

GŐZTÉRBEN VÉGBEMENŐ ANYAGTRANSZPORT VIZSGÁLATA Na^{24}Cl -DAL*

TURCHÁNYI GYÖRGY, HORVÁTH TÜNDE és TARJÁN IMRE

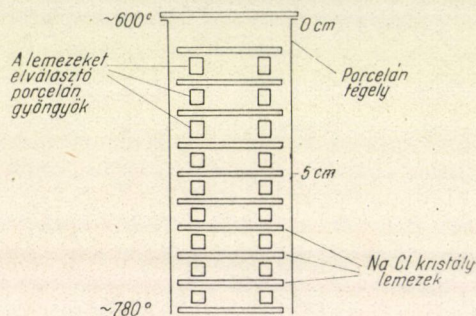
Orvosi Fizikai Intézet, Budapest

Egyik előző dolgozatunkban néhány tapasztalatról számoltunk be együtt temperált NaCl lemezek hőkezelésére vonatkozólag [1] (1. ábra). Most néhány mérési eredményünket ismertetjük, melyeket a lemezrendszerbe vitt Na^{24}Cl eloszlására kaptunk.

A Na^{24}Cl gamma-sugárzásának felezési ideje kb. 15 óra, felezőrétegének vastagsága ólom esetén kb. 16 mm. Méréscinkhez az aktivitást oldatban kaptuk, mégpedig rendszerint 2 mC/cm^3 hígításban. Az aktív oldatot a kívánt mennyiségben a kristály felületére pipettáztuk, majd infravörös lámpa alatt bepároltuk. Temperálás után a kristálylemezeket, illetve azok megmérni kívánt részét $1-2 \text{ cm}^3$ vízben oldva, normál kémcsőben üreges NaJ(Tl) kristállyal 1872-es decimál scalerrel mértük ki.

Minden nyomjelzős mérés problémája, hogy ionszere lép fel az aktív és nem aktív ionok között. Esetünkben is csak kellő óvatossággal szabad a temperálás után a lemezekben talált aktivitásból a lemezrendszerben a temperálás alatt lezajló folyamatokra következtetni. — Azt biztosan állíthatjuk, hogy a Na^{24}Cl molekulák jelzik azt az utat, amelyet a vele aktivált lemezek molekulái a temperálás alatt bejárnak.

Az ionszere következtében egy aktivált felület elpárolgás folytán sohasem szabadul meg teljesen az aktív ionok jelenlététől. Ez éppen úgy kiértékelési nehézségekhez vezet, mint az, hogy a párolgási folyamatban elsősorban a felületi aktív molekulák vesznek részt, nem pedig a kristálylemezre vitt egész aktivitás. — A kapott aktivitásokat mindig csak relatíve lehet tekinteni, mert nyilván a bevitt aktivitás értékétől is függ a nem aktivált lemezekben a temperálás után talált aktivitás értéke.



1. ábra. A lemezrendszer felépítése

1. A lemezrendszer egyes tagjaihoz tartozó molekulák elterjedése a többi lemezen

A lemezek egyikének valamelyik felületére az említett módon aktivitást vittünk fel, majd temperálás után az egyes lemezeket kettérepesztettük és mértük az alsó, ill. felső felületeken, valamint az elválasztó gyöngyökön lerakódott aktivitást. A gyön-

* Érkezett 1963. III. 28.

gyök aktivitását „visszaadtuk” az alattuk levő felületnek, bár a rájuk lerakódott aktivitás, amint ez a 2. ábra idevonatkozó adataiból kitűnik, magukon a lemezeken kapott aktivitáshoz képest általában elhanyagolható, az illető felső felület aktivitásának legfeljebb 10%-a volt.

A 3. ábrán a 2. ábra elrendezése szerinti aktiváláskor különböző helyzetű lemezek különböző felülete, különböző kályhák, különböző hosszú ideig történő temperálás esetében adjuk meg az egyes lemezek aktivitásának eloszlását a lemezrendszerben. A 3. ábra adataiból látható, hogy

1. mindegyik lemez molekulái elterjednek és beépülnek a lemezrendszer valamelyik tagjába;

2. a szomszédos lemezekbe beépült molekulák mennyisége exponenciálisan $N = N_0 e^{-\lambda d}$ törvény szerint csökken, ahol d az aktív lemeztől számított távolság;

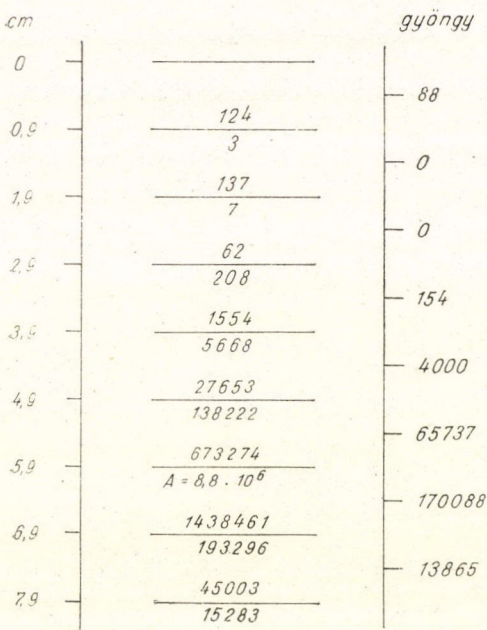
3. a lemezrendszer legszélső tagjait leszámítva λ , tehát a „felezőréteg” vastagsága (kb. 2–3 mm) nagyjából független

a) a temperálás idejétől;
b) az egyes kályhák hőmérsékleteinek kisebb eltéréseitől;
c) a lemezek helyzetétől: attól, hogy
d) a lemez alsó vagy felső felülete volt-e aktív;

e) a lemezrendszer tagjainak alsó vagy felső felületén vizsgáljuk-e a beépülést;

f) az aktivált lemeztől felfelé vagy lefelé vizsgáljuk-e az aktivitás terjedését.

