

Záró beszámoló a 81863 sz. (In-beam Mössbauer-spektroszkópiás mérőrendszer továbbfejlesztése alacsony hőmérsékletű mérésekre és alkalmazása módosított nemesfém katalizátorok vizsgálatára c.) OTKA projektről

A három évre tervezett projekt keretében végleges formában kívántuk kialakítani az in-beam Mössbauer mérőrendszert a Budapesti Neutron Centrum (BNC) neutronvezető csarnokában. Az in-beam technikával folytonos neutronbesugárzás segítségével állíthatók elő gerjesztett, esetenként Mössbauer mérésekre is alkalmas sugárforrások. A megvalósítani tervezett alacsony mérési hőmérséklet (4,2 K) az effektus detektálhatóságát javítja jelentősen. A pályázat beadásakor (és a projekt elnyerésekor) rendelkezésünkre állt a mérések elvégzéséhez szükséges külön neutronnyaláb.

Nem sokkal a pályázat elnyerése után egy újabb neutronos mérőhely kialakítása kezdődött a BNC-ben (fókuszált, kisszögű neutronszórás - FSANS - vizsgálatokhoz), amelyet a Wigner FK gondoz. Az új mérőhely neutronnyalábját az in-beam Mössbauer mérések addigi külön neutronnyalábjának megosztásával kívánták biztosítani. Új, eddig nem alkalmazott neutronvezető elemek is kifejlesztésre és beépítésre kerültek (pl. a neutronnyalábot nagy ívben hajlító ún. „bender”. ill. a neutronnyalábot fókuszáló vezetőelemek). Az FSANS berendezés szelektor-tárcsáinak és diafragma-váltójának helyigénye hatással volt az in-beam Mössbauer mérőhelyünk geometriájára és sugárvédelmére is. Az átalakítás a várthoz képest nagyon elhúzódott – az in beam neutronvezető újra pozicionálása, „végleges” kialakítása, csak most, az OTKA projekt lejártakor, 2014 júniusában fejeződött be.

A helyzetet felismerve, már az első évben kialakítottuk a neutronnyalábon kívüli, „off-line” mérések lehetőségét is. Ilyen módon elvégezhető Mössbauer mérések olyan, viszonylag hosszú élettartamú forrás izotópokkal, melyeket nem folyamatos aktiválással, mérés közben gerjesztünk, hanem előzetesen közvetlenül a kutatóreaktor besugárzó csatornáiban aktiválunk. A méréseinkhez eredetileg kiválasztott ¹⁹⁷Au izotóp is ilyen, a gerjesztett állapot kb. 20 órás felezési ideje lehetővé teszi az aktiválás és a mérés helyszíneinek elkülönítését, ami a jel/háttér viszonyt is előnyösen befolyásolja. (Ugyanakkor az off-line mérések helyszínének az in-beam mérések helyszíne közelében kell lennie, hogy egyetlen hélium recirkulációs rendszer tudja mindkét mérőhelyet kiszolgálni.)

A projekt első évében kialakítottuk az off-line mérőhelyet. Elkészültek a megfelelő He vezetékek, a kompresszor be lett állítva, és a végleges, a csarnokon kívüli helyére került a He gyújtó ballon. Az egyes részegységek külön-külön ki lettek próbálva.

Az év során a mérőrendszert 80 K hőmérsékleten végzett előzetes off-line ¹⁹⁷Au mérésekkel is teszteltük. Dékány Imre professzor bocsátott rendelkezésünkre különböző átmérőjű (29, 20 és 4 nm) stabilizált aranyszemcsékből álló mintákat. A várakozásoknak megfelelően demonstrálni tudtuk, hogy a Mössbauer-effektus valószínűsége (\approx jelintenzitás) erősen függ a részecskemérettől. (További részletek az 1. éves részjelentésben találhatóak).

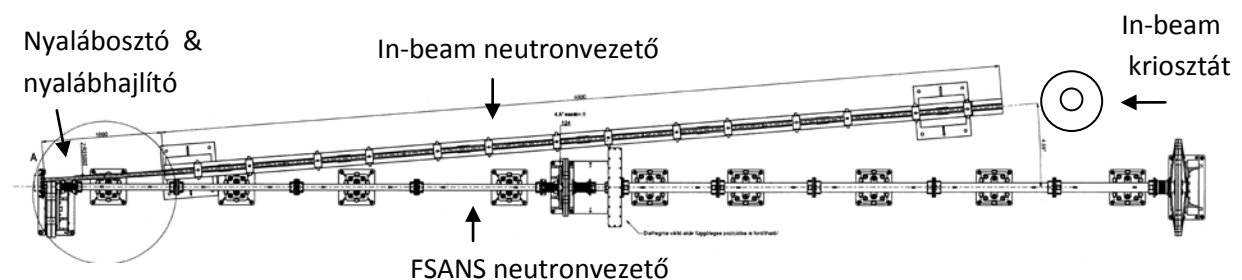
A második év során folytattuk a felkészülést az in-beam mérésekhez. A szóródó neutronok által keltett sugárdózis mértékét becsültük MCNP5 Monte Carlo program alkalmazásával. Előzetes terveket készítettünk a megfelelő sugárvédelmi árnyékolás kialakításához.

