

OLVASÓTERMI PÉLDÁNY
Vol. 16. No. 4. 1968
1968 AUG

KFKI

KÖZLEMÉNYEK

ОБОЩЕНИЯ ЦЕНТРАЛЬНОГО ИНСТИТУТА ФИЗИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ
REPORTS OF THE CENTRAL RESEARCH INSTITUTE FOR PHYSICS

Szerkeszti: Ádám András

Редактор: А.Адам

Editor: A. Ádám

MTA KÖZPONTI FIZIKAI KUTATÓ INTÉZET KÖNYVTÁR- ÉS KIADÓI OSZTÁLYA
БИБЛИОТЕКА И ИЗДАТЕЛЬСКИЙ ОТДЕЛ
ЦЕНТРАЛЬНОГО ИНСТИТУТА ФИЗИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ ВЕНГЕРСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК
HUNGARIAN ACADEMY OF SCIENCES
CENTRAL RESEARCH INSTITUTE FOR PHYSICS LIBRARY AND DOCUMENTATION DEPARTMENT
BUDAPEST, 114. POB 49.

Technikai szerkesztő: Nagy Imréné
Megjelent: 1968. aug. 5.

Példányszám: 320
Rotaszám: 3825

A kiadásért felelős: Jánossy Lajos

Megjelenik: kéthavonta
Előfizethető a 173.144-52. MNB bevételi számlán
Előfizetési díj: egyes szám 5,-Ft, egy évre: 30,-Ft /6 szám/

Vol. 16. No. 4. 1968.

T A R T A L O M

1. Jéki László, Kluge Gyula, Lajtai Albert: ^{235}U . 14 MeV-es neutronok hatására bekövetkező hasadásánál keletkezett gamma-sugarak szögeloszlása 213
2. Csada Imréné, Erdeyné-Schneer Anna, Rausch Henrik: Híradástechnikában használt vegyszerek tisztaságának aktivációs analitikai vizsgálata 219
3. Vass Szabolcs, Vorsatz Brunó: Neutrongenerátorok fluxusingadozásának hatása az aktivációs analízis vizsgálatainak pontosságára 225
4. Ádám András, Jéki László, Pálla Gabriella: Az időszórás csökkentése on-line rendszerű gyorsneutron repülési spektrométerben 231
5. András László: A fém-ditizon rendszer stabilitási viszonyainak vizsgálata 237
6. Jávor András: Kiértékelési eljárás integrális nonlinearitásnak diszkrét mérési adatokból való meghatározására 251
7. Ungár Tamás: Számológép-program polikristályos anyagok röntgen-diffrakciós képének kiértékelése 259
8. Tóth Ferenc: Tranzisztoros műveleti erősítők 275

Р Е З Ю М Е

1. Угловое распределение гамма-излучения, сопровождающего деление U_{-235} нейтронами с энергией 14 Мэв

Л.Йэки, Д.Клуге и А.Лайтан

Было измерено угловое распределение гамма-излучения при делении U_{-235} нейтронами с энергией 14 Мэв. Измерения проводились под углами 90° и 174° в направлении движения осколков. В обеих угловых позициях направление полета быстрых нейтронов и направление движения осколков приблизительно совпадают. Таким образом добились, что угловой момент быстрых нейтронов и направление движения осколков перпендикулярны. Найдено, что интенсивность гамма-излучения в направлении движения осколков больше, чем перпендикулярно к нему, и величина этой анизотропии больше, чем при делении тепловыми нейтронами. На основе результатов измерений была получена анизотропия $A = \frac{I_{180^\circ}}{I_{90^\circ}} = 1.32 \pm 0.18$. Необходимо обратить внимание на то, что гамма-излучение испускается из летающих осколков, таким образом анизотропия в системе осколков получается $A = 1.37 \pm 0.19$, и величина среднего углового момента осколков равняется $15 \hbar$.

2. Исследование чистоты агентов, применяемых в технике связи методом активационного анализа

Г.Чада, А.Шнер-Эрдеи, Х.Рауш

В процессе исследований занимались определением следов загрязнения силикохлороформа, дистиллированной воды, селитренной кислоты и тетрахлорметана с помощью активационного анализа. Для идентификации и определения загрязняющих элементов использовались разделение по методу бумажной хроматографии и измерительная техника гамма-спектроскопии. В силикохлороформе были определены загрязняющие элементы As, Sb, Cr, Au, Na, в дистиллированной воде — Cu, Na, Mn, As в селитренной кислоте — Cu и Na и в тетрахлорметане Cu, Mn, Na.

3. Влияние колебания потока нейтронных генераторов на точность исследований методом активационного анализа

С.Ваш и Б.Форзац

Целью работы является определение вклада ошибок серийных анализов, которые возникают из-за монотонного уменьшения потока быстрых нейтронов при старении мишени и периодического его колебания в случае применения вращающихся мишеней.

4. Уменьшение разброса времени быстросейтронного спектрометра

А.Адам, Л.Йэки и Г.Палла

Дается метод, разработанный на снижение разброса времени для многодетекторного спектрометра времени пролета быстрых нейтронов, работающего в системе on-line. Разброс времени, связанный с разбросом фронта импульсов от нейтронов определенной энергии, имеет решающее влияние на разрешение. Этот разброс времени еще нами был уменьшен с помощью электронной схемы, таким образом, разрешение удалось улучшить с $2\tau = 2.95$ нсек до $2\tau = 1.8$ нсек. Указанным способом, учитывая также разброс времени сигналов разрешение может достигать $2\tau = 1.03$ нсек, при увеличении эффективности детектора нейтронов.

5. Исследование условия стабильности в системе дитизон-металл

1. Константа стабильности дитизоната свинца

Л.Андраш

1. Экстракционным и потенциметрическим методам были определены константа стабильности и константа экстракции /в хлороформе/ дитизоната свинца. Числовые значения констант: $\lg K_{\text{экс, СНСI}_3} = 3,18$; $\lg K_1 = 12,46$; $\lg K_2 = 7,45$; $\lg \beta_2 = 19,91$.
2. Константа распределения дитизоната свинца определялась спектрофотометрическим методом и нашли $\lg \lambda_2 \text{ СНСI}_3 = 4,46$.
3. Сопоставив результаты наших измерений с данными других публикаций, было установлено, что значительно разходящиеся данные по константам экстракции предъявляют ограниченное согласование в том случае, если при расчете постоянных не пренебрегается конкурирующими комплексообразующими реакциями между свинцом и неорганическими анионами.
4. После пересчета данных упомянутых публикаций получались: $\lg K_{\text{экс, ССI}_4} = 4,36$; $\lg \lambda_2 \text{ ССI}_4 = 3,43$ и $\lg K_{\text{экс, СНСI}_2} = 3,59$; $\lg \beta_2 = 19,15$.

6. Метод оценки для определения интегральной нелинейности из дискретных измерительных данных

А.Явор

В работе излагается точный метод оценки для определения интегральной нелинейности систем и может быть применен вместо до сих пор обычно использованного метода опробования. Принцип оценки осуществляется конструированием или простой аналоговой целевой вычислительной машиной. В заключении описывается возможность оценки с помощью цифровой вычислительной машины.

7. Программа на вычислительную машину для обработки рентгено-дифракционных картин поликристаллических материалов

Т.Унгар

Гаррисоном недавно было показано, что разложением в ряд Фурье интенсивности брагговского отражения можно определить распределение микродеформаций в кристалле. Данная работа развивает идею Гаррисона и дает возможность для одновременного определения распределения деформаций и размеров частиц.

8. Транзисторизованные операционные усилители

Ф.Тот

Основная линия операционных усилителей с большей точностью вообще обеспечивается стабилизацией с вибратором, что можно обходить подходящим выбором рабочей точки у усилителей постоянного напряжения, построенных из паров планарных транзисторов с малым разбросом параметров. Термический дрейф таких усилителей сводится к зависимости разницы открывающего напряжения первого пара транзистора база-эмиттер от температуры, которой в случае соответствующего соотношения токов коллектора можно пренебречь. При использовании вышеуказанного нами были построены операционные усилители с разными величинами усиления и шириной полосы, термический дрейф которых не превышает величину $2 \text{ мкВ}/^\circ\text{C}$.

S u m m a r i e s

1. Angular Distribution of Gamma Rays from the Fission of ^{235}U Induced by 14 MeV Neutrons

L. Jéki, G. Kluge, A. Lajtai

The intensity of the gamma radiation following the 14 MeV neutron induced fission of ^{235}U has been measured at angles of 90° and 174° relative to the flight path of the fission fragments. At both angles the flight path of the bombarding neutrons and that of the fission fragments were found to be lying in almost the same direction. Thus, the angular momentum of the fast neutrons was perpendicular to the fission axis.

The intensity of gamma rays measured in the direction of fission fragment motion was found to be higher than that measured normal to their flight path. This anisotropy is larger than that observed for thermal neutron induced fission. The anisotropy was evaluated from the measured data as $A = I_{180^\circ}/I_{90^\circ} = 1,32 \pm 0,18$. Applying kinematic correction for the motion of fragments during their emission of gamma rays, the anisotropy transformed into centre of mass system was evaluated as $A = 1,37 \pm 0,19$, from which the average angular momentum of the fission fragments can be estimated as about 15 units.

2. Activation Analysis of Contaminants in Processing Agents Used in Telecommunication Industry

Gabriella Csada, Anna Schneer Erdey, H. Rausch

Methods are described which have been developed for the determination of trace elements occurring as contaminants in silico-chloroform, distilled water, nitric acid and carbon tetrachloride. The activated contaminants are identified and determined with the use of paperchromatographic separation and of gamma spectrometry. The elements which could

be determined in this way are As, Sb, Cr, Au, Na in silico-chloroform, Cu, Na, Mn, As in distilled water, Cu and Na in nitric acid, Cu, Mn, Na in carbon tetrachloride.

3. The Effect of Flux Variations in Neutron Generators on the Accuracy of Activation Analysis

Sz. Vass, B. Vorsatz

A calculation method is described which permits to evaluate the error induced in activation analysis by the monotonical decrease in fast neutron flux due to target ageing, or by the periodical fluctuation of the flux, if rotary targets are used.