4. Akár a felső, akár az alsó felületet aktiváltuk, temperálás után felfelé mindig az alsó, lefelé pedig a felső felületek mutatnak (3–4-szer) nagyobb aktivitást.

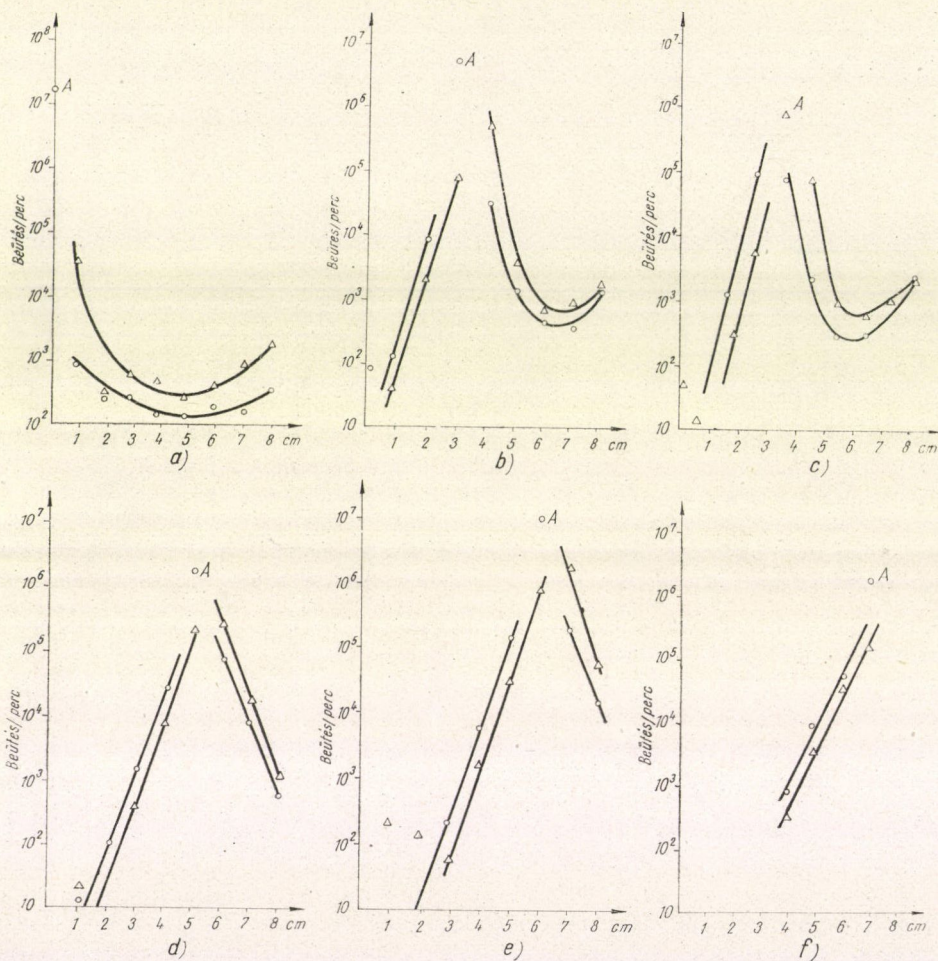


2. ábra. Az 5,9 cm mélységben levő lemez alsó felületére aktivitást vittünk fel, majd 15 órás temperálás után megmértük az aktivitás elterjedését a lemezrendszer tagjain és az elválasztó gyöngyökön. Az ábrán baloldalt megadjuk az egyes lemezek felső felületének a tégely szájától való távolságát cm-ben, a rajz közepén a lemezeket sematizáló vonalakon a felső, ill. alsó felületen a hőkezelés után talált aktivitást a háttér levonása után beütés/percben, jobboldalt pedig a gyöngyökön lerakódott aktivitást (a háttért ugyancsak levonva).

5. Valamennyi lemezről származó aktivitás a legtöbb esetben aránylag jelentős mértékben jelentkezik a tégely alsó részében.

Az exponenciális beépülés törvényét más oldalról adta vissza a következő mérésünk. Aktivált felület fölé 2 mm távolságtól kezdve — a távolságot 2–2-mm-rel növelve — 22 mm távolságig 1–1 órán át 1–1 lemezt tettünk. A lemezekbe beépült aktivitás a távolság függvényében most is exponenciálisan csökken. A felezőréteg vastagsága csaknem kétszer akkora, mint lemezrendszer esetén (4. ábra a görbe).