Két közleményt is készítettünk. Az egyikben az in-beam spektroszkópia módszerét tekintettük át, és példaként leírtuk a 80 K-es demonstrációs mérések eredményeit. A másik, általánosabb közlemény a katalizátorok Mössbauer-spektroszkópiás vizsgálatát tekinti át, ebben is kitértünk a ¹⁹⁷Au mérésekre. A projektben vizsgálni kívánt Au-Ni kétfémes MgAl₂O₄ spinel hordozós katalizátorminták egy részének előállítását, és katalitikus sajátosságainak vizsgálata is megtörtént. Ez utóbbi eredményeket nemzetközi konferencián ismertettük.

Ugyanakkor változatlanul vontatottan haladt az eredeti egy mérőhelyes neutronvezető átalakítása két mérőhelyessé. Ennek ismeretében az eredetileg hároméves projekt négyévesre történő hosszabbításának engedélyezését kértük az OTKA irodától, melyhez a hozzájárulást meg is kaptuk. A harmadik évben zajlott az akadémiai intézetek átszervezése. Ennek keretében az Izotópkutató Intézet beolvadt az Atomenergia Kutató Intézetbe, az átszervezéssel járó helyi adminisztrációs nehézségek miatt az OTKA intézeti gazdálkodása egy ideig korlátozott volt. A kettős neutronvezető újabb átépítése is megkezdődött, egy második „bender” is került a használni tervezett neutronnyaládba. A hélium visszanyerő rendszer működését időközben ismét ellenőriztük.

A záró, negyedik évben terveztük legalább egy 4,2 K-es mérőszorozat elvégzését. Újabb, kétfémes arany-réz katalizátorokat készítettünk többféle módszerrel, melyekben a fémszemcsék átlagos mérete 6 nm. Ebben a mérettartományban már nemcsak a fémes jelleg dominálna a spektrumokban, mivel a felületi atomok hányada már számottevő. Várható, hogy a felületi atomok járuléka is jó eséllyel megjelenik. A fémszemcséket nagyfelületű szilícium-dioxid, ill. cérium-dioxid hordozókra vittük fel, katalitikus aktivitásukat szén-monoxid alacsony hőmérsékletű oxidációjában (PROX) vizsgáltuk. A tervezett kísérletek elvégzésére azonban sajnos mégsem került sor. A KFKI kampuszon levő hélium cseppfolyósító 2013 őszen és telén igen korlátozottan működött. Az utolsó időszakra tervezett mérések végleges megghiúsulását a Kutatóreaktor 2014. február közepe utáni hosszas (most is tartó) üzemszünete okozta.

Összegezve megállapíthatjuk, hogy az in-beam mérőberendezés végleges kialakítására kb. 90 %-os készütséggel sor került. A még elvégzendő munka a neutronvezető sugárvédelmi és a mérődetektor alacsony háttérű árnyékolásának kialakítása. (Eddig erre nem kerülhetett sor, mivel a neutronvezető csak az elmúlt hónapban került a végleges helyére.) Off-line mérések elvégzésére a lehetőségek adottak lesznek a közeljövőben. Megállapítható, hogy a pályázatban leírt feladatok megvalósítása csak részben történt meg. Ez elsősorban a neutronvezető nyaláb a pályázat készítésekor még nem tervezett, elhúzódo megosztásával és átalakításával indokolható, de egyéb, az előbb részletezett körülmények váratlan alakulása is közre játszott. A neutronnyalábok elhelyezkedésének felülnézetét egy vázlatrajzon, a berendezés jelenlegi állapotát 4 fotón mutatjuk be.



A neutronnyaláb végleges kialakítása az in-beam Mössbauer mérőhelyen (felülnézet)

Befejezésül nyomatékosan kiemeljük, hogy a vállalthoz képest részleges munkavégzésnek megfelelően a költségfelhasználás is kb. arányos volt, a projekt eredeti költségkeretének (14,8 M Ft) egy részét (kb. 34 %, \approx 5,1 M Ft) visszatérítjük.

A projekt segítségével elért infrastrukturális fejlesztés nagy segítséget fog jelenteni az in-beam Mössbauer berendezéssel végzett további munkánk során.



A mérő kriosztát felső része a hélium visszanyerés csatlakozásaival off-line pozícióban



Az in-beam mérőhely neutronvezetője a végleges helyén



Az in-beam mérőhely a neutronvezető felől



Az in-beam mérőhely alsó része oldalnézetben (neutronnyaláb bevezetés és detektor)

2014. július 15.

Lázár Károly
projektvezető