this procedure, in general all the elements to be spectrochemically analysed may be simultaneously kept in solution in the adequate range of concetration by using appropriate anions, pH-values etc. (17).

EXAMPLES FOR SPECTROCHEMICAL RESEARCH OF DIFFERENT NONCONDUCTING MATERIALS

To analyse different kinds of nonconducting materials Yugoslav spectroscopists used various spectroscopic techniques. Thus, U-shaped arc (19) was successfully applied for spectrochemical determination of some toxic metals, such as As, Cd, Pb, Cu and Zn in wheat and its products (white flour, bran and bread).

For spectrochemical analyses of different oxides (ThO_2, high purity quartz and ZrO_2-base catalysts) dc arc and dc arc under the influence of rotating magnetic field have been applied. In different specimens of ThO_2 it was necessary to determine In, La, Nb, Ag, Mn, Cu and Sr in concentrations from 1 μg/g to 500 μg/g. In high purita quartz, after the specimens were dissolved in HF, in residue were determined Al, Cu, Mg and Mn in concentrations between 10 pg/g and 6 pg/g, while concentrations of Ni, Co and Tl were up to 1 μg/g of SiO_2. In ZrO_2-catalyst was necessary to determine the content of Pd. As an excitation source 10 A dc arc under the influence of rotating magnetic field was applied. And finally, a group of Yugoslav spectroscopists has devised the procedure for direct determination of metals in petroleum by using a double plasma arc source in a graphite tube (20).

CONCLUSIONS

Summarizing the problems connected with the spectral analysis of nonconducting materials one arrives to the following conclusions. Optical emission spectroscopy may be successfully applied for multielemental analysis of different nonconducting materials irrespective of their physical state, although the unified concept for preparing the nonconductive material in the appropriate representative sample for spectrochemical analysis does not exist. Also, it is not possible to recommend as the most suitable only one excitation source, or technique for performing the optical emission spectroscopic analysis of nonconductive samples.

REFERENCES

(1) Annual Reports on Analytical Atomic Spectroscopy, Vol. 10 (reviewing 1980); (2) ibid. Vol.11 (reviewing 1981); (3) ibid. Vol. 12 (reviewing 1982); (4) ibid. Vol. 13 (reviewing 1983); (5) Mills J.C., Belcher C.B. Progr.Anal.At.Spectrosc. 4; 49-80 (1981); (6) Delvis H.T. ibid. 1-48; (7) Caroli S. ibid. 6;253-292 (1983); (8) Jenkins R. Anal.Chem. 56; 1099A(1984); (9) Tertian R., Claisse F. Principles of Quantitative X-ray Fluorescence Analysis, Wiley, New York, 1982; (10) Crow R.F., Connoly J.D. Progr.Anal.At.Spectrosc. 1; 347-352 (1978); (11) Mermet J.M., Hubert J. ibid 5; 1-33 (1982); (12) Török T., Mika J., Gegus E. Emission Spectrochemical Analysis, Akademiai Kiado, Budapest, 1978; (13) Elemental Analysis of Biological Materials: Current Problems and Techniques with Special Reference to Trace Elements. International Atomic Energy Agency, Techn.Report, Series No.197 (1980); (14) Magyar B. Guide-lines to Planning Atomic Spectrometric Analysis, Elsevier Science Publ.Comp., New York, 1982; (15) Papp L. Appl.Spectrosc. 32; 247-249 (1978); (16) Tripković M., Todorvić M., Mioč U. Trends Anal.Chem. 2; 18-22 (1983); (17) Alvarez R., Rasberry S.D., Uriano G.A. Anal.Chem. 54;1226A -1244A (1982); (19)Dobrosavljević J., Antonijević V., Marinković M., Glas.Hem.Druš.(Beograd) 47; 389-394 (1982);(20) Tripković M. Fresenius Z.Anal.Chem. 306; 362-364 (1981).

OPTIMUM EXCITATION OF TRACE ELEMENTS IN NATURAL MATERIALS

L. Vecsernyés

Research Institute for telecommunication, Budapest, Hungary

Trace analytical AES (atomic emission spectroscopy) technics of natural or artifical materials have been developed in our laboratory in last thirty years. On the basis of our experiences we can say that one of the most effective way to develope methods with a required detection power and reliability is to find the most suitable radiation source and to optimize its working conditions.

The main steps and factors taking into account in our developing system are introduce, as follows:

1. Physical and spectrochemical characteristics of the sample:
   - The amount of the sample to be available for one analysis
   - State of mater (powderization or solubilization technique)
   - Melting point
   - Boiling point
   - Volatilization characteristics
   - Thermochemical characteristics
   - Excitation characteristics
   - Ionization potential

   } of matrix
2. Spectrochemical characteristics of trace elements have to determine:
   -Volatilization characteristics
   -Thermochemical characteristics
   -Ionization potential
   -Excitation characteristics of analysis line(s)
3. Limits of detection which must to be realized and precisions belonging to these levels:
   - For each of elements that to determine
4. The order of magnitude of "Spectroanalytical Excitation Efficiency" SEE_{λ} for the analysis line of each trace element at given sample parameters, optics and detection system:

$$SEE_{\lambda(A)} = \frac{n^{*}_{\lambda(A)}}{N_A}$$

where: $n^{*}_{\lambda(A)}$ is the number of photons according to the wavelength λ of the selected analysis line generated in the radiation source by means of atoms or ions of element A, during an exposure time t;

N_A is the number of atoms of element A fed into the excitation source.

Practically, value of $SEE_{\lambda(A)}$ is much smaler than one for a common radiation source. Generally, a part of N_A is evaporated and transported through the excitation zone furthermore, only a

part of these atoms are excited [N_A^x] and only a part of the excited atoms or ions emit at the wavelength λ of the selected line. The selfabsorbtion phenomenon is a further decreasing factor. On the other hand, multiexcitation of the same atoms - during the exposure time $\underline{t}$ - may be an increasing factor by increasing of value of $n^*_{\lambda(A)}$. This phenomenon has real probability in certain radiation sources like "holow-cathode discharge tube"-s, high-frequency excitation of gases, etc.

The value and the fluctuation of $SEE_{\lambda(A)}$ are characteristic of an excitation source.

5. First decision! Which type of radiation source seems to be applicable for this analytical task, on the basis of preceding four points?

   - Standardisation
   - Sample introduction
   - Volatilization
   - Excitation
   - Regulation

   } possibilities?

   - $SEE_{\lambda(A)}$ for each trace elements

6. Experimental determination of Excitation Characteristic Curves (ECC):

   - Selection and study of decesive parameters influencing

     plasma temperature
     plasma geometry
     volatilization processes
     transport processes

   - Serial exposure of spectra in function of selected parameters

7. Selection of optimum or quasi-optimum excitation parameters to be valid for analysis lines of each trace elements:

   - See in reference No.1.!

8. Selection of common optimum or quasi-optimum excitation parameters to be valid for analysis lines of trace elements that to be determined:

   - See in reference Lo.1.!

9. Second decision! Determination of analytical parameters taking into account the problems of standardisation and the principle of minimum treatment.

10. Supervision of new AES method developed by means of serial analysis.

<u>Some comments to the preceding points!</u>

What it means ECC and optimum excitation?

1. Twenty years ago, we examined how change the line intensities and their reproducibilities produced by different samples in different radiation sources. It have been thought, one can say "optimum excitation" only if the best $SEE_{\lambda(A)}$ with the

best precision are realisable in the case of a given sample and radiation source.

2. If we take in to consideration only the effect of changeing of plasma temperature on the intensity of an analysis line selected, an assimetric bell-shaped "Thermal Excitation Probability Curve" (TEPC) can be computed from Saha and Boltzmann equations. A local thermal equilibrium (LTE) is supoosed in this case.

3. The temperature of plasma should be increased by increasing of power fed into the radiation source. This power heats not only the plasma but the sample and the carrier electrodes, too. This process bring on a strongly varying spontaneous axial (and radial) particle transport disturbing the local thermal equilibrium (LTE) of plasma (first of all in case of solid samples put in to different type of carrier electrods).

4. Since curves of $\Delta Y_{L,U}$ and $\sigma_{\Delta Y_{L,U}}$ have great importance in the determination of optimum excitation conditions, we proposed to apply these characteristics in spectroanalysis widely and use the name: EXCITATION CHARACTERISTIC CURVES (ECC).

5. These ECC show multimaxima character (1) but the covering curves are similar to a TEPC calculated from Saha and Boltzmann equations. On the basis of our experiences and study it was an obvious idea that the number and intensities of ECC maxima or minima might have been casued by changing in volatilization, thermochemical and transport processes existing in different radiation sources (2).
This idea have been proved. E.g. In the base of a very well controlled radiation sources like plasma excitation of nebulised solution is, ECC of selected analysis lines do not have multimaxima character enymore, practically. Essentially, each curve reflects the effect of alteration of the power (in time and space) pumped into the radiation source by alteration of plasma temperature determined the actual $SEE_{\lambda(A)}$.
It may be stated that each point of $ECC_{\lambda(A)}$ is proportional to the transition probabilities of the line that to belong to the actual plasma temperatures and electron pressures.

Summary

A practical way is given to optimize excitation characteristics of atomic emission spectroscopical radiation sources with especial regard to trace analysis.
This way is: "TUNING" the radiation source by means of "clean" influencing factors so realize as good spectroanalytical excitation efficience ($SEE_{\lambda(A)}$) as it is possible by using of different spectrochemical additives.
By means of exctiation characteristic curves (ECC), the most convenient parameters of radiation source are selectable to

attain not only the best $SEE_{\lambda(A)}$ (that is the best limit of detection) but the best precision, too. By means of this method a real optimum (or quasioptimum) excitation is realisable.

References:

1. L. Vecsernyés, Acta Chimica Acad. Sci. Hungaricae 78, 1-15 (1973)
2. L. Vecsernyés, Proc. of Physics of Ionized Gases 1976. Vol. Contribution 375-378. J.Stefan Institute, Ljubljana, 1976

OPTIMIERUNG EINER SPEKTROGRAPHISCHEN ANALYSENMETHODE FÜR PULVERFÖRMIGE BIOLOGISCHE PROBEN

K. Flórián[1], K. Zimmer[2], S. Caroli[3]

[1]Lehrstuhl für Chemie der Technischen Hochschule, Švermova 9
CS-043 85 KOŠICE, Tschechoslowakei

[2]Institut für anorganische und analytische Chemie der
L.Eötvös Universität, Pf. 123 H-1443 BUDAPEST, Ungarn

[3]Abteilung für physikalische Chemie, Laboratorium für Toxikologie, Istituto Superiore di Sanità, Via Regina Elena 299
I-00161 ROMA, Italien

EINLEITUNG

Die Emissionsspektrographie mit Gleichstrombogen-Anregung stellt für biologische Materialen eine typische Mehrkomponenten - Analysenmethode dar, deren Vorteile durch ein gutes Nachweisvermögen und kleine erforderliche Probenmenge gegeben sind. Die die Leistungsfähigkeit der Analysenmethode definierenden Parameter /ausser der Nachweisbarkeit auch die Präzision und Richtigkeit der Methode/ können durch geeignete Wahl der experimentellen Bedingungen optimiert werden.

In diesem Fall spielen eine sehr wichtige Rolle die benützten spektrochemischen Zugaben, welche die Temperatur des Bogens, den Verlauf der Verdampfungs- und Anregungs-Prozesse und die Plasmatemperatur optimieren sollen /1/. Nach ihrer Wirkungsart teilt man /2/ diese Zugaben in einige Gruppen, wie z.B.: Verdampfungshilfen, Transporthilfen, Anregungshilfen, usw.

Die vorliegende Arbeit ist der Verfolgung der Wirkung von einigen typischen spektrochemischen Zugaben gewidmet, wobei Zugaben mit gleichem Kation und sich änderndem Anion /LiF, LiCl, Li_2CO_3, $Li_2B_4O_7$/ und Zugaben mit gleichem Anion und sich änderndem Kation /LiCl, NaCl, KCl, $BaCl_2$, CuCl/ verfolgt wurden. Zum Vergleich wurden auch nur mit Graphitpulver /d.h. ohne weiteren Zugaben/ gemischte Proben verfolgt.

Bei der Bewertung des Einflusses der einzelnen studierten spektrochemischen Zugaben wurden in erster Reihe die Verdampfungsprozesse und im weiteren die wichtigsten Wertungsparameter der spektrochemischen Analysenmethode /Präzision, Richtigkeit und Nachweisvermögen/ beurteilt.

EXPERIMENTELLER TEIL

Die Experimente wurden unter Anwendung einer anhand von Literaturangaben /3/ aus spektralreinen Chemikalien vorbereiteten Modellmatrix /50 % K, 41 % Na, je 3 % Mg, Ca und Fe/ durchgeführt. Diese Modellmatrix wurde im Verhältnis 1 : 1 : 1 : 1 mit der jeweiligen spektrochemischen Zugabe, mit einem

die zu verfolgenden Spurenelemente enthaltendem Graphitpulver und mit einem die gewahlten Bezugselemente /0.4 % PdO und 0.1 % Ga_2O_3/ enthaltendem Graphitpulver zusammengemischt. Als zu verfolgende Spurenelemente wurden anhand von Kriterien, die in der Arbeit /4/ ausführlich diskutiert wurden, die folgende lebenswichtige, bzw. essentielle Elemente gewählt: Ag,Al,B,Co,Cr,Cu,Mn,Mo,Ni,Pb,Sn und Ti.

Die Spektren wurden an einem PGS-2 Plangitterspektrographen /m=2,D=0.363 $nm.mm^{-1}$/, unter Anwendung der Gleichstrombogenanregung /I= 9 A, Elektrodenabstand 4 mm, wassergekühlte Elektrodenhalter, Trägerelektrode als Anode geschaltet/ exponiert. In die SW-380 Trägerelektroden /Elektrokarbon - Topolcány/ wurden Probenmengen von 20 mg eingewogen und SW-202 Gegenelektroden verwendet. Zur Registration der Spektren dienten ORWO WU-3 Photoemulsionen / 9x30 cm/, die im Entwickler R-09 entwickelt wurden. Die Schwärzungen der Spektrallinien wurden an einem 4 D - Densitometer /5/ gemessen und es wurde die 1-Schwärzungstransformation /6/ und konsequent die Untergrundkorrektur angewendet.

Zur Verfolgung der Verdampfungsprozesse diente eine Probe mit einem Gehalt von 0.1 % von allen Spurenelementen, die Spektren wurden mit der Fahrspektrogramm-Technik mit einer Expositionszeit 9x10 s exponiert. Aus den gemessenen Schwärzungswerten der einzelnen Spektrallinien wurden die Intensitätswerte, die Werte der integrierten Intensitäten /7/ und die sog. normierten Intensitätswerte /8/ berechnet. Ausser diesen wurden für die Bewertung der Verdampfung auch die Werte der mittleren Verdampfungskonstanten α_i /9/, die auf das Ca-Matrixelement bezogen wurden, verwendet.

Die Präzision der Methode wurde für alle verwendeten spektrochemischen Zugaben anhand von 10 wiederholten Expositionen derselben Probe erhaltenen relativen Standardabweichungen /10/ charakterisiert, die wurden als Werte

$$RSD\ /\%/ = s_{\Delta Y} \cdot 230 \qquad /1/$$

berechnet.

Die analytische Eichung wurde mit Hilfe von Eichproben durchgeführt, die eine sich ändernde Konzentration /vom 1.0 % bis 0.0001 % mit einem Dividierungsfaktor 3.16 /10/ / von Spurenelementen enthielten. Für einen gegenseitigen Vergleich der Eichgeraden, die unter Anwendung von unterschiedlichen spektrochemischen Zugaben konstruiert wurden /es wurden keine Eichgeraden konstruiert für Zugaben, die bei vorherigen Bewertungen ungeeignete Ergebnisse lieferten/, dienten die Werte des zu erwartenden Analysenfehlers der zu bestimmenden Konzentration. Diese Werte können unter der Voraussetzung, dass die zu bestimmende Konzentration dem Schwerpunkt der Eichgeraden entspricht, als /2/:

$$s_r/c/ = \frac{230 \cdot s_{\Delta Y}}{B} \cdot \sqrt{\frac{1}{N.K} + \frac{1}{M}} \qquad /2/$$

berechnet werden /N ist die Zahl der verwendeten Eichproben, K ist die Zahl der wiederholten Messungen bei jeder Probe, M ist die vorausgesetzte Zahl der Messungen bei der Analyse, B ist die Richtungstangente der Eichgeraden und $s_{\Delta Y}$ ist die Restvarianz/.

Die Werte der Nachweisgrenzen wurden anhand des Vorschlags /11/ berechnet.

Da keine entsprechenden Standard-Referenzmaterialien zur Verfügung standen, wurde die Richtigkeit der Methode anhand von sog.synthetischen Kontrollproben bewertet; die Ergebnisse wurden als Werte:

$$\Delta c = \frac{c_{bestimmt} - c_{gegeben}}{c_{gegeben}} \cdot 100 \ /\%/ \qquad /3/$$

berechnet.

DISKUSSION DER ERGEBNISSE

Die Wirkung der einzelnen Zugaben auf den Verlauf der Verdampfung der einzelnen Spurenelemente kann wie folgt zusammengefasst werden. Das Mass der Verdampfung sinkt in der Reihe, die durch das Ionisationspotential des Kations der Zugabe gegeben ist bei den Zugaben LiCl-NaCl-CuCl; die Wirkung der $BaCl_2$ Zugabe entspricht dieser Voraussetzung nicht. In guter Übereinstimmung mit den Literaturangaben ist die Tatsache, dass diese Halogenid-Zugaben meistens ohne Zersetzung verdampfen und ihre halogenierende Wirkung ist infolgedessen schwach. Ausdrücklich trifft diese Behauptung bei der Anwendung von LiCl zu, weil im Vergleich mit dem Fall ohne Zugabe /nur Graphitpulver/ keine wesentlichen Unterschiede beobachtbar sind. Deshalb wurde im weiteren von der Anwendung dieser Zugabe abgesehen. Die Gleichmässigste Verdampfung hat die Verwendung von LiF zur Folge, hier sind auch die Schwankungen der mittleren Verdampfungskonstanten α_i die kleinsten. Eine annähernd ähnliche Wirkung haben auch die Zugaben Li_2CO_3 und CuCl. Im Falle des Li_2CO_3 handelt sich auch um einem "Blase-Effekt" infolge der Zersetzung der Zugabe, wobei über 1200 K nur Li stabil ist. Andererseits kommt es bei der $Li_2B_4O_7$ - Zugabe auch zur Zersetzung, aber in diesem Fall handelt es sich bei mehr als 1200 K um eine Schmelz-bildende Kombination /ungefähr 14 % Li_2O und 83 % B_2O_3/. Die Zugaben LiF und Li_2CO_3 wirken auch in der Richtung der Unterdrückung von Karbidbildung, was aus der unterschiedlichen Verdampfung von B ersichtlich ist.

Die Präzision der Analysen-methode unter Anwendung verschiedener Zugaben charakterisieren die RSD-Werte. Anhand dieser Werten kann festgestellt werden, dass die Verwendung der spektrochemischen Zugaben meistens zur Verbesserung der Präzision führte. In erster Reihe wiesen CuCl und teilweise auch NaCl, $Li_2B_4O_7$ und KCl eine Optimierungswirkung auf. Zu praktisch ungeeigneten Werten von RSD führte die Verwendung von $BaCl_2$-Zugabe, deshalb wurde im weiteren von der Ver-

wendung dieser abgesehen.

Bei der Bewertung von $s_r/c/$ - Werten, die die Qualität der analytischen Eichung und der nachfolgenden analytischen Bestimmung charakterisieren, ist die Wirkung der einzelnen Zugaben noch ausdrücklicher. Dir Vorteile der Verwendung von CuCl - und teilweise auch $Li_2B_4O_7$-Zugaben sind in diesem Fall schon ganz prägnant.

Die Werte der Nachweisgrenzen c_L bestätigten den oft vorkommenen widersprüchlichen Zusammenhang zwischen der Präzision und Nachweisbarkeit der analytischen Verfahren. Hier weist die optimale Wirkung die Li_2CO_3-Zugabe auf, was mit grosser Wahrscheinlichkeit auf die Erniedrigung des Untergrundes zurückzuführen ist. Andererseits wurden die ungünstigsten c_L-Werte unter Anwendung der $Li_2B_4O_7$-Zugabe erzielt, die aber zu günstigen Werten von $s_r/c/$ führte.

Ein wichtiges Bewertungskriterium ist auch die durch die Δc-Werte charakterisierte Richtigkeit der Analysenmethode. Mit einigen Ausnahmen wurden die besten Ergebnisse unter Anwendung der CuCl - und $Li_2B_4O_7$-Zugaben erreicht. Diese Tatsache hängt wahrscheinlich mit der speziellen Wirkung dieser Zugaben, d.h. mit der schmelzbildenden Wirkung von $Li_2B_4O_7$ und starken halogenierenden Wirkung von CuCl zusammen.

SCHLUSSFOLGERUNGEN

Es muss festgestellt werden, dass die Auswahl einer solchen Zugabe, die vom Gesichtspunkt aller in Betracht genommenen Wertungsgrössen die optimale Wirkung hat, bei einer Mehrkomponenten - Analysenmethode immer eine schwere Aufgabe ist. Das Ergebnis so einer Bewertung ist meist immer auf einen Kompromiss zurückzuführen, der von der Priorität der Nachweisbarkeit oder Präzision ausgeht.

Anhand der Vielzahl der durchgeführten Experimente kann man schliessen, dass für die Optimierung eines spektrographischen Analysenverfahrens für solche Materialien, die eine gewisse Matrixkonzentration von Alkalien aufweisen, Zugaben mit starker Wirkung verwendet werden sollen. Diese sollen möglicherweise bedeutend in der Richtung der komplexen Vereinigung der Proben wirken, was bei Verwendung halogenierenden oder schmelzbildenden Zugaben der Fall ist.

LITERATUR

/1/ P.W.J.M.Boumans: Theory of Spectrochemical Excitation, Hilger and Watts, London /1966/

/2/ K.Laqua: Emissionsspektroskopie in: Ullmans Enzyklopädie der techn.Chemie,4.Auflage,Band 5, S.441 Verlag Chemie GmbH Weinheim /1980/

/3/ I.H.Tipton: Health Physics 9, 89 /1963/

/4/ K.Flórián,K.Zimmer,S.Caroli: Vorträge des I.Italienisch-Ungarischen Symposium über die Spektrochemie, Roma /1983/, Annali d. ISS,19, 509 /1983/

/5/ L.Kozma: Acta Chim.Acad.Sci.Hung. 102, 267 /1979/

/6/ T.Török,K.Zimmer: Quantitative Evaluation of Spectrograms by Means of l-Transformation, Akadémiai kiadó,Budapest /1972/
/7/ E.Plško: Chem.Zvesti 18, 830 /1964/
/8/ E.Plško: Pure Appl.Chem. 48,69 /1976/
/9/ T.Kántor,E.Pungor: Spectrochim.Acta 29 B, 139 /1974/
/10/ F.J.M.J.Maessen,J.W.Elgersma,P.W.J.M.Boumans: Spectrochim.Acta 31 B, 179 /1976/
/11/ M.Matherny: Z.anal.Chem. 271, 101 /1974/

TABELLE 1: Die den zu erwartenden Analysenfehler definierenden $s_r/c/$ - Werte

Element	Zugabe					
	LiF	Li_2CO_3	$Li_2B_4O_7$	NaCl	CuCl	nur C
Ag	11.7	13.2	11.5	19.8	14.0	22.6
Al	9.8	26.0	18.8	x	12.3	14.5
B	19.8	31.2	-	x	13.7	14.9
Co	7.7	14.9	4.7	13.0	6.8	10.9
Cr	14.2	10.4	3.7	9.2	9.5	16.9
Cu	16.3	23.7	11.8	30.3	-	23.8
Mn	15.6	11.9	9.9	22.0	6.9	x
Mo	14.9	19.8	22.4	20.9	11.7	19.7
Ni	14.6	16.6	4.8	15.7	12.9	11.7
Pb	18.9	31.7	25.9	24.3	14.5	15.4
Sn	12.5	19.5	13.7	13.6	8.0	8.8
Ti	14.6	18.3	21.8	17.1	15.0	15.3

TABELLE 2: Die Werte der Nachweisgrenzen c_L [ppm]

Element	Zugabe					
	LiF	Li_2CO_3	$Li_2B_4O_7$	NaCl	CuCl	nur C
Ag	0.2	0.6	2	0.3	0.2	0.06
Al	0.3	0.05	2	x	0.5	1
B	33	6	-	x	80	16
Co	8	0.8	35	7	7	8
Cr	3	1	11	10	5	7
Cu	0.6	0.2	0.4	0.3	-	0.1
Mn	0.2	0.1	1	0.5	0.6	x
Mo	1	0.1	12	2	4	3
Ni	6	0.5	36	7	5	2
Pb	8	3	9	10	11	3
Sn	5	3	17	5	10	4
Ti	2	3	13	2	9	1

SOME EXPERIENCES WITH THE D.C. ARC EXCITATION OF GEOLOGICAL MATERIALS

A. Gogala
TZ Litostroj, 61000 Ljubljana, Djakovičeva 36, Yugoslavia
V. Hudnik, B. Budič
Kemijski inštitut "Boris Kidrič", 61000 Ljubljana, Hajdrihova 19, Yugoslavia

Introduction

Trace elements in natural materials are important indicators of geological and geochemical properties of the earth crust and laws in the nature. Due to its high information capability and simplicity is optical emission spectroscopy one of the most useful methods for their determination regardless disadvantages as instability of the arc, matrix and inter-element effects, selective vaporisation, spatial inhomogeneity chemical complexity in the plasma column. Recently it lost on its popularity and was exchanged by other techniques especially ICP, which in last few years became routine for the determination of major, minor and trace elements in geological materials. D.C. arc analysis kept its value more for selected elements and purposes (1).

Almost all elements occuring in the nature are geological and geochemical tracers. Spectrochemically are detectable metals and some of the non-metals. Trace elements are abundant in the earth crust in microgram and nanogram concentrations, the Clark values for rocks and minerals being (2)

- less than 1 $\mu g\ g^{-1}$ Ag, Bi, Cd, Hg, In, Sb, Se, Te, Tl, precious metals
- 1-10 $\mu g\ g^{-1}$ As, Be, Ge, Mo, Ta, U, W, rare earths,
- 10-100 ug g^{-1} Co, Cu, Cs, Ga, Li, Nb, Pb, Sn, Zn,
- more than 100 $\mu g\ g^{-1}$ Ba, Cr, Ni, Rb, Sr, V, Zr.

In conditions of D.C. arc excitation elements exhibit different behaviour especially regarding their volatilities and reactivity with carbon and were divided by Schroll (3) into

- very light volatile(As, Bi, Cd, Cs, K, Li, Na, Rb, Sb, Se, Te, Tl, Zn
- light volatile: Ag, Cu, Ga, Ge, In, Mn, Pb, Sn
- difficult volatile forming no carbides:Ba, Be, Ca, Co, Cr, Mg, Ni, Sr, Ti, V
- carbide forming: Mo, Nb, Ta, Th, U, W, Zr
- precious metals
- rare earths

The measure of the concentration of a particular element in a sample is the intensity of its spectral line. Therefore in a spectrochemical procedure the experimental conditions should enable the intensity - concentration relationship with minimum systematic error. To the great extent is the intensity of spectral line influenced by the matrix effect due to chemical and mineralogical composition of the sample. Matrix effects could be lessened in several ways. The best solution is the isomorfation introduced by Danielsson (3) and critically

evaluated by Maessen et al. (5,6) . Isomorfation by borate fusion completely destroys the structure and facilitates the calibration procedure by the use of synthetic standards. The disadvantage is the loss of detection limit due to high dilution with the buffer. Trace elements separation assures the same matrix regardless the composition of the sample and as a pre-concentration technique lowers the detection limit. The preparation of the calibration curves with standards having similar chemical composition and structure as analysed samples needs time consuming and expensive prior knowledge of the sample. The most popular way of matrix effect compensation is the use of buffers. The choice of spectrochemical buffer is usually empirical and suited to specific conditions and needs. Although many systematic studies considering the use of various buffers were made there are still not universal rules for their application. First of all there is no unique opinion whether the thermochemical reactions inside the electrode or the conditions in the plasma have the primary effect on the spectral line intensity. Some attempts were made on the use of the plasma parameters-temperature and electron pressure as the corrective factors for the evaluation procedures (7,8). As this procedures are time consuming and in complex matrices not accurate they didn't find wider application.

The spectrochemical analyses for geological purposes were mainly performed with photographic plate detection. With the development of spectroscopic equipment direct readers were introduced (9,10) . Unfortunately because of the high noise of the photomultiplier and high level of background the detection limits with direct readers are three to ten times higher than in photographic procedures.

In a laboratory dealing with trace elements determination in wide variety of geological materials (minerals, rocks, soils, river sediments, ashes of biological materials) with broad concentration ranges of main components the spectrochemical procedures usually compromise between precision, accuracy, detection limit, speed, cost and simplicity.

Experimental

The spectrograph was Jarrell - Ash Mark IV 3, 4 m Ebert with a 600 groove/mm grating, dispersion 0.5 nm/mm in the first order. Anode excitation was in 10 A D.C. arc in Ar-O_2 4:1 atmosphere. Anode was graphite RW 003 with the crater Ø4 mm, deepness 4 mm, cathode Ringsdorf RW 001 rod. Kodak SA-1 plates were calibrated with 2-step Churchill method. Standards were prepared from Spec-pure chemicals thoroughly mixed in Spex--Mix and roasted for 2h at 900°C. Spex-Mix was added for trace elements with initial concentration 1000 $\mu g\ g^{-1}$ and dilution in 1:$\sqrt{10}$ ratio to 1 $\mu g\ g^{-1}$.

Results and discussion

For the trace elements determination in various geological materials the following spectrochemical approaches were applied - for rock, soils, river sediments, ashes of biological

materials the use of buffers in 1:2 ratio
- for sulfide minerals (galenite, sphalerite, pyrite) isomorfation to oxydes
- for waters with hardness less than twenty German degrees dry residue
- for highly mineralised waters separation with tetramethylenediethyldithiocarbamate and coprecipitation on $Al(OH)_3$-graphite 1:2
- for precious metals separation and pre-concentration by fire assay and conversion of the bead into chlorides
- for rare earths coprecipitation on calcium fluoride.

The widest concentration range of matrix element composition with the consequent matrix effects could be expected in the analysis of rocks, soils, river sediments, ashes (SiO_2 20-80%, Al_2O_3 10-20 %, Fe_2O_3 3-7 %, CaO 0,5-50 %, MgO 0.5-10%, Na_2O 0.1-5 %, K_2O 0.1-15 %, TiO_2 0.1-0.5 %, MnO 0.1-1 %). In our investigations we tried to find a simple approach for the routine procedure with the possibility of the evaluation without prior knowledge of the composition of the sample. Three matrices were examined, the first one represented a "medium igneous rock" (SiO_2 60 %, Al_2O_3 10%, Fe_2O_3 5 %, CaO 15 %, MgO 4 %, K_2O 5 %, Na_2O 1 %), the second one simulated shale (SiO_2 40 %, Al_2O_3 5 %, Fe_2O_3 2 %, CaO 33 %, MgO 11 %, K_2O 8 %, Na_2O 1 %) and the third one the carbonaceous rock (SiO_2 20 %, Al_2O_3 1.3 % Fe_2O_3 0.5 %, CaO 75 %, MgO 2.5 %, K_2O 0.03 %, Na_2O 0.67 %). As buffers graphite, graphite with the addition of 1 % teflon as a fluorinating agent, graphite with the addition of 3 % NaCl e.g. 10 % Li_2CO_3 as elements with the low ionisation potential besides that NaCl as a chlorinating agent were investigated. Moving plate studies showed that in all three examined matrices with all four buffers investigated volatile elements completely evaporated in the first thirty seconds and involatile and carbide forming elements as well as palladium as reference element to the greatest part during the first forty seconds. As with the use of all four examined buffer controlled evaporation was obtained, the decision which of them is optimal for the analytical application was made upon the relative intensities of spectral lines obtained under the same experimental conditions. The highest relative intensities were obtained with the use of the buffer graphite with the addition of 3 % NaCl and this buffer was used for further analytical application.

Analytical calibration curves prepared with three matrices were paralelly shifted, the shift between matrices 1 and 2 was not significant, matrix 2 showing tendency towards higher intensities as a consequence of higher alkali metals content in the sample. The shift towards lower intensities in matrix 3 is typical for samples with high calcium content. In systems with high calcium content namely compounds of the type Ca_mMeO_n could be formed (11) which could be the reason that the detection limits for trace elements in carbonaceus matrices are relatively high.

As the criterium for dividing samples into groups for the evaluation procedures the ratio of the $CaO-SiO_2$ content in the

sample is used. The ratio of the Ca 299.5 nm/Si 245.2 nm lines is linearly dependent on the CaO/SiO_2 content. Samples with the intensity ratio of both spectral lines higher than 1.5 are evaluated with analytical calibration curves prepared with the matrix 1 and samples with the intensity ratio of both spectral lines lower than 1.5 are evaluated with analytical calibration curves prepared with the matrix 3.

Statistics

For the evaluation of spectrochemical procedures the following statistical methods are used:
- for precision standard deviation and relative standard deviation;
- for accuracy F- and t-test for narrower concentration ranges and correlation analysis for wider concentration ranges.

Relative standard deviations were 10-20 %.

Accuracy was controlled with the comparison of the results with international standards, intralaboratory comparison with other techniques, first of all atomic absorption spectroscopy and various polarographic techniques, interlaboratory comparison with other laboratories and "blind twins".

Detection limits for some elements were:
- 1 ug g^{-1} for Ag, Cu, V
- 3 ug g^{-1} for Sn
-10 ug g^{-1} for Bi, Cd, Tl, Ga, Ge, In, Pb, Mo
-30 ug g^{-1} for Sb, Zr
-100ug g^{-1} for Zn, W
-300ug g^{-1} for As.

Conclusion

Universal procedure for trace elements determination in various geological materials using as a buffer graphite with the addition of 3 % NaCl in 1:2 ratio lessens the matrix effect for wide range of main components content. A criterium for the choice of analytical curves for the evaluation procedure is CaO/SiO_2 content. Statistical F- and t-tests showed that results obtained with the method are within the limits of random errors.

References:

1. Keliher, P.N., W.J. Boyko, J.M. Patterson III, J.W.Hershey, Anal.Chem. 56, No.5, 133R-156R, 1984
2. Rösler, H.J.H.Lange, Geochemische Tabellen, VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 1975
3. Schroll, E., Proc. XIV.Col.Spectr.Int., Debrecen, 1967
4. Danielsson, A., G.Sundquist, Spectrochim.Acta 10, 126-133, 1959
5. Maessen, F.J.M.J., P.W.J.M. Boumans, Spectrochim.Acta 23B, 739-749, 1968.
6. Maessen, F.J.M.J., J.W. Elgersma, P.W.J.M. Boumans, Spectrochim. Acta 31B, 179-199, 1976
7. Plško, E., J.Kubová, Coll.Czechosl.Chem.Comm. 42, 2858-2861, 1977
8. Golightly, D.W., A.F. Dorrzapf, C.P.Thomas, Spectrochim. Acta 32B, 313-325, 1977

9. Thompson, G., D.C. Bankton, Spectrochim. Acta 24B, 335-350, 1969
10. Watson, A.E., G.M. Russell, Spectrochim. Acta 33B, 143-152, 1978
11. Laktionova, N.V., A.P. Egoroc, N.M. Borts, Ž.anal.him., 37, 1232-1238, 1982

ON THE ACCURACY OF SPECTROCHEMICAL ANALYSIS OF GEOLOGICAL MATERIALS

EDUARD PLŠKO

Comenius University, Geological Institute, Zadunajská 15
851 01 Bratislava

The efficiency of each analytical procedure can be described by several valuating parameters which sometimes are called " figures of merit". These parameters can be divided into two great groups: basic /1,2/-detectability, precision, accuracy, selectivity, concentration range atc. and economic parameters /3,4/ -duration of analysis, its price, necessity of reagents, instruments, staff atc. Not all parameters can be optimized simultaneously. The improvement of one parameter is sometimes connected with the worsening of an other parameter. Better precision of determination can be achieved e.g.by repeated performing of the analysis and calculating of mean values. The procedure needs, however, more time, more reagents and consequently more funds.

In comparison with the error of precision which can be expressed by the use of mathematical statistics, the accuracy, characterizing the systematic error of the analytical procedure and/or its results can be valuated only on the basis of results obtained by different independent analytical techniques or by the application of certified reference materials /5/.

In our institute we have been since many years interested in the study of the accuracy of spectrochemical procedures applied to the analysis of trace elements in geological materials. In this paper I therefore want to present some of our results obtained in the mentioned field, contributing to the reliability of the knowledge of the chemical composition of geological materials which is necessary for both, the theoretical research elucidating basic geochemical behaviour of the components building the eartcrust and the practical applications surveying for new deposits of mineral

raw materials. This research is methodologically one component of the project appertaining to the development of the analytical geochemistry, as a new interdisciplinary scientific branch /6-9/.

What concerns the research performed in our working group we have verified the accuracy of spectrochemical results by both the above mentioned ways.