4. Reduction of Time Spread in On-line Fast Neutron Time-of-Flight Spectrometer

A. Ádám, L. Jékli, Gabriella Pálka

A method developed for the reduction of the time spread, which markedly impairs the time resolution in on-line fast neutron time-of-flight spectrometers, is described. By earlier efforts the uncertainty of time due to the continuous pulse height distribution of monoenergetic neutrons was reduced electronically and the time resolution improved from $2\tau = 2,95$ nsec to $2\tau = 1,8$ nsec. With the now presented method, in which the time spread of the α -signals is also taken into account, a time resolution of $2\tau = 1,03$ nsec and a simultaneous increase in counting efficiency of the neutron detector can be achieved.

5. Investigations of Stability Relations in Metal-Dithizone System I.

The Stability Constant of Lead Dithizonate

L. András

1/ The stability constants and extraction constant /in chloroform/ of lead dithizonate, as measured by extraction and potentiometric methods at ionic strength of 0,1 M NaClO_4 , were found to be $\lg K_{\text{ex,CHCl}_3} = 3,18$; $\lg K_1 = 12,46$; $\lg K_2 = 7,45$ and $\lg \beta_2 = 19,91$.

2/ The distribution constant of lead dithizonate was measured spectrophotometrically as $\lg \lambda_{2,\text{CHCl}_3} = 4,46$.

3/ Comparison of the present data with those of earlier reports shows that extremely different extraction constants can be brought to agree within reasonable limits of accuracy, if one does not neglect in the calculation of the constants the competitive

complex forming reactions between lead and anions taking place in the aqueous phase.

4/ Recalculation of the reported data gives then $\lg K_{\text{ex,CHCl}_3} = 3,59$; $\lg K_{\text{ex,CCl}_4} = 4,36$; $\lg \lambda_{2,\text{CCl}_4} = 3,43$ and $\lg \beta_2 = 10,15$.

6. Evaluation Method for Determining Integral Nonlinearity from Discrete Measured Values

A. Jávör

A method developed for the exact evaluation of the integral nonlinearity of systems, destined to replace the up to now widely used trial and error technique, is described. The principle of the method becomes feasible on specially designed systems, or with the use of a simple analogue computer built for this purpose. Finally, also the possible evaluation by digital computer is shown.

7. Computer Program for the Evaluation of Polycrystalline Diffraction Patterns

T. Ungár

Harrison's recently reported method of determining the distribution of deformations in crystals from the Fourier expansion of the Bragg reflection intensity is extended in a manner such that it permits the simultaneous evaluation of the distribution of deformations and that of grain sizes.

8. Transistorized Operational Amplifiers

F. Tóth

The usual chopper stabilization of the base line in high precision operational amplifiers becomes unnecessary in the amplifiers here described. These d.c. amplifiers are built from planar transistor pairs with fairly stable parameter values and care is taken to choose the appropriate working point. The thermal drift of such amplifiers can be related to the temperature dependence of the difference between the base-emitter voltages of the first transistor pair and can be thus kept negligible by properly adjusting the relative value of the collector currents. The thermal drift of the operational amplifiers of various gains and bandwidths built on this principle does not exceed $2 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$.

^{235}U 14 MeV-es NEUTRONOK HATÁSÁRA BEKÖVETKEZŐ HASADÁSÁNÁL KELETKEZETT GAMMA-SUGARAK SZÖGELOSZLÁSA

Irta: Jéki László, Kluge Gyula, Lajtai Albert

Összefoglalás

Megmértük a ^{235}U 14 MeV-es neutronokkal történő maghasadásakor keletkezett gamma-sugarak szögeloszlását. A méréseket a szétrepülő hasadási termékek irányához képest 90° - és 174° -ban végeztük. Mindkét szögértéknél a bombázó gyors neutronok repülési iránya és a hasadási termékek szétrepülésének iránya közel megegyezett. Így biztosítottuk, hogy a gyors neutronok által bevitt impulzusmomentum és a fragmentek szétrepülésének iránya merőleges. A hasadási gamma-sugarak intenzitása a hasadási termékek szétrepülésének irányában nagyobb, mint erre merőlegesen, és ez az anizotrópia nagyobb, mint a termikus neutronokkal történő maghasadásnál. A mérési eredményeink alapján kapott anizotrópia $A = I_{180^\circ}/I_{90^\circ} = 1,32 \pm 0,18$. Figyelembe véve, hogy a hasadási gamma-sugarakat a már repülő hasadási termékek bocsátják ki, az anizotrópia a hasadási termékek rendszerében $A = 1,37 \pm 0,19$ és ebből számolva a hasadási termékek átlagos impulzusmomentuma $15 \hbar$.

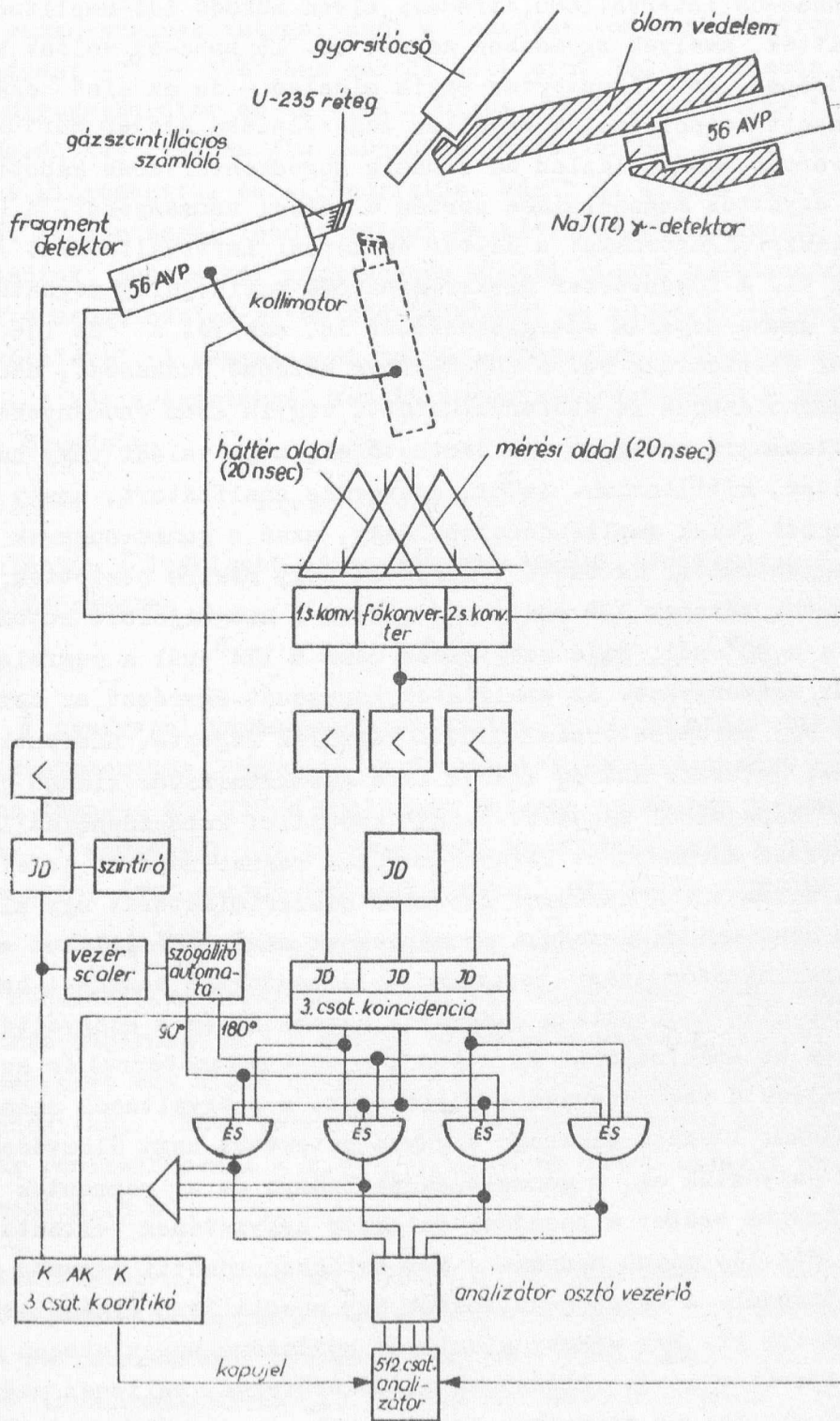
Bevezetés

Termikus neutronokkal történő és spontán maghasadásakor keletkező gamma-sugarak szögeloszlását a szétrepülő hasadási termékek irányához képest több szerző vizsgálta [1-11]. A szögeloszlás-mérésekből megállapították, hogy a hasadási gamma-sugarak intenzitása 10-15 %-kal nagyobb a szétrepülő hasadási termékek irányában, mint erre merőlegesen. Sztrutyinszkij [12] szerint a hasadási termékek a hasadó mag nem kollineáris szétszakadása következtében tesznek szert nagy, a fragmentek szétrepülésének irányára merőleges impulzusmomentumra. A szétrepülési irányhoz viszonyított gamma-sugár szögeloszlás-mérésekből az impulzusmomentum nagyságára és a kibocsátott gamma-sugarak multipol rendjére lehet következtetni. A mérések azt mutatták, hogy a gamma-sugárzás kvadrupol jellegű, a fragmentek átlagos impulzusmomentuma $5-10 \hbar$, az átlagos maghőmérsékletre és tehetetlenségi nyomatékra vonatkozó közelítő feltevésekkel. Néhány szerző [3, 9, 11] vizsgálta és megállapította a hasadási gamma-sugárzás szögeloszlásának energiafüggését is. Az anizotrópia 250-800 keV energiatartományban a 20-22 %-ot is eléri.