Ha az egyes lemezekbe beépült aktivitást korigáltuk — tekintetbevéve azt, hogy közben az aktív lemez aktivitása lebomlás, párolgás folytán csökken (ennek mértékét is kimértük), akkor a 4. ábra *b* görbéjéhez jutottunk. Ez utóbbi tehát azt mutatja, hogyan csökkenne a beépülés a lemezek közötti távolság függvényében, ha a nem aktív lemez mindig ugyanakkora aktivitású lemez felett volna.

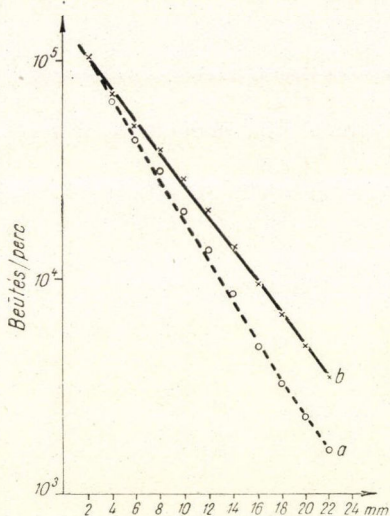


3. ábra. Aktivitást vittünk fel valamelyik lemez alsó, ill. felső felületére. Temperálás után a lemezeket kettérepszettük, és megmértük az egyes (alsó: \circ , felső: Δ) felületek aktivitását. Az ordinátára a mért aktivitást a háttér levonása után beütés/percban adjuk meg, az abszcisszára az egyes lemezek felső felületének a tégely szájától való távolságát mértük fel cm-ben:

a — 1. sz. kályha, 27,5 órás temperálás (vegyük észre, hogy az aktivált lemez aktivitása (A) egy nagyságrenddel nagyobb, mint a többi esetben); b — 5. sz. kályha, 38 órás temperálás; c — 1. sz. kályha, 60,5 órás temperálás; d — 1. sz. kályha, 25 órás temperálás; e — 1. sz. kályha, 27 órás temperálás; f — 6. sz. kályha, 15 órás temperálás.

2. Két szembenfekvő felület kölcsönhatásának vizsgálata

A lemezrendszer kb. 8 cm mélységében levő tagjának *felső* felületére aktivitást vittünk föl, majd 11 órás temperálás után az aktivált lemezt és a felette levő lemezt 25 részre daraboltuk. A részecskék aktivitását (beütés/percben mérve) súlyukkal



4. ábra. Aktivált felület feletti lemezek alsó felületén beépült aktivitás a lemezek távolságának függvényében. A temperálás ideje mindig 1—1 óra volt. Az *a* görbét kapjuk, ha a lemezeket kapott aktivitást minden korrekció nélkül vesszük, mint ahogy ezt a 3. ábrán tettük; a *b* görbéhez jutunk, ha a mérési eredményeket korrigáljuk az aktív lemez aktivitásának temperálás alatti (lebomlás, párolgás) csökkenése miatt.

eloszlást is megmutatjuk. Jól látható, hogy a gyöngyökkel nem fedett 2. és 3. sor, ill. *B* és *C* oszlop egyezése kielégítő, a többinél is csak azoknak a pontoknak helyzete nem megfelelő, amelyeket a gyöngy elfedett.

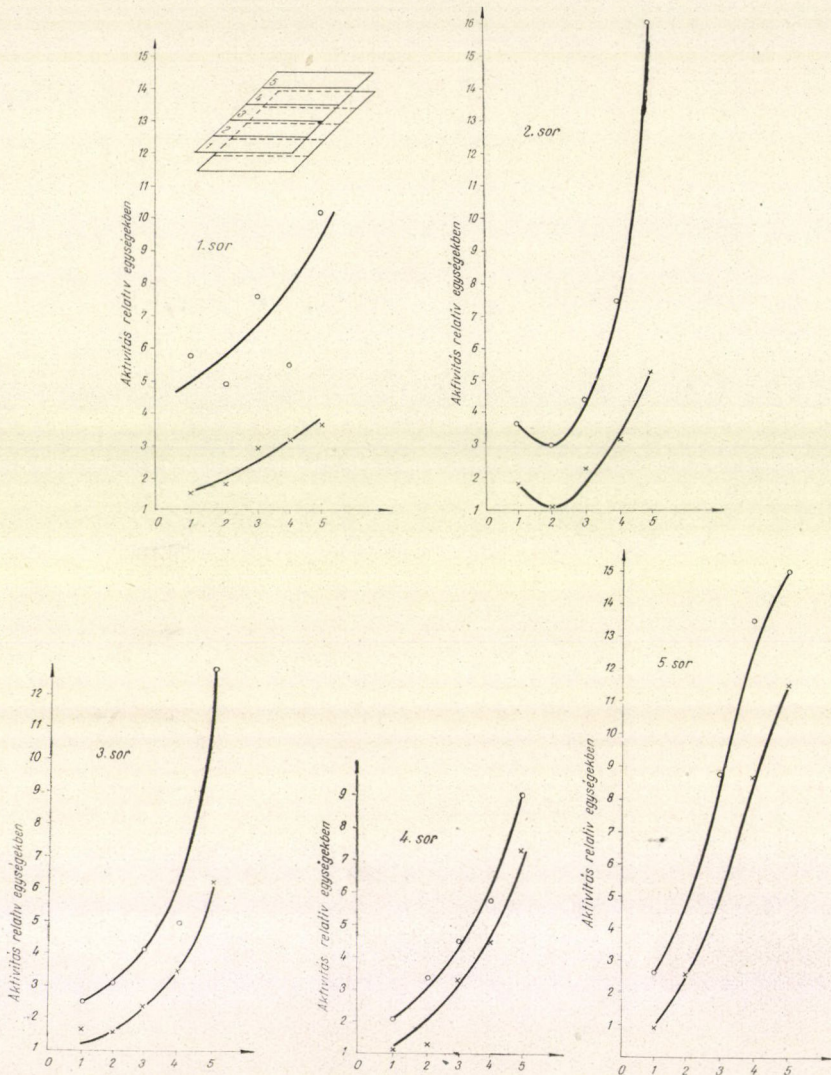
Más, hasonló méréseink is azt mutatták, hogy nemcsak a felső felület rajzolja fel a maga tükörképét a felette levő, tehát hidegebb alsó felületre, hanem fordítva is: az alsó, hidegebb felület is átformálja „a maga képére” az alatta levő, melegebb „csak” párolgó felületet!