The accuracy of the discribed method for the determination of microelements in magnesites /10/ was checked by atomic absorption and spectrophotometry. In the case of the spectrochemical method for the determination of trace elements in antimonite /11/, chalcopyrite /12/ and siderite /13/ the comparison with AAS results was used. A comparison of optical emission spectroscopy with arc and ICP excitation, atomic absorption spectroscopy and X - ray fluorescence was performed with the aim to determine their applicability in the analysis of geological materials /14,15/.

The comparison of results obtained by OES, AAS and flame photometry was evaluated for the determination of Li, Rb and Cs in rocks /16/. The accuracy of the determination of trace elements in basic silicate rocks /17/ and shales /18/ was evaluated by their analysing in three laboratories by different spectrochemical methods. The obtained results were checked by the recommanded values for corresponding certified reference materials. A comprehensive study of the reliability of different methods /optical emission spectroscopy with arc and ICP excitation, atomic absorption spectroscopy with flame and electrothermal atomization, spark source mass spectroscopy, ion selective electrodes, polarography etc./ for the analysis of mineral waters has also been performed in our institute /19/.

What concerns the use of certified reference materials for the verification of accuracy we applied it whenever possible, e.g. at the described spectrochemical methods for the determination of microelements in weathered materials /20/, ultrabasic rocks /21/ and galenites /22/. In connection with

the last study we also proposed a spectrochemical procedure how to investigate the homogeneity of reference materials, as well, as for obtaining some additive geochemical informations about the art of appearence in the investigated materials.

In an other project we studied the time stability of analytical results during a long period of 10 years. In this time range certified reference materials of silicate rocks /23/ and carbonates /24/ were analysed. The evaluation of the results showed a good agreement of the gained analytical results with the recommanded values for the whole variety of the analysed certified reference materials /18 silicates and 8 carbonates/ in spite of the changes in reagents, experimental conditions, different calibration standards, experimentators etc. The determined long time variation of the results is even significantly smaller than in the case of results used for the calculation of recommanded values.

The problem of the comparability of results obtained in different laboratories, by different experimentators, under different experimental conditions using different calibration standard has shown /25/ that at the analysis of geological materials the greatest systematic errors can be caused by the human factor.

Apart from the described checking of the accuracy of gained analytical results we have trayed to find, to discern and than to diminish, eliminate or even to avoid the origin of causes leading to the worsening of the accuracy, i.e. to the appearance of systematic errors. All effects influencing the accuracy of spectrochemical results and leading to systematic errors can be divided according to their origin into the following three groups presented in the Table I.

Some of the sources listed in the Table I. /e.g.wavelength and slit width setting can be responsible not only for systematic errors but also for random errors and in this case they can be treated by statistical procedures.

Tab.I

Sources of systematic errors

Instrumental	Methodical	Matrix effect
Setting of the	Homogenization	Evaporation
wavelength	Exposure time	Thermochemical
slit width	Blackening	reactions
current	transformation	Discharge tempe-
electrode gap	Background correc-	rature
Photographic material	ture	Electron density
Development	Calibration	Spectral inter-
Blackening measurement	Evaluation	ferences
etc.	etc.	etc.

The slit width setting can be taken as example. If the slit width is adjusted once for the taking of spectra of calibration standards and than readjusted for the samples, the difference between the adjustmants is manifested in systematic error of the determination. In an other set of experiments the adjustment of the slit width can be performed separately for each taking of spectrum. In this case the same source of error will cause a worsening of the precision without any influence upon the accuracy of results. Similar situation occurs also in the case of spectral interferences. If we use synthetic calibration standards not containing the interfering element, the results will be loaded by systematic error. On the other hand if the calibration standards are natural in which the content of the interfering element changes from one standard to the other, the results will vary around a mean value which needs not be biased.

The mentioned recognitions were used to the transformation of matrix changes leading normally to systematic errors into statistically treatable random errors. We applied this idea to the evaluation of the influence of the matrix composition on the results of trace elements determination in magnesite /10/. We determined the concentration of trace

elements in one natural sample after having added 5 % /relatet to the whole mass of the sample/ of different additives corresponding to the components of the matrix /$CaCO_3$, Fe_2O_3, SiO_2 Al_2O_3/ and graphite powder for comparison. We evaluated the standard deviation of the obtained results and compared it with the standard deviation estimated on the basis of repeated measurements using the original matrix. The statistical agreement of the both standard deviations estimated by the use of F - test proves the absence of significant systematic errors which could be caused by matrix composition changes in the investigated enough broad concentration range of absolute 5 %.

The same procedure was applied also to the investigation of the influence of matrix changes at the spectrochemical analysis of mineral waters. The addition of 7 % K_2CO_3, Fe_2O_3, Na_2CO_3, MgO, $CaCO_3$ and carbon powder has not caused significant changes in analytical results.

Because of lack of informations concerning the influence of matrix changes on the analytical results we originally analysed trace elements in granitoid and basic silicate rocks by two procedures differing in the composition of synthetic matrices prepared for calibration samples as it is presented in the Tab.II.

The described testing was applied also in this case and according to its resulats there are no significant differences between the results. The identity of analytical calibration curves as presented in Fig.1 for some microelements testifies the practical absence of matrix effect. The above mentioned types of silicate rocks can therefore be analysed by the use of common calibration samples regardless of the composition of main elements. This conclusion was proved also by the analysis of corresponding certified reference materials.

According to the presented examples a comprehensive study of the accuracy of spectrochemical trace elements determination in geological materials can bring not only the improvement of the basic parameter in question leading to more reliable analytical results but it can have also economical advantages.

Tab. II.

Matrix composition of synthetic calibration samples /26/.

Component	Granitoid rocks	Basic rocks
	%	%
SiO_2	65,70	48,06
Al_2O_3	14,57	13,70
Fe_2O_3	2,62	10,13
MgO	0,74	6,04
$CaCO_3$	3,36	17,86
Na_2CO_3	6,74	3,36
K_2CO_3	6,28	0,86

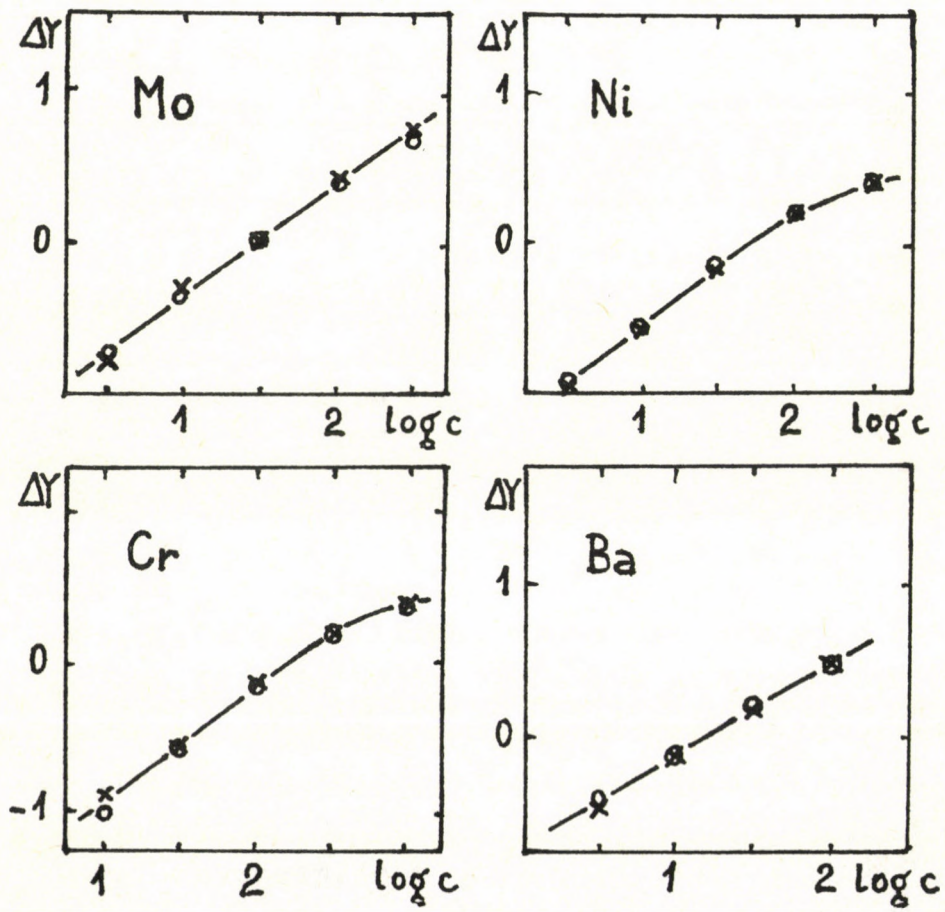


Fig.1
Analytical calibration curves for granitoid /o/ and basic /x/ silicate rocks

LITERATURE

1. Plško, E., Proc.:Optimization in anal.chem.,Trenčín, 1980, p.11.
2. Plško, E., Proc.:Symposium on the methods of determ. of low conc.of element.in mineral mat.,U.K.Bratislava,1971
3. Plško, E., Proc.:Rationalization and development of spectrochem.anal.methods.NTM, Praha, 1974, p.17.
4. Plško, E., Kémiai közlemények, 48, 316 /1977/.
5. Plško, E., Methods of chemical characterization of geological materials, Comenius University, Bratislava, 1978.
6. Engerlyn, Lord., Brealey, L., Analytical geochemistry, Elsevier Publ.Comp., Amsterdam, 1971.
7. Schroll, E., Analytische Geochemie, F.Enke Verl.Stuttgart, 1975.
8. Plško, E.,Proc.:Symposium on petrogenesis and geochemistry of geological processes, Veda, Bratislava, 1979, p.39.
9. Plško, E., Proc.:Analytiktreffen, 1982, K.Marx Univ. Leipzig, Wissen. Beiträge, 1983, p.197.
10. Medveď, J., Kubová, J., Plško,E., Geologica Carpatica, 30, 253 /1979/.
11. Jarkovský, J.,Plško,E.,Streško,V., Acta geol.geograph.Univ. Comenianae, Geologica 34, 71 /1980/.
12. Jarkovský,J.,Plško,E.,Streško,V.,Journ.of Geol.Sci., Technology, geochemistry, -15, 59 /1978/.
13. Medveď, J.,Martiny,E.,Plško,E.,Geologica Carpatica,32, 345 /1981/.
14. Plško,E.,Hric,I.,Blahut,Ľ.,Proc.:Symposium on geochemistry of endogen.and exogen.processes,Bratislava,1982, p.196.
15. Plško,E.,Proc.:Progress and application of anal.chem.in praxis, SVŠT, Piešťany, 1982,p.27.
16. Martiny,E.,Plško,E.,Saměuk,A.I.,Geologica Carpatica, /in press/.
17. Medveď.J.,Plško,E.,Cubínek,J.,Acta geol.geograph.Univ. Comenianae,Geologica,27, 183 /1974/.
18. Medveď,J.,Kubová,J.,Plško,E.,Budič,B.,Geologica Carpatica, /in press/.

19. Research report: NO II-4-8/01, Geological inst.Com. Univ.Bratislava, 1985.
20. Plško,E.,Acta geol.geograph.Univ.Comenanae, Geologica, /in press/.
21. Medveď,J.,Plško,E.,Geologica Carpatica, 31, 177 /1980/.
22. Medveď,J.,Plško,E.,Proc:Symposium on petrogenesis and geochemistry of geol.processes,Veda, Bratislava, 1979, p.297.
23. Medveď, J., Plško,E., Geologica Carpatica, 33, 343,/1982/.
24. Medveď,J.,Plško,E., Geologica Carpatica /in press/.
25. Plško,E.,Acta Fac.Rer.Nat.Univ.Com. /in press/.
26. Medveď,J.,dissertation, Geol.Ins.SAV, Bratislava,1978.

X-RAY PHOTOELECTRON SPECTROSCOPY (XPS) AND ITS APPLICATIONS TO SURFACE QUANTITATIVE ANALYSIS

Claudio BATTISTONI, Giulia MATTOGNO and Ernesto PAPARAZZO

Istituto di Teoria e Struttura Elettronica e Comportamento Spettrochimico dei Composti di Coordinazione, Area della Ricerca di Roma del CNR, Via Salaria km 29.500, P.O. Box 10, 00016 Monterotondo, Roma, ITALY

Interaction of photons of energy up to few keV's (i.e., below the Compton regime) with matter results in the ejection of bound electrons into the continuum. This phenomenon is known as the photoelectric effect. Analysis of photoelectrons excited by a photon source of characteristic energy of around 1.5 keV (Alkα : hν =1487 eV; Mgkα : hν =1254 eV) is named X-ray photoelectron spectroscopy (XPS). It is also known as ESCA, electron spectroscopy for chemical analysis (1).
While most of the theoretical grounds for the study of photoelectrons (such as photoionization cross sections, angular distributions of the energy spectrum, and so forth) were established long ago, it has been only in the late 60's, with the advent of modern high-vacuum technology and with the design of high-resolution electron analyzers, that XPS experiments have become feasible. Since then, the technique has met an increasing popularity in the study of various materials, both in academic and industrial environments.
The principal emphasis of early XPS studies was placed on qualitative applications of the technique. These involved the determination of the core-level electron binding energy, BE. This quantity obeys Einstein's law:

$$BE = h\nu - KE \quad (1)$$

where hν is the photon energy and KE is the photoelectron kinetic energy measured in the continuum. Knowledge of the BE allows an easy elemental analysis because each element of the Periodic Table possesses a characteristic energy spectrum. Another quantity, which was studied extensively, was the chemical shift, ΔBE. This is a small variation of the BE of a certain core-level of a given element when present in different samples. Analysis of ΔBE's allows a more complete chemical characterization of the studied samples because those chemical shifts are in most cases strictly related to the oxidation state of that particular element and to its chemical bond.
The range of the mean free path of photoelectrons excited in XPS experiments ($\lambda \sim 10$-30 Å) makes the technique particularly

suited for surface studies of solids. This intrinsic feature of XPS prompted an ever growing interest in the capability of the technique used as a surface quantitative tool.
Recent reviews on the subject (2,3) have shown that the accuracy of XPS quantitative analysis is limited by a typical relative error of ± 10%, as found in atomic ratio determinations in pure inorganic compounds. This accuracy can be considered more than satisfactory, and represents a significant improvement over the early quantitative studies, which were pioneered by Wagner (4) and by Jørgensen and Berthou (5). To consider as "quantitative" those results, which are limited by ± 10% relative errors, may appear arbitrary, or even too naive, if XPS is to be compared with other classical quantitative methods, such as atomic absorption spectroscopy, wet chemical analysis, and so forth. As is well known, those methods are capable of achieving an accuracy limited by only 1-2% relative errors or even less. XPS possesses the unique capability of giving information on the outermost region of the samples, where the above classical methods lack a surface-specific response as distinguishable from a bulk response. This advantage of XPS over classical quantitative approaches, which partly compensates for the relative inaccuracy of the technique, is of dramatic importance in many fields of pure and applied research where the surface composition of materials is of primary concern.
Other advantages of XPS used as a quantitative tool are the following.

a. The quantitative information refers to species already characterized as to their oxidation state.
b. XPS analysis requires just few milligrams of substance, and it is performed rapidly, with no dissolution step.
c. Interference problems between different elements are absent.
d. The sensitivity for light elements is acceptable.

In addition, it is possible to obtain a depth-profile of the sample by alternating XPS analyses with Ar ion etching sequences, which remove surface layers. Combination of XPS experiments and argon etching is especially useful in metallurgical studies. While Ar etching allows to extend the depth of the XPS analysis, possible artefacts induced by argon ions, such as reductive etching and preferential removal effects, should be estimated properly.
The atomic ratio of the two elements A and B, N_a/N_b, as obtained through the core-level peaks a and b, is given in the XPS spectrum by (6):

$$\frac{N_a}{N_b} = \frac{\Phi_a I_a \sigma_b \left[1 + \beta_b/2(3/2\sin^2\vartheta - 1)\right] \lambda_b T_b}{\Phi_b I_b \sigma_a \left[1 + \beta_a/2(3/2\sin^2\vartheta - 1)\right] \lambda_a T_a} \quad (2)$$

In this equation, Φ_a and Φ_b are the x-ray fluxes on the sample I_a and I_b are the area-integrated peak intensities, σ_a and σ_b are the total (angle-integrated) photoionization cross sections, β_a and β_b are the asymmetry parameters, ϑ is the angle between the x-ray beam direction and the electron emission direction, λ_a and λ_b are the total inelastic mean free paths, T_a and T_b are optico-geometrical factors related to the instrumental apparatus.

There are three methods to extract quantitative information from XPS spectra. The first method, named the "First Principles Model" (FPM), involves the use of equation 2 by using theoretical values (σ and β), semi-empirical parameters (λ), and adjustable parameters (T), the last deriving from the assembly and mode of operation of the spectrometer (6). The second method is based on the use of Elemental Sensitivity Factors (ESF). These are derived in comparison samples of known stoichiometry (4,5). The method of Local Standards (LS) gives the atomic ratio of interest by relating the measured peak intensity ratio to a standard curve obtained along a range of compositions.

All three methods present their advantages and their disadvantages, and the use of a particular approach is dictated by the particular analytical problem in question. Thus, while ESF and LS methods are the best choice when appropriate sensitivity factors are available or local standards with known surface compositions can be prepared easily, FPM directly relates the observed peak intensities to the basic phenomena (photoionization, escape and detection) that regulate the overall XPS experiment.

We now briefly illustrate examples of XPS analyses of two different materials: i) air-borne particulate matter; and ii) passivated electrolytic tin plate. The FPM method was used in both cases for quantitative purposes.

- Analysis of air-borne particulate matter collected on membrane filters.-

The surface composition of environmental particulate matter is of great interest for gaining an insight into the chemical reactions - mainly gas-solid interactions - which occur in the atmosphere. We have employed XPS spectroscopy to study the surface composition of air-borne particulate matters collected on membrane filters, in both urban (7) and marine (8)

ambients. Some important differences are evident in the two environmental ambients.
In urban dust, the nitrogen was present as NH_4^+ and NO_3^-, and the sulphur as $S^=$, S^o and $SO_4^=$, whereas only NH_4^+ and sulphate were found in marine ambients.
A quantitative determination of species present in marine ambient samples was attempted, and the results compared with those obtained from a parallel x-ray fluorescence (XRF) analysis. Selected examples are presented in table 1.

Filter	Cl/S		Si/S		Ca/S	
	XPS	XRF	XPS	XRF	XPS	XRF
7	2.49	1.01	1.21	1.99	3.93	1.11
29	0.77	0.32	1.11	1.29	3.40	2.13
55	0.54	0.58	4.26	2.12	1.46	2.08
58	0.73	0.63	5.21	2.74	3.50	1.73

Table 1: Atomic concentrations of filters from XPS and XRF.

Differences of a factor of 2 were found between the two sets of data. These may be explained as follows. First, XPS senses atoms which are in the outermost region of the materials (ca. 20 Å) while XRF analyzes mainly the bulk of a sample. Thus, given that some chemical species such as sulphates are mainly concentrated on very small particles whereas silicon and Ca are mostly on large ones, particle diameter inhomogeneity results in high differences when results from the two techniques are compared. Secondly, local composition inhomogeneity along the filter surface gives different responses in XPS, which analyzes a few mm^2, and XRF, which analyzes a few cm^2. We have looked at this effect by measuring atomic ratios over different portions of the same filter by XPS. The mean values from XPS analysis differed from the bulk measurement by a factor of 2 or more, while the variability in atomic ratios, between different filter portions, still changed by a factor greater than 2.

- Analysis of passivated electrolytic tin plate.-

Electrolytic tin plate is one of the most common metallurgical coatings. Many properties of the final product of the material, such as resistance to oxidation and sulphur staining, lacquer adhesion and so forth, depend -to a large extent- on the surface composition (down to about 100 Å) resulting from the passivation treatment to which it is subjected at the end

of the manufacturing process. This treatment is performed: i) by simple immersion (DiChromate Dipping, DCD); or, ii) by application of a cathodic current (Cathodic DiChromate, CDC). Here we present a summary of XPS results obtained in extensive electrochemical and XPS investigations performed on several tin plates (9,10). The samples were analyzed as received and after argon ion etching.

All as received tin plates present the chromium in the 3+ oxidation state indicating also the presence of hydroxyl phases. These were also confirmed by the analysis of the oxygen peak. Both metallic and oxidized tin were present. After argon etching (i.e., with depth) in addition to Cr(III), metallic chromium was only found in the CDC sample. This explained the higher oxidation resistance of that sample.

Depth profiles were obtained from photoelectron peak intensities. O/Cr atomic ratios suggested the presence of anhydrous Cr_2O_3 in the sub-surface region of the materials within ± 15% relative error, and the nature of oxidized tin phases was determined as well.

References

1. K. Siegbahn et al., Electron Spectroscopy for Chemical Analysis, Almqvist and Wiksells, Stockholm, 1967
2. C.D. Wagner, L.E. Davis, M.V. Zeller, J.A. Taylor, R.H. Raymond and L.H. Gale, Surf. Interface Anal., 3 (1981)211
3. C. Battistoni, G. Mattogno and E. Paparazzo, Surf. Interface Anal., in press
4. C.D. Wagner, Anal. Chem., 44 (1972) 1050
5. C.K. Jørgensen and H. Berthou, Faraday Discuss. Chem. Soc., 54 (1973) 269
6. C.J. Powell, N.E. Erickson and T.E. Madey, J. Electron Spectroscopy and Relat. Phenom., 17 (1979) 361
7. I. Allegrini and G. Mattogno, Sci. Total Environ., 9 (1978) 227
8. I. Allegrini, C. Battistoni, G. Mattogno and E. Paparazzo, Sci. Total Environ., 19 (1981) 223
9. N. Azzerri, L. Splenderini, G. Battistoni and E. Paparazzo, Surf. Technology, 15 (1982) 255
10. N. Azzerri, G. Ingo, C. Battistoni, G. Mattogno and E. Paparazzo, Surf. Technology, 21 (1984) 391

EXAFS AND XANES SPECTROSCOPIES: APPLICATION TO BIOLOGICAL MOLECULES.

Lucilla Alagna, Tommaso Prosperi, and Anthony A.G. Tomlinson

Istituto di Teoria e Struttura Elettronica del C.N.R., C.P. 10 Monterotondo Staz., 00016 Roma.

The past decade has seen a growing use of the technique of X-Ray Absorption Spectroscopy in molecular biology. The reasons for this are not hard to find; an atom can absorb X-ray photons at it's characteristic X-ray absorption edge which is -of course- independent of the physical state of the sample (crystal,powder,solution,gel, or non-monatomic gas) or it's concentration in the sample. Further, the absorption is metal-ion specific, thus avoiding spectral overlap from species other than the absorbing atom itself. These favourable characteristics came into their own only when the high-intensity sources provided by Synchrotron radiation became available. This brief overview will describe the basis of the technique, and its limitations,with reference to some current biological problems.

Fundamentals

When the photon energy of X-rays impinging on matter is the same as that required to excite a core electron into outer orbitals of an absorbing atom there is an abrupt increase in absorption. This is termed the characteristic X-ray absorption edge, classified according to the standard atomic orbital nomenclature: K, L_I, L_{II}, etc[1]. As the photon energy increases further, and provided the X-ray flux is high, a distinct damped modulation appears on the high-energy side. This is termed the Extended X-ray Absorption Fine Structure (EXAFS). The edge region itself is now termed the X-Ray Absorption Near Edge Structure (XANES) because the use of Synchrotron radiation has revealed that it contains considerable stru-

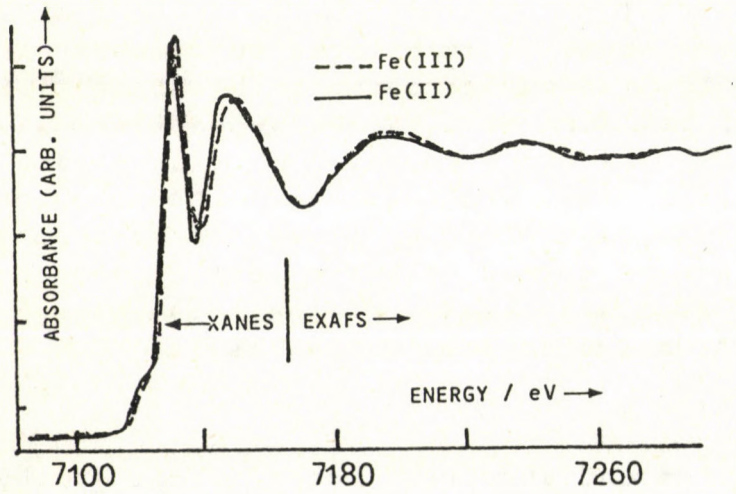


Fig. 1 - XANES and EXAFS of $K_4Fe(II)CN_6{\cdot}3H_2O$ and $K_3Fe(III)CN_6$. Ref. 2 (J.B. Pendry)

cture[1].(Fig. 1)

Early rationalisations of the XANES region were based on analogy with atomic transitions, the structure observed being assigned as due to 1s → 3d, → 4s → np transitions[3]. Recent theoretical advances have shown, however, that multiple scattering effects must be invoked to explain features in this region[2], which in principle means that information on both bond angles and distances can be extracted. This is apparent, qualitatively, from Figure 2. In the XANES region, the ejected photoelectron has low kinetic energy and thus interacts in many different ways with all the atomic neighbours of the absorber. Conversely, the higher energy of the ejected photoelectron in the EXAFS region means that it interacts in a pair-wise fachion with the atomic neighbours, so that bond distance information alone can be extracted. The scheme of Figure 3 illustrates how the EXAFS modulation arises, the ejected photoelectron being treated as a simple plane wave. In a) it's wavelength is such that on returning after being scattered by the four neighbour atoms it interferes constructively with the oncoming wave to give an increase in the absorption. In b) the wavelength is now such that the back-scattered wave interferes destructively with the oncoming one, thus giving a decrease in the absorption. The total effect as the X-ray photoelectron wavelength (i.e. the energy) is scanned is a series of modulations. These are extracted from the rest of the spectrum[3], the fractional modulation, $\chi(E)$, of the total absorption coefficient, $\mu(E)$, above an edge varies as:

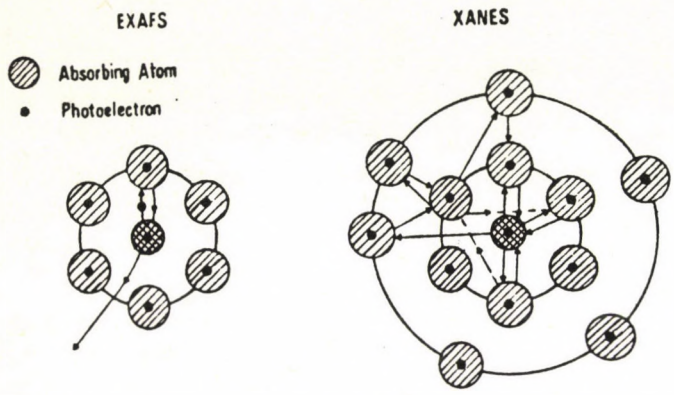


Fig. 2 - Single scattering regime (EXAFS) and multiple scattering regime (XANES) of ejected photoelectron. Ref.2(A.Bianconi)

$$\chi(E) = \mu(E) - \mu_o(E) \; / \; \mu_o(E) \qquad (1)$$

where $\mu_o(E)$ is the background absorption coefficient in the absence of backscattering atoms. To relate $\mu(E)$ to structural parameters, the energy E is converted into the photoelectron wavevector:

$$k = \frac{2m}{\hbar^2}\left[(E - E_o)\right]^{1/2} \qquad (2)$$

E = incident photon energy and E_o the threshold energy of the absorption edge. For the plane wave approximation, $\chi(k)$ in k space is give by[3]:

$$\chi(k) = \sum_s N_s \frac{f_s(\pi,k)}{R_{as}^2} \exp(-2\sigma_{as}^2 k^2)\sin(2kR_{as} + \varphi_{as}(k)) \quad (3)$$

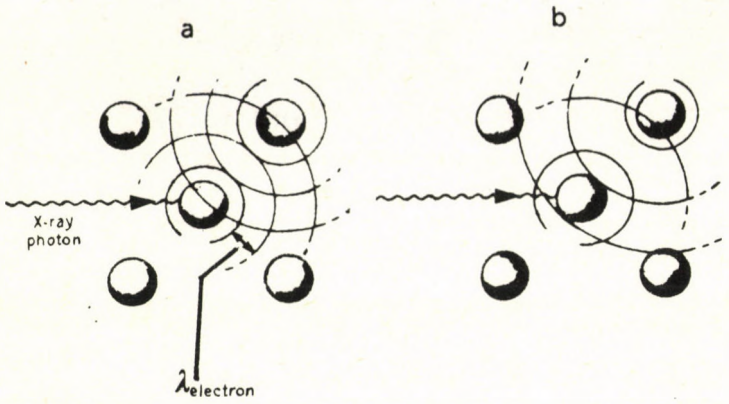


Fig. 3 - Positive (a) and negative(b) interference between the outgoing photoelectron wave from absorber and the back scattered wave from neighbour atoms. Ref. 4

where N = the number of equivalent scatterers, R_{as} =the distance between absorber and scatterer, $\varphi_{as}(k)$= total phase shift, and $f_s(\pi,k)$ is the electron back-scattering amplitude of the scatterer. The exponential term is a Debye-Waller type factor which allows for damping of the EXAFS, and σ_{as} is the mean square variation in R_{as}. N, R_{as}, and σ can be found once the phase-shifts and $f(\pi,k)$ are known, from theory[5] or using models.

Ca^{2+}-α-D-polygalacturonate

Fourier transformation of the extracted EXAFS gives a radial distribution type curve, with peaks due to R_{as} but shifted by the total phase shift $\varphi_{as}(k)$[5]. Figure 4 shows the FT of gel and solid forms of Ca^{2+}-α-D-polygalacturonate and that for a model compound Ca^{2+}-2- keto-D-gluconate.[6]

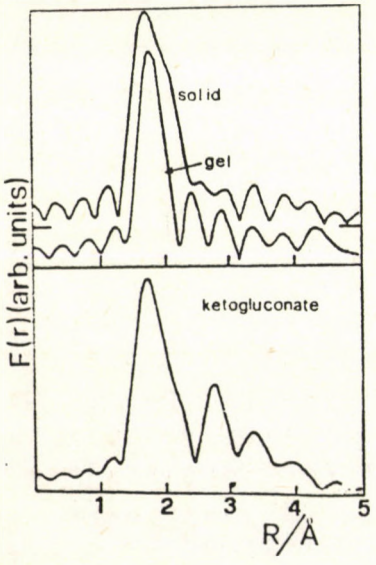


Fig. 4 - Fourier transforms of extracted EXAFS for polysaccharide and known model compound.

In all, the first peak is due to Ca-O distances, i.e. the Fourier transformation has 'decoupled' the contribution of Ca-O distances to the total EXAFS. The Ca-O peak is then separated out between the R limits shown and a further Fourier transformation to k-space performed (a "back-transform"). This gives an uncoupled sine wave due to Ca-O distances alone (a "back-scattering curve"). Least squares methods are then applied, with a parametrised version of eq. 1:

$$\varphi_{as}(k) = (a_o + b_o - \pi) + (a_1+b_1)k + (a_2 + b_2)k^2 + (a_3+b_3)/k^3 \quad (4)$$

The model compound (and others) provides a_o..., and b_o..., Similarly, the amplitude part of eqn.3 is parametrised using the functional form:

$$f(\pi,k) = A/1 + B^2(k - C)^2 \quad (5)$$

A, B, and C again being extracted from models (for which Ca-o, and N are known (Extracting the parameters from models is not trivial because of the characteristic spread of Ca-O distances). Fitting the data to eqns.4 and 5 then requires only R_{CaO} N and σ_{CaO} as floating parameters. The fit for the solid form required three Ca-O distances, of 2.39(1), 2.46(1), and 2.54(1)Å, with N =6,2,2, respectively. (i.e. a coordination number of 10). Although the error in N is 15-20%, the fits are much more sensitive to Ca-O distances and to their distribution. A complete fit for the gel is still under way, but the FT indicates that the Ca-O bond distribution is more compact than that in the solid. Referring to the Ca^{2+}-pectin models put forward in the literature, we suggest this difference may be due to stronger inter-helix interactions in the solid. However, the model of Arnott et al has a more compact Ca-O distribution than that found experimentally by EXAFS. Further peaks between 2 and 3Å, appear to be due to Ca..C distances, and will provide information on the configuration of the sugars along the helix. Preliminary evidence suggests that the sugar rings are "face out" in the solid.

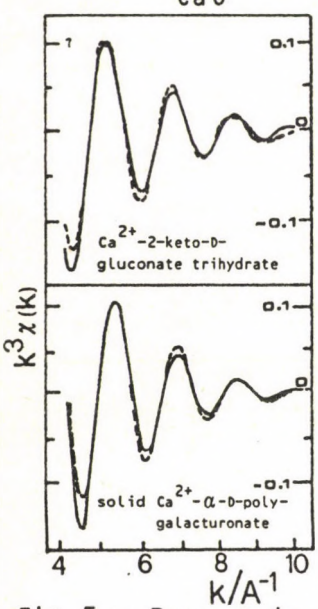


Fig.5 - Parametrized fits of extracted EXAFS.

Superoxide Dismutase

In a more sophisticated application aimed at probing differences in the active site of an enzyme between crystal and aqueous solution, the EXAFS results can be used as input parameters to fit the XANES, thus producing information on bond angles.This has recently been done for native Superoxide Dismutase (SOD). Multiple scattering calculations were first performed on a com

plex also containing imidazole, and of known crystal structure: $Cu(Im)_4(ONO_2)_2$. As shown in Fig.6, the very approximate theory gives a surprisingly good description of the rich XANES spectrum when the influence of atoms in, or out of, the CuN_4 plane is monitored. The low energy shoulder is clearly diagnostic of the presence of axial ligands. The power of the approach becomes even clearer when all the features (both shape and energy) are simulated with three shells (30 atoms) about the Cu^{2+} ion (Fig.7). The major conclusions are : i) Cu-N distances are slightly shorter in solution than in the solid state, ii) the imidazole rings have a more varied orientation in solution (see the Table). (The latter effect is responsible for the edge broadening in SOD as compared with $Cu(Im)_4(ONO_2)_2$).

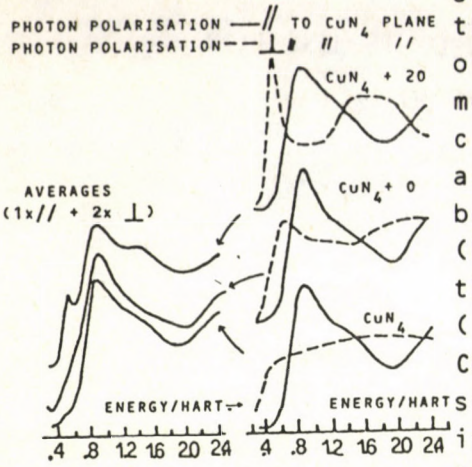


Fig.6. Multiple Scattering calculations on $Cu(Im)_4(ONO_2)_2$

Table .Imidazole Ring Orientation in SOD

	Crystal (X-Rays)	Water (XANES)
with respect to z axis	2 rings at +10° 2 rings at −25°	1 ring at +10° 2 rings at −25° 1 ring at +25°
with respect to XY plane	3 rings at 90° 1 ring at 0°	2 rings at 90° 1 ring at 45° 1 ring at 0°

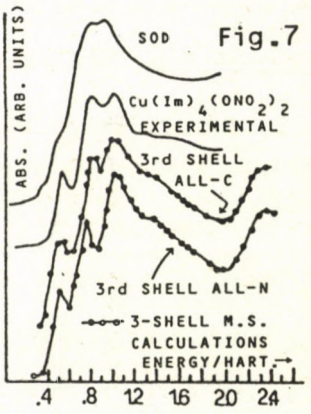


Fig.7

The order of magnitude advantage of XANES over EXAFS means that such detailed studies will provide crucial details of active sites in metallo-proteins in otherwise structurally inaccessible states.

References

1. "Synchrotron Radiation Research", Eds H.Winnick & S.Doniach, Plenum Press New York, 1980.
2. "Exafs & Near Edge Structure", Eds A.Bianconi, L.Incoccia, & S.Stipcich, Springer Series in Chemical Physics, Vol.27, Springer, Berlin, 1983.
3. S.P.Cramer & K.O.Hodgson, Prog.Inorg.Chem., Vol 25, p 1, Wiley, New York, 1979.
4. P.Eisenberger, Science, 200, 1441 (1978).
5. B.K.Teo & P.A.Lee, J.Amer.Chem.Soc., 101, 2815 (1979); P.A.Lee & G.Beni, Phys.Rev.B, 15, 2862 (1977).
6. L.Alagna, T.Prosperi, & A.A.G.Tomlinson, Rev.Port.Quim.(Proc.2nd Internatl. Conf.Bioinorg.Chem.) 27, 310 (1985); manuscript in preparation.
7. L.Alagna, P.J.Durham, & S.S.Hasnain, manuscript in preparation.

ON DETERMINATION OF Ca IN HAIR AND ITS USE FOR INVESTIGATION OF CORONARY HEART DISEASE AND Ca-METABOLIC RATE

J. Bacsó

Recently the heart and cardiovascular diseases are counted to be the most frequent diseases in the medium and highly developed countries.

The most important risk factors of coronary heart diseases (CHD), as serum cholesterol, serum triglyceride, hypertension (elevated blood pressure), obese, smoking, the sitting style of life etc., seem to be the reason of development of CHD and the cause of high CHD death rate (1). The supposed role of some microelements (V, Mn, Cu, Se, Zn, Cd, etc.) in developing atherosclerosis preceding the myocardial infarction (MI) has been widely investigated, too (2).