Mind ez ideig nem vizsgálták a nagyobb energiájú /nagyobb impulzusmomentumu részecskékkal történő/ maghasadásnál keletkező gamma-sugarak szögeloszlását. Jelen mérésünk célja, hogy megvizsgáljuk a gyors neutronokkal a kompaund magba bevitt, a fragmentek szétrepülésének irányára merőleges impulzusmomentum hatását gamma-sugárzás szögeloszlására. Gyors neutronokkal történő maghasadásnál a kibocsátott átlagos neutrons szám a nagyobb gerjesztési energiának megfelelően megnő, a hasadási termékekből kipárolgó neutronok azonban nem visznek el számottevő impulzusmomentumot a centrifugálgát miatt. Így a hasadási gamma-sugarakat nagy impulzusmomentumokkal rendelkező fragmentek bocsátják ki. A gyors neutronokkal történő bombázáskor a neutronok által bevitt impulzusmomentumra $l_{\max}^2 \sim 5E_n$, ahol E_n a gyors neutronok energiája MeV-ben. 14 MeV-es neutronok esetén ez az impulzusmomentum kb. 8 ě. Ilyen módon a 14 MeV-es neutronokkal történő maghasadáskor a hasadási termékek átlagos impulzusmomentuma is feltételezhetően megnő, és ez a gamma-sugár szögeloszlásában jelentkezhet. Méréseinkkel ezt a feltevést kívántuk ellenőrizni a hasadási gamma-sugarak anizotrópiájának vizsgálatával.

Kísérleti berendezés

A 14 MeV-es neutronokat a $T(d,n)\alpha$ reakcióból nyertük. A szögeloszlás-méréseinket az 1. ábrán vázolt berendezéssel végeztük. A tríciumtargettől 6,5 cm-re helyeztük el a 25 cm²-es és 2 mg/cm² vastagságú, 96 %-os dúsítású ²³⁵U targetet. Ezen feltételek mellett az uránrétegnek a direkt neutronokra vonatkozó kúpszöge $\pm 20^\circ$ volt. A maghasadáskor keletkező fragmenteket egy gázszcintillációs számlálóval detektáltuk. Közvetlenül az urántargeten helyeztük el a gázdetektorban a hasadási termékek irányát $\pm 20^\circ$ -os szögbizonytalansággal kijelölő vékony alumíniumlemezből készült kollimátort. A gázszcintillációs számláló 1 atm nyomású tisztított argon /80 %/ és nitrogén /20 %/ gázkeverékkel működött. A gázkeveréket tartalmazó gázpalackból tűszeleppel szabályoztuk a gáz sebességét, amelyet a gázszcintillációs kamrán átáramoltatva a levegőbe engedtünk. Ilyen módon elkerültük a bonyolult gáztisztítási folyamatokat és az esetleges gázszennyeződést is. A gázszcintillációs számláló használata biztosította, hogy az analóg ágban a nagy gyors neutron és gamma-sugár háttérben csak valódi hasadási eseményeket regisztráltunk. A hasadásnál keletkező gamma-sugarak detektálására 5x5 cm-es NaI /Tl/ kristályt használtunk. A gamma-detektor távolsága az U-targettől 55-70 cm volt, a hasadási detektor helyzetétől függően. Ez a távolság lehetővé tette a hasadásnál keletkező neutronok és gamma-sugarak szétválasztását a repülési idő-



1. ábra

különbségük alapján. A hasadási és gamma-detektor gyors jeleit három darab 30 nsec-os intervallumu, átfedési elven működő idő-amplitudó konverterre vittük, amelyek egymáshoz képest kb. 15 nsec-al voltak késleltetve. A középső, ún. főkonverter egyik oldalán - és az első segédkonverteren - kapott koincidenziák együttes megszólalása esetén mértük a háttérét, a főkonverter másik oldalán és a másik segédkonverteren kapott koincidenziák együttes megszólalása esetén a valódi eseményeket. A konverterek utáni diszkriminátorokkal a háttér és mérési intervallumokat /20-20 nsec/ jelöltük ki. A főkonverter diszkriminátora egyidejűleg meghatározta a vizsgált gamma-sugarak energiaküszöbét is, amelyet a ^{75}Se 136 keV-es vonalával állítottunk be. A főkonverter középső szakaszát, ahol háromszoros koincidenzia is előfordulhatott, vagyis azon eseményeket, amelyek ezen tartományra estek, és nem dönthető el, hogy valódi vagy háttéresemények voltak, kitiltottuk. Az 512 csatornás analizátort, amely a főkonverteren kapott jelek amplitudó-eloszlását, azaz a gamma-sugarak időeloszlását regisztrálta, az osztó vezérlővel négy részre osztottuk, és egyidejűleg mértük kétszer 128 csatornás részen a szögkijelölő automatával is vezérelve a 90° -nál, majd szögváltás után a 174° -nál a megfelelő háttér és valódi eseményeket. Az analizátor kapuzását egyrészt az osztó vezérlő, másrészt egy háromcsatornás KOANTIKO készülék végezte, amelynek bemenetei: a hasadási detektor analóg ágában levő diszkriminátor kimenő jelei, a 4 db "és" kapujelből képezett "vagy" kapujelei koincidenziaállásban, és a konverterek háromszoros koincidenziáját regisztráló ág jelei antikoincidenzia állásban. A hasadási detektor diszkriminátorát úgy állítottuk be, hogy csak valódi hasadási eseményeknek megfelelő jeleket engedjen át. Ezen diszkriminátor utáni vezérscale a megfelelő hasadási beütésszám begyűjtése után indította a szögváltó automatát, és a szögváltás idejére letiltotta az analizátort. Az utána kapcsolt rateméterrel és szintiróval regisztráltuk a neutronhozam stabilitását, a szögváltások számát és a tiszta mérési időket. Minthogy a gamma-detektort nagy ólomvédelme miatt stabilan helyeztük el, a gamma-sugarak iránya és a fragmentek repülésének iránya közötti szöget a hasadási detektor helyzetének változtatásával oldottuk meg. Ily módon azonban a két detektor közötti térszög megváltozott a szögváltásnál. A térszög-változást egy speciálisan elkészített preparátummal mértük ki. Egy vékony alumínium hordozóra egyenletesen felvitt ^{137}Cs preparátumlapból kivágtunk az uránréteggel teljesen megegyező nagyságú réteget. Ezt az uránréteg helyére helyezve a két szögértéknek megfelelő helyzetben megmértük a gamma-detektor beütésszámait, majd a háttérértékek ismeretében a térszögfaktort meghatároztuk.

Mérési eredmények

A gamma-sugarak intenzitását a hasadási termékek szétrepülésének irányához képest 90° és 174° -ban mértük több mint 500 óra tiszta mérési idő alatt. A neutrongenerátor és az elektronikus szintek esetleges ingadozása miatt a szögváltást gyakran /20 percenként/ ismételtük, és 24 óránként az eredményeket kinyomtattuk és ellenőriztük. Végül az összes mérési idő alatt mindkét szögértéknél kapott valódi és háttér-beütésszámokat külön-külön összeadtuk, majd a két gamma-csucs alatti tiszta beütésszámokkal végeztük el a szögeloszlás-mérés kiértékelését az említett térszögfaktor figyelembevételével. A gamma-csucs teljes szélessége a félmagasságban 6 nsec volt. A két szögértéknél kapott intenzitás-értékeket a Sztrutyinszkij [12] által megadott

$$n(\nu) = 1 + B \sin^2 \nu$$

kifejezés alapján a legkisebb négyzetek módszerével számológéppel értékeltük ki. A kifejezésben

$$B = k_L \left(\frac{\hbar^2 j}{IT} \right)^2$$

ahol $k_L = -\frac{3}{8}$ kvadrupol gamma-sugárzás esetén, j a hasadási termékek átlagos impulzusmomentuma, $I = \frac{2}{5} m r_0^2 A^{5/3}$ a fragmentek tehetetlenségi nyomatéka / m a nukleon tömege, $A = 117$ a nukleonok átlagos száma egy fragmentben és $r_0 = 1,3$ fm/, $T = 0,4$ MeV [3] a fragmentek maghőmérséklete a neutronok kibocsátása után. Ezen adatok felhasználásával méréseink alapján a számolt anizotrópia $A = \frac{I_{180^\circ}}{I_{90^\circ}} = 1,32 \pm 0,18$. Az anizotrópia hibáját a mérési eredmények statisztikus hibájából számoltuk. Figyelembe véve, hogy a hasadási gamma-sugarakat már a repülő hasadási termékek bocsátják ki, a fenti eredményeket egy előző cikkünkben [11] részletesen leírt korrekciókkal kell módosítani. Ezen korrekciók figyelembevételével az anizotrópia a fragmentek rendszerében $A = 1,37 \pm 0,19$ és az abból számolt átlagos impulzusmomentum 15 \hbar .

Összefoglalva, jelen méréseink, a termikus hasadási esettel összehasonlítva, azt indikálják, hogy a termikus esetben feltételezett nem kollineáris szétszakadásból származó fragment impulzusmomentum mellett a kompaund mag impulzusmomentuma is lényegesen befolyásolhatja a hasadási gamma-sugárzás szögeloszlását.

Végül köszönetet mondunk Szabó Lászlónak, aki az elektronikus be-
rendezés megtervezésében és bemérésében segített.

I r o d a l o m

- [1] Блинов, М.В., Казаринов, Н.М., Протопопов, А.Н., Ширяев, Б.М.:
ЖЭТФ 43, 1644, /1962/
- [2] Dési, S., Graff, Gy., Lajtai, A., Nagy, L.: Phys. Letters 3, 343 /1963/
- [3] Kapoor, S.S., Ramanna, R.: Phys. Rev. 133, B598 /1964/
- [4] Hoffman, M.M.: Phys. Rev. 133, B714 /1964/
- [5] Петров, Г.А.: ЖЭТФ, 2064 /1964/
- [6] Петров, Г.А., Каминкер, Д.М., Вальский Г.В., Попенко, Л.А.:
Атомная энергия 18, 64 /1964/
- [7] Skarsvag, K., Singstad, I.: Nuclear Physics 62, 103 /1965/
- [8] Graff, Gy., Lajtai, A., Nagy, L.: Proceedings of the Symposium on
Physics and Chemistry of Fission, IAEA 2, 163 /1965/
Graff Gy., Lajtai A., Nagy L.: KFKI Közl., 13, 3 /1965/
- [9] Петров, Г.А.: Ядерная физика 1, 467 /1965/
- [10] Skarsvag, K.: Nucl. Phys. A96, 385 /1967/
- [11] Kluge Gy., Lajtai A.: KFKI Közl., 15, 5 /1967/
- [12] Струтинский, В.М.: ЖЭТФ 37, 861 /1957/

Érkezett: 1968.máj. 14.

KFKI Közl., 16.évf. 4.szám, 1968.