Megjegyezzük, hogy izotóp nyomjelzővel kimérhető az is, hogy a két egymásfelé forduló lemezfelület kölcsönhatása esetünkben milyen távolságban mosódik el. A mérést a következő módszerrel végeztük el. Inhomogén eloszlásban aktivitást vittünk fel egy 8 cm mélységben elhelyezett lemez felső felületére. A lemez fölét

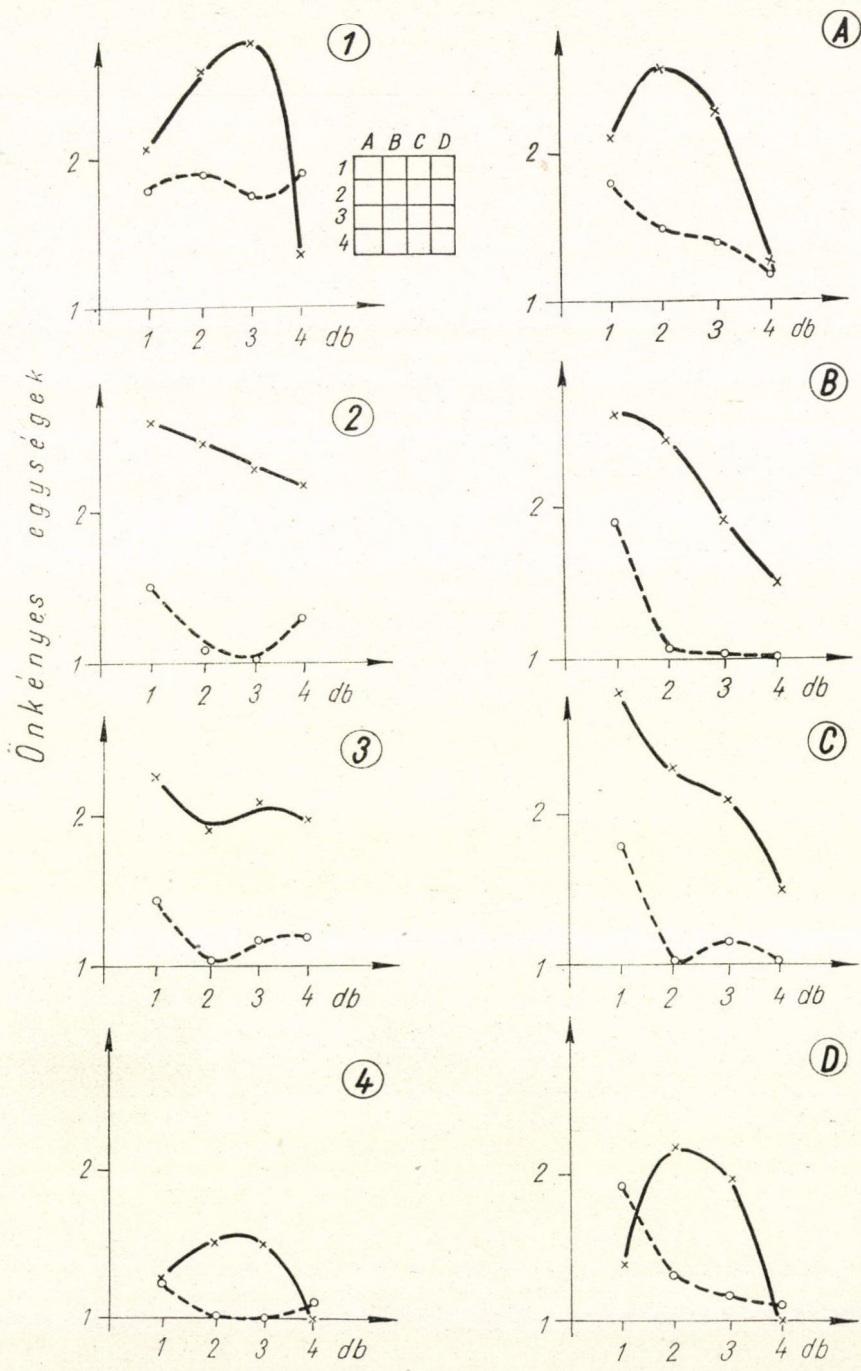
osztva megkaptuk a rajtuk megmaradt, ill. a rájuk lerakódott aktivitás átlagos értékét. Az így kapottak közül a legkisebbet vettük egységnek. Amint az 5. ábrán közölt mérési adataink mutatják, a két aktivitás-eloszlás eléggé megfelel egymásnak.