Other studies investigated the prevalence of CHD in different primitve tribes. The lack of CHD among the Bantus was convincingly confirmed by the fact that only 2 cases of coronary thrombosis were found in 3 000 autopsies on Bantu and Euraf-rican patients in Johannesburg, South Africa (3). Many attempts have been made to find populations that might refute the theory that the development of CHD is strongly influenced by the fats and cholesterol in the everyday diet. For example, the Navajo Indians in the southwestern part of the United States usually eat a typically American diet but coronary heart disease is rare among them.

In other cases the variation of dietary habit and life style of a primitive population resulted in increased incidence of cardiovascular disease.

Taylor H. L. investigated the role of physical activity of occupation in the developing atherosclerosis with a follow-up of examined men (4). The follow-up study failed to show any significant difference in CHD incidence between the sedentary and the more active men (5). In a study of the population of Evans County , Georgia differences in frequency of CHD were seen when occupational classes were compared but a 7-yr follow-up showed a quite different picture of incidence (6).

Other studies have thought to reveal a negative correlation between the hard-

ness of drinking water and prevalence of CHD (and other cardiovascular diseases). By other researchers three major CHD risk factors are firmly established ; blood pressure, serum cholesterol and cigarette smoking (7). The lack of physical activity is suspected too, and we think, the stressors of civilized societies must be considered as a factor promoting the development of atherosclerosis and consequently schaemic heart disease (IHD).

Since the development of atherosclerosis is depending on many factors one must be ultra-cautious about saying anything about the diet or way of life being able to prevent the atherosclerosis. In spite of this the prevalence of CHD has been declining in the United States over the past 10-15 years. This fact probably can be ascribed to changes in living style as a consequence of extensive health explanatory campaign.

The aim of this study is to present a method for the investigation of the Ca - concentration in human hair in connection with IHD, to show that low hair-Ca is in correlation with IHD (11). Data are presented to show the basis of relationship between the low hair Ca-level and IHD.

Determination of mineral concentration in human hair and other tissues by XRF

Hair samples have been collected from different Hungarian groups and a group of Zambian inhabitants (coloured people) living in Lusaka. The hair samples have been taken from the crown of the head or nape, generally cut near to skin (Hungarian groups) with clean stainless steel scissors. In the case of African group the samples were cut at the distal end of hair but generally nearer than 5 cm to skin. The proximal end of 1,5 - 4,0 cm length was used for measurement of Ca concentration grown during about the last 1 1/2 - 5 months. The samples have been used in natural form for measurement, except for the beginning phase of investigations when they had been burnt. The sample preparation includes a procedure of washing in acetic acid of 2 % for 1 minute, rinsing in deionized water for 2 minutes three times, drying and cutting in sections of 12-15 mm (recently 10-11 mm). Square - shaped 10 x 10 mm samples (100 - 150 mg) were formed and kept by nylon string in measuring position on X - ray spectrometer.

The beard samples were shaven by electric shaver daily, collected separately in paper napkin. The shaving has occured before washing or after, depending on habit

The experimental set-up is shown in Fig. 1. The hair samples are put in measuring geometry by nylon strings fixed to a doubled Al-wheel. Simultaneously 12 samples can be placed on the wheel to record their X-ray spectra subsequently under vacuum.

The measurements were carried out by an energy dispersive X-ray spectrometer of the resolution of 165 eV for MnK line (Type NZ-860 ATOMKI) (9), with a multichannel (4K) analyser (Type ICA-70 KFKI). The characteristic rays of elements in samples have been excited by ring-shaped radioactive isotope sources of I-125 and Fe-55, with activity of 370 MBq and 3.7 GBq, respectively. The evaluation of X-ray spectra as well as the determination of elemental concentrations in samples has been carried out by a minicomputer of type TPA/i (KFKI). Reference materials as well as addition method have been used for the determination of the element concentrations.

Frequency distribution of hair-Ca in different populations

It has been observed in our earlier investigations (10) that the Ca concentration in hair of patients suffering from ischaemic heart diseases is much lower than in the case of healthy people (persons without complaints) (Fig. 2)

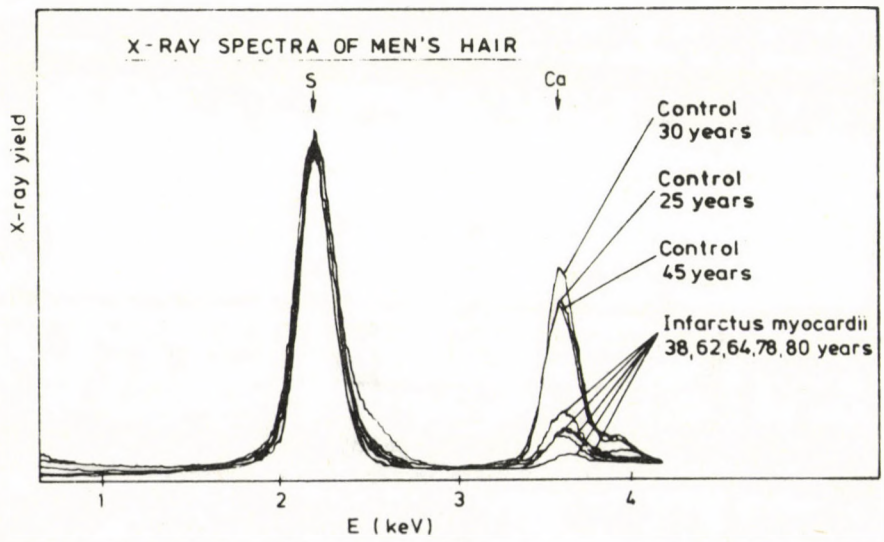


Fig. 2. X-ray spectra of hair from healthy individuals and patients suffering from ischaemic heart disease

The hair samples were taken from acute myocardial infarction patients (AMI) at the time of their hospitalization (138 patients). The proximal end of 2-4 cm length was used for analysis. This means that the information recorded in hair investigated is characteristic for the 3-5 months period before heart attack. The frequency distribution of hair-Ca in AMI group is shown in Fig. 3. It shows one peak at Ca concentration about 350 mg/kg.

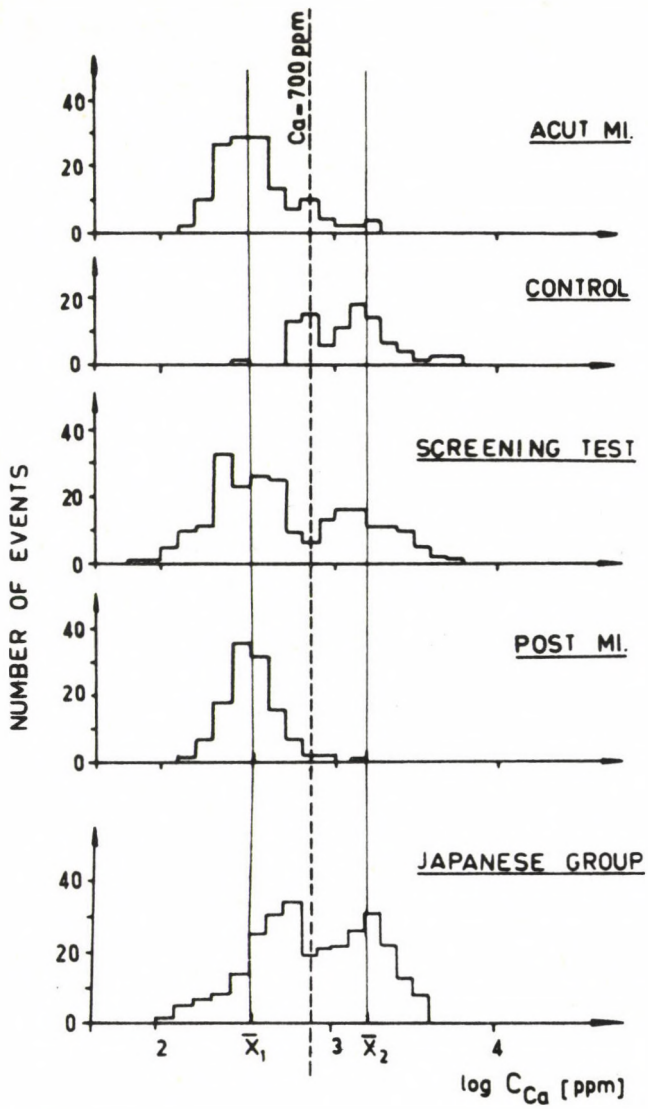


Fig. 3. Frequency distribution in function of logarithm of Ca-concentration in hair for different groups

The control group consisting of voluntary healthy individuals (93 persons) were inclined to undergo medical investigation for our request. The hair samples were taken from them similarly as from AMI group or at the usual hair cut in a barber's

shop. The frequency distribution has a peak at Ca concentration of 1100^{+1600}_{-700} mg/kg.

In the screening test (ST) group 250 individuals were investigated aged 40-60 year, brain workers and physical workers of a factory in the town Debrecen, Hungary. The hair samples were taken from this group on the same way as from AMI group. At the same time, every person was undertaken to a medical examination, blood sample was taken from them for laboratory determination of blood sugar (GLU), serum cholesterol (CH), serum triglycerid (TRG), diastolic blood pressure (RRd) was measured, the height and weight of the persons were taken to determin the obesity (OB). The frequency distribution of Ca concentration for AMI group is shown in Fig. 3.

A group of patients (122 individuals having suffered from myocardial infarction (PMI) in the interval between six months and two years before sampling , was selected too, to examine the Ca concentration in their hair and to measure the same risk factors of myocardial infarction as those investigated in the ST group.

Data of a Japanese group shown in Fig. 3. has been measure in reference with activation analysis technique (13). The linear - linear distribution published there does not show the two different peaks which appear after a logarithmic transformation of the distribution. The central minimum ($\sim$700 mg/kg) and the mean value ($\sim$420 mg/kg and $\sim$1500 mg/kg) are in good agreement with those obtained for the Hungarian groups.

The mean values and standard deviations for investigated groups are summarized in Table 1.

Group	Ca $\leq$ 700 mg/kg			Ca > 700 mg/kg		
	n	%	$\bar{X} \pm$ S. D.	n	%	$\bar{X} \pm$ S. D.
AMI	138	88	350^{+250}_{-145}			
Control				93	100	1100^{+1600}_{-700}
PMI	122	98	394^{+170}_{-120}		2	
S.T.	132	65	$270 \pm^{150}_{100}$	72	35	1600^{+1200}_{-750}
Japanese	173	45	420	211	55	1500

It is seen from Fig. 3. and Table 1. that the individuals of the investigated groups (Hungarian and Japanese) fall into two peaks according to Ca concentration in hair. The samples in low value peak contain about $350 \overset{+250}{-120}$ mg/kg and in the high value peak $1500 \overset{+1600}{-700}$ mg/kg Ca in hair. The different cases (AMI, ST low Ca, PMI, Japanese low Ca) belonging to the peak with low Ca level from the different homogeneous groups are mathematically indistinguishable. A similar statement can be made according to cases belonging to the peak of high Ca level.

It is also clear that the AMI and PMI groups belong mostly (88 % and 98 % respectively) to the the peak of low Ca value, the selected healthy group belongs to the high Ca value peak, while the unselected groups (ST, Japanese) are divided between the low and high Ca value peak in different ratios. Taking into account the time of sampling and the length of hair used for analysis in group of AMI, it can be established that low Ca concentration found in the hair of these patients got ahead of myocardial infarction and remained probably on the same level after the heart attack. In group PMI the sampling has been carried out 1/2 - 2 years after the heart attack. It was observed that the myocardial infarction is accompanied by low Ca level in hair with high probability (11).

In order to support the reality of a realtionship between low Ca level in hair and ischaemic heart disease and to understand the basis of the correlation we made some considerations on the observed effect.

Considerations

As a summary the following facts can be established :

1. In the investigated groups the frequency distribution of the Ca concentration in hair shows one- or two-peaked log-normal distribution with parameters : mean $\pm$ S.D. = $350 \overset{+250}{-100}$ or $1500 \overset{+1600}{-700}$ mg/kg. The difference of mean values is significant ($p < 0,001$).

2. The majority of patients who are suffering or suffered from myocardial infarction belong to the low Ca concentration peak while in the healthy population the Ca level in hair is high.

Ca metabolic disorders are the dietary habit and life style.

The above speculations led us to continued experiments in three directions :

1. Collection and measurement of hair samples from different populations (with different dietary habits, life style, race, from different geographical sites, etc.) to decide whether the two peaked distribution is universal or not, and the relative abundance of low Ca group is in agreement with expectations (e.g. is the ratio of low Ca group higher in countries with high death rate of CHD ?) .

2. Experiments have been carried out and are in progress to clarify the basis and nature of correlation between the hair Ca level and ischaemic heart disease.
a) Correlations have been investigated between the established risk factors of CHD in different groups of people (with low and high Ca level group, ST group) as well as in the PMI group.
b) Correlation has been investigated between Ca concentrations in hair and in aorta.

3. Follow-up observations have been carried out in order to investigate the variation of Ca level in daily shaved beard.

Investigations aimed to clarify the rlationship between the IHD and hair Ca level

1. For further investigations of frequency distribution of Ca level in hair, hair samples have been collected from a group of people living in Budapest (538 samples), an other group of people exposed continuously to heavy stress at place of employment (232 samples) , and a group of coloured people living in Lusaka (Zambia). The dietary habit of the latter ones appears to be far from the European one and the life style seems to be much more restful than that of European people.

The frequency distribution of Ca level in hair is log-normal in all cases. Regarding the grouping in the first case the distribution is two-peaked with central minimum $\sim$700 mg/kg in the second and third cases the distribution is practically one-peaked and the peaks are placed on left and right sides of the central minimum, respectively. The characteristics (mean values and standard deviations) and percentage distribution (in brackets) among low and high Ca-level group is shown in Table 2.

Group	Ca ≤ 700 mg/kg			Ca > 700 mg/kg		
	n	%	$\bar{X} \pm$ S.D.	n	%	$\bar{X} \pm$ S.D.
Hung. I.	419	72	257^{+135}_{-90}	164	28	1386^{+781}_{-500}
Hung. II.	232	95	242^{+109}_{-75}	12	5	948^{+332}_{-246}
PMI II.	251	90	370^{+151}_{-136}	25	10	995^{+431}_{-300}
Zambian				153	100	2078^{+1148}_{-740}

Table 2. Distribution characteristics for recently investigated groups

It can be proposed to measure Ca concentration in populations of different countries to prove or refute the supposition on the universality of the grouping of any population in two groups (peaks) . Up till now no contradictory distributions have been observed.

2a. Investigation of correlations between the risk factors of myocardial infarction was carried out in groups of different Ca level (Ca ≶ 700 mg/kg). As it was mentioned above, five established risk factors of CHD were measured in the ST group and in the PMI group.

Starting from the fact that the Ca level in hair is less than 700 mg/kg (mean value is equal to 350 mg/kg) for groups of AMI and PMI, and it can be expected that correlations between risk factors of CHD are also significantly different in groups with different Ca-level in hair.

Partial correlation coefficient r (r is a measure of the strength of the linear relationship between two variables) was calculated between risk factor pairs, in all possible cases for the high Ca level and the low Ca level part of ST group separately, as well as for PMI group. The significance level (P) of correlation coefficient (r) was established by "t" -test. The variation of significance level as well as the direction of relationship (+ or -) for different risk factor pairs is shown in Fig. 4.

In fact, the significance level strongly varies for several risk factor pairs in groups with different Ca level in hair as it was expected. So the risk factor pairs

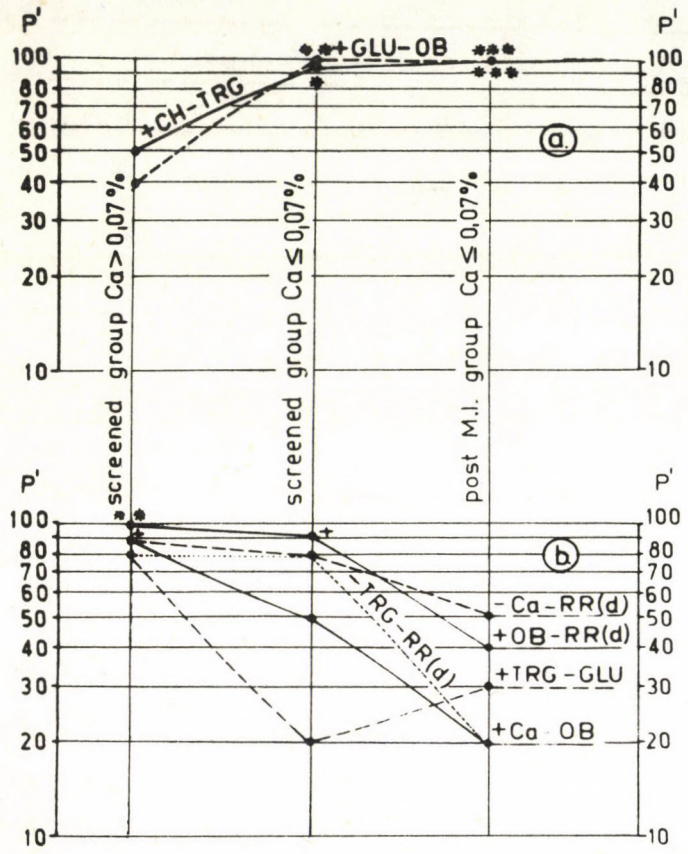


Fig. 4. Significancy level of correlation coefficient for different risk factor pairs in groups with different Ca level in hair. P′ = 1 - P. P-value is the probability that the correlation is not true. (× p 0,05, ×× p 0,01, ××× p 0,001)

cholesterol-triglycerid, blood sugar-overweigth and overweight-blood pressure (diastolic) show alteration of primary importance in groups with different hair Ca level. Is it possible that these physiological parameters (risk factors) play the most important role in pathology of coronary heart disease ?

2b. If the relationship between the low hair Ca level and ischaemic heart diseases is caused by Ca metabolic disorders, it can be expected that a correlation exists between hair Ca level and the degree of arteriosclerosis which anticipates mostly ischaemic heart disease.

To investigate the correlation betwwen hair Ca level and the atherosclerotic alterations hair samples and sections of aorta abdominalis were collected from autopsies of the Pahtological Institute, County Hospital, Kecskemét, Hungary (8).

After the appropriate preparation of hair and aorta samples, Ca concentration was measured in the samples. The Ca concentration in aorta vs that in hair is shown in fig. 5/a. The plot of experimental data revealed a special correlation be-

tween Ca concentration in aorta and hair, instead of a negative linear correlation which was expected. The special form of localization of experimental figures can be explained with the differences in physiological features of hair and aorta.

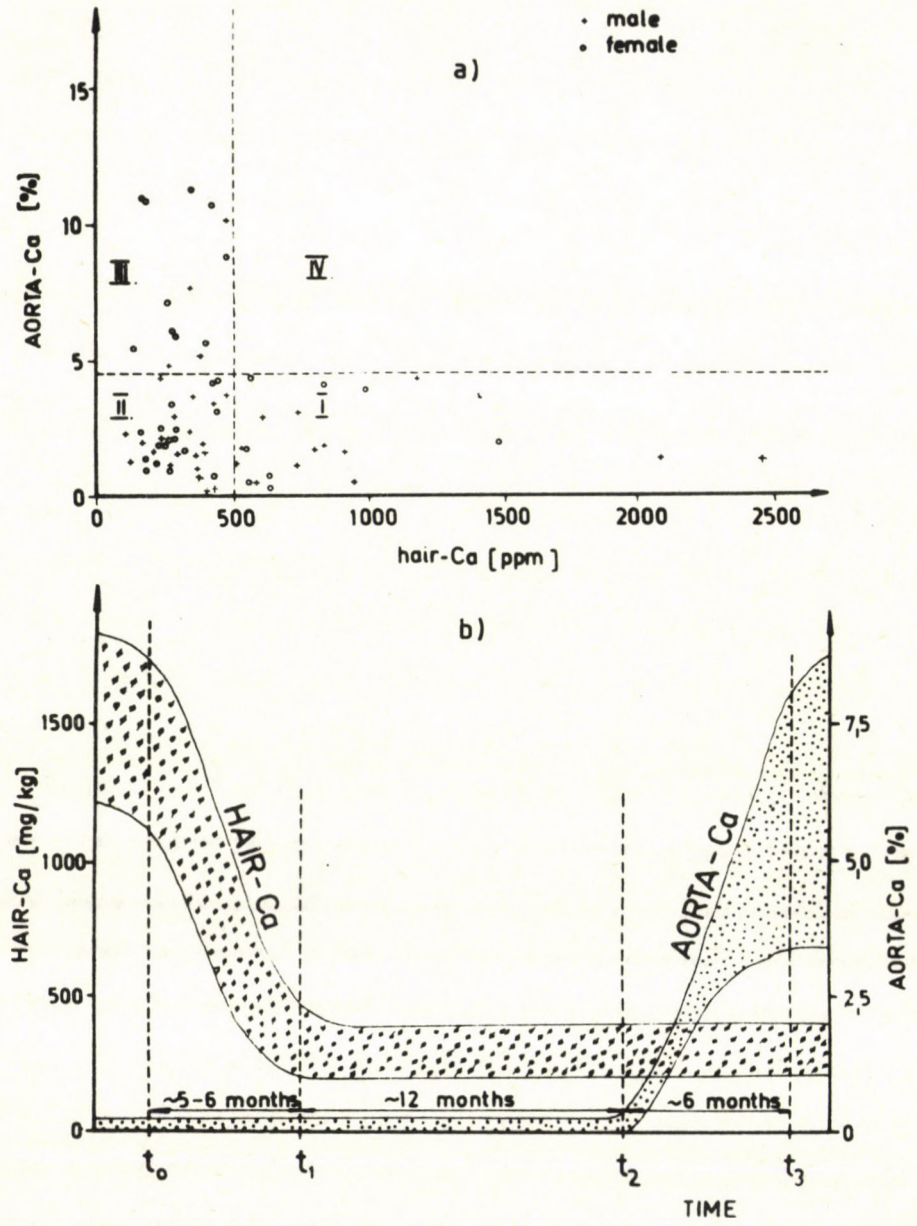


Fig. 5. a) Aorta Ca concentration against Ca concentration in hair.
b) Time-process figure for explanation of result in Fig. 5/a

It is established that hair is a metabolic end-product which records the metabolic rate of minerals at the time of its formation. So the mineral concentrations

in hair reflect the mineral metabolic rate variations in hair bulb (and probably in body). Contrary to hair the mineral content in vein wall tissue is changing very slowly, and remarkable changes in Ca content of aorta wall can be expected after a long-casting Ca metabolic trouble (calcification). The physiological considerations are shown in Fig. 5/b.

The negative character of correlation between hair Ca and aorta Ca is true (low aorta Ca level is accompanied by high Ca-level in hair and conversely), but no linear correlation can appear because of differences in physiological character of the tissues in question.

It is seen in the figure that the experimental data falling into the field I. (5/a) represent events occuring in tissue period 0 - to t_1 (5/b) when hair level is still high (Ca metabolic balance is normalized) or decreasing (Ca metabolic disorders have appeared recently). Experimental points falling into field II. (5/a) are events belonging to the $1_1 - t_2$ interval (5/b) when Ca value in hair is already low and Ca level in aorta is on low level as well. Results of field III. represent occurances of $t_2 - t_3$ interval and after t_3, respectively (5/b).

From the process-figure (5/b) it can be clearly seen that high Ca-level in hair is coupled only with low aorta Ca value (healthy state and upsetting of Ca-metabolism balance - first section of the disease) and high aorta Ca-values occur only with low hair Ca-values (end-development of disease when Ca-metabolic trouble causes sever alterations in the vessel-wall). On the basis of physiological consideration it is not surprising that high hair Ca and high aortic Ca can not exist simultaneously. High hair Ca-level is characteristic for Ca-metabolism balance, even high aortic Ca level characterises long lasting Ca-metabolic trouble.

It is obvious from the explanation outlined that decreasing of Ca in hair or its decreased value indicates the trouble of Ca-balance in advance before the appearence of clinical signs. So its determination seems to be suitable for pre-signalling many diseases, being in connection with Ca-metabolism balance trouble. The observation of the specific negative correlation between the Ca-level in hair and in aorta and its explanation appears to prove our suggestion with respect to the existence of a relationship between low Ca level in hair and CHD. So the results of Ca measurement

in beard can be used, in a sense as a model for Ca measurement in hair and inversely.

The fluctuation can be characterized with its frequency and amplitude.

The frequency of fluctuation in concentration of Ca in beard possess a short-time and a long-time character. The time period of short-term variation appears to be $\sim$ one day, maybe because of the one day resolution of measurement. In fact the time of fluctuation can be shorter. This type of alterations is believed to be caused by daily nutrition, although other causes (e.g. internal regulation, stress effect, etc.) cannot be excluded, as well.

The other type of variation possesses a long-term (or slow) character which has the period from $\sim$ 1 month to six-seven months. The cause of this variation is believed to be the regulation and/or external stress effect, but can be other cause, too.

The amplitude of both type of variations can vary from the smallest up to the full range of concentration. It means that the person with a strong fluctuation in Ca concentration in daily shaven beard can get into the other group relatively suddenly or slowly, or may remain there (in one or other group) for longer or shorter time. The amplitude of fluctuation is more intense for a person of the high Ca level group in the case of a person belonging to low Ca level group.

The intense fluctuation of Ca concentration in hair makes us able to study the cause of changing which can lead to forming of a preventive life style forestalling the Ca metabolism trouble and by this anticipating numerous sicknesses developing on the basis of Ca metabolic disorders.

References

1 W.B. Kannel : Established cardiovascular riskfactors. Framingham today. pp. 69-96 in Psychosomatic cardiovascular disorders - when and how to treat? Ed.: P. Kielholz, W. Siegenthaler, P. Taggart, A. Zanchetti, Hans Huber Publishers, Bern, Stuttgart, Vienna

2 Th. G. Aalbers : Cardiovascular Diseases and Trace Elements. Thesis, Interuniversity Reactor Institute, Deft, 1984

3 Becker B.J.P., Cardiovascular disease in the Bantu and coloured races of South Africa. S. Afr. J. Med. Sci. 11 (1946) 97-105

4 Taylor H.L. : Occupational factors in the study of coronary heart disease and physical activity, Canad. Med. Ass. J. 96 (1967) 825-831

5 Taylor H.L. et al. : Five-year follow-up of employees of selected US railroad

companies. In : A. Keys (Ed), Coronary Heart Disease in Seven Countries, Amer. Heart Ass. Monogr. No 29, 1970, pp 20-39

6 Menotti, A., Puddu, V., Monti, M. and Fidanza, F. : Habitual physical activity myocardial infarction, Cardiologia 54 (1969) 119-128

7 Key A. : Coronary Heart Disease - The Global Picture, Atherosclerosis 22 (1975) 149-192

8 Bacsó J., Lusztig G., Pál A., Uzonyi I.: Comparative investigation of some mineral elements in the aortic wall and the calcium-concentration of hair, Experimental Pathology, in press

9 Bacsó J., Kalinka G., Kertész Zs., Kovács P., Lakatos T. : High resolution Si/Li X-ray spectrometer with high throughput rate. ATOMKI Közl. 24 (1982) 133-146

10 Bacsó J., Kovács P., Horváth S. : Investigation of some inorganic compound in human hair, Radiochem. Radioanal. Letters 33/4 (1978) 273

11 Bacsó J., Horváth M., Horváth S., Balichky Tné, Mahunka Iné, Szücs M.: A haj Ca-szint és az ischaemiás szivbetegség közötti kapcsolat vizsgálata, Magyar Belorvosi Archivum 35 (1982) 245

12 Anderson T.W., Neri L.C., Schreiber G.B., Talbot F.D.F., Zdrojewski A.; Ischemic heart disease, water hardness and myocardial magnesium, CMA Journal (August 9, 1975) Vol. 113, pp. 199-203

13 Ohmori S., Tsuju, H., Kusaka Y., Takeshey T., Hayushi, T., Takada, J., Koyama, M., Kozuna, Z., Shinogi, M., Aoki, A., Katayama, K. and Motiyama T., Radiactivation analysis of hair : a means of biological monitoring of the environment. J. Radioanal. Chem. 63 269 (1981)

14 J. Bacsó : Short term and long term variations of Ca-concentration in beard. J. Radioanal. and Nucl. Chem., Art. 83/1 (1984) 167

Az ATOMKI Közlemények a Magyar Tudományos Akadémia Atommagkutató Intézetének riportjait gyüjti egybe, és negyedévenként jelenik meg. Terjeszti az ATOMKI Könyvtára (Debrecen, Postafiók 51, 4001). Tudományos intézetek és könyvtárak kiadványaikért cserébe vagy ellenszolgáltatás nélkül is megrendelhetik. Egyes számokat a Könyvtártól, egyes riportokat közvetlenül a szerzőktől (gyüjteményes riportok esetén a riportok szerkesztőitől) lehet kérni.

Szerkesztő Bizottság: Szalay Sándor elnök, Lovas Rezső titkár, Berényi Dénes, Cseh József, Csikai Gyula, Gyarmati Borbála és Medveczky László.

Kiadja a
Magyar Tudományos Akadémia
Atommagkutató Intézete
A kiadásért és szerkesztésért felelős
dr.Berényi Dénes, az intézet igazgatója
Készült a Kinizsi Szakszövetkezet
Nyomdájában
Törzsszám 65 764
Példányszám : 209
Debrecen, 1985 szeptember

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

ATOMKI KÖZLEMÉNYEK

Volume 27/ Number 3

CONTENTS

Berényi Dénes: Ciklotron Debrecenben

Kruppa András: Klasztermodellek

K. Balogh: K/Ar dating of Neogene volcanic activity in Hungary: Experimental technique, experiences and methods of chronological studies

L. Záborszky: NX-28 collimator control and driver instrument

Kovách Ádámné: Intézeti hirek 1984

Second Hungaro-Italian Symposium on Spectrochemistry: Natural Materials and Spectral Analysis. Proceedings (ed. by J. Bacsó and K. Zimmer)

539

HU ISSN 0004-7155

310.565
IV. 9

ATOMKI KÖZLEMÉNYEK

27. kötet / 4. szám

MTA
ATOMMAGKUTATÓ INTÉZETE, DEBRECEN / 1985

HU ISSN 0231-3685

ATOMKI Riport X/25 (1985)

A PÁRATLAN-PÁRATLAN ATOMMAGOK MODELLJEI*
II. ÁTMENETI MAGOK

Fényes Tibor

MTA Atommagkutató Intézet, Debrecen, H-4001, Pf. 51.

1. BEVEZETÉS
2. A KLASZTER VIBRÁCIÓS MODELL ÉS ALKALMAZÁSA PÁRATLAN-PÁRATLAN MAGOKRA
   2.1. A klaszter vibrációs modell
   2.2. A parabola szabály
3. A CSONKITOTT KVADRUPÓL FONON MODELL PÁRATLAN-PÁRATLAN MAGOKRA
4. A PARABOLA SZABÁLY ÉS A KISÉRLETI EREDMÉNYEK
5. BEFEJEZÉS

1. BEVEZETÉS

A jelen közlemény első része [1] azokkal a páratlan-páratlan atommagokkal foglalkozik, amelyekben a zárt maghéjak mellett két részecske** van. E magok a héjmodell alapján eredményesen tárgyalhatók, ha figyelembe vesszük a két nukleon közötti maradék kölcsönhatást is.

A második részben bemutatjuk a klaszter vibrációs modellt és alkalmazását az átmeneti páratlan-páratlan atommagokra. A modellből levezethető az un. "parabola szabály", ami jó közelitő leirást ad a proton-neutron multiplettek energiafelhasadására a magspin függvényében. Röviden tárgyaljuk a páratlan-páratlan atommagokra kidolgozott csonkitott kvadrupól fonon modellt. A kisérleti és elméleti eredmények összevetéséből következtetéseket vonunk le a parabola szabály érvényességére, használhatóságára.

---

* A miskolci Magfizikai Téli Iskolán (1985. január 21-25) elhangzott előadás második része.

**vagy két lyuk, vagy egy részecske és egy lyuk

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

2. A KLASZTER VIBRÁCIÓS MODELL ÉS ALKALMAZÁSA PÁRATLAN-PÁRATLAN MAGOKRA

2.1. A klaszter vibrációs modell

A klaszter vibrációs modellt (CVM) két részecskére Raz [2], háromra Alaga [3], négy részecskére Scharff-Goldhaber és Weneser [4] fejlesztette ki az ötvenes évek második felében. A modellről jó áttekintés található Alaga [5] és Paar [6] munkáiban. Itt csak a modell alapjait tárgyaljuk.

Ismeretes, hogy a középnehéz, páros-páros magok gerjesztésében a kvadrupól szabadsági fok alapvető szerepet játszik.

Bohr és Mottelson szerint [7] az atommag *harmonikus oszcillátor Hamilton operátora* a következő alakba irható:

$$H = \frac{1}{2}B_2 \sum_{\mu=-2}^{2} |\dot{\alpha}_2^{\mu}|^2 + \frac{1}{2}C_2 \sum_{\mu=-2}^{2} |\alpha_2^{\mu}|^2, \qquad (1)$$

ahol az első tag a kinetikus, a második a potenciális energiának felel meg,

B_2 a kollektiv mozgás tömegparamétere,

C_2 a magdeformálhatósági paraméter. A B_2 és C_2 oszcillátor állandókat az ω_2 frekvenciával a következő kapcsolat köti össze: $\omega_2 = \sqrt{C_2/B_2}$.

α_2^{μ}, ill. $\dot{\alpha}_2^{\mu}$ a harmónikus oszcillátor tér, ill. sebesség koordinátái.

Nem összenyomható, örvénymentes folyadék esetén [5]:

$$B_2 = \frac{1}{2}\,\frac{3}{4\pi}\,AMR^2,$$

$$C_2 = \frac{1}{4\pi}[71{,}2\,A^{2/3} - 1{,}42\,Z(Z-1)A^{-1/3}]\text{MeV},$$

ahol A, Z a tömeg- és rendszám,

M a nukleon tömege,

R a gömbszerü mag sugara, $R = 1{,}44\,A^{1/3}\,10^{-13}$ cm.

A C_2 kifejezésében az első tag a felületi, a második a Coulomb energiával kapcsolatos.

A másodkvantált formalizmus segitségével (l. pl. [8]-ban) az (1) Hamilton operátor a következő alakba irható [5]:

$$H = \sum_{\mu=-2}^{2} \hbar\omega_2(N_2^{\mu}+\tfrac{1}{2}) = \hbar\omega_2(N_2+\tfrac{5}{2}), \qquad (2)$$

ahol $N_2^{\mu} = b_2^{\mu+} b_2^{\mu}$,

$b_2^{\mu+}$, b_2^{μ} a kvadrupol fononok teremtési és megsemmisitési operátorai,

$N_2 = \sum_{\mu=-2}^{2} N_2^{\mu}$, N_2-számoperátor.

Előfordulhat, hogy reális magokban az oszcilláció anharmonikus. Anharmonicitást okozhatnak a Hamilton operátor elhanyagolt magasabb rendü tagjai és a részecske-vibráció kölcsönhatás, ha egy vagy több részecske van a magtörzs mellett.

Az átlag *kvadrupól tér - részecske kölcsönhatás* lineáris tagja a következő alaku [7]:

$$H_{int} = \mp k \sum_{\mu=-2}^{2} \alpha_2^{\mu} Y_2^{\mu *}(\Theta,\phi), \qquad (3)$$

ahol k a kölcsönhatási erősség,

α_2^{μ} deformációs paraméter,

Y_2^{μ} gömbharmonikus függvény,

Θ,ϕ a részecske szögkoordinátái.

A negativ, ill. pozitiv előjel a részecske-felület, ill. lyuk--felület kölcsönhatásra vonatkozik.

Ha két vagy több részecske van a vibráló magtörzs mellett, a Θ és ϕ koordinátákhoz indexet kell irni és összegezni kell minden részecskére (vagy lyukra).

A másodkvantált formalizmus segitségével a részecske-kvadrupól vibrációs kölcsönhatás Hamilton operátora a következő alakba irható [7,9]:

$$H_{int} = \sqrt{20\pi}\ a_2 |Y_2(b_2^{+} + b_2)|_o, \qquad (4)$$

ahol a_2 a kölcsönhatási erősség, amit hagyományosan a következő összefüggéssel definiálnak [9]:

$$a_2 = \frac{1}{3}\sqrt{4\pi}\ \left[\frac{1}{ZR^2}\langle k\rangle |B(E2;\ 2_1^{+} \to 0_1^{+})_{VIB}\right]^{1/2}. \qquad (5)$$

Itt B(E2) redukált elektromos kvadrupól átmeneti valószinüséget jelent.

A *klaszter vibrációs modell*ben nehány valenciahéj nukleon szabadsági fokait explicite figyelembe veszik. Ezeket a fermionokat röviden "klaszter"-nek nevezik, ami egy dinamikai alakulatot és nem tényleges nukleon asszociációt jelent. A klaszter részecskék mozgása a független részecske héjmodellel irható le, figyelembe véve a részecskék között ható "maradék" kölcsönhatást is. Az összes többi nukleont a magtörzshöz tartozónak tekintik, ami vibrációt végezhet. A vibráció anharmonikus jellegét a klaszter - magtörzs kölcsönhatáson keresztül veszik figyelembe. Következésképpen a klaszter vibrációs modell Hamilton operátora a következőképpen alakul [5]:

$$H = H_{SM} + \frac{1}{2} C_2 \sum_{\mu=-2}^{2} |\alpha_2^{\mu}|^2 + \frac{1}{2} B_2 \sum_{\mu=-2}^{2} |\dot{\alpha}_2^{\mu}|^2 \mp \sum_{\mu,i} \alpha_2^{\mu} Y_2^{\mu *}(\Theta_i,\phi_i) + H_{pair}, \qquad (6)$$

ahol H_{SM} és H_{pair} a független részecske héjmodell, ill. a párkölcsönhatás Hamilton operátora.