HIRADÁSTECHNIKÁBAN HASZNÁLT VEGYSZEREK TISZTASÁGÁNAK AKTIVÁCIÓS, ANALITIKAI VIZSGÁLATA

Irta: Csada Imréné, Erdeyné-Schneer Anna,^{*/} Rausch Henrik^{**/}

Összefoglalás

Vizsgálataink folyamán sziliko-kloroform, desztillált víz, salétromsav és szén-tetraklorid nyomszennyezőinek aktivációs analitikai meghatározásával foglalkoztunk. A szennyező elemek azonosítására és meghatározására papirkromatográfiás elválasztást, ill. gamma-spektrometriás mérés-technikát alkalmaztunk. Sziliko-kloroformban As, Sb, Cr, Au, Na, desztillált vízben Cu, Na, Mn, As, salétromsavban Cu és Na, szén-tetrakloridban pedig Cu, Mn. Na szennyező elemeket határoztunk meg.

A nagy tisztaságú szilícium, valamint előállításához használt alapanyagok és segédanyagok aktivációs analitikai vizsgálatával a KFKI és TKI már évek óta foglalkozik [1, 2].

Jelen munkánkban a sziliko-kloroform és szilícium-tetraklorid, továbbá a szén-tetraklorid, salétromsav és desztillált víz nyomszennyezőinek vizsgálati eredményeit kívánjuk összefoglalni.

Ismeretlen összetételű anyagok neutronaktivációs vizsgálatára jól alkalmazható egyik szerző [4] minőségi analízis céljára kidolgozott eljárása. Az ötvenes évek végefelé alakult ki az a papirkromatográfiás eljárás, amely mintegy 50 fémion kimutatására és részben elválasztására is alkalmas. Akkoriban úgy tűnt, hogy ismeretlen összetételű, aktiv nyomszennyezők kimutatásához kb. 20-20 μg inaktív hordozót is fel kell cseppenteni az aktivált mintával együtt, hogy az ionok változatlan R_f -értékkel vándoroljanak [5]. Elkerülte figyelmünket, hogy Lederer [6] már 1957-ben rámutatott arra, hogy szubmikro mennyiségű ion is változatlan R_f értékkel detektálható papirkromatogramon, sugárzása folytán.

Neutronaktiválás után a papirkromatográfiának gamma-spektrometriával való együttes alkalmazása 1962-ben francia szerzőktől származik [7, 8], és hazánkban is eredményesen alkalmazták.

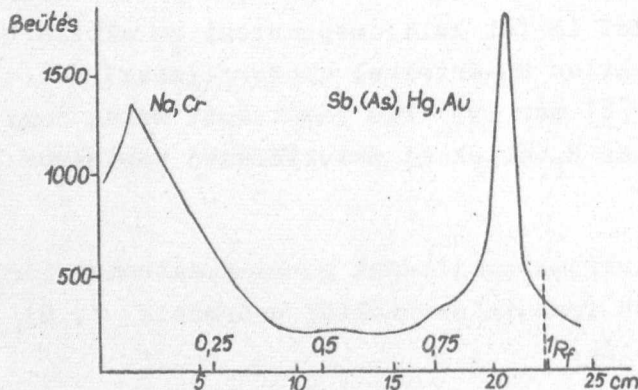
*/ MTA Szervetlen Kémiai Kutatócsoport
**/ Távközlési Kutató Intézet

A vizsgálandó minták besugárzását a KFKI VVR-Sz reaktorban kb. 10^{13} n/cm².sec termikus neutronfluxus mellett végeztük. A gamma-spektrumok felvételéhez KFKI 128 csatornás amplitudó analizátort, 1,75x2 inches Nuclear Enterprises NaI/Tl/ szcintillációs kristályt és E.M.I. gyártmányu elektronsokszorozót használtunk.

Sziliko-kloroform, szilícium-tetraklorid

A szilíciumgyártás alapanyaga a sziliko-kloroform és szilícium-tetraklorid, ezek szennyezettsége nagyban befolyásolja a szilícium egykristály elektromos tulajdonságait. A leggyakoribb, a minőséget befolyásoló szennyezések: az arzén, antimon, foszfor és bór. A klorid formában jelenlévő szennyezők illékonyak, ezért dusicításukra, valamint komplex formában való megkötésükre Vecsernyés és Hangos [3] tapasztalatát felhasználva, trifenil-klórmetán /TKM/ jelenlétében pároltuk szárazra a vizsgált vegyületeket. A TKM komplexképző előnye, hogy termikus neutronokkal besugározva alkotórészeiből nem keletkezik a későbbi meghatározásokat zavaró izotóp. A vizsgálatokhoz 50 ml sziliko-kloroformot pároltuk be 50 mg TKM jelenlétében. A bepárlást kvarcedényben végeztük 50 C° alatti hőmérsékleten, száraz nitrogénáramban. A maradékot 70 C°-on szárítottuk, és homogenizáltuk. Besugáráshoz ebből az anyagból 10 mg-ot mértünk be.

Az aktiválás 24, a hűtés 12 óráig tartott. A felaktivált minta szerves /TKM/ komponensét kevés H₂SO₄/HClO₄ savkeverékkel elroncsoltuk. A maradékot kevés 1 n HCl-val és néhány csepp H₂O₂-vel felforraltuk, és Schleicher/Schüll 2043 papírra felcseppentettük. Szárítás után etanol: sósav:víz = 75 : 20 : 5 arányu oldószerben, felszálló technika alkalmazásával 10-12 órán át kromatografáltuk. A papírcsik aktivitáseloszlását univerzális ólomtoronyban 0,3 cm résszélesség mellett centiméterenként mértük.

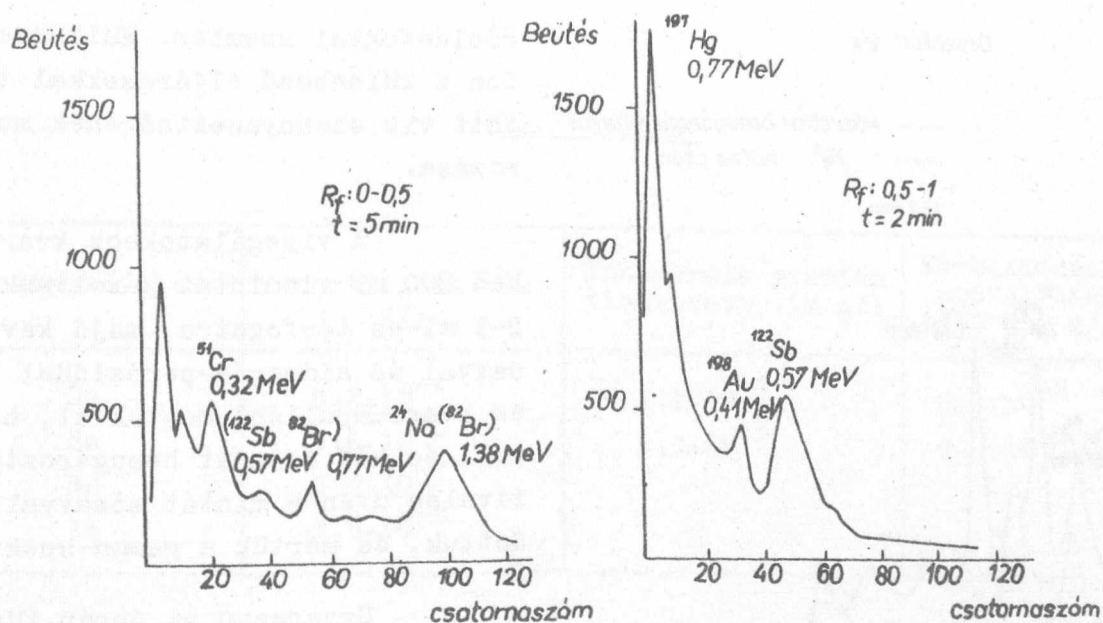


1. ábra

Sziliko-kloroform dusicított szennyezői papirkromatogramjának aktivitáseloszlása

A kromatogram aktivitáseloszlásából megállapítható, hogy a felcseppentés helyén, valamint $R_f = 0,9$ környezetében jelentősen nagyobb mérvű aktivitás. A kromatogramot $R_f = 0,5$ értéknél elvágtuk, és mindkét rész aktivitásának felvettük a gamma-spektrumát.

A mérések szerint az $R_f = 0,0 - 0,5$ szakasz gamma-spektruma alapján króm és nátrium, az $R_f = 0,5 - 1,0$ szakasz gamma-spektruma alapján antimon és arzén, va-



2. ábra

- a/ a papirkromatogram $R_f = 0,0 - 0,5$ közötti szakaszának gamma-spektruma,
 b/ a papirkromatogram $R_f = 0,5 - 1,0$ közötti szakaszának gamma-spektruma

lamint arany szennyező elem határozható meg. A kimutatható higanyszennyezés a tiszta TKM-ből származik.

Az I. táblázatban a vizsgált szennyező elemek az alkalmazott módszerrel elérhető meghatározási érzékenységeit tüntettük fel.

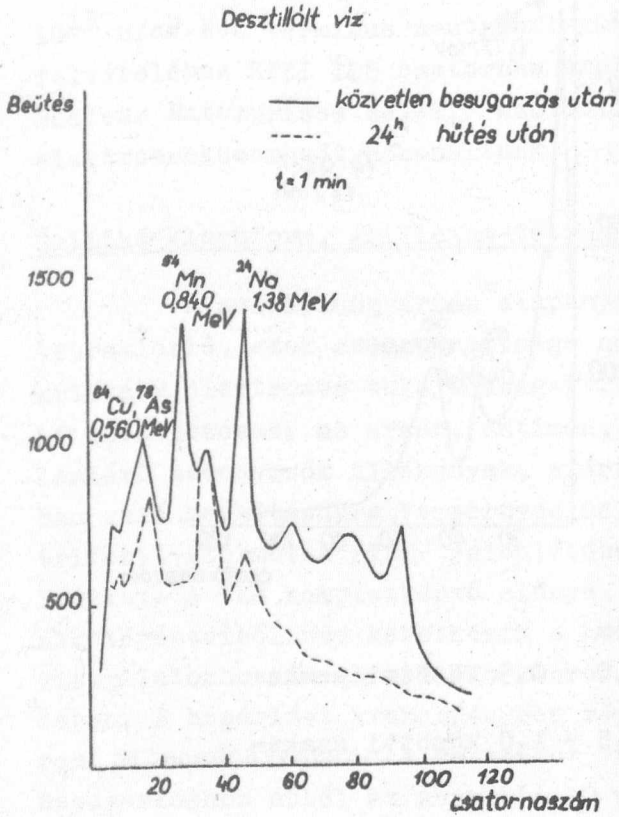
I. táblázat

Szennyező elem	Érzékenység /g/	Szennyező elem	Érzékenység /g/
As	10^{-9}	Au	$5 \cdot 10^{-10}$
Sb	$5 \cdot 10^{-9}$	Na	10^8
Cr	10^{-7}		

A mérések hibája $\pm 30\%$. A gamma-spektrumok kiértékelését Covell [9] módszere alapján végeztük.