A mégis meglévő eltérésnek egyik oka lehet az, hogy az egyes, kb. $5 \times 5 \text{ mm}^2$ felületű kristályokon az aktivitás eloszlásának erős inhomogenitása következtében az egyes részek azonos méretére olyan mértékben kellene ügyelnünk, amelyet nem tudunk megvalósítani. — Egy másik ok lehet az, hogy az elválasztó gyöngyök akadályozzák a kristálylemezek egymás felé forduló felületeinek kölcsönhatását.

Ez okozza a 6. ábrán közölt mérési adatoknak nem teljes megfelelését is. Ekkor a kb. 6 cm mélységben levő lemez *alsó* felületére vittünk fel aktivitást és vizsgáltuk 27 órás temperálás után az aktivitás-eloszlást az aktív alsó és az alatta levő, eredetileg nem-aktív lemez felső felületén. A lemezeket elválasztó gyöngyöket a sarkokra helyeztük. Temperálás után a lemezeket 16 részre osztottuk, megint meghatároztuk az aktivitás/tömeg (beütés/mg. perc) hányadost, majd az összehasonlíthatóság érdekében megint ezen utóbbiak közül a legkisebbet tekintettük egységnek, így kaptuk meg az ordinátákra felírt relatív értékeket. A 6. ábrán az oszlop szerinti

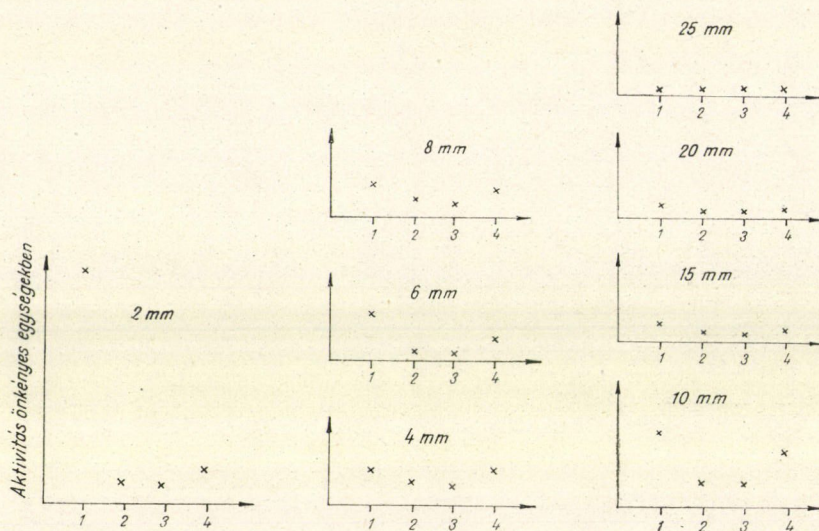


5. ábra. Aktivált felső felület aktivitásának lettkörződése a felette levő alsó felületre. Az x jelzésű adatok az eredetileg aktivált (felső) felület, az o jelzésű adatok a temperálás alatt aktiválódott (alsó) felület adatai. Az „1. sor” aktivitás eloszlásnál feltüntettük a két lemez helyzetét és részben a darabolás módját. Az alsó lemez felső felületére vittünk fel aktivitást, a lemezrendszert temperáltuk, s temperálás után az aktivált lemezt, majd a felette levő lemezt 25–25 részre osztva mértük az egyes kis részek aktivitását, melyet tömegükkel osztva, megkaptuk átlagos aktivitásukat. Az ordinátán az aktivitást relatív egységekben adjuk meg. Az egyes lemezek 25-öd részére kapott beütés/mg. perc értékük közül a legkisebbet egységnek véve, kaptuk az ordinátán feltüntetett értékeket. Az abszcisszán megadott számértékek darabszámok.



6. ábra. Aktivált alsó felület aktivitásának letükröződése az alatta levő felső felületre. Az x jelzésű adatok az eredetileg aktivált (alsó) felület, az o jelzésű adatok az előbbi alatt levő (felső) felület adatai. Az I jelzésű részabránál, az 1. sor aktivitás eloszlásának ábrázolásán kívül feltüntetjük a lemezek feldarabolásának módját is. A temperálás után a két felületet 16–16 részre osztottuk, megmértük az egyes kis részek aktivitását, melyet tömegükkel osztva megkaptuk átlagos aktivitásukat. Az utóbbiak közül a legkisebbet egységnek véve, kaptuk az ordinátán feltüntetett értékeket. Az abszcisszán megadott értékek darabszámok.

azonos időn, 1–1 órán át különböző távolságra másik lemezt helyeztünk, majd ezt az előbbi módon 25 részre feldarabolva kimértük, kiértékeljük. A mérési eredményeket a 7. ábra mutatja. Amint látjuk, teljes homogenitást csak 25 mm távolságban kaptunk.