Itt a maradék kölcsönhatás hosszu, ill. rövid hatótávolságu részei a klaszter - vibráló magtörzs, ill. a monopol párkölcsönhatás utján lettek figyelembe véve.

A klaszter vibrációs modellben a *Pauli elvet* a Hilbert térnek csak kis részében veszik figyelembe. A nagyobb részben teljes átlagolást végeznek a héjmodell szabadsági fokokra; itt a modell kollektiv változókkal dolgozik és a Pauli elvet teljesen elhanyagolják. Természetesen interferencia is felléphet: a kollektiv mozgás elfoglalhat nivókat, amelyek többé nem állnak rendelkezésre a klaszter nukleonjai számára. Mindazonáltal

a klaszter valencia héj állapotok nem tul jelentősek a vibrátor hullámfüggvényeiben, mivel a vibráló magtörzs nukleonjai igen sok nivón oszlanak el. A modell e tökéletlensége nem nagyobb jelentőségü, mint a többi egyszerüsitő feltevés: a vibráció harmonikus jellege, kvadrupól fononokra való korlátozódás, a párkölcsönhatási közelités stb.

A páratlan-páratlan magoknál a *klaszterbe* egy protont és egy neutront, vagy három protont és egy neutront stb. foglalhatunk be. A kváziklaszter vibrációs modellben (Allaart és mások [10], Paar [6]) a páratlan-páratlan mag klasztere (egy kvázi-proton plusz kvázineutron)-nal közelithető.

A (6) *Hamilton operátor állandóit* a következő módon lehet meghatározni.

- A valenciahéj nukleonok egyrészecske energiái vehetők transzfer reakció adatokból (l. pl. a [11] munkát).
- A $\hbar\omega_2$ fonon energia közelitőleg megfelel a magtörzs 2_1^+ állapot energiájának,
- Az a_2 részecske - vibráció csatolási állandó becsülhető a szomszédos páros-páros magok $B(E2; 2^+ \to 0^+)_{vib}$ adataiból az (5) formula alapján. Egy jellemző becslés a <k> értékre: ≈40 MeV [7].
- A G párkölcsönhatási erősség a $G \approx 20/A$ formulával közelithető [12].

A (6) Hamilton operátor diagonalizálását célszerü a $|[j_1 \ldots . j_n]\, \tau J, NR; I>$ *bázison* végezni. Itt J az n részecske klaszter teljes impulzusnyomatéka, τ további kvantumszám (amennyiben szükséges) a klaszter állapot leirására, N a fononok száma; R a fononok eredő impulzusnyomatéka, I a rendszer teljes impulzusnyomatéka.

Ha az energia sajátértékek és a hullámfüggvények ismeretesek, kiszámithatók az atommag különböző sajátságai: elektromos és mágneses nyomatékok, redukált átmeneti valószinüségek, a nukleon transzfer reakciók spektroszkópiai faktorai stb.

A *klaszter vibrációs számitások helyesen reprodukálták* számos páros-páros és páratlan tömegszámu atommag energianivóit, B(M1), B(E2) redukált átmeneti valószinüségeit, elektromágneses nyomatékait stb. A klaszter vibrációs modell érdekes eredménye, hogy értelmezni tudja a kvázirotációs sávok kialakulását páros-páros atommagokban. Az Alaga modellel sikerült értelmezni az I = j - 1 anomáliát is, azaz számot lehetett adni az I = j-1 állapotok energiájának anomális csökkenéséről bizonyos páratlan tömegszámu magokban. Ez eredmények részletes kifejtését l. Paar [13], Abecasis és mások [14], Bargholtz és Beshai [15] stb. munkáiban.

2.2. A parabola szabály

Ahelyett, hogy a teljes kvantummechanikai számitás részleteibe belemennénk, a következőkben a *proton-neutron multiplett* energiafelhasadását fogjuk tárgyalni a $|(j_p j_n)I>=|j_p - j_n|, \ldots \ldots j_p + j_n$ függvényében.

A felhasadás jellemzésére Paar vezetett le analitikus kifejezéseket [9].

A multiplett tagok energiája [E(I)] a proton és neutron egyrészecske energiák (E_j, E_j) plusz kér korrekciós tag:

δE_2 és δE_1 összegeként állitható elő. Az utóbbiak a kvadrupól és dipól kölcsönhatási energiákat fejezik ki.

$$E(I) = E_{j_p} + E_{j_n} + \delta E_2(j_p,j_n,I) + \delta E_1(j_p,j_n,I). \qquad (7)$$

A proton-neutron kölcsönhatás a klaszter vibrációs modellben többféle módon megnyilvánul. A vezető (másod) rendben a kvadrupól és spin vibrációs fonon csere okoz kölcsönhatást a magtörzsön át. Fellép a proton vagy neutron sajátenergia-változás is, ami a multiplett általános eltolódását eredményezi, de nem befolyásolja a multiplett tagok relativ helyét. Negyed rendben sokféle kölcsönhatás lehetséges. Ezek analógiát mutatnak a bozon-fermion magrendszerekre levezetett Ward azonossággal [16]. Kimutatható, hogy a különböző korrekciók aszimptotikusan kiejtik egymást és igy a negyedrendü kölcsönhatások jó közelitésben elhanyagolhatók.

Az δE_2 kvadrupól fonon kicserélődési tag a (4) részecske-fonon kölcsönhatási operátorból számitható a másodrendü perturbációs elmélet segitségével (l. pl. [17]-ben). Feltéve, hogy az a_2 csatolási erősség egyenlő protonokra és neutronokra, δE_2-re a következő kifejezés adódik:

$$\delta E_2 = -\alpha_2 \nu \frac{[I(I+1)-j_p(j_p+1)-j_n(j_n+1)]^2 + I(I+1)-j_p(j_p+1)-j_n(j_n+1)}{2j_p(2j_p+2)2j_n(2j_n+2)} + \alpha_2 \frac{\nu}{12}, \qquad (8)$$

ahol $\alpha_2 = 15a_2^2/\hbar\omega_2$; a_2-re l. az (5) formulát,

ν a betöltési szám, $\nu = +1$, ha $|j_p>$ és $|j_n>$ egyaránt részecske vagy lyuk jellegü, $\nu = -1$, ha $|j_p>$ részecske és $|j_n>$ lyuk jellegü vagy forditva.

A (8) formula szerint δE_2 négyzetesen függ az $I(I+1)$-től; innen ered a "parabola szabály" elnevezés.

A spin vibrációs kölcsönhatás Hamilton operátora a következő alaku [18]:

$$H_1 = \sqrt{3}\, a_1[\vec{\sigma}_1 \times (b_1^+ + b_1)]_0,$$

ahol a_1 a csatolási erősség, $a_1 = \kappa_1\sqrt{\hbar\omega_1/2C_1}$.

$\vec{\sigma}_1$ a spin operátor,

b_1^+ az 1^+ spin vibrációs fonon teremtési operátora.

Az 1^+ fononcsere esetében a következő energia eltolódás adódik:

$$\delta E_1 = \alpha_1 \xi\{\frac{j_p(j_p+1)+ j_n(j_n+1)-I(I+1)}{(2j_p+2)(2j_n+2)}\}, \qquad (9)$$

ahol $\alpha_1 = 4a_1^2/\hbar\omega_1$. A [18] munkában található becslés szerint $\alpha_1 \simeq 40/A$ MeV. A gyakorlatban az $\alpha_1 \simeq 20/A$ MeV közelités néha jobbnak adódik.

ξ ismert függvénye a j_p- és j_n-nek, valamint a Nordh

számnak: $N = j_p - \ell_p + j_n - \ell_n$ [9].

Ha a kvázirészecske formalizmust használjuk, a kölcsön tási mátrixelemeket csökkenteni kell a betöltési (blocking) fektus miatt [11,18]. Ekkor a (8) és (9) formulákban az α értékeket a következő kifejezésekkel kell helyettesiteni [9

$$\alpha_2 = \alpha_2^{(o)} \left| (U_{j_p}^2 - V_{j_p}^2)(U_{j_n}^2 - V_{j_n}^2) \right|, \qquad \alpha_1 = \alpha_1^{(o)}, \qquad ($$

ahol V^2 a $|j_p>$ állapot betöltési valószinüsége; $V_j^2 + U_j^2 = 1$.

Természetesen a (8-9) kifejezések lehetőséget adnak a ratlan-páratlan magok alapállapoti spinének leirására is. A formulákból kiadódik Nordheim erős és első gyenge szabálya valamint egy nagyobb prediktiv erejü uj szabály a második g ge szabály helyett [9].

A (8-9) formulákat érdekes összevetni azon kifejezések amelyek a proton-neutron multiplettek zárt maghéjak mellett energiafelhasadását irják le (l. [1] 2. és 3. pontjait). A δE_2-re nyert (8) kifejezés a következő alakba irható $\Theta_{p,n}$ fi vényében [9]:

$$\delta E_2 = -\frac{1}{6}\alpha_2\sqrt{}\, P_2(\cos\Theta_{pn}) - \frac{1}{8}\alpha_2\sqrt{}\, \frac{P_1(\cos\Theta_{pn})}{[j_p(j_p+1)j_n(j_n+1)]^{1/2}}.$$

$\Theta_{pn}=0$ esetében a második tag - elég nagy j_n, j_p értékeknél - tipikusan nagyságrendileg kisebb az elsőnél. Ennek megfelelő az $\alpha_2\sqrt{}$-ra normált (relativ) matrixelemek a $P_2(\cos\Theta_{pn})$-el ar nyosak:

$$\frac{\delta E_2}{\alpha\sqrt{}} \simeq -\frac{1}{6}P_2(\cos\Theta_{pn}),$$

azaz a multiplett állapotok szögfüggése ugyanaz a különböző multiplettekre.

Az 1^+ fononcseréből eredő energiaeltolódás a $j_p \to \infty$, $j_n \to \infty$ klasszikus határesetben [9]:

$$\delta E_1 \simeq -\frac{1}{2}\alpha_1 P_1(\cos\Theta_{pn}).$$

Ez felel meg a dipól energia korrekciónak a multipól sorbafe tésben (l. [1] (13) formuláját), mig az előbb tárgyalt δE_2 kvadrupólnak.

Ujabban a parabola szabály érvényességét sikerült kiter jeszteni *proton-neutron-fonon multiplettekre* és *klaszter* áll potokra is. Paar a [19] munkájában formulákat ad a

$\{[(j_p,12)J,j_n]I\}$, $\{[(j_{1p})^n p j_p, j_n]I\}$ multiplett állapotok en giafelhasadására az I függvényében.

Várható, hogy a *parabola szabály jól müködik* azoknál a goknál, amik kifejezett kvadrupól jelleggel rendelkeznek (meg növekedett B(E2) redukált átmeneti valószinüség, megnövekede kvadrupól nyomaték stb.).

Ha a konfiguráció keveredés intenziv, eltérések várhatók a parabola szabálytól, mindazonáltal a multiplett energiafelhasadása nem tul érzékeny a hullámfüggvények keveredésére. A keveredés részben általános energiaeltolódást okoz a multiplett tagoknál, vagy (magasabb rendben) olyan energia tagokat hoz be, amelyek bizonyos fokig kölcsönösen kiejtik egymást. Bizonyos eltérések várhatók a parabola szabálytól zárt maghéjak közelében is, ahol a magtörzs polarizációs effektusok nem játszanak uralkodó szerepet.

3. A CSONKITOTT KVADRUPÓL FONON MODELL PÁRATLAN-PÁRATLAN MAGOKRA

Az (1) Bohr-Mottelson Hamilton operátor belső rendszerben van kifejezve és az energia sajátértékek, hullámfüggvények kiszámitása érdekében differenciálegyenletet oldanak meg. Az ujabb vizsgálatok eredményeként az (1) Hamilton operátor bozon (s, d bozon vagy kvadrupól fonon) reprezentációban is felirható, ez esetben a Hamilton operátort a bozon térben diagonalizálják.

Janssen, Jolos és Dönau [21,22] szerint a Bohr-Mottelson Hamilton operátor kifejezhető az SU(6) szimmetria kereteiben. A csonkitott kvadrupól fonon modell Hamilton operátora:

$$H_{TQM} = H_o + h_1\hat{N} + h_2\{(b_2^+ b_2^+)_{(o)}[(N_{max}-\hat{N})(N_{max}-1-\hat{N})]^{1/2} + H.C.\}$$
$$+ h_3[(b_2^+ b_2^+ \tilde{b}_2)_{(o)}(N_{max}-\hat{N})^{1/2} + H.C.] \qquad (11)$$
$$+ \sum_{L=0,2,4} h_{4L}[(b_2^+ b_2^+)_{(L)}(\tilde{b}_2 \tilde{b}_2)_{(L)}]_{(o)},$$

ahol $\hat{N} = \sum_\mu b_{2\mu}^+ b_{2\mu}$, H_o, h_1, h_2, h_3, h_{4L} és N_{max} paraméterek, amikre mikroszkópikus, konkrét kifejezéseket vezettek le,

b_2^+ és b_2 teremtési és megsemmisitési operátorok a kvadrupól fononokra,

$\tilde{b}_{2\mu} = (-1)^\mu b_{2-\mu}$.

N_{max} pozitiv egész szám, ami a fononok maximális számát határozza meg. N_{max} közelitőleg egyenlő a valencia részecskék számának felével.

H. C. hermitikus konjugált kifejezés.

A $b_{2\mu}^+ \sqrt{N_{max}-\hat{N}}$, $\sqrt{N_{max}-\hat{N}}\, \tilde{b}_{2\mu}$ és $b_{2\mu}^+ b_{2\mu}$ operátorok kielégitik az SU(6) algebra felcserélési relációit.

A H_{TQM} a csonkitott kvadrupól fonon modell Hamilton operátora (truncated quadrupole phonon model, TQM).

A H_{TQM} áttranszformálható a szokásos Bohr-Mottelson Hamilton operátorba. Az eredő tehetetlenségi nyomatékok, a tömegparaméterek és a potenciális energia a β, γ és N_{max} paraméterek függvényei.

Megjegyzendő, hogy a tapasztalat szintjén a TQM azonos a kölcsönható bozon (IBM) modellel. Ha a H_{TQM} és H_{IBM} paramétereit a kisérleti adatokhoz való illesztéssel határozzuk meg, a TQM és IBM azonos eredményeket ad [23,24].

Egy páratlan-páros mag Hamilton operátora az SU(6) szimmetria kereteiben a következő alakban irható fel [24]:

$$H_{PTQM} = H_P + H_{TQM} + H_{PVI}^{PTQM}, \tag{12}$$

ahol H_P az egyrészecske (vagy kvázirészecske) Hamilton operátor,

H_{TQM} az SU(6) kvadrupól fonon Hamilton operátor (11),

H_{PVI}^{PTQM} a részecske - vibráció kölcsönhatás operátora, amire [24]-ben explicit formulák találhatók.

Fenomenológiai szinten a PNQM (particle truncated quadrupole model) azonos a kölcsönható bozon-fermion modellel (IBFM).

Az SU(6) Hamilton operátor a páratlan-páratlan magokra a következő alakban adható meg (Paar: OTQM model [19]):

$$H_{OTQM} = \sum_{\rho=p,n} H_\rho + H_{TQM} + \sum_{\rho=p,n} H_{PVI}^{OTQM}(\rho) + H_{res}, \tag{13}$$

ahol H_ρ a független részecske héjmodell Hamilton operátora protonra ($\rho=p$) és neutronra ($\rho=n$),

H_{PVI}^{PTQM} a részecske-vibráció kölcsönhatás operátora protonra ($\rho=p$) és neutronra ($\rho=n$),

$H_{res} = H'_{SDI} + H_{STI} + H_{SSI}$,
ahol az első a felületi delta, a második a felületi tenzor, a harmadik a felületi spin kölcsönhatás operátora.

$$H'_{SDI} = 4\pi v_D \delta(r_p - R)\delta(r_n - R) \sum_{k>2} (-1)^k (2k+1)^{1/2} \{Y_k(p) Y_k(n)\}_o, \tag{14}$$

$$H_{STI} = v_T \{3(\vec{\sigma}_p \cdot \vec{r}_{pn})(\vec{\sigma}_n \cdot \vec{r}_{pn})/r_{pn}^2 - \vec{\sigma}_p \cdot \vec{\sigma}_n\} \delta(r_p - R)\delta(r_n - R), \tag{15}$$

$$H_{SSI} = 4\pi v_S \delta(r_{pn})\delta(r_p - R)\vec{\sigma}_p \cdot \vec{\sigma}_n, \tag{16}$$

ahol v_D, v_T és v_S a delta, tenzor, ill. spin kölcsönhatás erősségei,

$R = 1{,}2\ A^{1/3}$ fm,

$\vec{r}_{pn} = \vec{r}_p - \vec{r}_n$.

Megjegyzendő, hogy a k=2 komponenset nem foglaltuk a felületi delta kölcsönhatásba, mivel ez már figyelembe lett véve a parabola szabályban a kvadrupól fonon cserénél.

A spin-spin maradék kölcsönhatás (16) dipól komponense hasonló effektust ad, mint a spin-vibrációs fonon csere, ami a parabola szabályban a (9) formulával van figyelembe véve.

A SD és ST kölcsönhatások diagonális mátrixelemeit már

vizsgálták a héjmodellben, pl. De-Shalit és Walecka [25].

A (13) Hamilton operátor numerikus diagonalizálására Vretenar és Brant számitógép programot irtak és a számitások jelenleg folyamatban vannak.

A SD, ST és SS kölcsönhatások eltéréseket hozhatnak be a multiplett energiafelhasadásába az I(I+1) függvényében. Dombrádi és munkatársai becslést végeztek a δ és magtörzs polarizációs kvadrupól kölcsönhatások relativ erősségére a középnehéz magoknál [26]. Az adódott, hogy a kvadrupól kölcsönhatás uralkodó a magok többségében, de a zárt héjak közelében a δ kölcsönhatás erősebb lehet.

4. A PARABOLA SZABÁLY ÉS A KISÉRLETI EREDMÉNYEK

Az ^{114}In [27] és ^{116}In [28] kisérleti nivósémáinak összevetése az elméleti eredményekkel az 1. ábrán látható. A számitásokat a (7-10) formulákkal végeztük. Az ^{114}In és ^{116}In $\pi\tilde{g}_{9/2}\nu\tilde{g}_{7/2}$, $\pi\tilde{g}_{9/2}\nu\tilde{s}_{1/2}$, $\pi\tilde{g}_{9/2}\nu\tilde{d}_{3/2}$, $\pi\tilde{g}_{9/2}\nu\tilde{h}_{11/2}$ multiplettjeinél a kisérleti adatokkal akkor nyertük a legjobb egyezést, ha a számitásoknál $\alpha_2^{(o)} = 8{,}7$ MeV és $\alpha_1^{(o)} \simeq 15/A = 0{,}13$ MeV csatolási állandókat használtunk. Az $\alpha_2^{(o)}$ érték közel van a 9,4 MeV-hez, ami a szomszédos ^{114}Sn, ^{116}Sn, ^{118}Sn és ^{114}Cd magok B(E2; $2_1^+ \to 0_1^+$) adataiból adódik (az $\alpha_2^{(o)} = 382\ \beta_2^2/\hbar\omega_2$ formula alapján; l. (5)-öt is).

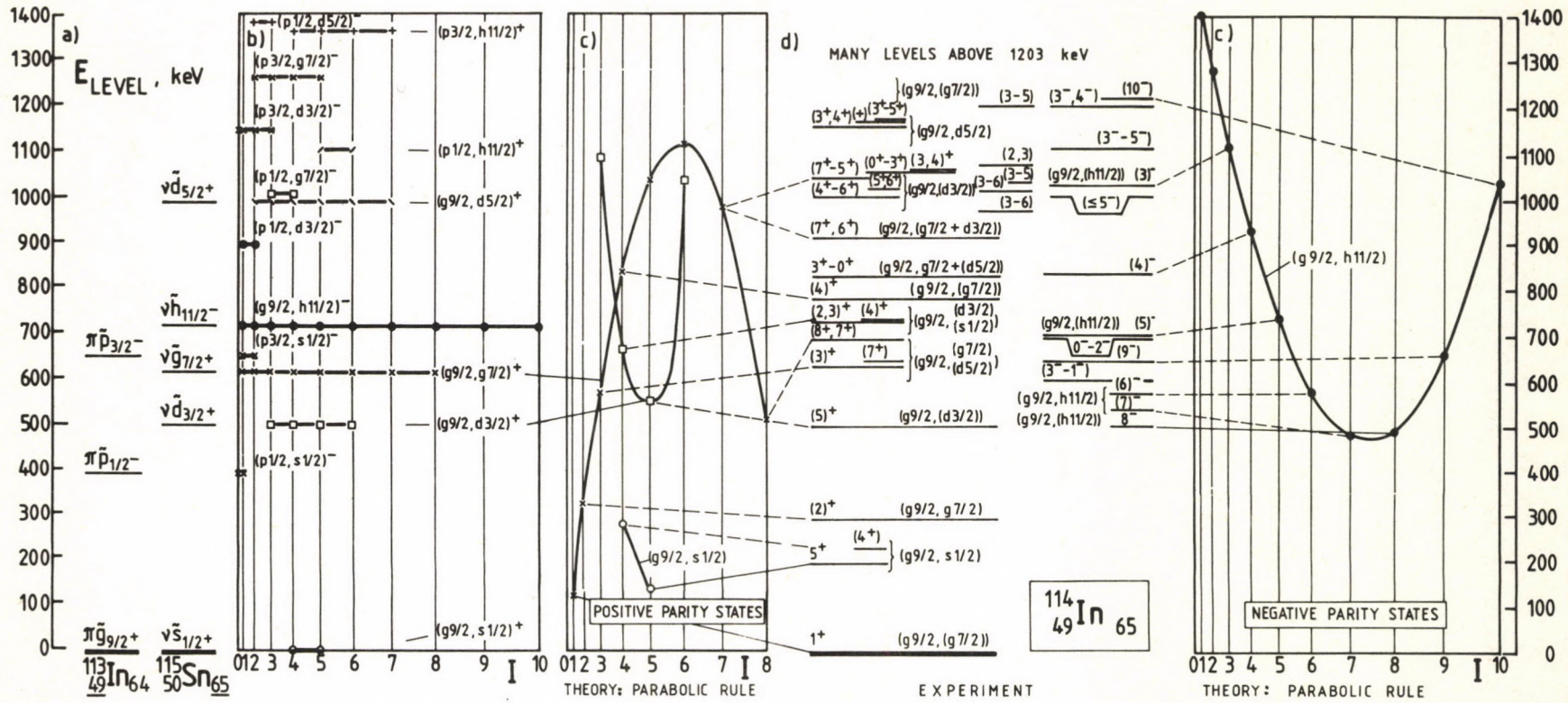
A kisérleti és elméleti nivók egymáshoz rendelését az energia, spin és paritás értékek, valamint a nivókonfigurációk alapján végeztük. A szomszédos multiplett nivók között észlelt erős M1 átmenetek szintén segitettek az állapotok azonositásában.

A számitások jól visszaadják a nivóenergiák függését a spinektől, azaz a görbék alakját.

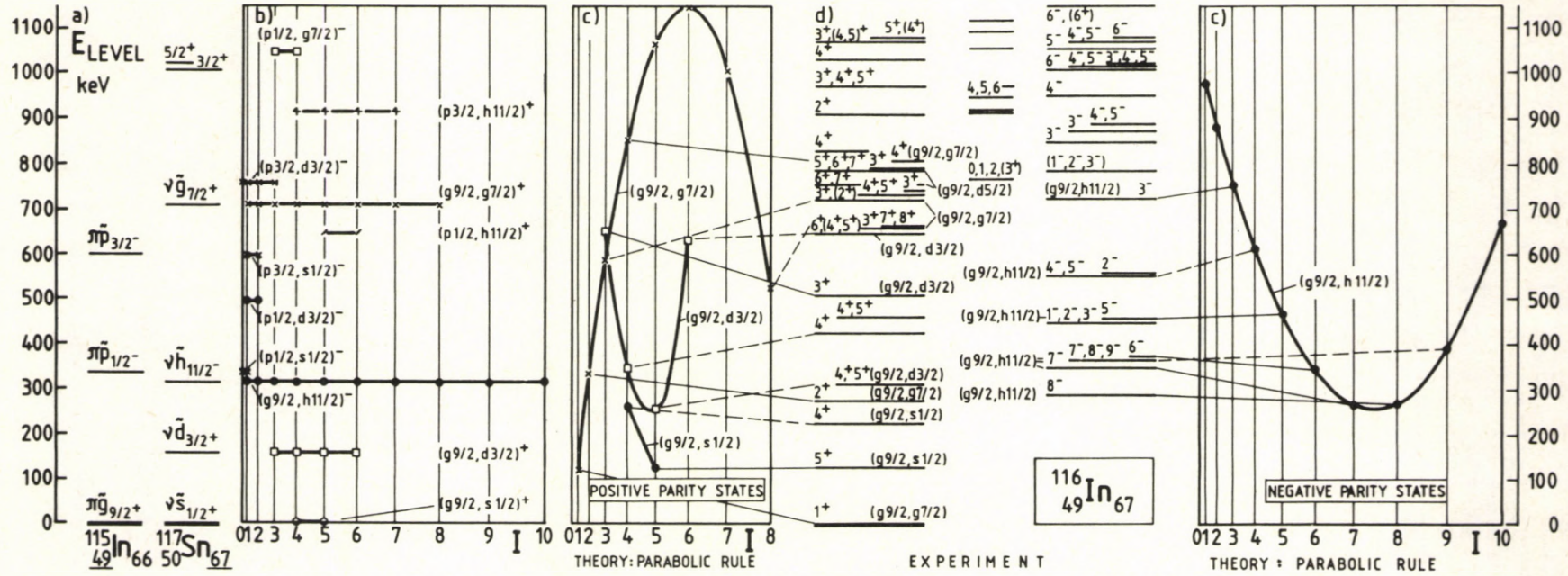
Minden multiplettnél egy általános normalizáló tagot használtunk, ami feljebb (vagy lejebb) tolta az összes multiplett tagot annak érdekében, hogy optimális egyezést nyerjünk a kisérleti eredményekkel. E normalizálás után mind a ∿35 ^{114} és ^{116}In-ban azonositott $\pi\tilde{g}_{9/2}\nu\tilde{s}_{1/2}$, $\pi\tilde{g}_{9/2}\nu\tilde{g}_{7/2}$, $\pi\tilde{g}_{9/2}\nu\tilde{d}_{3/2}$, $\pi\tilde{g}_{9/2}\nu\tilde{h}_{11/2}$ multiplett tag ∿90 keV közepes eltéréssel reprodukálható volt, ugyanazon $\alpha_2^{(o)}$ és $\alpha_1^{(o)}$ paramétereket használva minden multiplettnél.

Itt emlitem meg, hogy az ^{114,116}In nivórendszerek értelmezésénél figyelemreméltó eredményeket ért el Van Gunsteren a kváziklaszter vibrációs modellel is ugy, hogy egy proton lyukhoz "szám kivetitett" neutron kvázirészecskét csatolt [29].

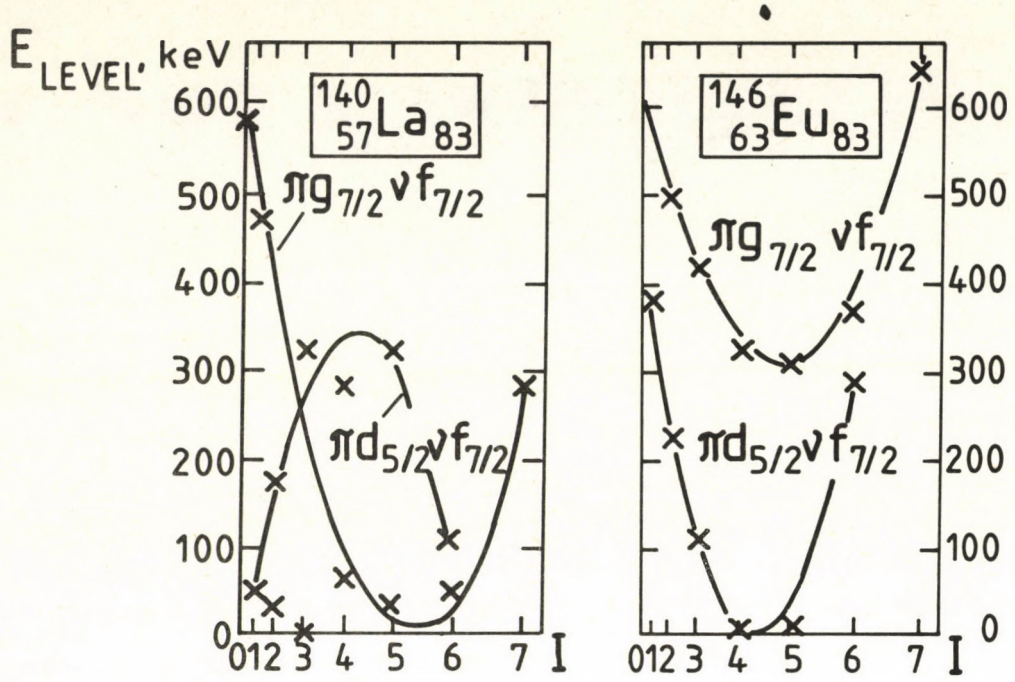
A $\pi\tilde{g}_{7/2}\nu f_{7/2}$ és $\pi\tilde{d}_{5/2}\nu f_{7/2}$ multiplettek felhasadása az $^{140}_{57}La_{83}$ és $^{146}_{63}Eu_{83}$-nál a 2. ábrán látható. A számitások helyesen reprodukálják a $\pi\tilde{d}_{5/2}\nu f_{7/2}$ parabola átfordulását, amint a rendszám 57-ről 63-ra növekszik, azaz a $\pi\tilde{d}_{5/2}$ részecskeszerü állapot átalakul lyukszerü állapottá. Ugyanakkor nem észlelhető változás a parabola irányultságában a $\pi\tilde{g}_{7/2}\nu f_{7/2}$ multiplettnél, mivel a $\pi\tilde{g}_{7/2}$ állapot lyuk jellegü mindkét atommagban.



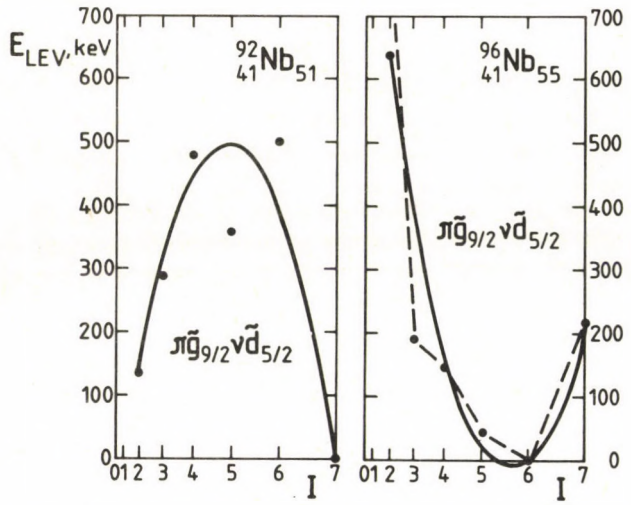
1/A. ábra. Az ábraaláirást l. az 1/B. ábránál.



1/B. ábra. Proton-neutron kvázirészecske multiplett állapotok az ^{114}In (A) és ^{116}In (B) atommagokban. a/ Az ^{113}In, ^{115}Sn és ^{115}In, ^{117}Sn alacsonyan fekvő nivóinak energiái és konfigurációi transzfer reakció adatok és elméleti modellszámitások alapján. b/ A ^{114}In és ^{116}In zérórendü közelitésben várható alacsonyan fekvő állapotai. Az abszcisszán az I(I+1) értékek vannak feltüntetve, ahol I az állapot spinje. c/ Nehány multiplett energiafelhasadása a kvadrupól és spin vibrációs fononcsere eredményeként. d/ Kisérleti nivósémák. A feltüntetett konfigurációk neutron transzfer kisérletekből lettek meghatározva.



2. ábra. A ^{140}La és ^{146}Eu egyes multiplettjeinek nivóenergiái az I(I+1) függvényében; I az állapot spinje. Az adatok Walters és munkatársai [30] közleményeiből származnak.



3. ábra. A $\pi\tilde{g}_{9/2}\nu\tilde{d}_{5/2}$ multiplett tagok kisérleti energiái a ^{92}Nb és ^{96}Nb-nél (pontok). A parabola szabály számitás eredményeit folytonos, a multipól sorfejtési (lényegében véve δ plusz spin-spin maradék kölcsönhatást figyelembe vevő héjmodell) számitások [31] eredményeit szaggatott görbe jelzi.

Bizonyos eltérések tapasztalhatók a parabola szabálytól a $^{92}_{41}Nb_{51}$ és $^{96}_{41}Nb_{55}$ $\pi\tilde{g}_{9/2}\nu\tilde{d}_{5/2}$ multiplettjénél (a Z = 40 és N = 56 alhéjak közelében). A 3. ábra szerint a parabola megfordulása jól reprodukálható, de egyes kisérleti adatok eltérnek az elméleti görbétől. A ^{96}Nb alapmultiplettjére vonatkozó kisérleti adatok viszont jól reprodukálhatók multipól sorfejtési (l. [1] 4.3. pontját) számitásokkal [31].

Parabola szabály számitásokat végeztek még a ^{48}Sc [9], ^{70}Ga [32], ^{80}Br [33], ^{82}Br [34], ^{94}Tc [9], ^{96}Nb [31], ^{98}Tc [35], ^{100}Tc [36], ^{122}Sb [9], ^{142}Pr, ^{144}Pm [30] és ^{196}Tl [9] magoknál is.

Összefoglalóan megállapitható, hogy a parabola szabály számitások nagyon hasznosnak bizonyultak a proton-neutron és más multiplett állapotok leirására a középnehéz páratlan-páratlan magoknál.

a/A ^{116}In, ^{114}In, ^{100}Tc, ^{98}Tc, ^{96}Nb, ^{92}Nb, ^{82}Br és ^{70}Ga-nál azonositott kb. 80 multiplett állapotnál a számitások minden esetben helyesen reprodukálják a parabolák irányát (azaz, hogy felfelé vagy lefelé nyitottak). A minimális energiáju multiplett tagok is majdnem minden esetben helyesen adódnak ki.

b/ Amint azt a 2. és 3. ábrák mutatják a ^{140}La - ^{146}Eu és ^{92}Nb-^{96}Nb esetében, a nukleon állapotok betöltési valószinüség változását a (10) formula U_j-V_j faktora helyesen reprodukálja. Hasonló a helyzet a ^{94}Tc, ^{96}Tc és ^{98}Tc esetében is.

c/ A ^{116}, ^{114}In és ^{96}Nb megbizhatóan azonositott multiplettjeinél azt találtuk, hogy $\alpha_1^{(o)} / \alpha_2^{(o)} \approx 0{,}03$, azaz a dipól kölcsönhatás a kvadrupólhoz viszonyitva általában gyenge.

d/ Mint azt emlitettük, a ^{114}, ^{116}In multiplett tagok energiáit egy normalizáló eltolás után ~90 keV átlageltéréssel sikerült reprodukálni. Hasonló (bizonyos esetekben nagyobb) átlag eltérés volt észlelhető a ^{98}Tc, ^{100}Tc és ^{70}Ga esetében. A kisérleti adatok bizonytalanságán kivül az eltérések különböző okokra vezethetők vissza: az állapotok konfiguráció keveredése, a paraméterek meghatározásának nem optimális elvégzése, a magasabb rendü tagok és más korrelációk elhanyagolása stb.

e/ Távolabb a zárt héjaktól a kvadrupól kölcsönhatás dominál és itt simább parabolák adódnak (l. pl. a $\pi\tilde{g}_{9/2}\nu\tilde{h}_{11/2}$ multiplettet az ^{114}, ^{116}In-nál).

f/ Kétszeresen mágikus számoknál, vagy alhéj lezáródásoknál, ahol a kvadrupól gerjesztési mód nem tul erős, más kölcsönhatási módok játszhatnak fontos szerepet. Bizonyos eltérések voltak észlelhetők a paraboláktól a $^{92}_{41}Nb_{51}$ és $^{96}_{41}Nb_{55}$ esetében. Ugyanakkor a multipól sorfejtési (lényegében δ plusz spin-spin maradék kölcsön hatást figyelembe vevő héjmodell) számitások a ^{96}Nb alapmultiplett energiáit jól reprodukálják.

5. BEFEJEZÉS

Végezetül megemlitem, hogy az átmeneti páratlan-páratlan atommagok sikerrel tárgyalhatók a többrészecskés héjmodell (Haritonov, Alexejev és mások, l. részletesebben [1] 4.2.pontjában), valamint a kvázirészecskés héjmodell (Artamonov és Iszakov [37]) kereteiben is.

Uj fejlemény, hogy a közelitő algebrai szuperszimmetria érvényességét - az eddigi páros-páros és páratlan-páros magosztályok mellett - a páratlan-páratlan magokra is sikerült kiterjeszteni az OTQM modell SU(3) határesetében [19].