Desztillált víz és vegyszerek vizsgálata

A szilícium alapanyagok mellett hasonló tisztasági követelményeket kell támasztani a félvezetők gyártásánál alkalmazott oldószerekkel és ma-



3. ábra

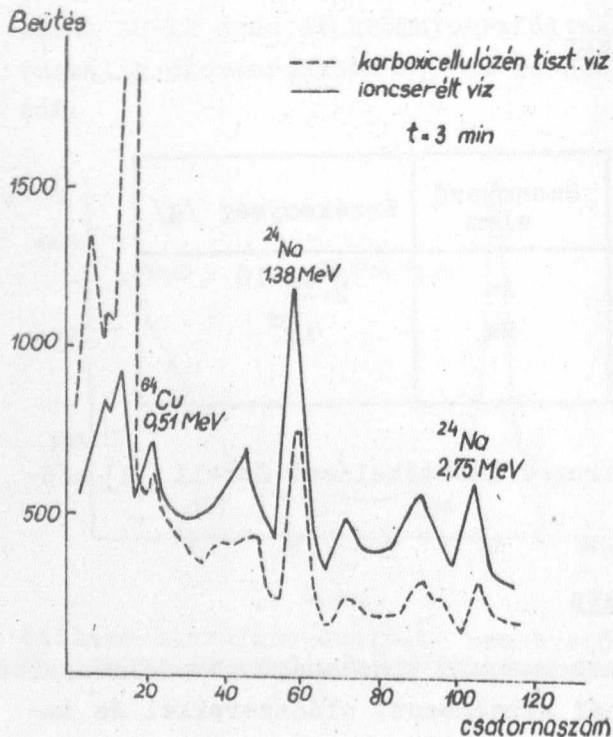
800 ml desztillált víz száraz mara-
 dékának gamma-spektruma

róoldatokkal szemben. Különösen fon-
 tos a különböző eljárásokkal tisztí-
 tott víz szennyezettségének meghatá-
 rozása.

A vizsgálatokhoz kvarc edény-
 ben 800 ml vizmintát pároltunk be
 2-3 ml-es térfogatra, majd kevés só-
 savval és hidrogén-peroxiddal 5 ml-
 es kvarcempullába mostuk át, bepárol-
 tuk, és két órán át besugároztuk. Ak-
 tíválás után a mintát sósavval kiol-
 dottuk, és mértük a gamma-spektrumát.

Ugyanezen az ábrán tüntettük
 fel a minta azonos körülmények között
 felvett gamma-spektrumát 24 órás hű-
 tés után. Ilymódon a desztillált víz
 nyomszennyezői közül a réz, mangán,
 nátrium, ill. arzén meghatározása
 vált lehetővé.

Tisztított desztillált víz



Mint az ábrán látható, a
 desztillált víz jelentős mennyiség-
 ben tartalmaz még szennyező ionokat,
 ezért a hálózati víz ionmentesíté-
 sét ioncserélő oszlopon és karboxi-
 cellulozéval töltött oszlopon is el-
 végeztük. A két tisztított vizmintából
 külön-külön 1500 ml-t pároltunk be,
 és ugyancsak két órán át aktiváltuk.
 A vizminták azonos körülmények kö-
 zött felvett gamma-spektrumait a
 4. ábra szemlélteti.

Vizsgálati eredményeinket
 a II. táblázatban foglaltuk össze:

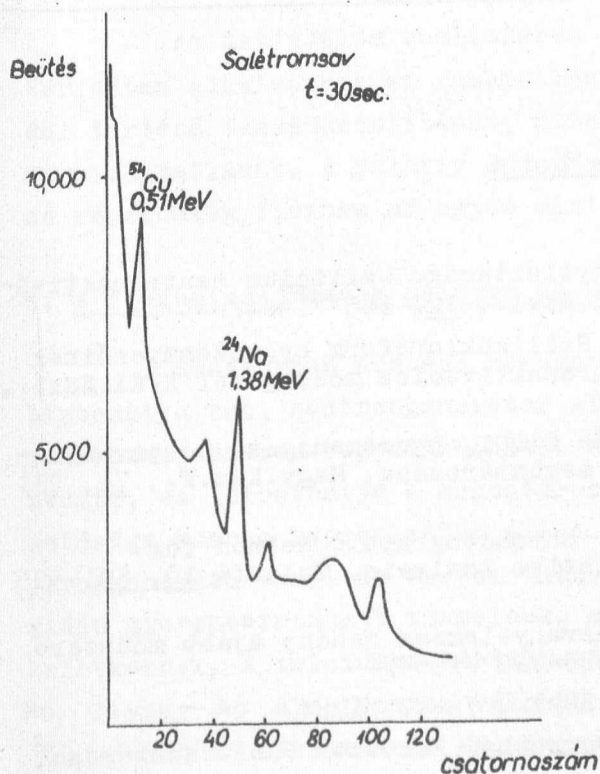
4. ábra

Ioncserélő oszlopon és karboxi-cellu-
 loze oszlopon tisztított vizminta
 gamma-spektruma

II. táblázat

Szennyező elem	Desztillált víz g/l	Ioncserélő gyantán tisztított víz g/l	Karboxi-cellulózéval tisztított víz g/l
Cu	$5,2 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-5}$	$0,4 \cdot 10^{-5}$
Na	$3,8 \cdot 10^{-5}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$0,7 \cdot 10^{-5}$
Mn	$8,2 \cdot 10^{-7}$	-	-
As	$3,6 \cdot 10^{-6}$	-	-

Salétromsav



5. ábra

100 ml salétromsav száraz maradékának gamma-spektruma 22 óra hűtés után

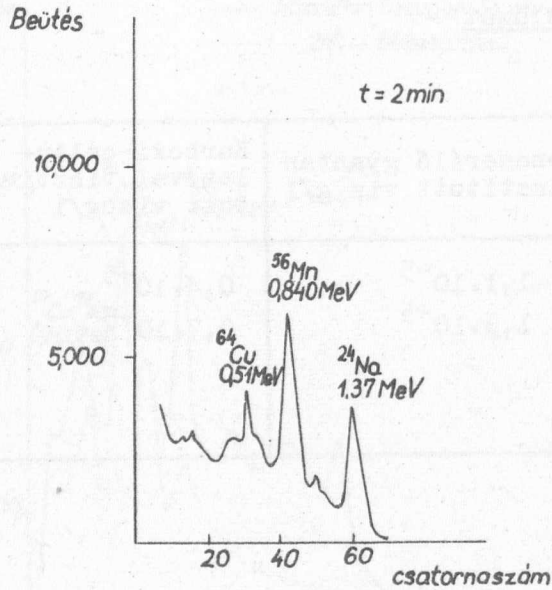
Besugárzáshoz 100 ml p.a. tisztaságu tömény salétromsavat platina tálban kis térfogatra bepároltunk, 1 ml savval kvarcampullába mostunk, és szárazra pároltunk. Az aktív mintát a kvarctokból kb. 20 órai hűtés után kioldottuk, és gamma-spektrometriásan mértük. Méréseink alapján a vizsgált mintában $1,2 \cdot 10^{-6}$ g/l réz és $3,3 \cdot 10^{-6}$ g/l nátrium szennyezést mutattunk ki.

Szén-tetraklorid

A szén-tetraklorid nyomszennyezőinek meghatározására 100 ml p.a. Chinoin gyártmányu mintát vízfürdőn betöményítettünk, 1-2 ml szén-tetrakloriddal kvarcampullába mostunk, és szárazra pároltunk. Nyolcórás besugárzás után az aktív mintát a kvarctokból sósavval kioldottuk és mértük a gamma-spektrumát.

Méréseink alapján a vizsgált mintában réz, mangán és nátrium szennyezést találtunk /III. táblázat/.

SZÉN-TETRAKLORID



6. ábra

100 ml szén-tetrazklorid száraz maradékának gamma-spektruma 4 óra hűtés után

III. táblázat

Szennyező elem	g/l
Cu	$6,8 \cdot 10^{-5}$
Mn	$1,4 \cdot 10^{-5}$
Na	$3,4 \cdot 10^{-4}$

I r o d a l o m

- [1] Juvanczné-Upor V., Ördögh M.: Nagytisztaságu szilícium neutronaktivációs elemzése KFKI Közl., 12, 365 /1964/
- [2] Rausch H., Csada I.-né, Szabó E.: Szilikokloroform nyomszennyezőinek meghatározása neutronaktivációs módszerrel KFKI Közl., 15, 229-237 /1967/
- [3] Vecsernyés L., Hantos I.: $SiCl_4$ és $SiHCl_3$ nyomszennyező börtartalmának spektrokémiai meghatározása, Magy.Kém.F., 71, 231 /1965/
- [4] Erdey-Schneer A.: A General Paper Chromatographic Method for Orientative Qualitative Analysis, Talanta 10, 591-595 /1963/
Erdeyné-Schneer A.: A közet- és ásványelemzés néhány újabb módszere Magy.Kém.L., 19, 325-329 /1964/
- [5] Erdeyné-Schneer A.: Kém.Tud.Oszt.Közl., 76-77 /1964
- [6] Lederer, E., Lederer, M.: Chromatography, Elsevier Publ. Amsterdam, 527 /1957/
- [7] Coulomb, R.: C.r. 254, 4328 /1962/
- [8] Ördögh M., Hegedüs D., Szabó E.: KFKI Közl., 12, 345 /1964/
Juvanczné-Upor V., Ördögh M.: KFKI Közl., 12, 365 /1964/
- [9] Covell, D.F.: Anal.Chem. 31, 1785-1790 /1959/

Érkezett: 1968. ápr. 2.