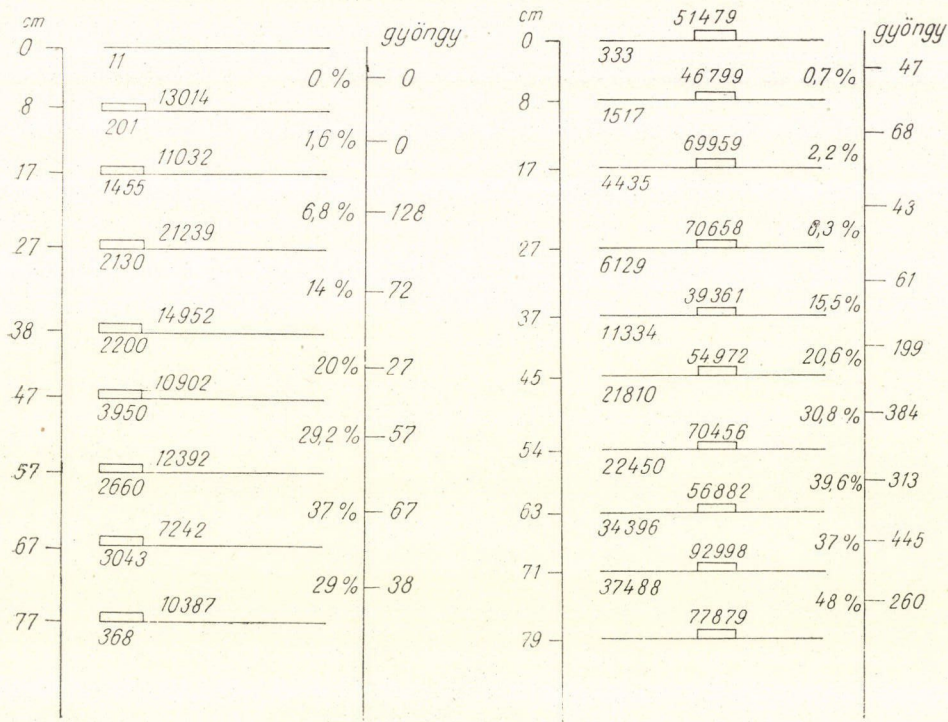
7. ábra. Aktivált felső felület fölé 1–1 órára különböző távolságokra 1–1 lemezt helyeztünk, majd a lemezeket 16–16 részre vágtuk. Az egyes kis lemezkék aktivitását az egész lemez tömegével megszoroztuk (korrekció azonos vastagságra), majd osztottuk maguknak a lemezkéknek a tömegével (átlagos 1 mm^2 felületre), majd a legkisebb aktivitást mutató lemezke aktivitásával. Az így kapott értékek adják a kristálylemezek aktivitását önkényes egységben. Az ábrán az egyik, egymás fölé eső sorhoz tartozó lemezkék aktivitását adjuk meg.

3. A lemezrendszer által alkotott résekben lejátszódó folyamatokról

A lemezrendszer egyes tagjainak felső vagy alsó felületére (vizes ragasztással) kis, kb. $5 \times 5 \times 1 \text{ mm}^3$ méretű lemezkéket helyeztünk. A lemezkék szabadon maradt felülete aktiválva volt, az aktivitás értékét megmértük temperálás előtt, temperálás után. Megmértük ezenkívül temperálás után a gyöngyökre került aktivitást, és a lemezeket kettépepszteve: alsó és felső felületük aktivitását.

A 8. ábrán két 24 órás temperálás adatait tüntettük fel. Az ábrából egyúttal látható a temperálási elrendezés is. A 8a ábrán a lemezkéket az egyes lemezek szélére, a 8b ábrán pedig a közepére tettük. Mindkét ábrán a tégely baloldalán – kívül – levő értékek az egyes lemezek helyét adják meg mm-ben. A két mérés mm-adatai közötti eltérést az egyes lemezek vastagságának különbözősége okozza. A lemezek közötti rés most is, mint minden esetben $7,5 \text{ mm}$ széles volt. A 8. ábrán a tégelyalak jobboldalán a gyöngyök aktivitásának értékét adjuk meg beütés/perc-ben. Megjegyezzük, hogy a mérési adatokból már levont háttér 200 beütés/perc volt általában. Éppen ezért a háttér levonása után megmaradt pl. 50 beütés/perc

és alatti értékeket, mint a háttér ingadozásába esőket, csak fenntartással szabad elemezni. A 8. ábrán a lemezek felső felületére írt számok a temperálás után a felső felületen megjelent és a kis lemezkéken megmaradt aktivitás együttes értékei beütés/percben. Az alsó felületekre írt értékek a temperálás után ezeken megjelent aktivitás. A felső felületekre írt értékeket úgy tekinthetjük, mint a szemközti alsó



8. ábra. Két 24 órás temperálás adatai: a esetben aktivált felületű kb. $5 \times 5 \times 1$ mm³ méretű lemezkéket helyeztünk az egyes lemezek felső felületére — oldalt; b esetben pedig a lemezek közepére. A tégely alak baloldalán az egyes lemezek felső felszínének helyét mm-ekben, jobboldalán pedig a gyöngyökre lerakódott aktivitás értékét adjuk meg beütés/percben. A lemezek felső, ill. alsó felületére írt értékek a temperálás után ezeken fellelhető aktivitás beütés/percben. A %-értékek azt mutatják, hogy a felső felületek aktivitásának hány %-a a velük szemben levő felületé.

felületekre ható aktivitás mértékét, melynek hatását úgy értékeltük ki, hogy hány %-a az alsó felületen talált aktivitás az alatta levő felső felületen megmaradt. — Amint a 8. ábrából látható, nagyjából mindegy, hogy az aktivált lemezkét hogyan helyezzük el, a lerakódások százaléka eléggé azonos.