Hübsch és munkatársai a Spin(6) bozon-fermion dinamikus szimmetria érvényét kiterjesztették a páratlan-páratlan magok az esetére, amelynél az SO(6) kollektiv magtörzshöz egy-egy j=3/2 konfigurációju proton, ill. neutron járul [38]. Megfelelő formulát adnak meg a páratlan-páratlan atommag energianivóinak leirására, ami szoros analógiát mutat a páratlan-páros rendszerekre nyert formulával. Ilyen tipusu szimmetria megjelenése várható az Ir-Pt-Au tartományban, mivel e magoknál alacsonyan fekvő $\pi\tilde{d}_{3/2}\nu\tilde{p}_{3/2}$ kvázirészecske állapotok vannak és a magtörzs SO(6) bozon szimmetriát mutat.

Hálával tartozom Dr. V. Paar professzornak, valamint Dr. Dombrádi Zsolt és Timár János fizikusoknak a téma többszöri megvitatásáért.

IRODALOM

[1] T. Fényes, ATOMKI Közl. 27 (1985) 165
[2] B. J. Raz, Phys. Rev. 114 (1959) 116
[3] G. Alaga, Bull. Am. Phys. Soc. 4 (1959) 359
[4] G. Scharff-Goldhaber and J. Weneser, Phys. Rev. 98 (1955) 212
[5] G. Alaga, Proc. Int. School of physics "Enrico Fermi" Course XL, Varenna, 1967, ed. M. Jean and R. A. Ricci (Academic Press, New York, 1969) p. 28
[6] V. Paar, Structure of medium-heavy nuclei, Rodes, 1979, ed. by the "Demokritos" Tandem Acc. Group (Inst. Phys. Conf. Ser. no 49, Bristol, 1979) p. 53
[7] A. Bohr and B. R. Mottelson, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 27 (1953) no. 16
[8] V. Gillet, Proc. Int. School of physics "Enrico Fermi" Course XXXVI, Varenna, 1965, ed. C. Bloch (Acad. Press, New York, 1966) p. 43
[9] V. Paar, Nucl. Phys. A331 (1979) 16; Fizika 11 (1979) 209
[10] K. Allaart, P. Hofstra and V. Paar, Nucl. Phys. A366 (1981) 384
[11] L. S. Kisslinger and R. A. Sorensen, Rev. Mod. Phys. 35 (1963) 853
[12] В.Г. Соловьев, Теория атомного ядра, Ядерные модели, (Энергоиздат, Москва, 1981) стр. 182
[13] V. Paar, Nucl. Phys. A211 (1973) 29
[14] S. M. Abecasis, O. Civitarese and F. Krmpotić, Z. Phys. A278 (1976) 309
[15] Chr. Bargholtz and S. Beshai, Z. Phys. A283 (1977) 89
[16] V. Paar, Phys. Lett. 60B (1976) 232;
V. Paar and S. Brant, Phys. Lett. 74B (1978) 297;
V. Paar and S. Brant, Nucl. Phys. A303 (1978) 96
[17] L. I. Schiff, Quantum mechanics (McGraw-Hill, New York, 1955) p. 244
[18] A. Bohr and B. R. Mottelson, Nuclear structure, vol. II (Benjamin, New York, 1975)

[18] A. Bohr and B. R. Mottelson, Nuclear structure, vol. II (Benjamin, New York, 1975)
[19] V. Paar, Proc. Int. Symp. on in-beam nuclear spectroscopy, Debrecen, 1984, ed. Zs. Domgrádi and T. Fényes, (Akad. Kiadó, Budapest, 1984) p. 675
[20] L. W. Nordheim, Rev. Mod. Phys. 23 (1951) 322; M. H. Brennan and A. M. Bernstein, Phys. Rev. 120 (1960) 927
[21] D. Janssen, R. V. Jolos and F. Dönau, Nucl. Phys. A224 (1974) 93
[22] R. V. Jolos, F. Dönau and D. Janssen, Teor. Mat. Fiz. 20 (1974) 112
[23] V. Paar, in Interacting bosons in nuclear physics, ed. F. Iachello (Plenum Press, New York, 1979) p. 163
[24] V. Paar, S. Brant, L. F. Canto, G. Leander and M. Vouk, Nucl. Phys. A378 (1982) 41
[25] A. De-Shalit and J. D. Walecka, Nucl. Phys. 22 (1961) 184
[26] Zs. Dombrádi, A. Krasznahorkay and Zs. Schram, közlés alatt
[27] T. Fényes, T. Kibédi, J. Timár, A. Passoja, M. Luontama, W. Trzaska and V. Paar, Abstracts of the Int. Symp. on in-beam nuclear spectroscopy, Debrecen, 1984 (ATOMKI, Debrecen, 1984) p. 22; a dolgozat közlés alatt
[28] J. Blachot, J. P. Husson, J. Oms, G. Marguier and F. Haas, Nucl. Data Sheets 32 (1981) 287
[29] W.F. Van Gunsteren, Nucl. Phys. A265 (1976) 263
[30] W. B. Walters, C. Chung, J. S. Brenner, A. Aprahamian, R. L. Gill, R. E. Chrien, M. Schmid, A. Wolf and L.-J. Yuan, Phys. Lett. 125B (1983) 351; C. Chung, W. B. Walters, D. S. Brenner, A. Aprahamian, R. L. Gill, M. Schmid, R. E. Chrien, L.-J. Yuan, A. Wolf and Z. Berant, Phys. Rev. C28 (1983) 2099; W. B. Walters, Proc. Int. Symp. on in-beam nuclear spectroscopy, Debrecen, 1984, ed. Zs. Dombrádi and T. Fényes (Akad. Kiadó, Budapest, 1984) p. 251
[31] B.D. Kern, T. Fényes, A. Krasznahorkay, Zs. Dombrádi, S. Brant and V. Paar, Nucl. Phys. A430 (1984) 301
[32] T. Fényes, J. Gulyás, T. Kibédi, A. Krasznahorkay, J. Timár, S. Brant and V. Paar, Nucl.Phys. A419 (1984) 557
[33] J. Döring, G. Winter, W. D. Fromm, L. Funke, P. Kemnitz, E. Will, Z. Physik 316 (1984) 75
[34] T. Fényes, Z. Gácsi, J. Gulyás, T. Kibédi, A. Krasznahorkay, S. László and D. Novák, Phys. Scr. 29 (1984) 51
[35] Z. Árvay, T. Fényes, J. Gulyás, T. Kibédi, E. Koltay, A. Krasznahorkay, S. László and D. Novák, Phys. Scr. 26 (1982) 57
[36] Z. Árvay, T. Fényes, J. Gulyás, T. Kibédi, E. Koltay, A. Krasznahorkay, S. László, V. Paar, S. Brant and Z. Hlousek, Z. Phys. A299 (1981) 139
[37] Sz. A. Artamonov, V. I. Iszakov, Izv. AN SSSR, szer. fiz 43 (1979) 2071
[38] T. Hübsch, V. Paar and D. Vretenar, Phys. Lett. B151 (1985) 320

ATOMKI Riport C/3 (1985)

RADIOACTIVATION AND RADIOACTIVE TRACER METHODS FOR RESEARCH RELATED TO THE PROTECTION OF THE ENVIRONMENT AND HUMAN HEALTH AT THE JOINT RESEARCH CENTRE - ISPRA [x]

E. Sabbioni
Commission of the European Communities
Joint Research Centre - Ispra Establishment
Radiochemistry and Nuclear Chemistry Division
21020 Ispra (Va) - Italy

Trace metals were amongst the earliest pollutants to be the subject of Community research. This is because the Community's environmental policy acknowledged that the potential risks of exposure to certain metals such as Pb, Cd, Hg, Ni, As, Cr required regulatory actions[1]. These actions involve the preparation of criteria documents for each metal. This is essentially a scientific task which requires an integrated multi-disciplinary approach[2]. In this context, research on trace metal pollution at the Joint Research Centre - Ispra aims to contribute to the establishment of exposure-effect relationships. In particular, the research includes two main activities: (i) the evaluation of anthropogenic sources of trace metals in order to estimate their current and possible future emission fluxes and to assess the predominant environmental critical pathways; (ii) environmental toxicology studies. The main investigations in this area are primarily concerned with the microdetermination of trace metals in human tissues in order to generate a data base on levels and biochemical forms of differently exposed humans as well as with the metabolism of trace metals to assess the toxicological significance of their current levels in human tissues[3].

NUCLEAR AND RADIOCHEMICAL TECHNIQUES

Although the experimental studies also carried out using routine analytical techniques such as AAS and ICP, a major role is also played by nuclear and radioactive tracer methods in combination with biochemical techniques of cellular fractionation[4].

Neutron activation analysis (NAA) with its multielement character and high sensitivities for many elements allows the reliable and accurate microdetermination of trace metals in environmental samples (coal, fly ashes, soils, plants) and biological specimens (tissues, body fluids, intracellular components and isolated macromolecules such as enzymes and nucleic acids[5,6,7]). In addition, NAA is used for the quality assurance of metal determinations at ppb levels in human tissues by combining it with routine techniques such as AAS and radiotracer use[8]. Thus, information can be obtained on the parameters affecting the analytical determination such as sources and maximum potential contaminations during sampling (analysis and release of materials coming in contact with tissues and containers for storage) and sample handling (behaviour of trace metals during the prepara-

[x] Contributed paper, Second Hungaro-Italian Symposium on Spectrochemistry : Natural Materials and Spectral Analysis, Budapest, 10-14 June, 1985

tion of the sample for analysis including preconcentration and removal of the organic matrix and the use of biochemical techniques for cellular fractionation[9]). Although the advent of sophisticated and computerized high resolution γ-ray spectrometry makes possible the determination of at least 15-20 elements by instrumental NAA (INAA), some elements of great environmental and toxicological interest, e.g. Ag, As, Ba, Cd, Cu, Hg, Mo, Se, cannot be determined in most cases purely by INAA. Radiochemical separations are required before the measurement of the neutron activated sample (RSNAA) allowing the determination of 30-35 elements in each sample[10]. This is particularly important in biomedical trace metal research, e.g. to develop indicators of exposure for possible clinical use.

The radioisotopes with very high specific radioactivity provide the "key tool" for toxicological investigations. They are produced at the cyclotron (AVF of Milan University and of the JRC-Ispra[11]) by proton or alpha activation of metallic targets from which they are separated radiochemically[12]. The radioactive tracers permit metabolic studies of trace metals (chemobiokinetics, absorption, distribution and excretion) in laboratory animals exposed by various routes of administration to different chemical forms of low levels of trace metals[13]. In addition, they are currently used to investigate the biochemical mechanisms involving trace metals providing information on the biochemical action(s) responsible for their retention and biotransformation in the cell[14].

The preparation of metal-labelled metallo-organic species of great environmental and toxicological interest such as ^{73}As-betaine, ^{73}As-choline[15], ^{48}V-porphyrine[16], ^{203}Pb-tetraethyllead[17], ^{201}Tl-dimethylthallium[18], is particularly important.

SOURCES AND ENVIRONMENTAL PATHWAYS OF TRACE METALS

Assessment studies on current and future trace metal releases from different pollution sources are largely directed towards aspects of energy production (coal-fired power plants (CFPP)). The aim of these studies is to answer the question of in which order of magnitude CFPPs contribute to trace metal pollution in the EC countries[19]. The evaluation of the environmental dispersion of the released trace metals is based on the use of dynamic environmental models (system analysis). This is an advanced approach for the prediction of the time-dependent movement of trace metals through the environmental compartments[20]. These studies receive input from selected experimental activities including:

i) Chemical analysis of environmental samples to generate data base where information was lacking. Typical environmental samples analysed by NAA were fly ashes from CFPPs and a municipal incinerator, sewage sludge and phosphatic fertilizer samples. Natural radioactive emissions such as that due to the U-238 content of coal have also been considered by counting fly ash samples by high resolution γ-ray spectroscopy. Uranium in coal samples has been found to be in secular radioactive equilibrium with its daughters, as is shown by the good agreement of U values obtained by NAA and the Ra-226 values from γ-ray spectrometry.

ii) Laboratory experiments such as water leaching from coal-fly ash to generate specific "key data" to be introduced in the dispersion model. Leaching experiments are carried out in batch, in column or on neutron activated ashes[21]. In particular, using the radiotracer techniques, the distribution coefficients of trace metals between coal fly ash and distilled and sea water have been determined taking into account some factors governing the leachability of trace metals from the ash

(surface concentration, chemical form, pH of the water, EV, pCO_2). Trace metals which in alkaline aqueous solutions tend to form anions like As, Sb, Se, Te, Cr, W, Mo, preferentially are found in the leachate of the fly ash together with the easily soluble alkali elements (Ca^{2+}, Cl^-, Br^-). These species are more mobile than cationic species of elements such as Cd^{2+} and Ni^{2+} [22].

METALLOTOXICOLOGICAL STUDIES

The manyfold tasks of this research concern the elucidation of potential toxic effects of trace metals on man and the establishment of the related threshold levels. Particular attention is paid to the relationships between trace metal concentrations in specific biological materials and their concentration in critical organs, as well as to the biotransformations in the body which change the chemical form of the element originally released to the environment. The metallotoxicological research is focused on the metabolism in laboratory animals of current environmental levels of elements such as As, Cd, Cr, Tl, V[23,24,25,26,27], which play a major role in CEC regulatory actions. The studies include comparative investigations in different animal species. The case of the metabolic patterns of inorganic and environmental organic forms of As such as As-betaine in rats, rabbits, mice and marmoset monkeys, is one of the best examples of the considerable progress made in this area[28].

The investigations are not on laboratory animals only. NAA plays a fundamental role in research on tissues of human origin. Particular attention is paid to the monitoring of trace metals in tissues of unexposed population groups as well as in selected human populations affected by lung and kidney diseases such as occupational workers and uremic patients under hemodialysis[29] (or not) integrating trace metal levels with the medical response. In addition, NAA is used to study potential indicators of body-burden during life time (hairs, nails and bronchoalveolar lavage (BAL) collected by fibro-optic bronchoscope). Examples of studies on populations of industrial workers are related to the determination of vanadium in subjects cleaning and repairing oil-fired boilers[30] and of chromium in the nasal mucosa of chromium refinery workers[31]. Clinical cases investigated involved the determination of rare earths in lung and lymph node, biopsies of 2 photoengravers[32] affected by pneumoconiosis (Fig. 1 and Table 1), and of trace metals in the lung biopsy, blood, urine and bronchoalveolar lavage of a subject affected by hard-metal pneumoconiosis[33].

TABLE 1 - Neutron activation analysis of rare earths in the lung biopsy of a photoengraver and control subjects

Element	Concentration (ppb wet weight)	
	Worker	Controls
Ce	166500	70.6
Nd	57750	46.2
La	45600	16.6
Sm	4550	2.5
Yb	252	3.5
Tb	230	1.7
Eu	87.5	1.2
Lu	25	0.4

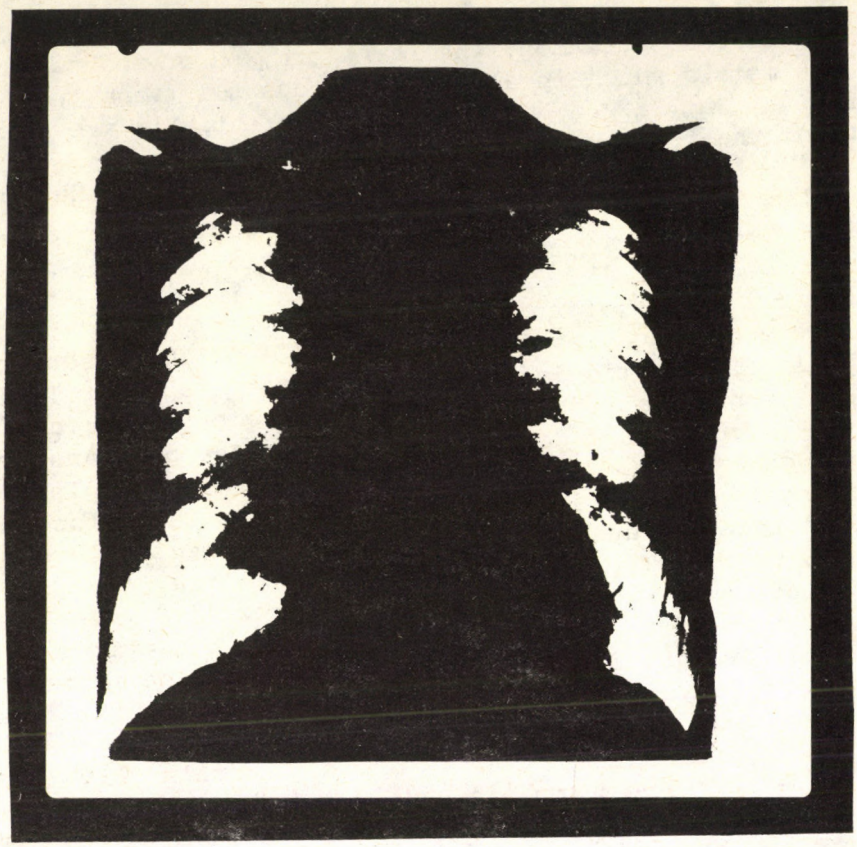


Fig. 1 - Chest X-ray analysis of the lung of a photoengraver affected by severe pneumoconiosis

REFERENCES

1. A. Berlin, E. Di Ferrante and E. Sabbioni: La recherche à l'appui de la règlementation sur les métaux lourds dans la Communauté Européenne. Proc. 2nd Conf. on the Scientific Bases for Environmental Regulatory Actions "Health-Environment", E. Di Ferrante (ed.), Evry, France, 14-16 December 1981, Report EUR 7952 (1982).
2. E. Sabbioni: Heavy metal pollution and environmental biochemical toxicology research. Sci. Total Environ. 20 (1981) 95-97.
3. E. Sabbioni: Proc. 1st Int. Conf. on Elements in Health and Disease, R.B. Arora, S.B. Vohora, N.S.Y. Khan (eds.), IHMMR Printing Press, Hamdard Nagar, New Delhi, 1984, p.185.
4. E. Sabbioni, R. Pietra and E. Marafante: Metal metabolism in laboratory animals and human tissues as investigated by neutron activation analysis: current status and perspectives. J. Radioanal. Chem. 69 (1982) 381-400.
5. E. Sabbioni, F. Girardi and E. Marafante: Replacement of metal in metalloenzymes: a lead alkaline phosphatase. Biochemistry, 15 (1976) 271-276.
6. E. Sabbioni: The metalloenzyme nature of calf thymus deoxynucleotidyl transferase. FEBS Letters, 71 (1976) 233-235.
7. E. Sabbioni, L. Clerici and A. Brazzelli: Different effects of vanadium ions on same DNA metabolizing enzymes. J. Toxicol. Environ. Health, 12 (1983) 737-748.

8. F. Mousty, N. Omenetto, R. Pietra and E. Sabbioni: Atomic-absorption spectrometric, neutron activation analysis and radioanalytical techniques for the determination of trace metals in environmental and biochemical toxicology research. Part I. Vanadium Analyst, 109 (1984) 1451-1454.
9. R. Pietra, E. Sabbioni, A. Springer and L. Ubertalli: Analytical problems related to the preparation of samples involved in studies on metallobiochemistry of heavy metal pollution using neutron activation analysis. J. Radioanal. Chem., 69 (1982) 365-379.
10. E. Sabbioni: Neutron activation analysis: general principles and application to the analysis of biological fluids. Ispra-Courses Analytical Techniques for Heavy Metals in Biological Fluids, Ispra, November 27 - December 1, 1978.
11. L. Goetz, E. Sabbioni, E. Marafante, C. Birattari and M. Bonardi: Cyclotron production of 107, 109-Cd for use in metallobiochemistry of heavy metal pollution. Radiochim. Radioanal. Letters, 45(1) (1980) 51-60.
12. E. Sabbioni, L. Goetz, C. Birattari and M. Bonardi: Environmental biochemistry of current environmental levels of heavy metals: preparation of radiotracers with very high specific radioactivity for metallobiochemical experiments on laboratory animals. Sci. Total Environ., 17 (1981) 257-276.
13. E. Sabbioni: Metallobiochemistry of heavy metal pollution at JRC Ispra. Proc. Research Seminar Trace Metals: Exposure and Health Effects, University of Surrey, Guildford, U.K., 10-13 July 1978, E. Di Ferrante (ed.), Commission of the European Communities, Brussels (Belgium), (1979) 13-17.
14. E. Sabbioni and E. Marafante: Relationships between iron and vanadium metabolism: in vivo incorporation of vanadium into iron proteins of the rat. J. Toxicol. Environ. Health, 8 (1981) 419-429.
15. L. Goetz, H. Norin: Synthesis of 73-As-radiolabelled arsenobetaine and arsenocholine for metabolic studies on their fate and distribution in laboratory animals. Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 34/11 (1983) 1509-1517.
16. E. Sabbioni, J. Edel, L. Goetz, R. Pietra: Environmental and biochemical trace metal speciation studies by radiotracer and neutron activation analysis. 2nd Int. Symp. on Biology and Toxicology of Metals Using Nuclear Analytical Methods, Brookhaven, May 20-22, 1985.
17. F. Girardi, L. Goetz, E. Sabbioni, E. Marafante, M. Merlini, E. Acerbi, C. Birattari, M. Castiglioni and F. Resmini: Preparation of ^{203}Pb compounds for studies on pathways and effect of lead pollution. Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 26 (1975) 267-277.
18. L. Goetz, E. Sabbioni, E. Marafante, J. Edel-Rade, C. Birattari and M. Bonardi: Biochemical studies of current environmental levels of trace elements: cyclotron production of radiothallium and its use for metabolic investigations on laboratory animals. J. Radioanal. Chem., 67 (1981) 182-183.
19. E. Sabbioni, L. Goetz and G. Bignoli: Health and environmental implications of trace metals released from coal-fired power plants: an assessment study of the situation in the European Community. Sci. Total Environ., 40 (1984) 141-154.
20. G. Bignoli and E. Sabbioni: Environmental assessment of arsenic released from potential pollution sources. Environ. Monit. Assessment, 1983, in press.

21. L. Goetz: Radiochemical techniques applied to laboratory studies of water leaching of heavy metals from coal fly ash. Water Science & Technol., 15 (1983) 25-47.
22. L. Goetz, A. Springer, E. Sabbioni: Water leaching of trace metals from power plant coal fly ash as studied by radiochemical and radioanalytical techniques. Int. Conf. on Nuclear and Radiochemistry, Gesellschaft Deutscher Chemiker, 8-12 October 1984, Lindau (FRG).
23. E. Sabbioni, E. Marafante, L. Amantini, L. Ubertalli and R. Pietra: Cadmium toxicity studies under long-term/low-level exposure (LLE) conditions. 1. Metabolic patterns in rats exposed to present environmental dietary levels of Cd for two years. Sci. Total Environ., 10 (1978) 135-161.
24. E. Marafante, F. Bertolero, J. Edel, R. Pietra and E. Sabbioni: Intracellular interaction and biotransformation of arsenite in rats and rabbits. Sci. Total Environ. 24 (1982) 27-39.
25. J. Edel, E. Sabbioni, C. Gregotti, A. Di Nucci and L. Manzo: Difference in the metabolic patterns of Cr(III) and Cr(VI) ions in the rat. Inorg. Chim. Acta. Bioinorg. Chem. 79 (1983) 306.
26. E. Sabbioni, C. Gregotti, J. Edel, E. Marafante, A. Di Nucci and L. Manzo: Organ/tissue deposition of thallium in pregnant rats. 22nd Congress of the European Society of Toxicology, Dublin, Ireland, 17-19 August 1981. Arch. Toxicol. Suppl. 5 (1982) 225-230.
27. E. Sabbioni and E. Marafante: Relations between iron and vanadium metabolism: in vivo incorporation of vanadium into iron proteins of the rat. J. Toxicol. Environ. Health, 8 (1981) 419-429.
28. E. Sabbioni, J. Edel and L. Goets: Trace metal speciation in environmental biochemical toxicology research. Int. Symp. on the Health Effects and Interactions of Essential and Toxic Elements, Lund, Sweden, June 13-18, 1983.
29. R. Pietra, E. Sabbioni, F. Mousty, D. Brancaccio and A. Berlin: Human exposure to trace elements: Al-containing phosphate binders as potential source of trace metals in the treatment of uremic patients. Trace Element in Medicine 1 (1984) 76-79.
30. E. Sabbioni, M. Maroni et al.: A study on vanadium in workers from oil-fired power plants. Report EUR 9005, 1983.
31. F. Bertolero, G. Chiappino, V. Foà, L. Villa, R. Pietra, E. Sabbioni and E. Marafante: Chromium concentration and historical study in the nasal mucosa of chromium refinery workers. La Medicina del Lavoro, 1 (1981) 33-37.
32. G. Vocaturo, F. Colombo, M. Zanoni? F. Rodi, E. Sabbioni and R. Pietra: Human exposure to heavy metals. Rare earth pneumoconiosis in occupational workers. Chest, 83 (1983) 780-783.
33. E. Sabbioni, R. Pietra, G. Pizzato: Multiple occupational exposure to heavy metals. Proc. 6th Convegno Nazionale di Igiene Industriale, 1st Int. Industrial Hygiene Conf., Rome, 5-7 December 1983, pp.210-214, printed by Catholic University (Rome).
34. E. Sabbioni, R. Pietra, P. Gaglione, G. Vocaturo, F. Colombo, M. Zanoni, F. Rodi: Long-term occupational risk of rare earth pneumoconiosis. A case report as investigated by neutron activation analysis. Sci. Total Environ., 26 (1982) 19-32.

HU ISSN 0236 - 5359

ATOMKI Report E/7 (1985)

WORKSHOP ON LOW TEMPERATURE PHYSICS

Proceedings

Edited by

S. Mészáros and

D. Novák

Organized within the framework of the

"Days of Finnish Science in Hungary"

Debrecen

April 17, 1985

Contents

Prof. D. Berényi: Preface 455

Contributions:

O.V. Lounasmaa: Adiabatic Nuclear Demagnetisation: Two Sophisticated Experiments 456

K. Martinás: On the Chaotic Approach of the Larkin-Ovchinnikov Correlation Length 467

T. Porjesz: Ballistic Transport in Semiconductor Devices 472

K. Sajó: Lifshitz Electronic Transition in Small-κ Superconducting Alloys 477

L. Uray: Size Effect Model for Longitudinal Grain Boundaries in Tungsten Wires 481

I. Skopál: Longitudinal Magnetoresistance in Fibrous Tungsten Wires 486

S. Mészáros, K. Vad, D. Novák: SQUID Applications in ATOMKI: Picovoltmeter for RRR Measurements; Biomagnetic Measuring System 492

D. Novák, F. Tárkányi, K. Füle, T. Fényes: An On-line Conversion Electron Spectrometer with Superconducting Magnet Electron Transporters 497

PREFACE

In the frame of the Days of the Finnish Science in Hungary a Workshop was organized on the actual investigations in the field of low temperature physics on 17 April 1985 in ATOMKI, Debrecen.

The introductory lecture was held by Professor O. Lounasmaa (Helsinki University of Technology) surveying his fascinating ultra-low temperature experiments on He^3 and nuclear cooling. This was followed by seven short reports given by the Hungarian participants from the four institutes in which cryogenic research is being carried out in Hungary (namely the Department of Low temperature Physics of the Roland Eötvös University and three Institutes of the Hungarian Academy of Sciences: Central Research Institute of Physics, Institute of Technical Physics, Institute of Nuclear Research - ATOMKI). We feel that the Workshop contributed to the extension of contacts between the Finnish and Hungarian peoples beyond the traditional linguistic relations. At the same time it was a good occasion for Hungarian scientists working in this field to come together and report on their results to each other. It was the first case in Hungary that the scientists working in this field have come together and reported on their results to each other.

It was a pleasure for our Institute to host this meeting and to publish the material of most of the contributions in this issue.

Debrecen, November 10, 1985

Professor D. Berényi
Director of the Institute

ADIABATIC NUCLEAR DEMAGNETIZATION: TWO SOPHISTICATED EXPERIMENTS

O.V. Lounasmaa

Low Temperature Laboratory, Helsinki University of Technology, Espoo 15, Finland

After a brief introduction to nuclear demagenetization, two recent experiments in the author's laboratory are described. Gyroscopic measurements on superfluid ^{3}He-B in a rotating nuclear refrigerator demonstrated undiminished persistent currents for 48 hours and revealed a vortex-core phase transition, manifested by an abrupt change in the critical flow velocity and a large latent heat. Experiments in a cascade nuclear demagnetization cryostat, capable of cooling copper nuclei to 30 nanokelvins, established a magnetic field vs. entropy diagram, which shows that the nuclear spin system of copper has three different antiferromagnetic phases below 0.27 mT; in zero field the transition temperature is 60 nK.

INTRODUCTION

In this talk I shall, after a brief introduction, explain two Helsinki experiments, recently performed in nuclear demagnetization cryostats: the first is on superfluid ^{3}He in rotation and the second on nuclear ordering in copper. These different measurements demonstrate, in my opinion, rather well the fact that nuclear refrigeration and nuclear cooling have, as of today, been developed into an advanced level and that sophisticated experiments are now possible in cryostats using adiabatic nuclear demagnetization for cooling.

Fifty years ago C.J. Gorter of Leiden made the first proposal for adiabatic nuclear demagnetization [1]. Practical success was reported twenty years later, in 1956, by Nicholas Kurti and his group at Oxford. Their experiment was a cascade of two adiabatic demagnetizations: chromium potassium alum was employed to precool a bundle of fine copper wires to 12 mK in a field of 3 T. Under these starting conditions, the entropy of copper nuclei, equal to R&n4 at high temperatures, was decreased by only 0.5%. Nevertheless, upon reducing the 3 T field to zero, nuclear spin temperatures of the order of 20 μK were observed for several seconds.

While Kurti's pioneering experiment demonstrated the feasibility of nuclear cooling, it was clear that efficient refrigeration by nuclear adiabatic demagnetization requires very much better starting conditions. Indeed, when high field superconducting solenoids and dilution refrigerators became available a decade later, nuclear demagnetization soon developed into an important technique for refrigeration to the submillikelvin region of temperature. The discovery of the superfluid phases in liquid ^{3}He made the development of nuclear refrigeration techniques both important and urgent. There was a clearly defined need to reach temperatures below 1 mK.

In nuclear demagnetization experiments it is quite a different matter to cool the nuclear spins only, or the conduction electrons and the lattice as well. The situation becomes even more complicated if an external specimen, such as ^{3}He, must also be refrigerated. The temperature of the nuclear spin system has been reduced in Helsinki to 30 nanokelvins; this is the lowest temperature ever reached or measured.

GYROSCOPIC MEASUREMENTS ON SUPERFLUID ^{3}He-B IN ROTATION

Our ROTA cryostat has been employed, since 1981, for measurements on superfluid ^{3}He in rotation, up to angular velocities near 2 rad/s. ROTA is a joint project with the Institute of Physics of the Georgian Academy of Sciences and with the Landau and the Kapitza Institutes of the USSR Academy of Sciences. I shall briefly explain experiments on the flow properties of ^{3}He-B by means of an ac gyroscopic technique [2].

A schematic diagram of the ROTA cryostat is shown in Fig. 1. The apparatus

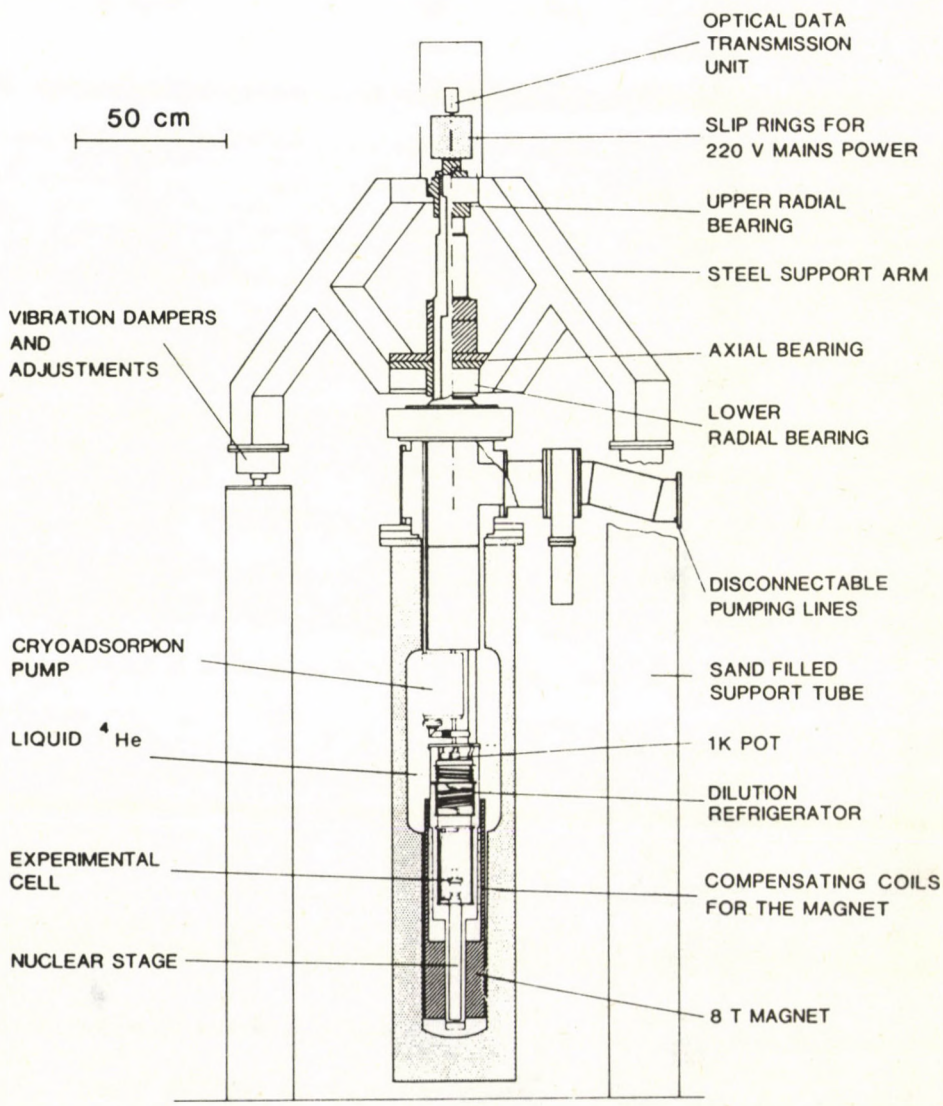


Fig. 1. Schematic illustration of the ROTA cryostat.

incorporates air bearings, an activated charcoal cryoadsorption pump, a dilution refrigerator, a copper nuclear stage, and computerized measurement electronics. During rotation the cryostat is completely disconnected from all external pumping lines, and the dilution refrigerator is operated by the cryoadsorption pump.

The nuclear stage, was made of 35 moles of massive copper. Vertical slits were cut into the high purity copper rod to reduce eddy currents during demagnetization. The final heat leak to the nuclear stage is only 0.5 nW, i.e. 14 pW per mole of copper.

Our basic measuring device, the ac-gyroscope, is schematically illustrated in Fig. 2. The copper cell body, with some silver sinter in it, is thermally connected to the nuclear stage. A metal torus, packed with 20 μm diameter plastic powder, forms the flow path for the circulating superfluid. The ring is supported by two sets of mutually perpendicular copper torsion tubes, also used as filling capillaries for admitting the ^{3}He-sample into the ring.

Torsional modes about the tubes are determined by angles θ and ϕ. The device is ac-driven about θ by a niobium plate in front of a superconducting solenoid; the whole drive system was placed inside a niobium shield. Capacitive detectors were used for monitoring the ϕ-motion.

When the ring is driven about θ at the resonant frequency of the ϕ-mode, a sinusoidal response results in the ϕ-direction, provided that there is an

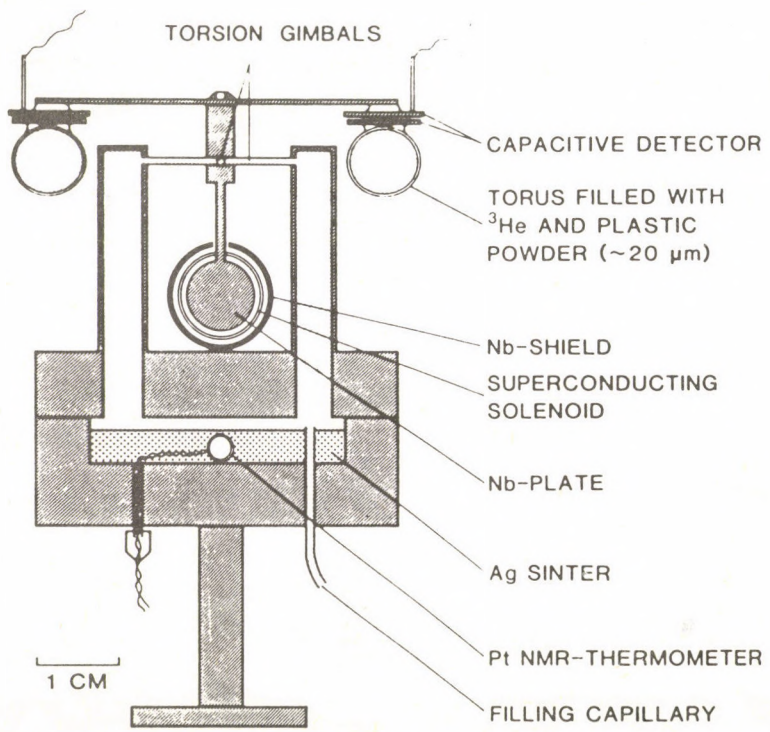


Fig. 2. The ac-gyroscope. The foot is thermally connected to the nuclear stage.

angular momentum in the ring, caused by circulating superfluid. The response is proportional to the mechanical Q-value of the ϕ-mode and to the angular momentum L of the superflow in the ring. In our device Q = 20000 which is thus the amplification factor that one obtains in an ac-system by operating it at resonance.