KFKI Közl. 16.év. 4.szám, 1968.

NEUTRONGENERÁTOROK FLUXUSINGADOZÁSÁNAK HATÁSA AZ AKTIVÁCIÓS ANALIZIS VIZSGÁLATAINAK PONTOSSÁGÁRA

Irta: Vass Szabolcs Vorsatz Brunó,

Összefoglalás

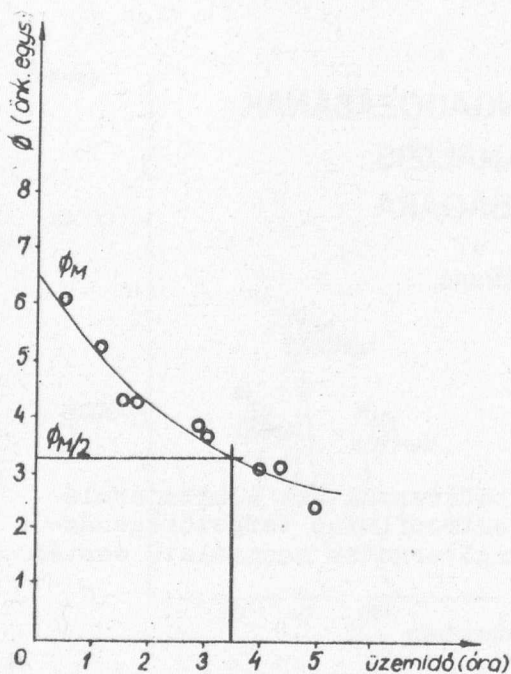
Jelen közleményünk célja, hogy meghatározzuk azt a hibajárulékot, amelyet a sorozatelemzéseknel a gyorsneutronfluxus targetöregedéstől származó monoton csökkenése, illetve forgótargetek használata esetén a fluxus periódikus ingadozása okoz.

Az aktivációs analízisben a mennyiségi meghatározások során elterjedten alkalmazzák az ismeretlen koncentrációju mintának egy standarddal történő összehasonlítását, mivel az abszolút eljárások itt különösen megbízhatatlanok. A relatív módszer viszont megköveteli, hogy a besugárzó részecskék fluxusa az egyes minták elemzése során változatlan legyen.

1. A fluxusingadozások jellege és azok oka

Reaktorban történő besugárzásnál ez a követelmény gyakorlatilag biztosítva van, neutrongenerátor alkalmazása esetén azonban a gyorsneutronfluxus nehezen reprodukálható. Ez a tény az összehasonlítást megnehezíti, és leronthatja a meghatározás pontosságát. A fluxus reprodukálhatósága szoros kapcsolatban áll a neutrontermelés mechanizmusával. Neutrongenerátoroknál az esetek túlnyomó többségében 14,5 MeV átlagenergiájú gyorsneutronokat termelnek, melyek a ${}^3\text{H}(d,n){}^4\text{He}$ reakcióban keletkeznek. A tríciumot tartalmazó target felépítése a következő: Mo, Cu vagy Ag alaplemezen vékony, néhány száz $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ vastagságú Zr, Ti /ujabban alkalmaznak Er -t is/ réteget találunk, melyben ml nagyságrendű ${}^3\text{H}$ gáz elnyeletésével alakítják ki az aktiv réteget. A használat során a maximálisan kivehető gyorsneutronfluxus erősen csökkenő tendenciát mutat [1], /lásd 1. ábra/, ami az alábbi okokra vezethető vissza:

- a/ a target aktiv zónájában a ${}^3\text{H}$ koncentráció lecsökken,
- b/ a target felülete a használat során szennyeződik, és a szennyező rétegen energiaveszteséggel átjutott deuteronok kisebb valószínű-



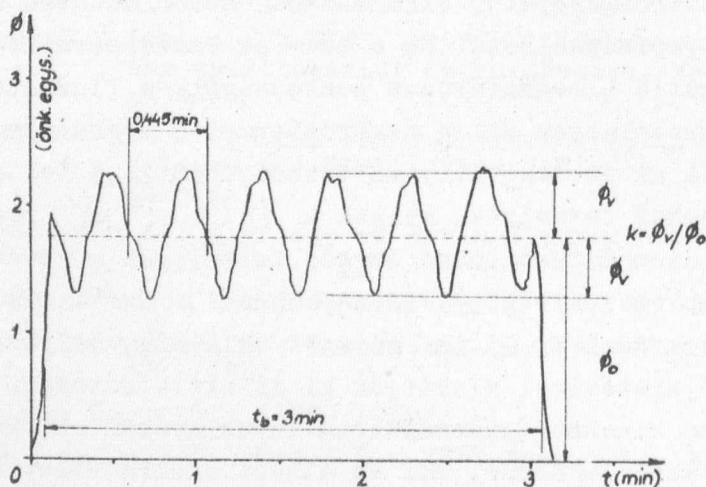
1. ábra

A maximálisan elérhető neutronfluxus változás az üzemidő függvényében

ronfluxusban periódikus ingadozás lép fel /2. ábra/.

séggel keltenek gyorsneutront. Ez főleg a viszonylag alacsony, 130-150 kV-on üzemelő generátorok problémája./

Amint az ábrán is látható, a maximális gyorsneutronfluxus időbeli változása exponenciális jellegű. Az a τ üzemidő, amely elteltével a ϕ_M kezdeti fluxus a felére csökken /továbbiakban: félélettartam/, az üzemeltetési körülményektől függően 0,5-3 óra között változik. Ilyen nagyságu félélettartam esetén a target 1-5 üzemóra elteltével cserére szorul. Nagyban javult a helyzet a forgótargetek megjelenése után, mivel a targetek élettartama 5-10 üzemórára nőtt, és a maximálisan kivehető gyorsneutronfluxus is megsokszorozódott, azonban a gyorsneut-



2. ábra

Forgótargettől származó gyorsneutronfluxus időbeli változása a besugárzás alatt

Ezt az ingadozást egyrészt a tríciumeloszlás egyenetlensége |2| , másrészt a targetfelület egyes elemeinek egyenlőtlen elhasználódása okozza. A fluxusváltozás κ relatív amplitudója a kezdeti $\sim 5\%$ -ról a target élettartamának vége felé 30-40 %-ra is megnőhet.

2. A fluxusingadozás hatása a meghatározásra

Ha az aktiválást leíró

$$dN_A = [\phi \sigma_m N - \lambda_m N_A] dt \quad /1/$$

differentiálegyenletben a ϕ neutronfluxust is az idő függvényének tekintjük, úgy a besugárzásnak kitett N számú inaktív atomból t_B idő alatt keletkező N_A aktív atomok számát az alábbi kifejezés írja le:

$$N_A = \sigma_m N e^{-\lambda_m t_B} \int_0^{t_B} \phi(u) e^{\lambda_m u} du \quad /1/a/$$

/Ahol σ_m az N_A keletkezésének hatáskeresztmetszete, λ_m a keletkezett izotóp bomlásállandója./

A besugárzás végén a minta aktivitása:

$$A_m = \lambda_m N_A \quad /1/b/$$

Az elemzés során úgy járunk el, hogy a sorozat j -ik /ismeretlen/ mintájának aktivitását /vagy egy ebből származtatható mennyiséget/ összehasonlítjuk a k -ik /standard/ mintájának aktivitásával.

$$\frac{A_m(j)}{A_m(k)} = \frac{N(j)}{N(k)} \cdot \frac{I_m(j)}{I_m(k)} \quad /2/$$

ahol I_m -mel az /1/a/ -ban szereplő integrált jelöltük, az indexek pedig a megfelelő mintához való tartozást mutatják. Az integrálok arányára információt nyerhetünk, ha a besugárzás alatt fluxusmérést végzünk, azonos és ismert összetételű mintákkal, un. monitorokkal. M indexszel jelölve a monitorhoz rendelt mennyiségeket, a monitoraktivitások aránya:

$$\frac{A_M(j)}{A_M(k)} = \frac{I_M(j)}{I_M(k)} \quad /2/a/$$

Képezzük az előző két egyenlet hányadosát:

$$\frac{A_m(j)/A_M(j)}{A_m(k)/A_M(k)} = \frac{N(j)}{N(k)} \cdot \frac{I_m(j)/I_M(j)}{I_m(k)/I_M(k)} \quad /2/b/$$

Az I_m/I_M arány függ a minta és a monitor bomlásállandóitól, és különböző fluxusok esetén nem feltétlenül azonos mennyiségeket jelöl. Amennyi-

ben monitorként a mintával azonos anyagot használunk, úgy $I_m^{(j)}/I_M^{(j)} \equiv I_m^{(k)}/I_M^{(k)} \equiv 1$, és a vizsgált anyag koncentrációjának aránya a monitorra normált aktivitásokkal egyezik meg. A monitor anyagának ilyen megválasztása a gyakorlatban sok esetben nem járható út. A gyakorlati felhasználásnál igen előnyös tulajdonságokkal rendelkezik a réz [3]. Ha a mintával nem azonos a monitor anyaga, úgy a neutronfluxus konkrét időbeli lefutása szabja meg azt, hogy az I_m/I_M arány a különböző besugárzások esetén hogyan viselkedik. Az 1. ábrán látható exponenciálisan közelíthető lefutást feltételezve kimutatható, hogy /2/b/-ben az integrálokból képzett kifejezés 1-gyel egyenlő, és a fluxus monoton csökkenése csak azon a tényen keresztül visz be a meghatározásba hibát, hogy a későbbi időpontban mért aktivitások statisztikája szisztematikusan kedvezőtlenebb.

Más a helyzet akkor, ha a periódikus változást kell figyelembe vennünk. A 2. ábrán látható fluxuslefutást jól közelíthetjük a

$$\Phi(t) = \Phi_0 (1 + \kappa \sin(\omega t + \phi)) \quad /3/$$

formulával, ahol Φ_0 az átlagfluxus, κ az ingadozás relativ amplitudója, ω a frekvenciája és ϕ a kezdeti fázisa.