Az egyes lemezek felületén lejátszódó folyamatokra ad felvilágosítást a 9. ábra. A 9a ábrán bemutatott mérési eredményeink arra az esetre vonatkoznak, amikor az egyes lemezek felső felületének 4—4 sarkára helyeztünk el lemezkéket, s mértük a lemezkék aktivitásának a temperálás hatására bekövetkezett százalékos csökkenését 54 órás temperálás után. Az egyes kis lemezkék aktivitása nyilván egymásra is hatott, de tapasztalataink szerint a lemezkék kölcsönhatása, mint az a 9b ábrán

— összehasonlíthatóság érdekében megadott, és — egyenként elhelyezett lemezekre vonatkozó aktivitásvesztések adatai mutatják, nem jelentős, az *a* és *b* ábra görbéinek lefutása alig különbözik. Az együtt temperált 4–4 lemezke aktivitásvesztése egyúttal arra is felvilágosítást ad, hogy mekkora mérésünk szórása.

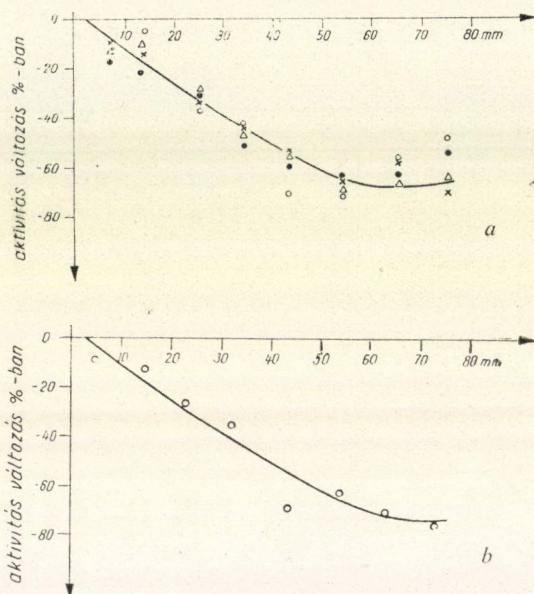
Amint a 9. ábra mutatja, a kis lemezek aktivitáscsökkenése igen jelentékeny lehet, kb. 6–7 cm mélységben maximális, itt kb. 50 órás temperálás után eléri a 80%-ot.

Kérdés, hova kerül a kis lemezek aktivitása?

A kérdés megválaszolása érdekében szisztematikusan megvizsgáltuk, hogy a lemezrendszer egyes tagjainak közepére helyezett egy-egy kis, aktivált felületű lemezke aktivitása hogyan csökken a temperálás idejének függvényében, mennyi kerül ebből a lemezkehez tartozó kristály felületére és mennyi a szemközi felületre.

Mint a példaképpen bemutatott 9. ábra mérési eredményei mutatták, temperálás folytán általában a kis lemezek aktivitása igen nagymértékben csökken. Az „eltűnt” aktivitás egy része, mint az a 8. ábrából is látható, megtalálható volt az aktivált lemezkével szemközi felületen, másik része pedig magán-a vele érintkező felületen. Ez a két felület egy rést alkot, és ennek „zártágát” abból ítéltük meg, hogy a benne összesen (kis lemezen, ez alatti és a vele szemközi felületen) a temperálás után talált aktivitás hány százaléka annak az aktivitásnak, amelyet a kis lemezek hőkezelés nélkül egyszerű lebomlás miatt mutattak volna. Amint a most következő táblázatok mutatják, az aktivitás 75–100%-ig megmarad a szemközi felületek alkotta résben, tehát a hőkezelés alatt végbemenő folyamatok zöme csakugyan ezeken a résekben belül játszódik le.

A táblázatokba foglalt mérési eredmények megítélésakor szemelőtt kell tartanunk, hogy az egyes lemezek aktivitása, amint azt az 1. pontban megmutattuk, habár exponenciálisan csökkenő mértékben, de mégis átterjed mindkét irányban, felfelé és lefelé a szomszédos lemezekre. Megjegyezzük azt is, hogy különösen a magasabb hőmérsékletű, tehát a tégely alsó részében levő lemezek szétválasztása bizonyos porlódással jár, és így ezek a mérési adatok jobban szórnak. Azt is tekintetbe kell vennünk, hogy végeredményben két különböző időben elvégzett aktivitásmérés



9. ábra. A lemezrendszer tagjainak felső felületére helyezett kis, kb. $1 \times 4 \times 5 \text{ mm}^3$ méretű lemezkék aktivitásának csökkenése a temperálás hatása alatt: *a* — abban az esetben, ha az egyes lemezek sarkaira 1–1 lemezkét helyeztünk; *b* — ha az egyes lemezek közepére helyeztünk egy kis lemezt.