Measurements of the angular momentum were usually carried out in the following way: The sample was first cooled at rest well below the superfluid transition temperature. The cryostat was then rotated, at a preparation angular velocity Ω_p, for about 1 min and then halted. During 5 minutes following the stop, the vibrational amplitude in the ϕ-direction was recorded. The cryostat was then rotated in the opposite sense at the same speed and halted again. The average response to the two opposite rotations was our basic datum.

We have made extensive measurements of the angular momentum at eight different pressures from 3 to 29 bar and at temperatures from 0.8 mK to T_c. Figure 3 shows our data at 8 bar. We note that the L vs. Ω_p-curve separates into three regions: 1) For $\Omega_p < \Omega_c = 0.23$ rad/s, L = 0; this is the reversible regime. 2) For Ω_p between Ω_c and $2\Omega_c$, $L = (L_c/\Omega_c)(\Omega_p - \Omega_c)$. 3) When $\Omega_p > 2\Omega_c$, $L = L_c$. Ω_c is the limit of the reversible region and L_c is the maximum persistable angular momentum.

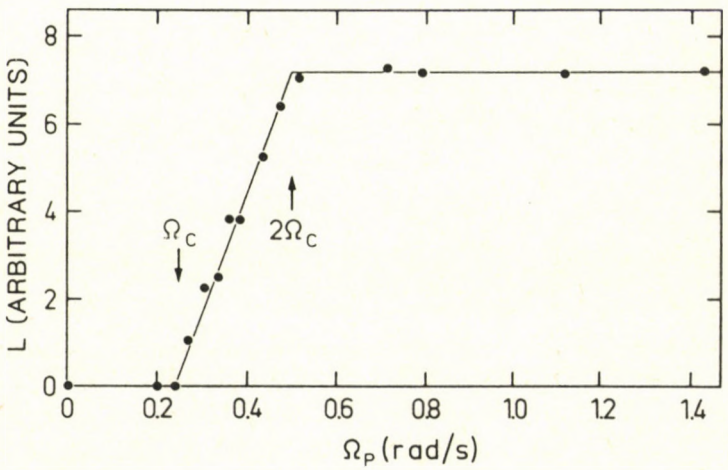


Fig. 3. The persisted orbital angular momentum L in the ring as a function of the preparation angular velocity Ω_p (= the highest speed at which the cryostat was rotated before it was stopped).

When the cryostat is accelerated above Ω_c it becomes favorable to create vortices, probably in the form of rings, with their diameter of the order of the interstitial space. The rings expand, are cut to pieces, and become pinned to powder particles. It is this pinned vorticity that is responsible for the observed persistent angular momentum after the cryostat has been brought to rest.

A careful check for possible weak dissipation was made in ^{3}He-B at 8 bar pressure. In these experiments the maximum angular momentum was first created in the ring by rotating the cryostat at a preparation velocity larger than $2\Omega_c$. The apparatus was then brought to rest and L was measured. After having kept the cryostat in the B-phase continuously for

48 hours, the angular momentum was again measured. Within our experimental accuracy of 10% in the L-data, there was no decay of the signal. This gives for the relaxation time of the superflow a value in excess of 450 hours and implies in ^{3}He-B a viscosity which is at least 12 orders of magnitude lower than for the normal Fermi liquid at the same temperatures.

The critical velocity of the superfluid can, of course, be calculated from the measured critical angular momentum. We found that at pressures below 14 bar the observed critical velocity is independent of temperature but a weak function of pressure: v_c varies between 4 and 6 mm/s.

A much more interesting situation exists above 14 bar: the B-phase splits into two separate regions with different critical velocities. Figure 4 illustrates the phase diagram of ^{3}He into which the boundary between the two regions of different critical velocities has been drawn. For example, at 23 bar the critical velocity in Region I is 7.1 mm/s, while in Region II v_c = 5.2 mm/s.

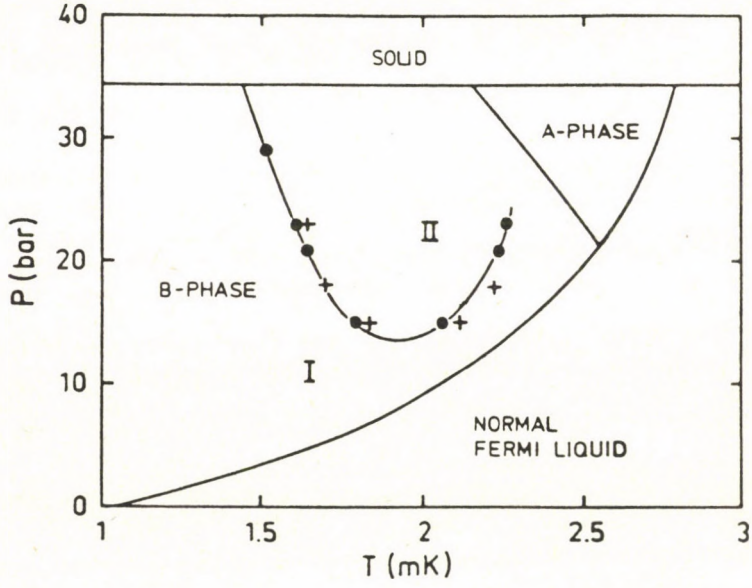


Fig. 4. The phase diagram of ^{3}He, showing the two regions I and II of different vortex core structures.

Filled circles in Fig. 4 are from our measurements made at zero external field while crosses are data obtained in a magnetic field of 4 mT; a slight shift is observed in the position of the boundary. However, the 4 mT field triples the critical velocity in Region II, from 5.2 to 15 mm/s, whereas in Region I the magnetic field has a much smaller and opposite effect: the critical velocity decreases from 7.1 to 6.3 mm/s when the field is increased from zero to 4 mT.

An equally striking feature of the transition across the new phase separation curve is the large latent heat, 1.5 μJ/mole, which is comparable to that of the B → A transition. We measured the latent heat from warm-up curves; the temperature of the ^{3}He sample was plotted as a function of time. The latent heat is manifested by a plateau in the warm-up curve.

The new phase boundary, observed in our gyroscopic experiments is, in its general appearance, very similar to that found earlier by our NMR group at 29 bar and recently extensively investigated over the entire pressure range [3]. The jump in the NMR frequency shift and the discontinuity in the critical velocity are both rotation-induced, but the transition temperature is independent of the speed at which the cryostat was moving It thus seems that in both cases we are dealing with the same vortex core transition.

CASCADE NUCLEAR REFRIGERATION AND THE B-S PHASE DIAGRAM OF COPPI

The second example that I shall discuss is our work on spontane[illegible] uclear ordering in copper; this research has been going on in Helsinki s[illegible] e 1974 [4]. Over the years many persons have been involved in our expe[illegible]im[illegible]its and in their theoretical interpretation.

We all know that electronic magnetism shows a wide spectrum of [illegible]fferent ordering phenomena, extending from room temperature and above in [illegible]on to a few millikelvins in CMN. Because nuclear magnetic moments [illegible]e over a thousand times smaller than their electronic counterparts and b[illegible]cause the interaction goes as the magnetic moment squared, analogous phenomena can be expected in a simple nuclear spin system only at submillikelvin temperatures.

In this region it is meaningful to speak about two distinct temperatures, the nuclear spin temperature T_n and the conduction electron temperature T_e. The nuclei reach thermal equilibrium among themselves very quickly, in a time characterized by the spin-spin relaxation process. The approach to equilibrium between nuclear spins and conduction electrons, in contrast, is governed by the spin-lattice relaxation time, which is much longer. According to Korringa's law, the spin-lattice relaxatic[illegible] time is inversely proportional to the conduction electron temperature. As a result, the nuclei, at sufficiently low temperatures, become thermally isolated from their surroundings. For example, in copper at 50 μK, the spin-lattice relaxation time is several hours.

In the experiments that I shall discuss we are directly concerned with the nuclear spin temperature only. However, a low conduction electron temperature is indirectly important: It guarantees an efficient thermal isolation of the nuclear spin system.

For these experiments we have constructed a cascade nuclear demagnetization apparatus. Our cryostat consists of a dilution refrigerator and two copper nuclear stages, all three working in series. In the latest version of our apparatus, the first nuclear stage was made of a piece of bulk copper, again with vertical grooves to reduce eddy current heating. The first stage contains effectively 10 moles of the refrigerant.

The copper specimen itself was employed as the second nuclear stage; it was connected to the first stage by welding, without any heat switch. By demagnetizing the first stage slowly from 8 T to 0.1 T, the conduction electron temperature could be reduced to 50 μK in both nuclear stages. Rapid demagnetization of the copper sample from 7 T was then performed in three steps, separated by short waiting periods at 10 mT and at 1 mT,

respectively; the purpose of these stops was to reduce noise in the detection electronics, including two SQUIDs. The final demagnetization from 1 mT then produced an ordered state when the field was reduced below 0.27 mT, provided that the starting entropy was sufficiently low. It should be mentioned that over 99% of the nuclear spin entropy was removed from the sample at 50 μK and 7 T.

During the last three years we have employed two different copper specimens in our research on spontaneous nuclear ordering: polycrystalline foil and a single crystal slab. Experimental data from one run on the polycrystalline specimen, weighing about 1 g, are illustrated in Fig. 5. The sample was demagnetized to zero or to a low field, and the susceptibility was measured while the nuclei slowly warmed up as heat was flowing into the spin system from the outside through the spin-lattice relaxation process. We notice that the susceptibility first increases, then reaches a broad maximum, and finally starts to decrease exponentially with time as expected in the paramagnetic region.

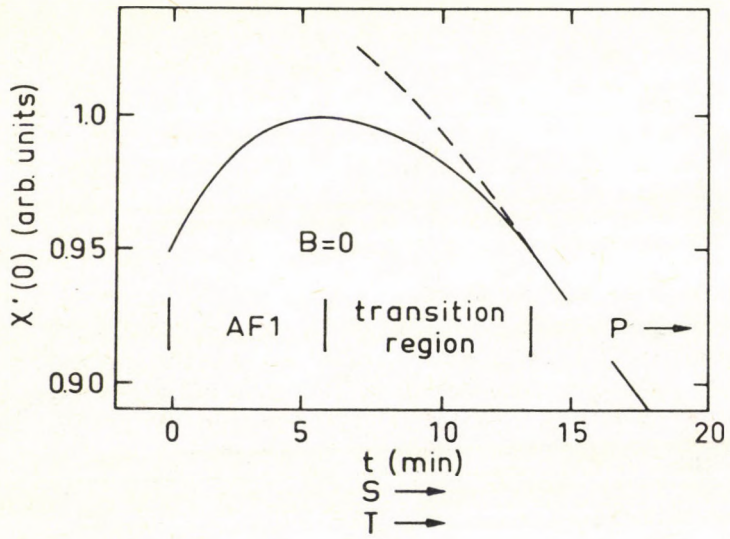


Fig. 5. An experimental susceptibility vs. time curve of copper nuclei after demagnetization.

The observed susceptibility maximum shows, in analogy with data on electronic systems, that a magnetic phase transition is taking place: the nuclear spin system of copper is in an ordered state (AF) on the left of the maximum, at the transition temperature T_c in the middle, and in the paramagnetic state (P) on the right. Theoretical calculations and our experimental measurements of susceptibility as a function of temperature in the paramagnetic region both indicate that the ordered phase is antiferromagnetic.

Figure 6 displays the entropy vs. temperature plot for copper nuclear spins in zero field and at temperatures below 120 nanokelvins. The data show quite a bit of scatter but the transition, however, is clearly documented. The critical temperature T_c = 60 nK, and the measurements extend down to about 30 nK. From the discontinuous drop in entropy at the first order transition one obtains 0.1 μJ/mole for the latent heat.

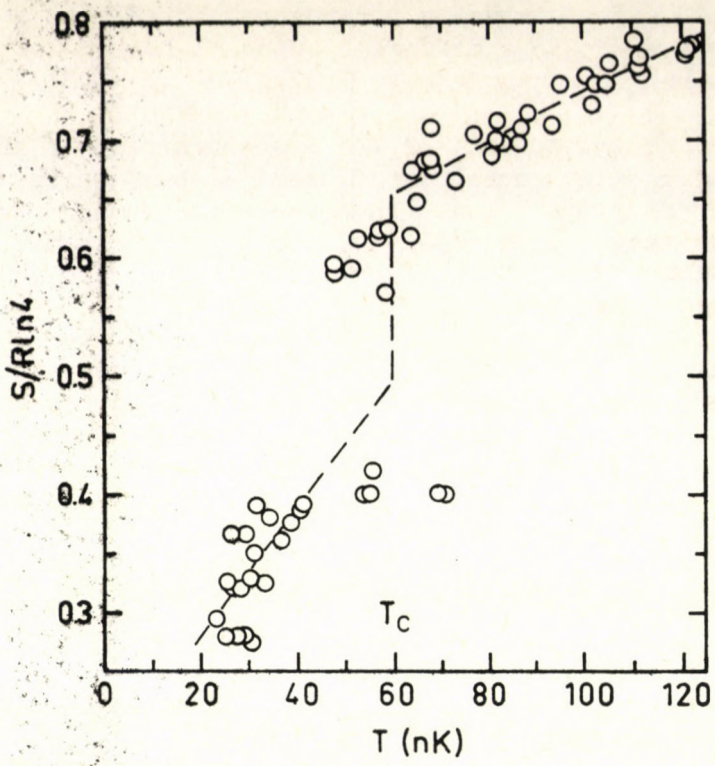


Fig. 6. The nuclear spin entropy of copper, in units of Rℓn4, as a function of temperature.

Our single crystal specimen is a half-gram slab of copper; the sample was mounted, in relation to the external magnetic field $\vec{B}$, as shown in Fig. 7. Separate transverse and longitudinal SQUID systems were connected to two astatically wound signal coils, measuring in the xy-plane and in the z-direction, respectively. Three different excitation coils, along the x-, y-, and z-axes, were used.

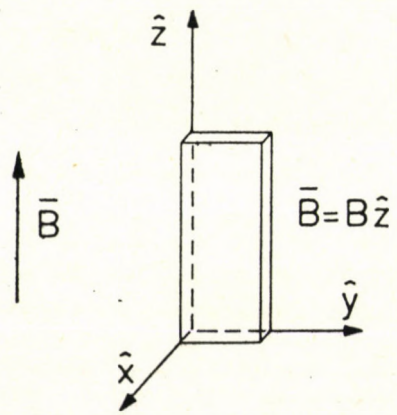


Fig. 7. The single crystal copper specimen. The dimension of the slab are 0.5 mm, 5 mm, and 20 mm in the x-, y-, and z-directions, respectively.

Figure 8 shows some of our experimental results: the static susceptibility, as a function of time after the end of demagnetization, is plotted as

measured in the three mutually orthogonal directions; each picture corresponds to warm-up in a different external field. Let us look at the figure more closely.

In all cases, the x-component of the susceptibility is almost constant, until the paramagnetic region is reached in about 5 min. In zero field, the z-component displays a small increase after demagnetization, whereas the y-component shows an increase of about 10%. Presumably, if we could start the measurements at still lower temperatures, the y-component would be even smaller at first.

When demagnetization is stopped at 0.15 mT, the susceptibility behaves during warm-up somewhat differently: the y-component increases approximately the same way as in zero field, but the z-component has changed a lot. The initial increase is almost 15% but the maximum is lower than for the x- and y-components.

In a final field of 0.20 mT the situation is again different: the y-component shows a 3% increase, while the z-component decreases rapidly with time.

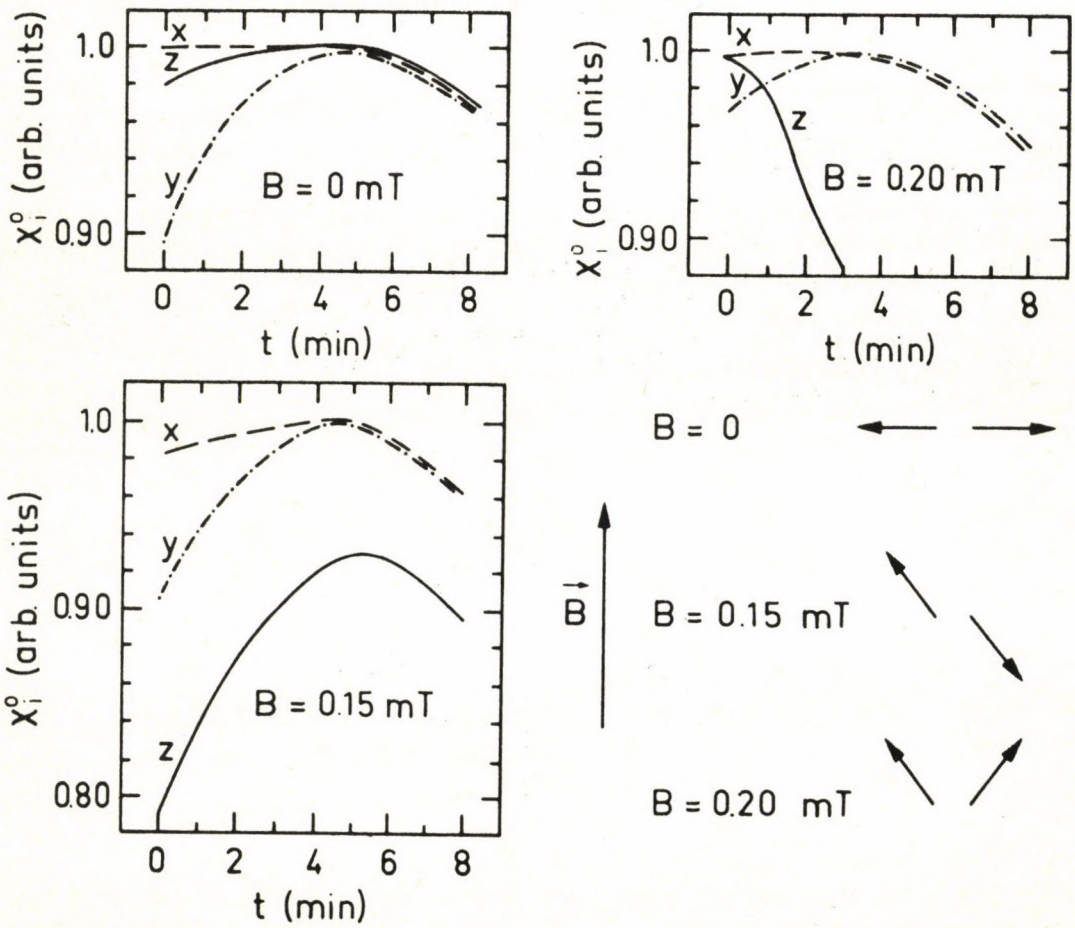


Fig. 8. Susceptibility vs. time curves for the single crystal copper specimen in three different external magnetic fields; the proposed nuclear spin arrangements are also shown for each field. The x-. y-, and z-axes point in the same directions as in Fig. 7.

The experimentally observed differences, as illustrated in these three graphs, demonstrate that the spin arrangement of copper changes with the magnetic field. In fact, we believe that there are three clearly different antiferromagnetic phases. The first picture, corresponding to AF1, shows that in zero field the spins are aligned with the y-axis, i.e. perpendicular to the x- and z-directions. This conclusion is based on the well-known fact that susceptibility perpendicular to sublattice magnetization stays contant below T_c, while susceptibility parallel to sublattice magnetization decreases as the temperature is reduced. Differences of susceptibility in the x- and y-directions must be due to the flat-slab geometry of our sample.

On the basis of similar arguments the second picture predicts at 0.15 mT a different ordering: The spins in the AF2 phase are perpendicular to the x-direction, pointing more towards the z- than the y-direction. The third picture demonstrates that antiferromagnetism in the longitudinal direction has vanished at 0.20 mT and that the system has a net magnetic moment. This third antiferromagnetic phase, AF3, changes over to paramagnetism by tilting the spins more and more towards the direction of the external field; the transition is of second order.

Figure 9 illustrates our provisional B-S phase diagram of copper. The measurements were made by starting the final demagnetization from 1 mT with different initial entropies, in the broad range between 0.1 R&n4 and 0.5 R&n4. The three antiferromagnetic phases and the paramagnetic region are shown. A shaded area indicates that a first order phase transition of spins is taking place when passing through this region. During adiabatic demagnetization one moves in the phase diagram vertically from top to bottom; warm-up, in a constant magnetic field, corresponds to horizontal motion from left to right.

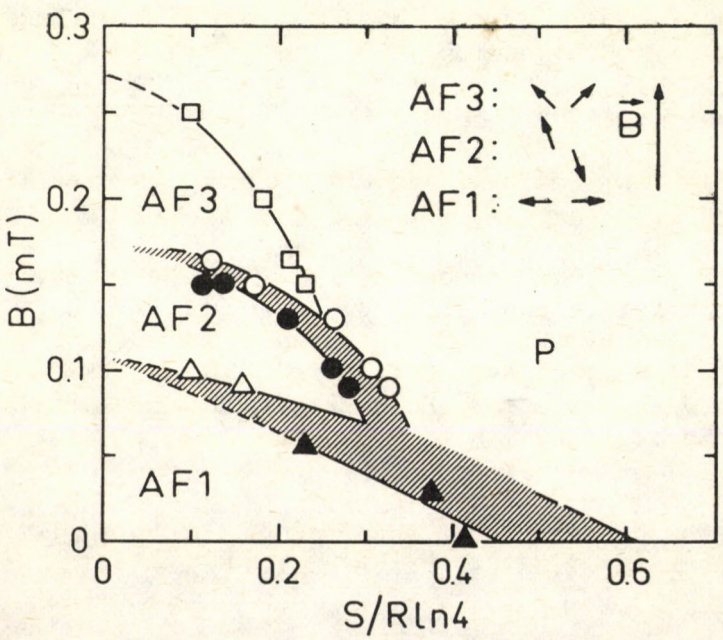


Fig. 9. The B-S diagram of copper showing the three antiferromagnetic phases. In shaded regions a first order transition is in progress.

Unfortunately, the relation between entropy and temperature could not be determined for our single crystal specimen. This is because in the high conductivity copper sample eddy current shielding prevented us from measuring the absorptive component of the magnetic susceptibility. Consequently, we could not find the magnitude of the heat input dQ needed to calculate the temperature from the second law $T = dQ/dS$.

It must be admitted, of course, that our entropy diagram of copper is still rather provisional and that the proposed structures of the phases must be verified more directly. This can be done, we hope, by neutron diffraction techniques.

CONCLUSION

From these two examples, and from other experiments presented, for example, at the recent LT-17 Conference [5], it is clear that nuclear demagnetization has become a versatile method for performing many different kinds of measurements at submillikelvin temperatures. In Nicholas Kurti's experiment, almost thirty years ago, the nuclei warmed up to the starting temperature in two minutes. It is now possible to stay far below 1 mK for days or even weeks.

REFERENCES

[1] For recent reviews, see N. Kurti, Physica 109 & 110B (1982) 1737; K. Andres and O.V. Lounasmaa, Prog. Low Temp. Phys. 8 (1982) 221; O.V. Lounasmaa, Physica 126B (1984) 8.

[2] J.P. Pekola, J.T. Simola, K.K. Nummila, and O.V. Lounasmaa, Phys. Rev. Lett. 53 (1984) 70; J.P. Pekola, J.T. Simola, P.J. Hakonen, M. Krusius, O.V. Lounasmaa, K.K. Nummila, G. Mamniashvili, R.E. Packard, and G.E. Volovik, Phys. Rev. Lett. 53 (1984) 584; J.P. Pekola and J.T. Simola, J. Low Temp. Phys. 58 (1984) 555.

[3] M. Krusius, P.J. Hakonen, and J.T. Simola, Physica 126B (1984) 22 and refrences therein.

[4] M.T. Huiku and M.T. Loponen, Phys. Rev. Lett. 49, (1982) 1288; M.T. Huiku, T.A. Jyrkkiö, and M.T. Loponen, Phys. Rev. Lett. 50 (1983) 1516; M.T. Huiku, T.A. Jyrkkiö, M.T. Loponen, and O.V. Lounasmaa, AIP Conf. Proc. No. 102 (1983), p. 441; M.T. Huiku, T.A. Jyrkkiö, J.M. Kyynäräinen, A.S. Oja, and O.V. Lounasmaa, Phys. Rev. Lett. 53 (1984) 1692; for a list of papers prior to 1982, see O.V. Lounasmaa, Physica 109 & 110B (1982) 1880.

[5] Proc. 17th International Conference on Low Temperature Physics, Karlsruhe, August 15-22, 1984, North Holland Publishing Co., Parts I & II.

On the Chaotic Approach of the Larkin-Ovchinnikov Correlation Length

K.Martinás

/Department for Low Temperature Physics, Roland Eötvös University, Budapest, Hungary, H-1088/

The problems connected with the definition of the Larkin-Ovchinnikov correlation length are discus sed in case of 1-d collective pinning. It is shown, that there are at least two different physical methods yielding different correlation lengthes.

The collective pinning problem in type II superconductors with randomly spaced and weak pinnings can be handled as a deterministic system with fixed /otherwise random/ pinning forces, [1,2] where in first neighbour approximation the differentia equation defining the equilibrium position of the individual flux lines is as follows:

$$C \frac{a_i - a_{i-1}}{a_i^2} = f/r_i/ \qquad /1/$$

where C is the elastic constant of the flux line lattice, r_i is the position of the ith flux line, a_i the lattice constant of the flux line lattice,

$$a_i = r_{i+1} - r_i \qquad /2/$$

Here $f/r_i/$ is the pinning force acting on the flux line being in the position r_i, and

$$f/r_i/ = \sum_{\alpha=1}^{N_p} g/r_i - R_\alpha/ \cdot \Theta /1 - \frac{|r_i - R_\alpha| .2}{a_i}/ \qquad /3/$$

where N_p is the total number of the pinning centres, R_α is the position of the αth pinning centre, and $g/x/$ is the pinning force function, while

$$\Theta /x/ = \begin{cases} 0 & \text{if} \quad x < 0 \\ 1 & \text{if} \quad x > 0 \end{cases} \qquad /4/$$

In this representation eq. 1. is a second order DE, and in the equilibrium situation there are two free parameters, namely the position of the first flux line r_o, and the initial lattice constant a_o. The solution of eq. 1. yields the equilibrium position of the other flux lines [3].
The external magnetic field at x=0, and x=1 is as follows

$$B/x=0/ \sim \frac{\varphi_o}{a_o} \quad \text{and} \quad B/x=1/ \sim \frac{\varphi_o}{a_n}.$$

The total transport current is determined by the Maxwell equation rot $B = \frac{4\pi}{c} j$, i.e.

$$J_{tot} = \frac{c}{4\pi} \left(B/x=0/ - B/x=1/ \right) \sim \varphi_o \left(\frac{1}{a_o} - \frac{1}{a_n} \right) \qquad /5/$$

In case of fixed pinning centres, and fixed external magnetic field $/B_o, a_o/$ the equilibrium transport current depends on the position of the first flux line,

$$J = J/r_o/ \qquad /6/$$

Because of the nonlinearity of eq. 1, and because of the randomly distributed pinning centres, this $J/r_o/$ function is not a smooth function; so it is hopeless task to try to find its maximal value.

Larkin-Ovchinnikov Correlation Length

In case of transport current flowing in the sample a large region of the flux line lattice containing many pinning centres displaces as a whole. Each such region may be considered as one large pinning centre, with the effective pinning force

$$F = \sqrt{N_c} \cdot f \qquad /7/$$

where N_c is the number of pinning centres in the correlated volume, and f is the individual pinning force strength. The linear dimension R_c of correlated regions, i.e. the correlation length is defined by as follows:

$$\langle \underline{u} /L_c/ - \underline{u}/o/ \rangle^2 = r_f^2 \qquad /8/$$

where $\underline{u}$ is the displacement vector, L_c is the correlation length, r_f is the action force radius [4].
In 1-d case the extrapolation of the Larkin-Ovchinnikov results yields

$$L_c \sim L_p^{1/3} \cdot K^{-2/3} \qquad /9/$$

where L_p is the average distance between the pinning centres, measured in lattice constant dimension, while $K \sim f/C$.

Correlation Length in Chaotic Approach

Eq./1/ can be transformed in the form being equivalent to the map of unit interval onto itself [2]. As the lattice constant changes are due to presence of pinnings, it is allowed to investigate only the flux lines possessing a pinning centre neighbourhood with distance less then the half of the lattice constant. The unit interval will be the interval of lattice constant length where the pinning centre is in the middle position. The position of the flux line pinned by the the αth pinning centre is defined as follows:

$$x^{\alpha+1} = x^{\alpha} + N_{\alpha} \cdot a_{\alpha} - L_{\alpha} \qquad /10/$$

where L_α is the distance between the αth and $/\alpha+1/^{th}$ pinning centres, measured in lattice constant, and N_α is the number of flux lines between them,

$$a_{\alpha+1} = a_{\alpha} + \frac{g/x^{\alpha}/}{C} a_{\alpha}^2 \qquad /11/$$

The correlation length is the distance, where the flux lines do not feel each other, i.e. their positon $/x_o, x_n/$ and their lattice constant $/a_o, a_n/$ can be independently choosen.

To solve this problem the first question is what are the equivalent positions, i.e. what is the difference in positions of flux line which is already physically negligible. One candidate can be the action force radius, r_g introduced by Larkin-Ovchinnikov [3], nevertheless the result is not really sensitive for the choise of the cutting parameter, C.

With this cutting parameter the correlation length can be defined by the following method:

$$\Delta x/L_c, c/ = a \qquad /12/$$

where $\Delta x/L_c, c/$ means the positional uncertainty of the flux line being in a distance of L_c from the first flux line, if the positional uncertainnity of the first flux line is C.

The direct summation of the positional uncertainities by eqs. 10,11 yields:

$$\Delta x_\beta = \Delta x_o + \sum_\alpha N'_\alpha \frac{1}{C} \frac{dg}{dx} a_\alpha^2 \Delta x_\alpha \qquad /13/$$

where $N'_\alpha = \sum_{\gamma=\alpha}^{\beta} N_\gamma$, i.e. the number of flux lines between the the αth and the βth pinning centres.

Calculating the average response due to the displacement of the first vortex

$$/\Delta X_i^2/ = /\Delta X_o/^2 + \sum_\alpha \left(\frac{N'_\alpha}{C} \frac{dg}{dx} a_\alpha^2 \right)^2 /\Delta X_\alpha/^2 \qquad /14/$$

The correlation length dependson the physical parameters of the material in the form of

$$L_c = \frac{f_p}{c}^{-2/3} \cdot N_\alpha^{1/3} \qquad /15/$$

The other possible definition is as follows.
The positional uncertainity of the vortex pinned by the $/i+1/^{th}$ pinning centre is:

$$\Delta X_{i+1} = \Delta X_i + N_i \frac{dg}{dx} \cdot \frac{1}{C} \cdot \Delta X_i = /1+\varkappa/ \cdot \Delta X_i$$

where N_i is the number of flux lines between the ith and $/i+1/^{th}$ pinning centres, so

$$\Delta X_i = /1+\varkappa/^i \Delta X_o \qquad /16/$$

In case of $\varkappa << 1$, the correaltion length is as follows:

$$L_c = \frac{a}{\Delta X_o} \cdot \left(\frac{f_p}{C} \right)^{-1} \qquad /17/$$

The computer simulation cannot choose between the above correlation lengths, both of them can be proven within a specific picture [5,6].

References:

1. I.Kirschner and K.Martinás: Acta Phys. Hung. 53. 347./1983/.
2. I.Kirschner and K.Martinás: Proc. of the 17th Int. Conf. on Low Temp. Phys. p.591. Karlsruhe, /1984/.
3. I.Kirschner and K.Martinás: Journ Low Temp. Phys. 47. 105. /1982/.
4. A.I.Larkin and Yu.N.Ovchinnikov: Journ. Low Temp. Phys. 34. 409. /1979/.
5. E.H.Brandt: Journ. Low Temp. Phys. 53. 41. /1983/.
6. I.Kirschner, K.Martinás, P.Samu: to be published

BALLISTIC TRANSPORT IN SEMICONDUCTOR DEVICES

T.Porjesz

/Department for Low Temperature Physics, Roland Eötvös University, Budapest, Hungary, H-1088/

One of the main feature of the microelectronic industry is to make devices of ever decreasing dimensions. In these small devices the carriers are often in non-steady state conditions. The other main goal is to produce inceasingly dense system of such devices. In this case the interaction between them will be dominant in understanding of the physics of them. Firstly we show a sample device designed by us for experiments of both of the above mentioned types and secondly we present some experimental data for the first type of effects.

Sample Design

The good avalaibility and easy handling of the most widespread planar technology gave us the idea to apply it for sample construction.

Into an n-type silicon layer parallel p^+ diffusion was made periodically with equivalent dimensions and distances to each other giving a lattice like structure. Furthermore deeper p^+-type diffusion was used te get contact to the p-type substrate and a contact was made to the n-type layer as well. These two last ones were to make it possible to use a bias voltage if it were needed to avoid the noise current. In most cases we did not need it. At the finishing by a silicon-oxide insulated gate electrode was covered all this structure. In the Fig. 1. 5 p^+-type electrode was made by diffusion. It was the minimum number for the experiments. The number of the electrode can be increased up to 200 or more, but in this case individual connection to each one can not be made.

By the aid of this sample a tunable Kronig-Penney model was realised completed with variable depth chanels.

The different dimensions are hardly dependent on the lithographycal possibilities.

For the investigation of the superlattice effects a higher number of electrods needed. For transport experiments in certain cases individual electrodes are better.

Carrier Transport Experiments

The carrier velocity can be obtained from the band structure $\varepsilon(\underline{k})$ through the equation

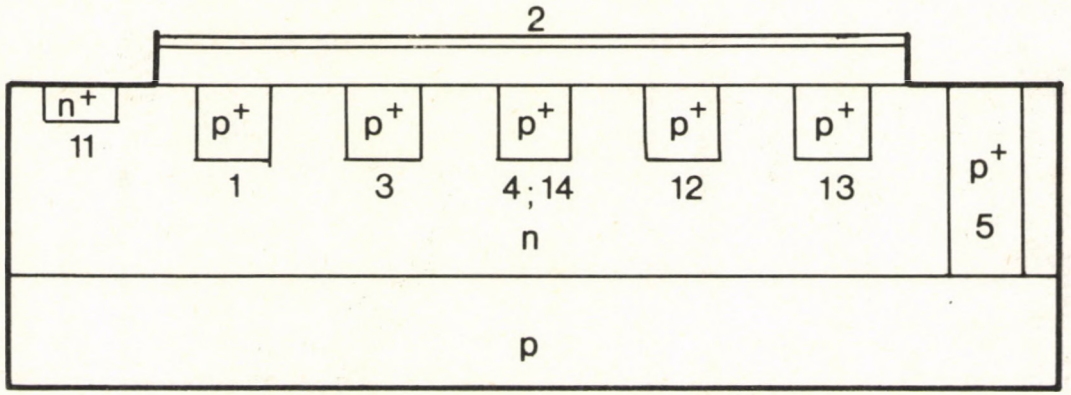


Fig. 1.
The sample device
The numbers stand for the pins after it has been encapsulated

$$\underline{v} = \hbar^{-1} \left(\frac{\delta \varepsilon}{\delta \underline{k}} \right)_{\varepsilon} \qquad /1/$$

Consequently, if we want to increase $\underline{v}$, we have to derive the optimum value from equ. 1. For calculating the maximum velocity wich can be achieved the scattering rate has to be taken in account, as well. In many cases the intervalley scattering reduced the energy of the carriers most efficiantly For the ballistic transport, generally the applied field should be somewhat less than it were enough for the intervalley scattering.

The number of collisions the electron undergo deacreases with device length. Beeing the minimum device length limited, there is an other way to decrease the number of collisions, the cooling.

In order to demonstrate the effect of the virtual device length on the velocity - through the density - in Fig. 2. we plotted the current density vs. applied voltage with and without magnetic field.

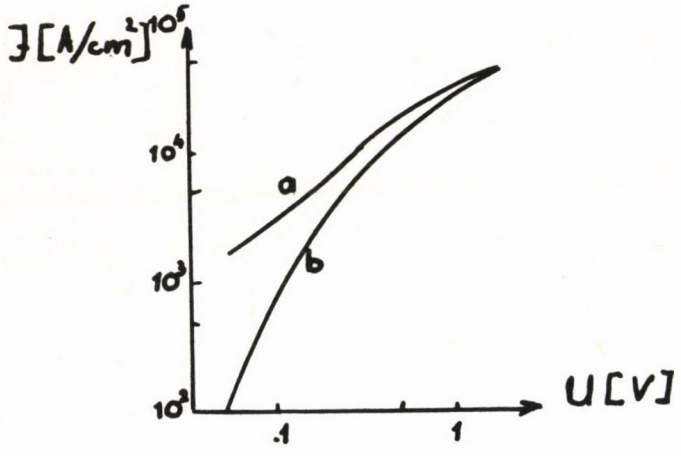


Fig. 2.
Current density vs. applied voltage in the sample device. a/without magnetic field b/with a perpendicular magnetic field of 1T.