$\Phi(t)$ /3/ -ban felvett alakjával kiszámolva a besugárzás végén a minta aktivitását:

$$A_m = N \cdot \sigma_m \cdot \Phi_0 (1 - e^{-\lambda m t_B}) (1 + F_m(\phi)) \quad /4/$$

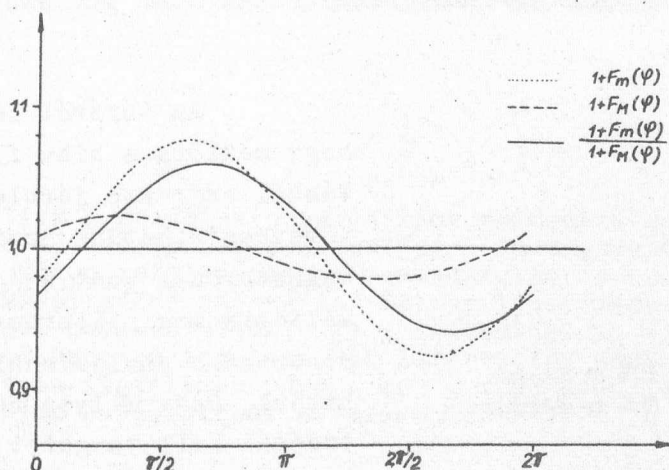
ami az állandó Φ_0 fluxussal besugárzott minta aktivitásától az $(1 + F_m(\phi))$ faktorban különbözik. Ez a tényező attól függ egy adott anyag esetében, hogy a besugárzás kezdeti ϕ fázisa milyen értéket vesz fel. $F_m(\phi)$ konkrét formája:

$$F_m(\phi) = \kappa \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\omega}{\lambda m}\right)^2}} \cdot \frac{1}{1 - e^{-\lambda m t_B}} (\sin(\omega t_B + \phi - \alpha_m) - e^{-\lambda m t_B} \sin(\phi - \alpha_m)) \quad /4/a/$$

ahol α_m -val az $\arctg \frac{\omega}{\lambda m}$ mennyiségét jelöltük. Ha most /2/b/-hez hasonlóan képezzük a monitorra normált minta, ill. standard-aktivitásokat, kifejezzük az ismeretlen koncentrációval arányos $N^{(j)}$ mennyiséget, az alábbi formulát nyerjük:

$$N^{(j)} = N^{(k)} \cdot \frac{A_m^{(j)}/A_M^{(j)}}{A_m^{(k)}/A_M^{(k)}} \cdot \frac{[1 + F_m(\phi_k)] / [1 + F_M(\phi_k)]}{[1 + F_m(\phi_j)] / [1 + F_M(\phi_j)]} = N^{(k)} \cdot \frac{A_m^{(j)}/A_M^{(j)}}{A_m^{(k)}/A_M^{(k)}} \cdot \frac{f(\phi_k)}{f(\phi_j)} \quad /5/$$

ϕ_k és ϕ_j a standard, illetve a minta besugárzásakor fellépő kezdeti fázist jelenti. Az $1+F_m(\phi)$, $1+F_M(\phi)$ továbbá $\frac{1+F_m(\phi)}{1+F_M(\phi)}$, vagyis az $f(\phi)$ mennyiségek ϕ függését ábrázolja a 3. ábra, oxigénminta és réz-monitor használata esetén. ($\lambda_m = 9,44 \cdot 10^{-2} \text{ sec}^{-1}$, $\lambda_M = 1,14 \cdot 10^{-3} \text{ sec}^{-1}$, $t_B = 30 \text{ sec}$ $k = 2 \cdot 10^{-1}$)



3. ábra

Amennyiben ϕ értékeit az egyes besugárzásoknál ismernénk, a mért eredményeket korrigálhatnánk. ϕ -t azonban vagy egyáltalán nem, vagy csak nagyon körülményesen határozhatjuk meg. Vizsgáljuk inkább meg, hogy ha ϕ_j -t és ϕ_k -t független valószínűségi változóknak tekintjük, mennyi lesz a tőlünk függő $f(\phi_k)/f(\phi_j)$ korrekciós tényező átlaga és relatív szórása. A gyakorlati esetek többségében teljeseedik, hogy $|F_m(\phi)|$ és $|F_M(\phi)| < 10^{-1}$ /Ennek feltétele, hogy $\kappa < 3 \cdot 10^{-1}$, $\omega/\lambda_m, \omega/\lambda_M > 3$ és az ingadozás periódusidejéhez felezési időben közeledő izotópokat telítésig aktiváljuk./ A mondott feltételek mellett a korrekciós faktor átlaga 1, a h relatív szórását pedig a következő közelítő összefüggés adja meg:

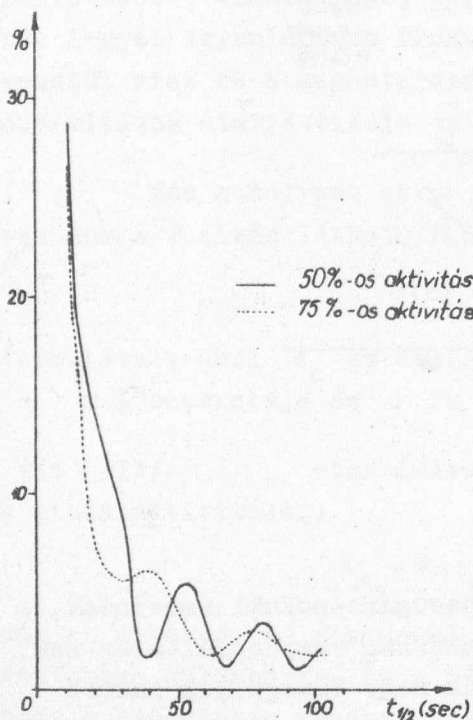
$$h = k \sqrt{(S_m - S_M)^2 + (C_m - C_M)^2} \quad /6/$$

Az m és M indextől függően S_m , C_m , illetve S_M , C_M -et az alábbi kifejezés definiálja:

$$S = \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\omega}{\lambda}\right)^2}} \cdot \frac{1}{1 - e^{-\lambda t_B}} (\cos(\omega t_B - \alpha) - e^{-\lambda t_B} \cos \alpha) \quad /6/a/$$

$$C = \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\omega}{\lambda}\right)^2}} \cdot \frac{1}{1 - e^{-\lambda t_B}} \left(\sin(\omega t_B - \alpha) + e^{-\lambda t_B} \sin \alpha \right) \quad /6/b/$$

A /6/ kifejezést $k = 1-t$ feltételezve számítottuk ki az izotópok felezési idejének függvényében, rezmonitor használata esetén ($\lambda_M = 1,14 \cdot 10^{-3} \text{sec}^{-1}$) úgy, hogy 50 és 75 %-os aktiválást tételeztünk fel. A viszonyokat a 4. ábra szemlélteti.



Az ábráról leolvasható, hogy mekkora a hiba fluxusingadozásból származó járuléka. Ebből következtethetünk arra, hogy a meghatározás pontossága mennyire változik meg, illetve egy előírt pontosságú analízisnél meghatározhatjuk, hogy milyen relatív amplitudónál kell targetet cserélni, aminek üzemi körülmények között nagy jelentősége van.

4. ábra

A korrekciós faktor relatív szórása különböző felezési idejű izotópoknál, monitor használata esetén

I r o d a l o m

- [1] Vernin, E., Perdijon, I.: Conditions optimales de fonctionnement du generateur de neutrons EUR-3210. f.
- [2] Mott, W.E., Orange, I.M.: Proc. of the Int. Conf. Modern Trends in Activation Analysis, Texas, 1965. p. 115
- [3] Hoffmann, I.R.: Determination of neutron yields. Reports of the Kaman Nuclear, KN-6310 /R/

Érkezett: 1968. júl. 12.
KFKI Közl. 14.évf. 4.szám, 1968.

AZ IDŐSZÓRÁS CSÖKKENTÉSE ON-LINE RENDSZERŰ GYORSNEUTRON REPÜLÉSI SPEKTROMÉTERBEN

Irta: Ádám András, Jéki László, Pála Gabriella

Összefoglalás

Ismertetjük a sokdetektoros on-line rendszerű gyorsneutron repülési spektrométer időszórásának csökkentésére kidolgozott módszert. A felbontást döntő módon befolyásolja a monoenergiás neutronok folytonos amplitudóspektrumából adódó időszórás. Ezt az időszórást korábban elektronikus áramkörrel csökkentettük, így a felbontást $2\tau = 2,95$ nsec-ról sikerült $2\tau = 1,8$ nsec-ra javítani. Az ismertetett módszerrel az α - jelek időszórását is figyelembe véve $2\tau = 1,03$ nsec felbontás érhető el a neutrontetektor hatásfokának növelése mellett.

Bevezetés

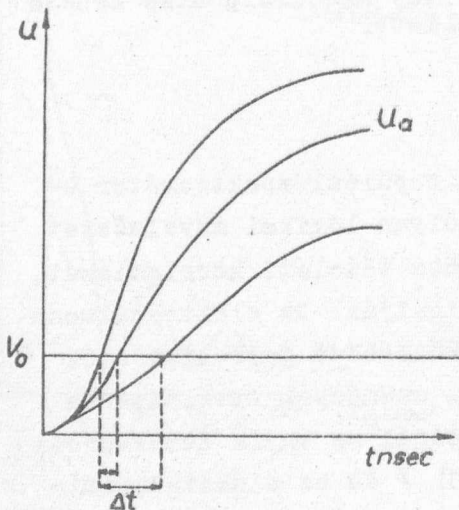
A méréseinknél használt gyorsneutron repülési spektrométer elektronikus mérőrendszerében [1] több egység olyan logikai műveleteket hajt végre, melyek egyrészt az adatok pontosabbá tételét, korrigálását, másrészt a megfelelő adatok kiválasztását szolgálják. Az elektronikusan végrehajtott logikai műveletek: kompenzálás /különböző jelfelfutásból eredő időszórás kiküszöbölése [2] /, átszórási események kiválasztása / $n, 2n$ / reakció hatáskeresztmetszetének mérésénél az egyik detektorból a másikba átszórt neutron hamis eseményt ad [3] / és az alakdiszkrimináció / n és γ jelek megkülönböztetése/. Ezen műveletek végrehajtása közben felhasznált információk jelentős részére a továbbiakban nincs szükség.