I. TÁBLÁZAT

Az aktivált lemezke felül.

A temperálás után a kis lemezek elpárolgási veszteségének a részben megtalált mennyisége százalékosan. A temperálás idejét órában, az aktivált kis lemezke alatti felületnek a tégely szájától számított távolságát mm-ben adjuk meg.

6 óras		10 óras		10 óras		14 óras		24 óras		24 óras*		28 óras*		28 óras		55 óras		55 óras	
mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%
15	102	10	101	11	102	17	96	15	99	8	102	8	100	7	89	14	90	13	85
26	101	20	101	22	101	28	98	25	92	17	100	17	98	15	91	23	88	24	86
36	100	30	91	31	99	39	93	34	93	27	99	27	98	24	95	33	87	35	84
46	103	40	89	40	99	49	97	45	89	38	99	37	95	33	95	43	89	44	82
56	94	50	92	49	93	60	98	56	94	47	93	45	95	42	89	54	91	55	79
64	91	60	90	59	92	70	95	64	95	57	96	54	92	52	86	63	89	62	75
76	84	68	86	69	93	80	95	74	97	67	83	63	90	61	95	73	79		
85	86	79	83	76	91			81	86			71	99	70	83	83	87		
		88	89	87	99							79	93	81	78				

* Az aktív lemezke nem középen, hanem oldalt volt.

II. TÁBLÁZAT

Az aktivált lemezke alul.

A temperálás után a kis lemezek elpárolgási veszteségének a részben megtalált mennyisége százalékosan. A temperálás idejét órában, az aktivált lemezkehez tartozó lemez felső felületének a tégely szájától számított távolságát mm-ben adjuk meg.

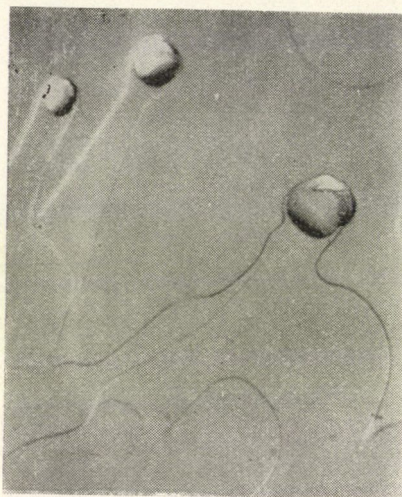
11 óras		11 óras		14 óras		14 óras		24 óras*		24 óras*		30 óras**		30 óras		46 óras		46 óras		51,5 óras		55 óras	
mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%	mm	%
1	87	0	88	3	102	5	104					0	95	5	95	5	99	0	108	8	99	2	103
11	100	9	86	13	111	13	98							16	91	14	96	9	101	19	99	12	84
22	87	17	88	25	108	24	103	18	106	15	99			25	93	25	90	19	99	27	100	21	87
30	90	27	87	36	104	33	108					29	88	35	76	35	94	29	102	35	103	30	100
40	81	36	87	47	98	44	100	37	102	35	97			44	97	45	100	39	95	45	102	40	95
52	84	46	86	55	96	55	98							55	88	56	92	49	93	55	85	50	100
62	83	55	80	64	98	65	99	57	93	55	95	59	82	63	76	67	95	60	95	65	89	60	77
72	83	65	75	74	78	74	92											71	86	73	89	70	90
		75	76					76	85	75	91									84	86		

* Csak minden 2. lemezen volt aktív lemezke.

** Csak minden 3. lemezen volt aktív lemezke.

eredményét kellett összehasonlítani, melyhez azonos mérésgeometriai feltételeket teljes mértékig biztosítani szükségképpen nem sikerült.

A Na^{24}Cl -dal végzett méréseink jól mutatják, milyen erős kölcsönhatásban vannak az együtt temperált próbadarabok. Erre is gondolnunk kell tehát, amikor szokás szerint a feszülések elkerülése érdekében saját anyagának törmelékén, mint alátétén végezzük el a temperálást.



10. ábra. Az ún. túlhűtött csepp jelensége hőkezelt NaCl kristály felületén. A cseppektől kiinduló felületi sáv az ún. protuberancia ($\times 100$).

Úgy véljük, hogy az együtt temperált próbadarabok kölcsönhatása nemcsak egyszerű diffúzióval vagy a térben levő áramlás folytán vándorló gőzmolekulákkal van kapcsolatban, hanem a már Kowarski [2] által megfigyelt, G. G. Lemlein, E. Dukova és A. A. Csernov [3] által részletesen tanulmányozott ún. túlhűtött cseppek útján is (10. ábra). A két szemben forduló felület szabályos kölcsönhatása valószínűvé teszi, hogy a temperáló térben kisebb-nagyobb részecskék kavarnak, megtapadnak a felületeken, esetleg újra elszakadnak onnan, növekvő részecskékből csökkenővé válnak és viszont.

IRODALOM

- [1] Turchányi György, Horváth Tünde és Tarján Imre, Magy. Fiz. Foly., 10, 81, 1962.
- [2] L. Kowarski, Compt. Rend., 195, 1091, 1933.
- [3] G. G. Lemlein, E. Dukova, és A. A. Csernov Krisztallográfija, 2, 428, 1957.