In fig. 2. it is shown that because of the stronger interaction between the phonons and electrons /1./ the path of the electrons semms to be longer

For presenting values of the dependance of the virtual length of the mean free path of the electrons on the

temperature the current vs, voltage shown for different device lengths at different temperature.

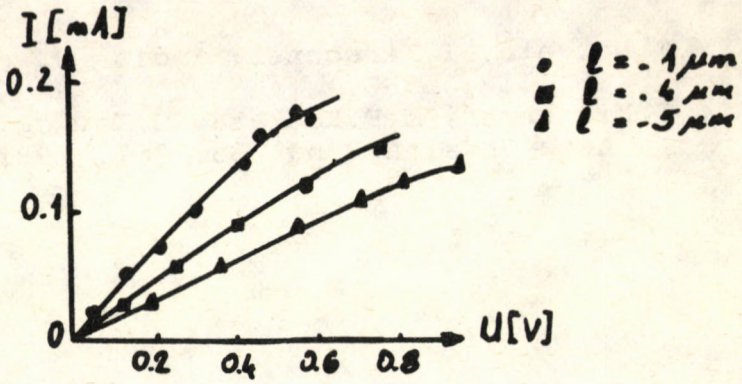


Fig. 3.
Current vs. voltage for different device lengths at 300K

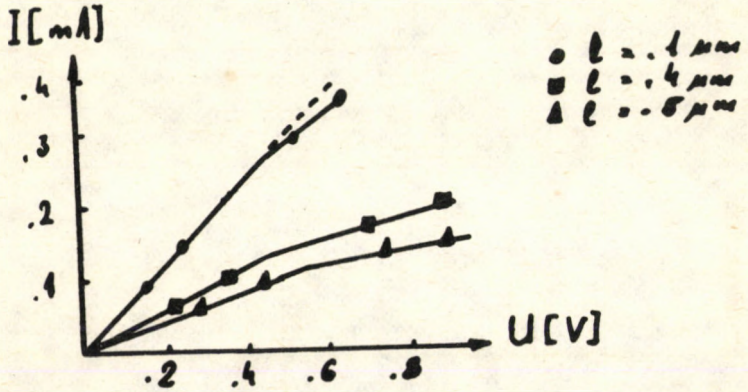


Fig. 4.
Current vs. voltage for different device lengths at 77K

It can be seen very well in Fig. 3. at 300K only at the smallest device length there is treshold voltage, characteristic to the ballistic velocity. In Fig. 4. the characteristic treshold voltage can be found at each length as it has been awaited /2/.

References:

1. T.Porjesz, M.F.Kotkata, I.Kirschner: Indian J. of Physics 18. 112. 1980.
2. P.Debreceni, I.Kirschner, M.F.Kotkata, G.Kovács, T.Porjesz: Acta Physica Hung. 53. 361. 1982.

LIFSHITZ ELECTRONIC TRANSITION IN SMALL-$\varkappa$ SUPERCONDUCTING ALLOYS

K.Sajó

/Department for Low Temperature Physics,
Roland Eötvös University, Budapest, Hungary, H-1088/

Based on the measurement of the magnetic characteristics of small-$\varkappa$ In-Tl superconducting alloys, non-analitic behaviour of the electronic specific heat coefficient was observed in the concentration range where the type I superconductivity goes over into type II one. It was expressed in terms of Lifshitz electronic transition.

Many experimental facts show, that the thermal, electrical and magnetic properties of superconductors can be stongly influenced by additiv material content. In the paper of Kirschner [1] it was stated that the transformation from type I to type II superconductivity is a phase transition, which can be characterized by a change in the order parameter vector potential, current and magnetic penetration, critical fields, furthermore in the entropy and conductivity matrices.

The present paper deals with the magnetic properties of the superconducting In-Tl solid solutions exhibiting the above mentioned transition.

The dependence of the critical temperature T_c of each alloy on the additiv concentration was determined and the magnetic moment-magnetic field /M-H/ curves of samples were measured at different temperature. Out of these data the concentration and temperature dependence of the critical magnetic fields H_{c1}, H_c and H_{c2}, the concentration dependence of the Ginzburg-Landau parameter $\varkappa$ of the investigated alloys and that of the T=OK extrapolated critical magnetic fields were derived.

The GL-parameter of the alloys was determined by the aid of the corresponding relations of the GLAG theory [2,3].

The concentration dependence of the electronic specific heat coefficient γ can be determined on the basis of the curves T_c-C and $H_c/O/$-C and by the help of the similarity low [4]

$$\gamma = \frac{V_m}{2\pi} \cdot \frac{H_c^2}{T_c^2}(O) \quad , \qquad /1/$$

where V_m is the molar volume.

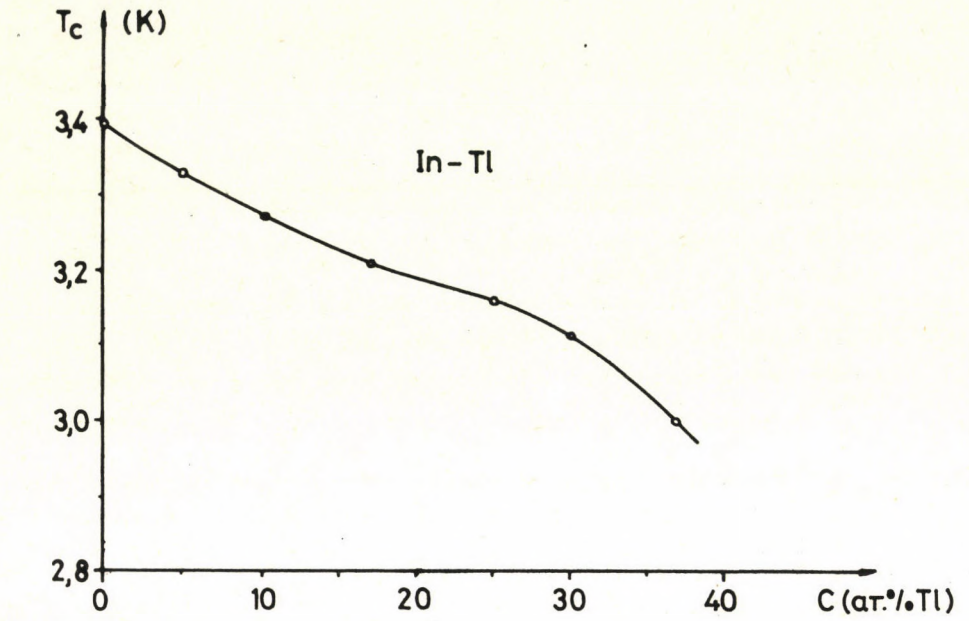

T_c (K)
3,4
3,2
3,0
2,8
In - Tl
0
10
20
30
40
C (ат.% Tl)

Fig. 1.

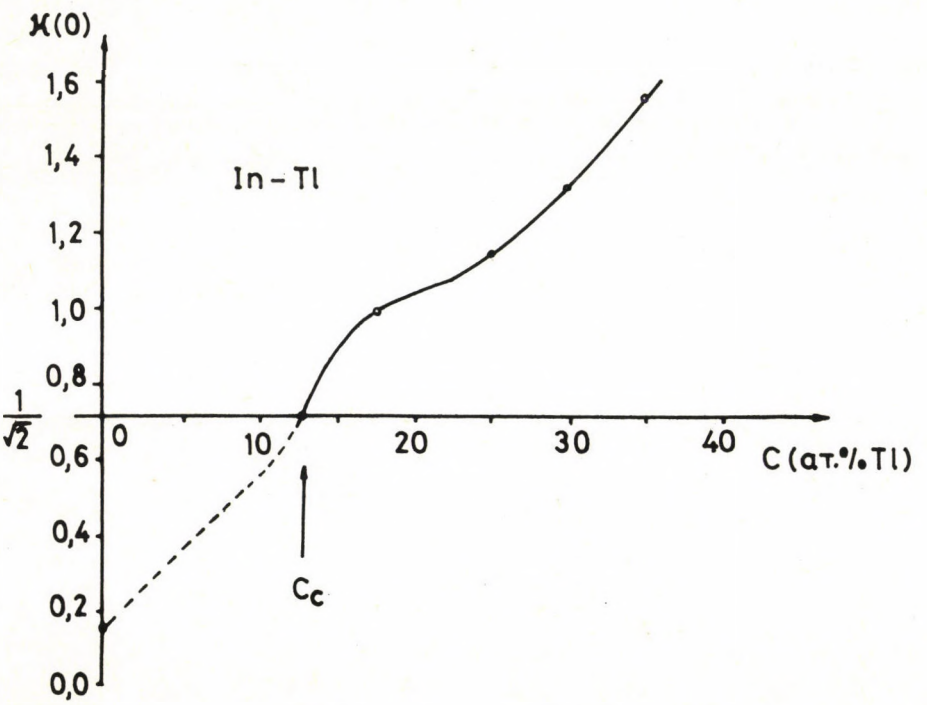

$\varkappa(0)$
1,6
1,4
1,2
1,0
0,8
$\frac{1}{\sqrt{2}}$
0,6
0,4
0,2
0,0
In - Tl
0
10
20
30
40
C (ат.% Tl)
C_c

Fig. 2.

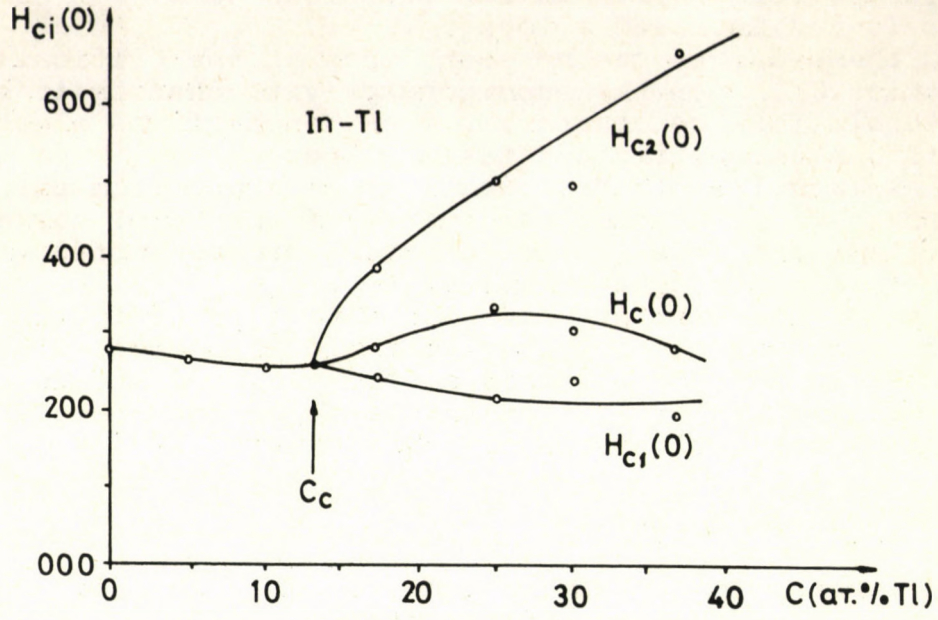

$H_{ci}(0)$
600
400
200
000
In-Tl
$H_{c2}(0)$
$H_c(0)$
$H_{c1}(0)$
C_c
0
10
20
30
40
C(ат.% Tl)

Fig. 3.

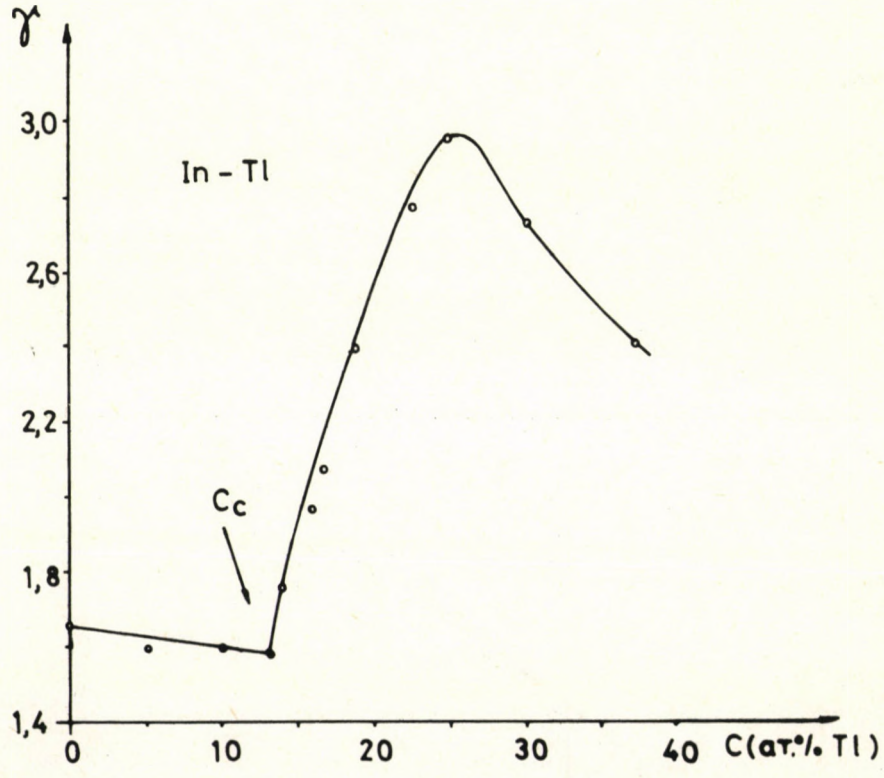

γ
3,0
2,6
2,2
1,8
1,4
In - Tl
C_c
0
10
20
30
40
C(ат.% Tl)

Fig. 4.

Figs. 1,2,3 and 4 show the typical T_c-C, $\varkappa/0/$-C, $H_{ci}/0/$-C and γ-C curves for In-Tl. Similar functions have been obtained for other In and Sn based alloys [5].

From these curves can be seen, that at the critical concentration C_c, when the superconductivity changes it's type non-analitical concentration dependence of the electronic specific heat coefficient takes place.

For explanation of this behaviour we start from the perception that the topological change of the Fermi surface plays an important role in the formation of superconducting features of the investigated alloys [6].

In one of his earlier paper Lifshitz [7] investigated the effect of Fermi surface topology change due to applied high pressures P, on the thermodynamical behaviour of metals.

At the Lifshitz's electronic transition the anomaly in the specific heat as function of the pressure is

$$\delta\gamma \backsim (P-P_c)^{1/2} \qquad /2/$$

which corresponds to a phase transition of 2.5th order according to the classification of Ehrenfest.

In our case the phase transition takes place as a function of the additive concentration, which means that the conservation for the conductivity electrons is not valid, and so

$$\delta\gamma = k\,(C-C_c)^{\alpha}, \qquad /3/$$

where $0<\alpha<1$ and k is constant

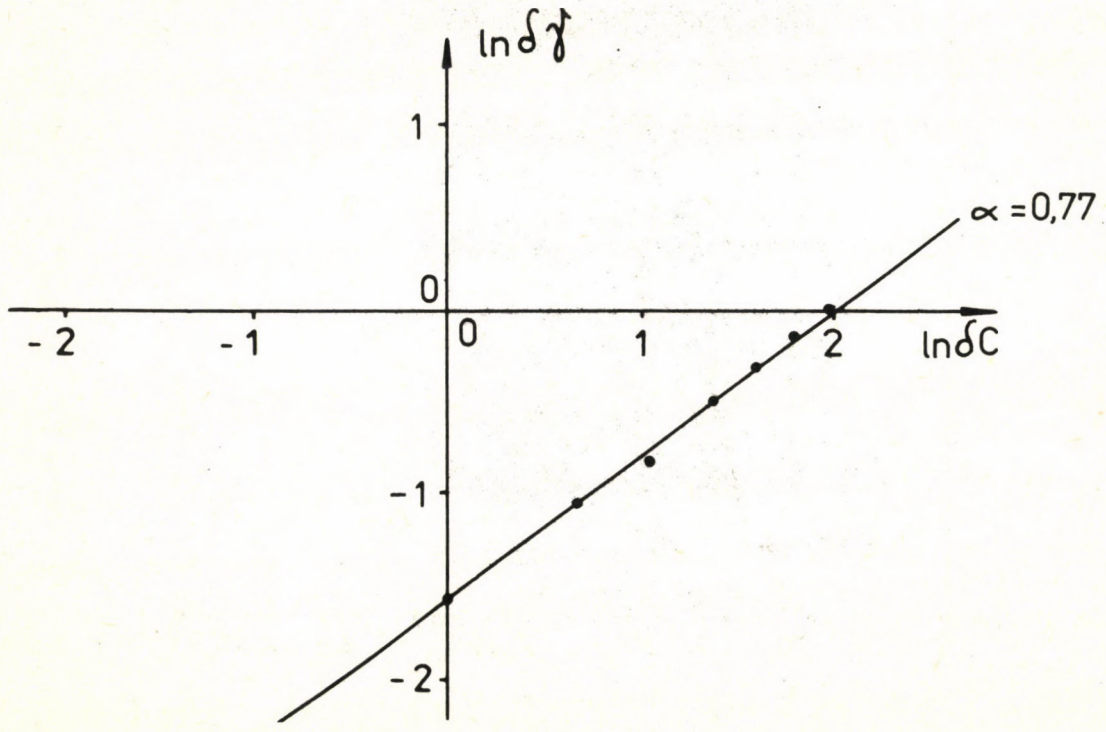


Fig. 5.

In Fig. 5 the $\ln\delta\gamma$-$\ln\delta C$ function is shown. It can be seen that the value of α is 0,77, which really falls between 0 and 1.

Finaly, on the basis of magnetic characteristics it was shown that the transformation from type I into type II superconductivity could be explaned in terms of Lifshitz electronic transition.

References:

1. I.Kirschner: Phys. Lett., A47. 139./1974/.
2. V.L.Ginzburg and L.D.Landau, Zh.Exp. i Teor. Fiz. 20. 1064 /1950/
3. A.A.Abrikosov:Zh.Exp. i Teor. Fiz. 32. 1442. /1957/.
4. J.Bardeen, L.N.Cooper and J.R.Schrieffer: Phys. Rev. 108. 1175 /1957/.
5. I.Kirschner and K.Sajó: Journ. Low Temp. Phys. 39. 235. /1980/.
6. I.Kirschner and A.Stark: Acta Phys. Hung. 30. 33. /1971/.
7. I.M.Lifshitz: Zh. Exp. i Teor Fiz. 38. 1569 /1960/.

SIZE EFFECT MODEL FOR LONGITUDINAL GRAIN BOUNDARIES IN TUNGSTEN WIRES

L.Uray
Research Institute for Technical Physics of the Hungarian Academy of Sciences, Budapest, H-1325, Ujpest 1. Pf. 76.

Abstract

The structure of heavily drawn, commercially doped tungsten wires contains longitudinal fibres. After heat treatments longitudinal grains with nearly hexagonal cross-sections can be observed, which are separated by high angle boundaries. The size effect model for wires was applied for the electrical resistivity in these grains, and it was obtained, that the probability of diffuse scattering of electrons at the boundaries was about 0.5. The temperature dependence of the excess resistivity was measured, and the height and the position of the maximum of these curves were in good agreement with the prediction of the size effect model.

Introduction

A longitudinal fibre structure of heavily drawn commercially doped tungsten wires was disclosed by transmission electron micrographs (TEM-s) taken on longitudinal sections of the wires [1]. The fibre structure was studied also on the transverse sections of thin wires (0.18 mm diam.) by TEM in [2], and it was found that the cross-section of the fibres became more and more hexagonal when the temperature of annealing was increased in the 1200 to 2000K range. Selected area diffraction patterns and the nearly equilibrium angles between the grain boundaries [2] suggested the development of high angle boundaries, i.e. the longitudinal fibre structure transforms into a longitudinal grain boundary system.

The electrical resistivity due to grain boundaries is usually calculated with the model of Mayadas and Shatzkes [3], taking into account only those grain boundaries, which are oriented perpendicular to the direction of the electric field (and also the scattering of electrons on the external surfaces and in the bulk). In our case, however, almost all grain boundaries are parallel to the electric field, so scattering on them must be calculated in a different way. As the single longitudinal grains in the wire resemble in form to thin wires it is tempting to apply Fuchs' size effect model [4] and so to determine the resistivity of the whole wire by using the addition law for parallel conductors. This is a realistic model, because no net current flows through parallel boundaries. This application is in effect the same as that of Mac Donald for the "Internal size effect" [5].

The model

In the size effect model (see in details [6]) the excess resistivity, $\Delta\rho$, depends on the temperature, or rather on a dimensionless parameter, a/λ_b (which is proportional to the

bulk resistivity, ρ_b). Here a is the thickness of the film or the radius of the wire, and λ_b is the mean free path of electrons in the bulk. In the high temperature limit (i.e. at $a \gg \lambda_b$)

$$\Delta\rho_\infty = \frac{3}{8} \cdot \frac{\rho_b \cdot \lambda_b}{a} (1-p) \qquad (1)$$

where p is the probability for the specular reflection of electrons at the walls. The probability for crossing internal boundaries without scattering is also included in p [5] . Thus 1-p is the probability of the diffuse scattering. The product $\rho_b \cdot \lambda_b$ is a material constant, independent of temperature, its value for tungsten is $2.20 \times 10^{-15} \Omega m^2$ [7]. The excess resistivities as functions of a/λ_b are presented in Fig.1. for wire and film in the case of p = 0. At $a \ll \lambda_b$ the behaviours of the two curves are markedly different. There are maxima on both curves in the vicinity of $\lambda_b \approx a$.

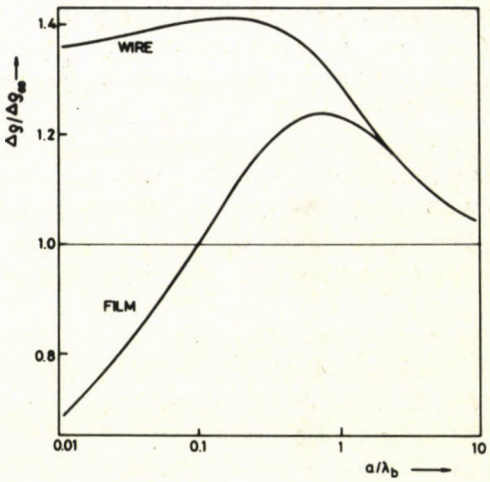


Fig.1. The excess resistivities (normalized to 1 in the high temperature limit i.e. at $\lambda_b \to 0$) as functions of a/λ_b for wire and film.

For arbitrary cross-section the excess resistivity depends on P/A, i.e. perimeter per cross-sectional area [6], and P/A=2.S, where S is the density of grain boundaries (P/A = 2/a for wires or films). Consequently:

$$\Delta\rho_\infty = \frac{3}{8} \cdot \rho_b \cdot \lambda_b \cdot S(1-p) = 8.3.10^{-16} .S.(1-p) \ (\Omega m) \qquad (2)$$

S and $\Delta\rho$ were measured simultaneously on several specimens [2] and the following result was obtained:

$$\Delta\rho = 4,3.10^{-16} .S \ (\Omega m) \qquad (3)$$

Comparing Eqs.2 and 3, we get $p \approx 0.5$.

In the present work the temperature dependence of the excess resistivity was measured. The obtained curves can be easily evaluated by using the parameter $\rho_b/\Delta\rho_\infty$ instead of the often used a/λ_b . The applied parameter is inversely proportional to the density of grain boundaries (Equ.2.).

Experimental

The specimes were tungsten wires with diameters of 0.17 mm. They were annealed in vacuo ($\lesssim 10^{-5}$ torr) at different temperatures between 1600 to 2800K for 15 min. to obtain longitudinal fibre or grain boundary structures similar to those found in [1,2]. An exaggerated grain growth began after heat treatment at 2400K so fibrous-like and recrystallized parts were found parallel to each other. After heat treatment at 2800K the wire was fully recrystallized, and the residual resistivity ratio (RRR) was about 200, which was characteristic to the solute impurity content. This wire was applied as dummy for comparison with the other wires. The excess resistivities were determined from the resistivity ratios, $r = \rho(T)/\rho(300K)$, to avoid the measurement of the shape factor on thin wires. Supposing the Matthiessen's rule (MR) to hold, one can obtain:

$$\Delta\rho(T) = \rho_w(300K) \cdot \frac{r - r_w}{1 - r} \qquad (4)$$

where the index w refers to the recrystallized tungsten dummy. Equ.4. is fairly good when there are deviations from the MR in the low temperature range, but not valid when linear deviation occurs at high temperature [8]. To check the validity of Equ.4. the shape factor of some specimens was also measured. No significant difference was obtained in the low temperature range, but at higher temperatures a linear deviation from the MR was superimposed upon the $\Delta\rho$ curves amounting to 0.02-0.2 $n\Omega m$ at 300K (somewhat more than the error in the shape factor determinations in thin wires). This could be explained by the 0.2-0.3 pct porosity of tungsten wires [9].

Results and discussion

The excess resistivities measured after different heat treatments are presented in Fig.2. The curves have maxima at about 50-60K. The value of $\Delta\rho$ is constant at the low temperature limit and it is approaching to a constant at high temperatures.

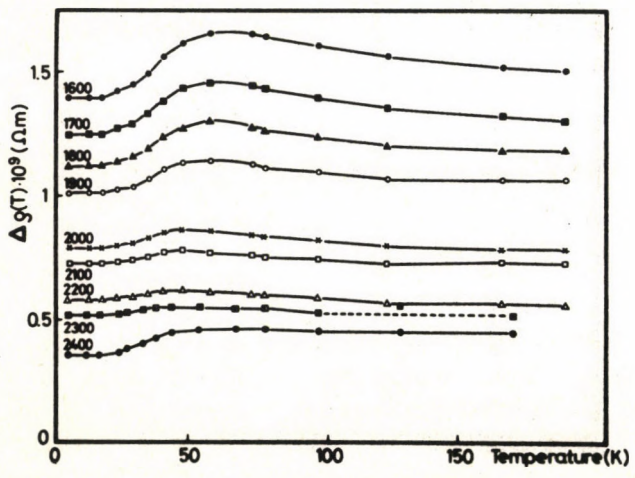


Fig.2. The temperature dependence of the excess resistivities of tungsten wires after heat treatments at temperatures between 1600 to 2400 K.

The excess resistivities of the wires may be compared to the prediction of the size effect model using a resistivity scale. Therefore the results of Fig.2. are also presented in Fig.3. on a resistivity scale, both scales are normalized dividing by $\Delta\rho_\infty$. Fig.4. shows the same values computed from the size effect model for wires with different p values. $\Delta\rho$ cannot be measured in the $\rho_b \to \infty$ limit, it was normalized at about $\rho_b/\Delta\rho_\infty = 20$, where $\Delta\rho_{\rho_b}/\Delta\rho_\infty \approx 1.05$ for the possible p values (Fig.4.).

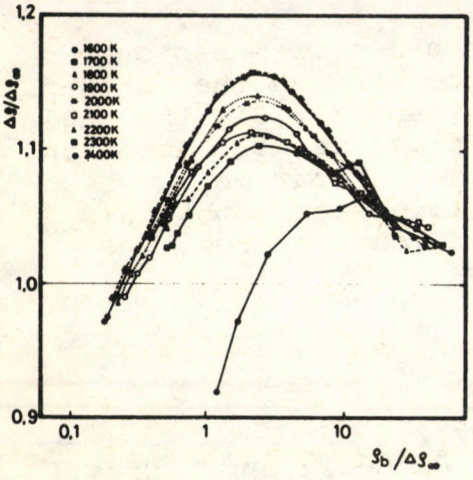


Fig.3. The excess resistivities of Fig.2.on a bulk resistivity scale. Both scales are normalized to $\Delta\rho_\infty$.

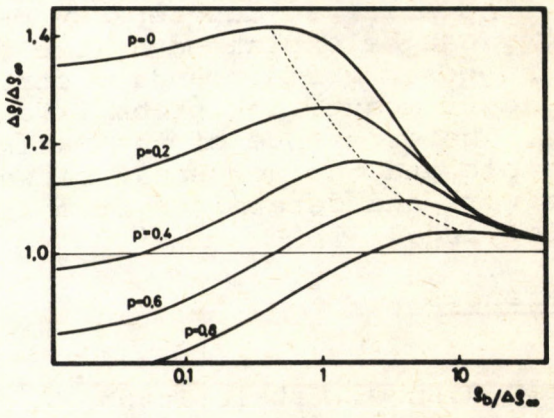


Fig.4. The excess resistivities due to size effect in wires with different p parameters as functions of ρ_b . Both scales are normalized to $\Delta\rho_\infty$.

The curves of Figs.3 and 4 (except the wire annealed at 2400K) can be fitted for the position and height of the maxima when the value of p is between 0.4 and 0.6. This value is in good agreement with the p = 0.5 value obtained from the TEM measurements [2].

The position of the maxima in Fig.3 is at $\rho_b/\Delta\rho_\infty \approx 2.5$, and taking p = 0.5 and S = 1/a, Equ.2 gives $\lambda_\rho \approx 2.1$xa which is about the diameter of hexagonal grains. There is an apparent discrepancy between Figs.2 and 3 in the low temperature range. The residual resistivity of the bulk is finite, therefore the excess resistivity is constant at very low temperatures (Fig.2) and ρ_b has a minimal value (Fig.3.).

Deviations from Fuchs' size effect model may be caused by several factors, let us consider some of them:

1. Not all the grain boundaries are parallel to the current lines. It was shown, that the scattering on the perpendicular grain boundary segments results only a small deviation from the MR [3].

2. When the cross-section of the grains is not a regular hexagon. The exact model may be somewhere between the cases of wire and film therefore the curve had to be steeper and the

maximum sharper, than the curve calculated for circular wires (Fig.1.).

3. The grains have different sizes. Applying the addition law for parallel conductors with unequal size effects, $\Delta\rho$ will decrease more at low temperatures (see [10]). The wire annealed at 2400K has the most inhomogeneous structure, the curve of this material is markedly steeper than that of the others.

4. In the Soffer's model [11] angle dependent scattering at the walls was also taken into account For wires the curves calculated from this model [12] were steeper at lower temperatures and the maximum was sharper than in the case of Fuchs' model.

The observed discrepancy between the measurements and theory can be explained by the difference between the real and the supposed grain boundary structure (items 1,2,3), the angle dependent scattering probably does not play the most important role. The existance of the maximum on the $\Delta\rho$ curves is incontestable and the agreement between the values of p obtained in this work and determined from TEM measurements is really satisfying.

References

1 D.B.Snow, Metall.Trans. 7A,783 (1976)
2 Á.Barna,I.Gaál,O.Geszti-Herkner,Gy.Radnóczi and L.Uray, High Temp.-High Pressures,10,197(1978)
3 A.F.Mayadas and M.Shatzkes, Phys.Rev.B. 1,1382(1970)
4 K.Fuchs, Proc.Camb.Phil.Soc. 34,100(1938)
5 D.K.C.MacDonald,Phil.Mag.42,756(1951)
6 E.H.Sondheimer, Adv.Phys. 1,1(1952)
7 F.Fawcett and D.Griffiths, J.Phys.Chem.Solids,23,1631(1962)
8 I.Gaál,J.M.Neugebauer,L.Uray,Acta Techn.Hung.78,371(1974)
9 L.Uray, phys.stat.sol. /a/82,545,(1984)
10 L.Uray and T.Vicsek, Phil.Mag.B.37,341(1978)
11 S.B.Soffer,J.Appl.Phys.38,1710(1967)
12 R.Sambles,K.C.Elsom and T.W.Preist,J.Phys.F.12,1169(1982)

LONGITUDINAL MAGNETORESISTANCE OF FIBROUS TUNGSTEN WIRES

I. Skopál

Research Institute for Technical Physics of the Hungarian Academy of Sciences, Budapest, H-1325, Ujpest 1. Pf. 76.

Abstract The longitudinal magnetoresistance of tungsten wires with highly elongated grains and that of fully recrystallized wires were measured at 4.2 K, 18 K and 30 K in magnetic fields up to 5 T. The anomalous behaviour obtained for the fibrous samples is attributed to the grain boundaries lying parallel to the direction of the electric current.

1. Introduction

The resistivity data of polycrystalline thin metal films are widely interpreted by using the Mayadas-Shatzkes model up to now. This model is based on the assumption that the grain boundaries may be represented, from the point of view of the electrical conduction, by a set of δ-function type planar potentials perpendicular to the direction of the electric current, i.e. the electron scattering of the parallel grain boundaries may be neglected [1]. Later Pichard et al proposed another phenomenological model for polycrystalline films by taking into account the scattering by the parallel boundaries, too [2]. Their model is, however, also somewhat oversimplified, since they have assigned a single transmission coefficient to each of the grain boundaries. On the contrary, Brown worked out a dislocation model for the grain boundary resistivity and predicted specific resistivity for the perpendicular boundaries twice as large as for the parallel ones [3].

The aim of the present work is to give futher experimental evidence of the resistivity of grain boundaries lying parallel to the electric current.

Tungsten wires produced for purposes of filaments in incandescent lamps are well suitable model materials for these investigations. This wires consist of fine elongated grains (so-called fibres) after being drawn and annealed at certain temperatures. The grain boundaries are mostly parallel to the axis, i.e. to the direction of the electric current in these wires. The annealed wires contain low amount of impurities and dislocations (except those constituting the grain boundaries). Therefore, the mean free path of the electrons within the grains is higher than the mean grain diameter at low temperatures, and a considerable part of the residual resistivity should arise from the grain boundaries. Earlier measurements [4,5] have really shown that the residual resistivity of tungsten wires having fibre structure is proportional to the grain-boundary density.

The idea of the present study is the following: In magnetic field the electrons move on helical trajectories between two scattering events. The projections of the helices onto a plane perpendicular to the field direction are circles with radius $r_c = p_F/eB$, where p_F, e and B denote the Fermi impulse, the electron charge and the magnetic induction, respectively.

In a longitudinal magnetic field the electrons encounter less often the parallel grain boundaries than without the magnetic field. Hence, the grain boundary resistivity diminishes, moreover, it becomes negligible, if B is high enough. This is analogous to the classical magnetic size effect [e.g. 6]. Now the grain boundaries play the same role as the free surface does in thin wires. Therefore, in the fibrous tungsten wires an anomalous - negative - contribution to the longitudinal magnetoresistance is expected due to the parallel grain boundaries.

2. Experimental

Tungsten wires with diameter of 173 μm produced by the usual powder metallurgical way were used. The wires contained about 0.2 vol% second-phase particles (potassium bubbles) with diameters in the range of 10-200 nm and a small amount (<100 atomic ppm) of solute impurities (Al, Si, Mo, Fe). The iron content was not more than 4 atomic ppm. The bubbles formed rows parallel to the wire axis [7].

The wires were annealed by self-resistance heating in vacuum (0.7 mPa) for 15 mins at four different temperatures T_a. The residual resistivity ratio RRR = R(300K)/R(4.2K), the type of the grain structure, the diameter d and the length ℓ of the grains in the annealed samples are listed in Table 1.

T_a	1700 K	2100 K	2450 K	2800 K
RRR	37.8	55.2	156	151
structure	elongated, mostly equiaxial grains		large, overlapping grains	
d	0.1 - 5 μm		100 - 170 μm	
ℓ	100 μm		10 mm	

Table 1. The characteristics of the samples.

In the wires used here primary recrystallization takes place during annealing at temperatures below about 2400 K, and secondary recrystallization takes also place if the annealing temperature is higher than 2400 K. During primary recrystallization the dislocations in the bulk of the grains are annealed out [8] and the grains begin to grow. The grain growth occurs mainly in axial direction, since the radial migration of the grain boundaries is hindered by the bubble rows. In this way a so-called fibre structure develops in the wires. The secondary recrystallization is characterized by a relatively fast grain growth resulting in about 10 mm long grains.

The electrical resistance was measured by the conventional four-terminal method at three different temperatures (4.2K, 18K and 30K) in magnetic fields up to 5 T. The inhomogeneity of the magnetic field along the 10 mm long measured section of the samples was less than 0.5%.

The crucial point of this measurements is the correct alignment of the samples in the magnetic field, since in tung-

sten the transversal magnetoresistance is much higher than the longitudinal one. For our samples the ratios of the transversal to the longitudinal magnetoresistance were between 40 and 100 in the worst case, i.e. in the highest field B=5 T. A misalignment (angle between the direction of the current and that of the magnetic field) of less than 1.0 degree was achieved. This resulted in an error in the longitudinal magnetoresistances of less than 2-4% even at B=5 T.

3. Results and discussion

The results obtained for the secondary recrystallized samples are depicted on Kohler plots (Fig.1). Marked deviations from Kohler's rule (DKR) in higher fields can be seen: (i) the curves incline upwards as the measuring temperature T_m is raised and (ii) the curves of these two samples belonging to the same T_m do not coincide with each other.

The first type of DKR is characteristic for materials in which the small-angle scattering of the electrons, namely, their scattering by long-wavelength phonons, influences the electrical conduction significantly. In these cases the saturation value increases and the onset of saturation shifts to higher fields with increasing temperature as a consequence of the increasing amount of small-angle scattering [9].

The second type of DKR might also be attributed to the small-angle scattering, but now the small potassium bubbles should be the source of this scattering mechanism. Similar effect is caused by the oxid-phase particles in metals purified by oxidation [10] and by point-defect aggregates in neutron-irradiated samples [11]. "Small" means in this context that the diameter of the bubbles is much less than the mean free path of the electrons, which is estimated to be about 6 μm at 4.2K by using the values RRR=156 and λ(300K)=38 nm [12]. The sample annealed at 2800K has a higher saturation value and a lower RRR than the other sample annealed at 2450K. These results are well compatible, since the lower RRR here reflects a higher residual resistivity due to the bubbles.

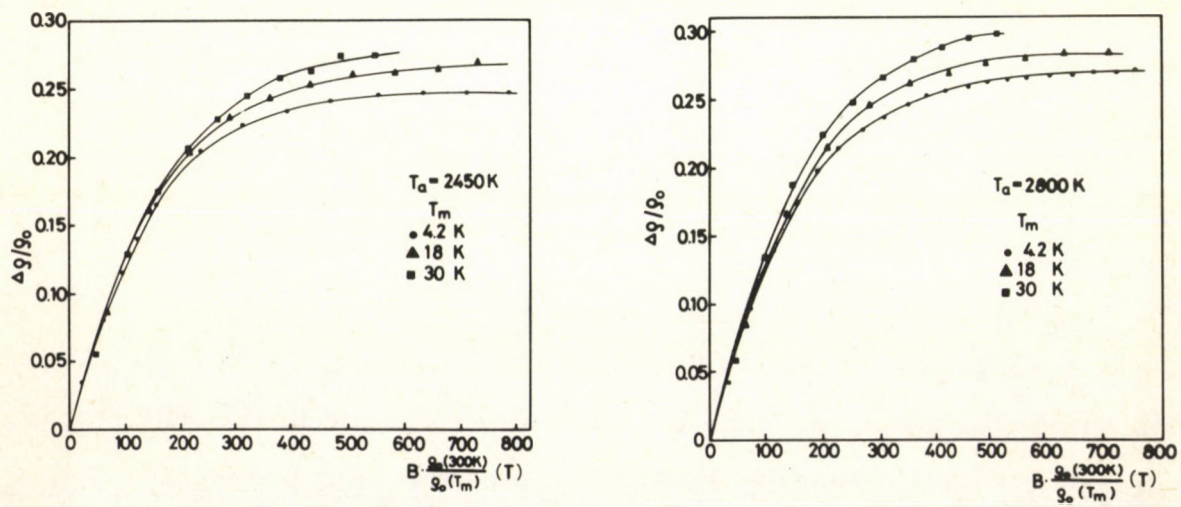


Fig.1. The longitudinal magnetoresistance of the fully recrystallized tungsten wires annealed at /a/ 2450K and /b/ 2800K.

The longitudinal magnetoresistance of the primary recrystallized fibrous wires has three remarkable features (Fig.2). It is considerably smaller than that of the secondary recrystallized samples. It does not saturate even at 4.2K but decreases with increasing magnetic field above 3.5-4.0 T. Finally, it increases much more rapidly with increasing temperature than the magnetoresistance of the fully recrystallized wires does.

These features can be understand, at least qualitatively, by the following way. There are three kinds of electron scatterers in the primary recrystallized wires; grain boundaries, solute impurities and potassim bubbles: the dislocations are annealed out during the recrystallization. The grain boundary density is negligible in the secondary recrystallized wires. Since the evaporation of solute atoms does not occur to any measurable extent even at 2800K during the short period of annealing applied here, there are the same amounts of solutes in both types of tungsten wires (cf.[13]). Contrary to the secondary recrystallized wires, a considerable part of the bubbles is necessarily at the grain boundaries in the fibrous wires [7] but it is not likely that the scattering efficiency of the bubbles diminishes appreciably due to this circumstances.

Consequently, the smaller longitudinal magnetoresistance of our fibrous wires might be entirely ascribed to the grain boundaries. In other words, the grain boundaries give really a negative contribution to the longitudinal magnetoresistance as it was expected. This contribution is certainly less in the wire annealed at 2100K, which has a lower grain boundary density.

Regarding all what aforesaid about the solutes and the bubbles, the mean free parth λ of the electrons within the grains of the fibrous wires may be taken as equal to the mean free path in the secondary recrystallized wires. Thus, $\lambda = 6\ \mu m$ at 4.2K (see above) and, as it turns out from the measured resistivities, decreases not more than 45% as the temperature is raised to 30K.

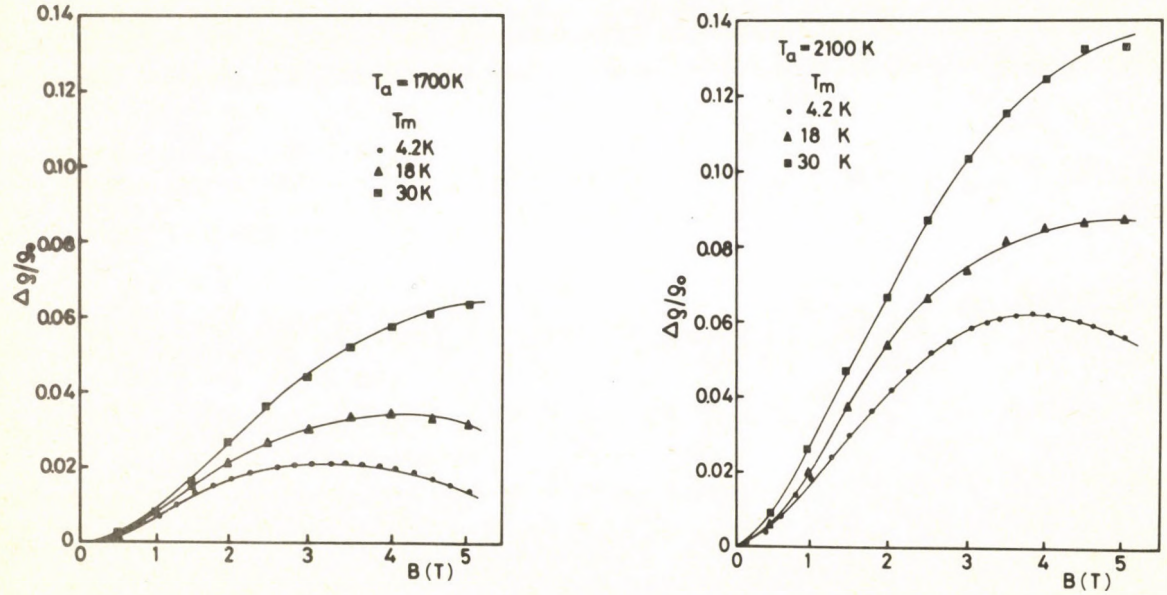


Fig.2. The longitudinal magnetoresistance of the fibrous tungsten wires annealed at /a/ 1700 K and /b/ 2100 K.

Furthermore, λ is higher than the grain diameter d; the ratio d/λ is in the range of 0.01-1.0 (see Table 1). Therefore, the grain-boundary resistivity of the fibrous wires can be treated as a size effect. The analogy is perfect: since there is no net flow of current through the parallel grain boundaries, the same boundary condition should be prescribed for them as for the free surface of a thin wire.

We can see that the resistivity arising from the surface scattering of the electrons decreases monotonically with increasing magnetic field by considering the results of the magnetic size-effect calculations performed by Chambers [6]. This reveals in the second feature of the fibrous wires. This effect can be observed, however, only in that field range where saturation occurs in the secondary recrystallized wires. In lower fields the resistivity increase due to the scatterings within the grains dominates the resistivity decrease due to the size effect.

Let us turn our attention to the third peculiarity of the fibrous wires. We can see that there are higher positive deviations from Kohler's rule in the fibrous wires than in the fully recrystallized ones. Since the grain-boundary scattering may be considered as isotropic, this effect corresponds to the result of Pippard's model calculation [14]. He has predicted a higher increase of the saturation magnetoresistance with increasing temperature (i.e. with increasing amount of the small-angle phonon scattering), if the proportion of the isotropic scattering is higher at the lower temperature.

Any detailed quantitative analysis of these magnetoresistance measurements is out of the scope of this short communication.

4. Conclusion

The anomalous behaviour of the longitudinal magnetoresistance of fibrous tungsten wires can well be explained as being a size effect. The resistivity of the grain boundaries parallel to the direction of the current is strongly diminished by the longitudinal magnetic field. In higher fields the magnetoresistance decreases with incresing field instead of tending to saturate. The quantitative interpretation of the results obtained require further theoretical and experimental efforts.

References

[1] A.F.Mayadas and M.Shatzkes; Phys.Rev.B1, 1382 (1970)
[2] R.A.Brown; J.Phys.F, 7, 1477 (1977)
[3] C.R.Pichard et al; Thin Solid Films 62, 189 (1979)
[4] I.Gaál et al; Acta Techn. Acad. Sci. Hung. 80 109 (1975)
[5] Á.Barna et al; High Temp-High Pressures 10, 197 (1978)
[6] R.G.Chambers; Proc. Roy. Soc. A202, 378 (1950)
[7] D.B.Snow; Metall. Trans. 7A, 783 (1976)
[8] A.Szőkefalvi-Nagy et al; Proc. of the 1St Risø Int.Symp. on Metallurgy and Mat.Sci. (eds. N.Hansen et al), 269 (1980)
[9] A.B.Pippard ; Proc.Roy.Soc. A305, 291 (1968)
[10] P.Svoboda; J.Phys.F 8, 1757 (1978)
[11] W.Kesternich et al; Phil.Mag. 31, 471 (1975)

[12] K.H.Berthel; Phys.Stat.Sol. 5, 159 (1964)
[13] L.Uray and T.Vicsek; Phil Mag. B 37, 341, (1978)
[14] A.B.Pippard; Proc.Roy.Soc. A282, 465 (1964)

S. Mészáros, K. Vad, D. Novák
Institute of Nuclear Research of the Hungarian
Academy of Sciences (ATOMKI)
Debrecen, P.O.Box 51, Hungary
H-4001

SQUID Applications in ATOMKI: A Picovoltmeter for RRR Measurements; A Biomagnetic Measuring System

Two SQUID-based measurement apparatuses are described here with some instrumental details and experience gained through usage. The RRR measurement is a routine procedure to characterize the impurity content of high purity metals. The instrument ensures the use of dc method of low current even on high purity large diameter samples. The preliminary version of a biomagnetic system with a first-order gradiometer is also discussed from the point of view of further improvements.

1. Introduction

SQUIDs are the most sensitive magnetic flux detectors and widely used in physics and other sciences. In our laboratory a SQUID system has been developed for different purposes. From a technical point of view the SQUID sensor should be reliable and should have stable parameters (critical current, noise, etc). Our construction is an RF type Nb point contact toroidal sensor with a hermetic encapsulation. The latter is important because it provides long service life of the sensor without taking special care in its use and it reduces the 1/f noise [1]. Different electronic units have been developed: a conventional 10 MHz RF system for picovoltmeter applications and a 40 MHz one with a directional coupler [2] for biomagnetic studies. In our laboratory two SQUID-based measuring systems have been developed: a picovoltmeter and a biomagnetic apparatus.

2. A picovoltmeter for RRR measurements

The residual resistivity is a generally accepted quantity for characterising integral impurity content of high purity metals. The quantity i.e. the electrical resistance conceptually very simple and the measurement can be made non-destructive. The main problems are:

- the low value of the resistance to be measured, (typically 0,1-100 nΩ)
- to avoid the contamination of the samples
- to get rid of the effect of undesirable lattice defects

The best method is to measure the d.c. resistance of large size, annealed single crystals at low values of measuring current. This eliminates the problems of lattice defects, surface-, skin-, magnetic- and heating-effects and applicable easily to anisotropic metals. The disadvantage is that it needs a very sensitive voltmeter.

In our institute we deal with residual resistivity measurements of high purity Ga and Al samples. For this purpose a SQUID picovoltmeter has been developed with the following characteristics:

- the SQUID is stable against thermal shocks and corrosion
- the contacts to the samples have low resistance but bring about negligible mechanical deformation
- the samples are not contaminated during the measurement process
- the mounting and demounting of samples need no special procedure and takes only some minutes
- the measurement can be performed in a storage Dewar vessel (min. neck diameter 24 mm).

The scheme of the apparatus is shown in fig. 1. The principle is well known [3]; the SQUID works as a null detector and the output of its electronics provides negative feedback through R and R_s. In this way a d.c. voltmeter with a voltage gain of R/R_s ($\sim 10^9$) is obtained.

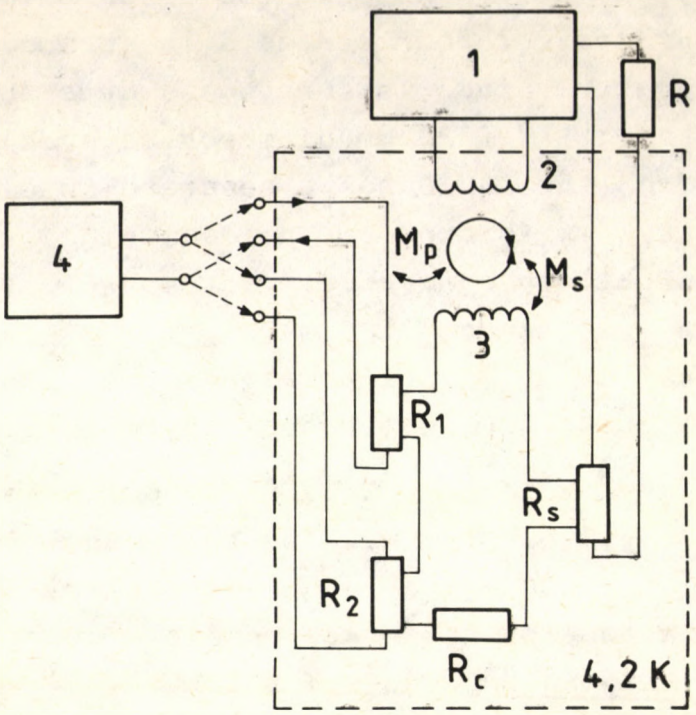


Fig.1. The scheme of the voltmeter

1. SQUID electronics
2. RF coil
3. Signal coil
4. current source

R_1 and R_2: samples
R_c: equivalent contact resistance
R_s: standard resistor
R : feedback resistor

The low temperature probe is mounted on the end of a stainless steel tube. It contains the SQUID, the tank circuit, the standard resistor, the sample holder for two samples (sizes: max. length 60 mm, max. diameter 8 mm) and superconducting shields.

The standard resistor is formed on a copper-clad printed circuit board (PCB) by etching. It has a value of $10^{-5}\ \Omega$ and a long term stability better than 0.1 %.

The sample holder has a base plate from PCB. The spring contacts are made from gold plated pins of a commercial multipin connector. The contacts at one end are soldered to the copper foil on PCB (etched to the suitable form). The

samples are held by a bent cover. The contact force is controlled by two screws holding the cover on place. The contact resistance (of four contacts in series) is 1-10 mΩ. The low temperature probe is surrounded by a superconducting shield: a brass tube of 23 mm diameter covered with soft solder. Besides, the SQUID has a separate shield made of lead foil of 0.2 mm thickness. The measuring current is provided by a battery powered current source. The current range is from ± 10 μA to ± 100 mA.

The sensitivity in our arrangement is limited by the thermal noise generated in the contact resistance [3].

$S_u = \left(\frac{\overline{U}^2_n}{B}\right)^{1/2} \sim (4kT\,R_c B)^{1/2}$ in our case $R_c \sim 1$ mΩ, $T \sim 4.2$ K, so $S_u \sim 0.49$ pV/$\sqrt{\text{Hz}}$. The resistance of the samples is usually in the range from 1 μΩ to 0.1 nΩ, so a low current (a few tens of mA) makes possible to perform the measurements with an accuracy of ± 1 %.

An important source of systematic error can be the direct influence of the sample current to the SQUID (represented by M_p on fig. 1). It was measured experimentally using a two hole SQUID. With the aid of the shield it was reduced to a value of $4.10^{-10}\,\Phi_o$/μA for the toroidal SQUID. Its contribution to the output is below the sensitivity of the apparatus. The stability of the gain is determined by R_s. It is calibrated regularly via a series of resistors in the range for 1 mΩ to 0.1 μΩ. No drift above 0.1 % has been detected since three years.

The stability and reeettability of the current source is better than 10^{-4} and 10^{-3} respectively.
The probe works at temperatures below 4.2K without detectable change of the calibration down to 1.9 K.

3. A biomagnetic measuring system

The sensitivity of SQUID magnetometers makes it possible to detect magnetic fields generated in the human body either by magnetic contaminations (e.g. inhaled magnetic dust) or by the activity of different organs (e.g. heart, brain, muscles). The main problem is how to

suppress the external magnetic noises generated by the Earth and some other factors, e.g. electric network, etc. One solution is to perform biomagnetic measurements in magnetically shielded rooms but it is too expensive for clinical use. Another possibility is to use gradiometers i.e. to make the detector very "short-sighted". This approach is adopted by the majority of experimenters. In our laboratory we developed a preliminary version of a biomagnetic detector consisting of a SQUID and a first-order gradiometer. The gradiometer consists of two coils wounded in opposite directions to provide rejection against homogenouos external fields. The core of the gradiometer is plexiglass, the main dimensions: diameter 29.5 mm, distance between the two coils 130 mm. Three externally adjustable superconducting rings are attached for balancing the two effective areas in all the three directions. A room temperature balancing procedure has been developed [4]. In our measurements a 40 MHz SQUID electronics is used with a directional coupler. The instrument makes it possible to detect magnetocardiograms outside the laboratory building. The next step will be the construction of a higher order type gradiometer to improve rejection of external noises.

References

[1] S. Mészáros, K. Vad, R. Tichy, V. Petricek, Czech. J. of Phys. B 34 (1984), pp. 712-719.

[2] S. Mészáros, K. Vad, Proc. 16th Symp. on Low Temperature Physics and Cryoelectronics, FSU Jena, DDR, 1984, pp 145-149.

[3] R.P. Giffard, R.A. Webb, J.C. Wheatley, J. Low Temp. Phys., 6 (1972) 533

[4] K. Vad, S. Mészáros, Cryogenics, 9 (1984) 460.

Development of an In-Beam Conversion-Electron Spectrometer with Superconducting-Magnet Electron-Transporter. The Cryogenical Designing

D. Novák, F. Tárkányi, K. Füle, T. Fényes
Institute of Nuclear Research of the Hungarian Academy of Sciences,
Debrecen, Hungary, H-4001, P.O.B. 51.

For "in-beam" measurements of conversion-electrons a spectrometer has been developed in the Institute of Nuclear Research between 1971-80, making use of the superconducting magnet technology.

It is well known, that in-beam conversion-electron spectroscopy is an effective tool of nuclear structure investigations, but at the same time it imposes special requirements on the measuring equipment. Because of the generally low probability of the conversion-electron emission, a good electron collection- and detection efficiency is necessary, together with a good energy resolution. In case of in-beam conversion spectroscopy. Special solutions are inevitable to suppress the high background radiation (beta--electrons, secondary- and delta-electrons, gamma- and X-rays or scattered particles of the bombarding beam). For reducing the effect of beam intensity fluctuations, as well as for economizing on accelerator time, electron spectra preferably have to be measured simultaneously in the whole energy range instead of energy steps.

A combined electron spectrometer, consisting of one or two Si(Li) detectors and solenoid magnetic field, can satisfy the above requirements. In the homogeneous transport field of the solenoids the electrons fly on helical orbits and are transported to the detectors placed farther from the target. The energy determination is performed by the Si(Li) detectors; the magnetic field of the solenoids is dispersionless. The diameters of the helical orbits depend on the energy and

emission angle of the electrons as well as on the strength of the magnetic field. By using two detectors and by applying sufficiently homogeneous and strong magnetic field, the majority of the electrons, emitted from the target can be transported and detected. Up to an upper energy limit (depending on field and detector -size) all emitted electrons are transported in a homogeneous field. Because of the so-called magnetic mirror effect, inhomogeneity of the field (namely increasing field) decreases the electron transmission. The decrease is independent of the energy. The intensity of the background radiation is reduced first of all by the distance between target and detectors. Further decrease can be achieved by the application of screening baffles, retarding electric field (mainly low energy delta-electrons), and using detectors of smaller diameter.

In-beam spectrometers of this type appeared twenty years ago, first with normal solenoids [1,2]. The principle proved to be really effective by the use of strong magnetic fields of superconducting solenoids [3,4].

The special feature of our spectrometer [5] is that it is designed for use on low-energy (3-5 MeV) proton-beam of a Van de Graaff accelerator, where the deflection of the bombarding beam by the spectrometer magnetic field had to be taken into account. A double coil transport system has been used with two Si(Li) detectors, to collect electrons emitted to all directions and to make the spectrometer applicable to coincidence measurements. At the target a magnetic induction of 3.3 tesla was calculated to be necessary, so electrons of up to 1,6 MeV can be transported with full effectivity to the Si(Li) detectors of 1,2 cm diameter. We used IMI FMA 61/40 type of multifilament niobium-titanium superconducting cable. The short sample characteristics and the working line of the solenoids can be seen on Fig.1, while Fig.2. shows the magnetic field distribution. The inhomogeneity of the magnetic field is $\Delta B/B \approx 4.7$ % around the target, and this defines a transmission efficiency of 76 % for electrons emitted into 4π steradian. Taking into account the back-

scattering of electrons from the surface of the detectors, a detection efficiency of 56 % was achieved. The beam passes in the symmetry plane between the solenoids. The calculated deflection of the beam is shown in Fig.3. The gap is 20 mm between the coils and the attractive force is 12 kN between them at the maximal 83 A current. It was important to fasten the solenoids against this force with the possible smallest wall thickness of their separating flange (which contained the inner beam channel, too.) Increasing the gap would mean higher inhomogeneity and so lower transmission efficiency. On the other hand, imperfect fastening might have led to unwanted movement and degradation of the superconducting coils. A 3.5 mm wall thickness of the beam channel proved to be rigid enough and the fastening of the solenoids to the flange was performed by bell-shaped clamps around the coils. The construction of the solenoid system is shown in Fig.4.

The construction of the cryostat complies with the magnetic system: double lHe and lN_2 chambers are used. The useful volume of the lHe chamber is ~ lO lit. The helium chamber is openable at an indium O-ring on the separating flange. The thermal contraction of the central tube is compensated by an Edwards-type sealing on the cryostat-head. The vacuum system is common for the beam channel and the detector-target space. Vapour-cooled current leads are used. The cryostat itself and most of the cryotechnical instrumentation have been made in ATOMKI. Before filling the cryostat with liquid helium, we precool the solenoids with liquid nitrogen. For cooling from 65-70 K to 4.2 K approximately 5-8 l of liquid He is necessary. The evaporation rate is about 1.5 l/h, at the maximum current. The construction of the cryostat can be seen in Fig. 5. Fig. 6 shows the spectrometer on the beam channel of the Van de Graaff accelerator.

Fig.7. shows the transmission efficiency of the spectrometer. Fig.8. presents electron spectra of ^{133}Ba and ^{207}Bi calibration sources taken with the spectrometer. In-beam conversion electron spectrum of ^{100}Mo is shown on Fig. 9.

Up to now the conversion electron spectra of the

^{70}Ga, ^{76}As, ^{82}Br, ^{96}Nb, ^{97}Tc, ^{98}Tc, ^{100}Tc, ^{102}Rh nuclei were measured with the spectrometer in about 35 working cycles, with 400 hours of superconducting state of the solenoids.

References

[1] Burginyon, G.A., Greenberg, J.S., Nucl. Instrum. Meth. 41 (1966) 109

[2] Klank, B., Ristinen, R.A.: Design and Performance of a Transport Solenoid-Si(Li) Detector Conversion Electron Spectrometer for On-line Use with Accelerators. Proc. Internat. Conf. on Radioactivity in Nucl. Spectroscopy. Eds. J.H. Hamilton, J.C. Manthuruthil (Gordon and Breach, New York, 1969) Vol 1., p.207.

[3] Burson, S.B., Rep. Argonne Nat. Lab., No 7436 (1966) p.3.

[4] Waldschmidt, M., Osterman, P., Nucl. Instrum. Meth., 89 (1970) 65.

[5] Árvay, Z., Fényes, T., Füle, K., Kibédi, T., László, S., Máté, Z., Mórik, Gy., Novák, D., Tárkányi, F.: Nucl. Instrum. Meth., 178 (1980) 86.

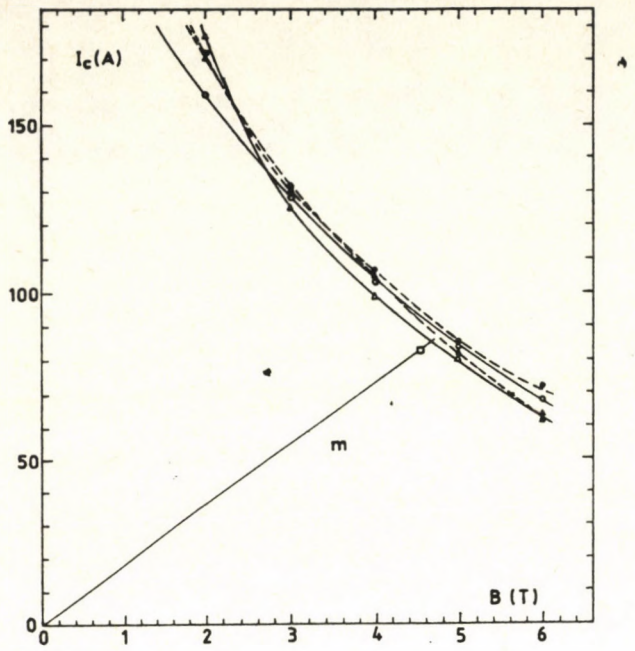


Fig.1. Short sample characteristics of the IMI FMA 61/40 superconducting cables and the working line of the solenoid-system.

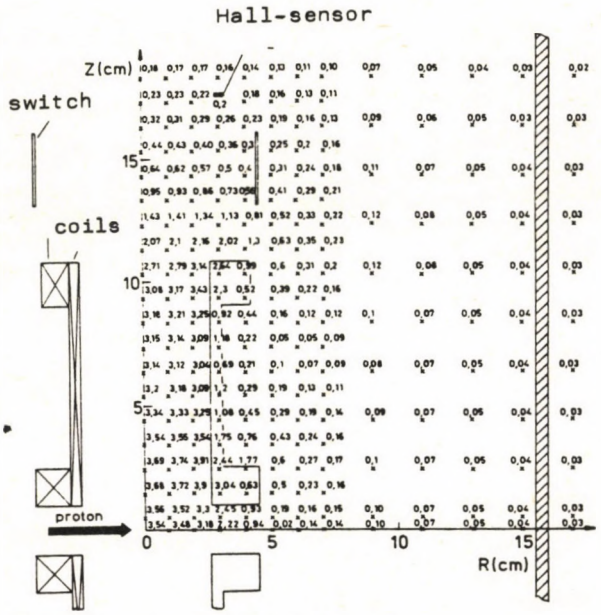
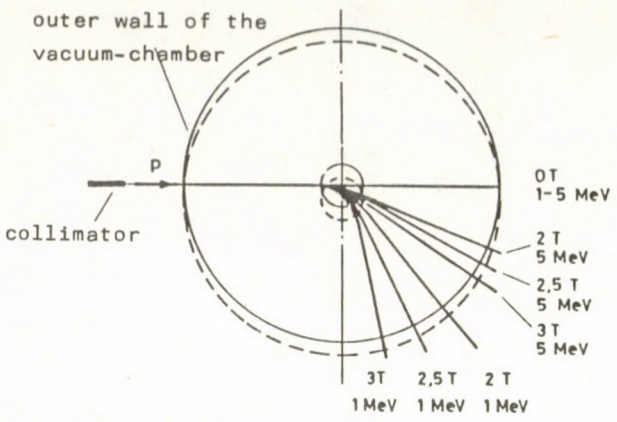


Fig.2. Magnetic field distribution of the solenoids in a vertical plane.



ig.3. Deflection of the bombarding proton beam in the spectrometer magnetic field at different proton energies and magnetic induction values.

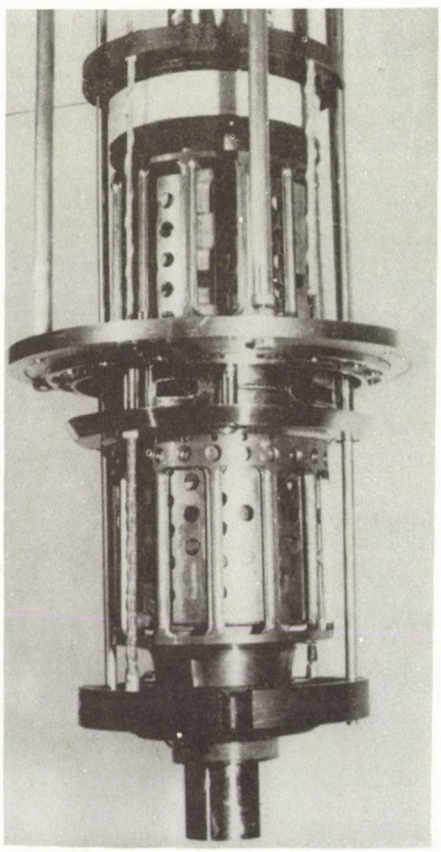


Fig.4. Construction of the solenoid system.

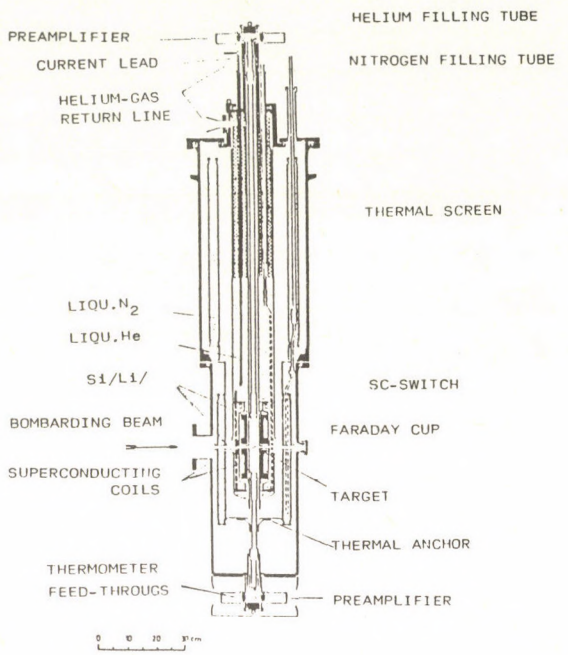


Fig.5. Construction of the spectrometer.

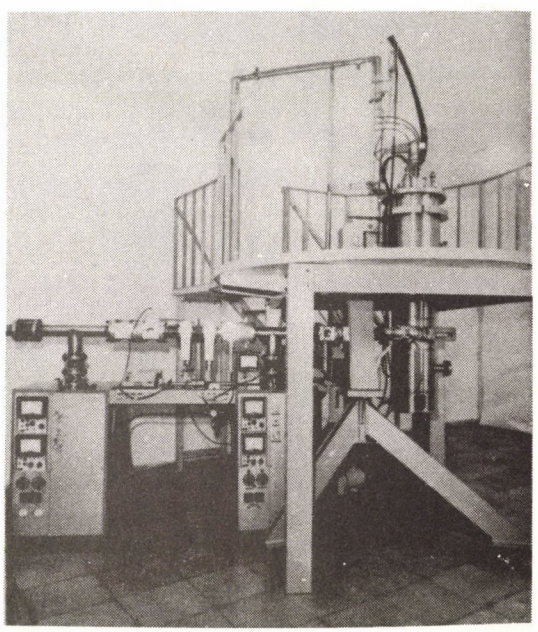


Fig.6. The spectrometer on the beam channel of the Van de Graaff accelerator.

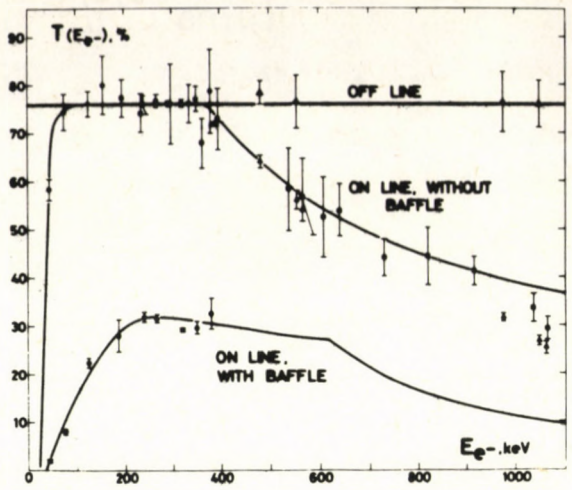


Fig.7. Measured and calculated transmission efficiency of the spectrometer.

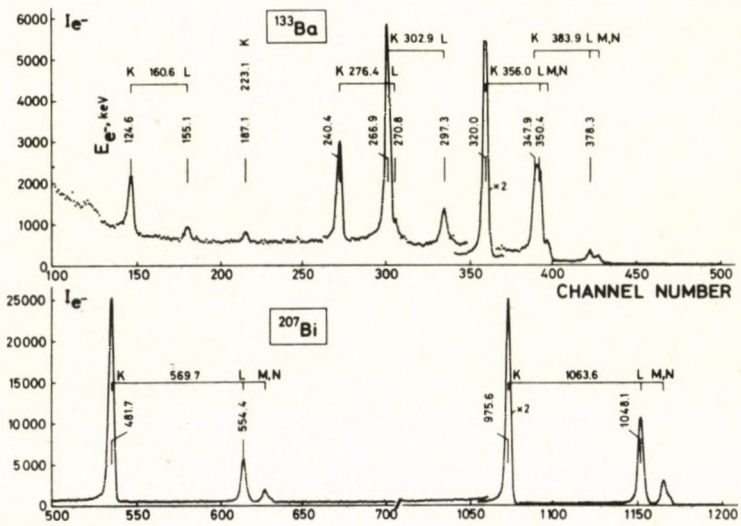


Fig.8. Conversion electron spectra of ^{133}Ba and ^{207}Bi calibration sources.

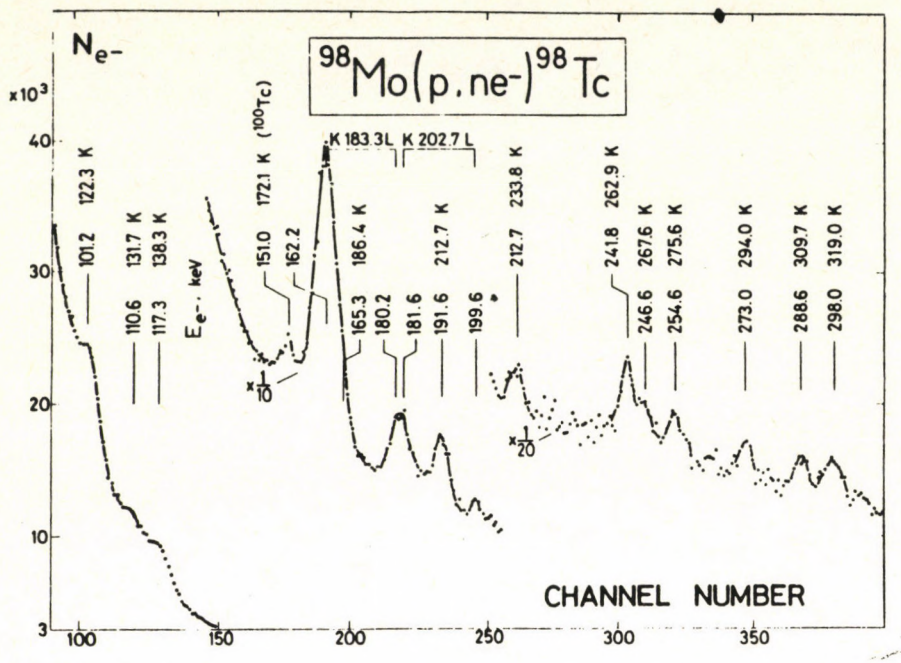


Fig.9. Typical in-beam conversion electron spectrum of ^{98}Tc

MTA Könyvtára
Periodika 19 86/316 n.

Az ATOMKI Közlemények a Magyar Tudományos Akadémia Atommagkutató Intézetének riportjait gyüjti egybe, és negyedévenként jelenik meg. Terjeszti az ATOMKI Könyvtára (Debrecen, Postafiók 51, 4001). Tudományos intézetek és könyvtárak kiadványaikért cserébe vagy ellenszolgáltatás nélkül is megrendelhetik. Egyes számokat a Könyvtártól, egyes riportokat közvetlenül a szerzőktől (gyüjteményes riportok esetén a riportok szerkesztőitől) lehet kérni.

Szerkesztő Bizottság: Szalay Sándor elnök, Lovas Rezső titkár, Berényi Dénes, Cseh József, Csikai Gyula, Gyarmati Borbála és Medveczky László.

Kiadja a
Magyar Tudományos Akadémia
Atommagkutató Intézete
A kiadásért és szerkesztésért felelős
dr.Berényi Dénes, az intézet igazgatója
Készült a Kinizsi Szakszövetkezet
Nyomdájában
Törzsszám: 65765
Debrecen,1985/november
Példányszám: 209

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

ATOMKI KÖZLEMÉNYEK

Volume 27/ Number 4.

CONTENTS

Fényes Tibor: A páratlan-páratlan atommagok modelljei II. átmeneti magok 4

E. Sabbioni: Radioactivation and radioactive tracer methods for research related to the protection of the environment and human health at the Joint Research Centre - ISPRA 4

Workshop on Low Temperature Physics. Proceedings (ed. by S. Mészáros and D. Novák) 4

539

HU ISSN 0004-7155