A tervezett sokdetektoros on-line rendszer kiépítése során elsődleges feladat a logikai műveletek végrehajtását a számítógépre ruházni, természetesen kihasználva azt, hogy a számítógéppel ezek a feladatok pontosabban hajthatók végre, mint elektronikus áramkörökkel. Alábbiakban ismertetjük a számítógéppel végrehajtandó kompenzáláshoz kidolgozott módszert.

A folytonos amplitúdóspektrumból származó időszórás csökkentése

A neutronok repülési idejét átfedési elven működő időamplitúdó konverterrel mérjük. A 0 időpontot meghatározó jelet a neutronokkal egyidőben keletkező részecske, a $T(d,n)\alpha$ reakcióban visszamaradó α szolgáltatója. Az időfelbontást főleg a neutrondetektor jeleinek időszórása szabja meg, de ez az α detektorban sem elhanyagolható.

A neutrondetektor jeleinek időszórását okozó tényezők között a meglökött protonok folytonos amplitúdóspektrumából származó időszórás dominál. A különböző U_a amplitúdójú impulzusok felfutási meredeksége különböző, ezért más-más időpontban érik el a rendszer V_0 indulási szintjét. Emiatt az egyszerre keletkező, de különböző nagyságú jeleket a konverter más-más időpontban észleli. Az időkéésés nagysága (Δt) az impulzus felfutási meredekségtől /az impulzus amplitudójától/ és a konverter indulási szintjétől függ /1. ábra/.



1. ábra

Neutrondetektor jeleinek felfutó éle az idő függvényében

Egy neutron detektálásáról a mérőrendszer a következő információkat szolgáltatja:

U_k konverterjel amplitúdó /repülési idő/

U_a neutrondetektor energia-arányos jeleinek amplitudója.

Az U_k konverterjelet kell korrigálni a Δt időkéésések figyelembevételével. A korrigált, ill. kompenzált konverterjel:

$$\bar{U}_k = U_k + \Delta U_k(U_a, V_0) \quad , \quad /1/$$

ahol $U_k = A \cdot \Delta t$

Az A konstans határozza meg az idő-amplitúdó konverziót.

A feladat megoldásához az $F = \Delta U_k(U_a, V_0)$ függvény ismeretére van szükség. Az F függvényt egy segédprogrammal határozzuk meg különböző V_0 paraméterek mellett, majd a függvényt beírjuk az /1/ egyenletbe, és a számológép az egymás után feldolgozásra kerülő eseményeknél rendre végrehajtja az /1/ egyenlet által meghatározott kompenzálást.

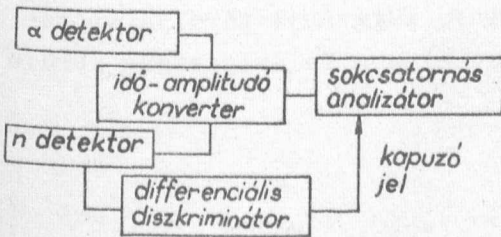
Az $F = \Delta U_k(U_a, V_o)$ függvény meghatározása

A neutron-jelek időszórásának csökkentésére létrehoztunk korábban egy elektronikus áramkört [2], mely az /1/ egyenlet által leírt kompenzálást hajtja végre. Az F függvényt egyenessel közelítettük. Ez a közelítés több egyszerűsítő feltevés következménye: lineáris jelfutás, a meglökött protonok amplitudóeloszlása téglalap alakú. A számológéppel végrehajtandó kompenzálásnál az egyszerűsítő feltevéseket nem vesszük figyelembe, a valódi F függvény szerint végezzük el a szükséges korrekciót. Célszerűnek látszik az F függvényt közvetlen méréssel meghatározni, a 14 MeV energiájú neutronok repülési időcsúcának részletes analizise alapján.

Ha a pasztik szcintillátorban meglökött protonok amplitudóspektrumából csak keskeny intervallumot veszünk figyelembe, akkor a különböző jelfelfutásból eredő időszórás elhanyagolható a fotonszám, a fénybegyűjtés, a fotoelektronszám és az elektronsokszorozók statisztikus ingadozásából eredő időszórás mellett. A megfelelő intervallumszélesség kiválasztható úgy, hogy addig felezzük az intervallumot, míg két egymás utáni felezés hatására a repülési csúc félértékszélessége nem változik. Ez a szűk tartomány különböző szélességű lesz a teljes amplitudóspektrum különböző részein. Nyilvánvaló, hogy az alacsonyenergiás tartományban /kis jelamplitudó/ szűkebb tartományt kell kiválasztani, mint nagyobb energiáknál, mivel a jelek egymáshoz viszonyított időkéseése relative nagyobb az exponenciális jelfelfutás miatt. Mérési idő csökkentése céljából viszont nem célszerű a kis jelamplitudóknál jónak talált csatornaszélességet használni az egész tartományon, mivel nagyobb energiákon nagyobb csatornaszélesség is ugyanolyan pontosságot ad. Az on-line rendszer elkészülése előtt kipróbáljuk a módszert a jelenlegi mérőrendszerrel.

A 2. ábrán látható elektronikus összeállítással hajtjuk végre az F függvény meghatározását. A meglökött protonok amplitudóeloszlását megfelelően szűk csatornákra bontjuk, és vizsgáljuk az ezen csatornához tartozó időeloszlás-görbéket. Az amplitudóspektrumból a differenciális diszkriminátorral választjuk ki a vizsgálandó tartományt, és ezen jelekkel kapuzzuk az analizátort. Az analizátoron meghatározzuk a csúcok közép-

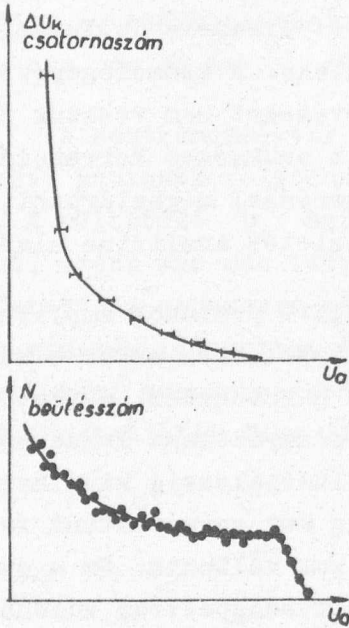
pontjának helyét és minden csúcok közép-pontnak a maximális amplitudóhoz tartozó csúcstól való távolságát. Az így



2. ábra

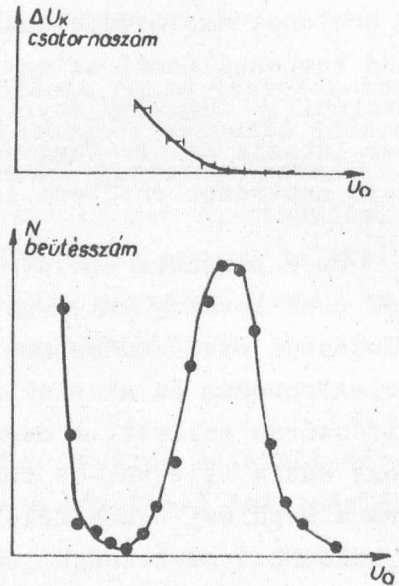
Az F függvény mérésére szolgáló elektronikus összeállítás egyszerűsített blokkvázlata

leolvasott távolságok közvetlenül U_k értékét adják meg. Az α jelek kompenzálásához szükséges F' függvényt ugyanígy határozzuk meg, ez esetben értelemszerűen az α detektor energiaarányos jelei kerülnek a differenciális diszkriminátor bemenetére /3. 4. ábra/.



3. ábra

Az F függvény neutron-jelekre /felső ábra/ és a hozzátartozó amplitúdóspektrum /alsó ábra/



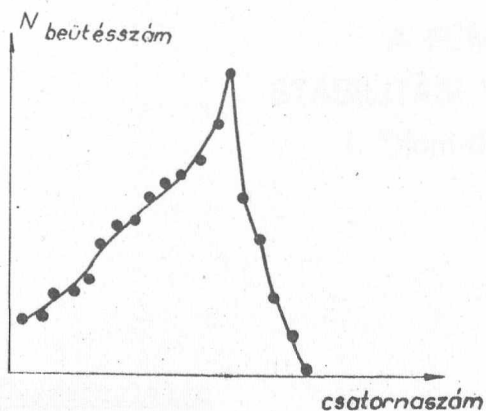
4. ábra

Az F' függvény α -jelekre /felső ábra/ és a hozzátartozó amplitúdóspektrum /alsó ábra/

On-line üzemmódban az F függvény meghatározásának elve ugyanez. A számítógép tárolja az egyes eseményekhez tartozó U_k és U_a adatokat. Elegendő adat összegyűjtése után az előzetesen betárolt program szerint analizálja az általa kiválasztott megfelelően szűk U_a tartományba eső adatoknak megfelelő ΔU_k értékeket. Meghatározza a csucok középpontját és a maximális protonenergiához tartozó csucs középpontjától való távolságot. Továbbiakban az így meghatározott F függvényt tárolja, és segítségével rendre végrehajtja a kompenzálást minden feldolgozásra kerülő eseménynél.

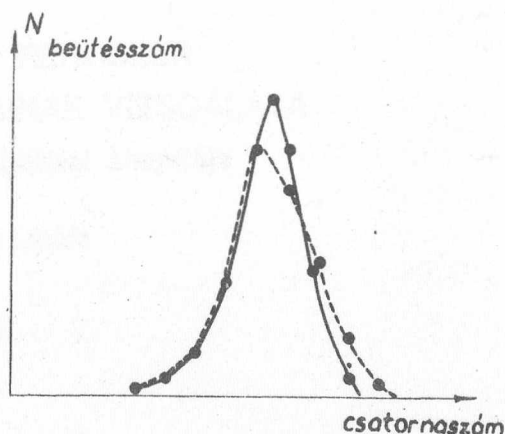
Eredmények

A jelenlegi mérőrendszerrel meghatároztuk az F és F' függvényeket. Mivel nem ismerjük az egyes U_k-U_a adatpárokat, az egyes szűk U_a tartományokon belül ΔU_k értékét állandónak vettük. Egy $2\tau = 2,95$ nsec szélességű /teljes szélesség fél magasságban/ kompenzálatlan repülési



5. ábra

Kompenzálatlan repülési csucs
 $2\tau = 2,95$ nsec.



6. ábra

Kompenzált repülési csucs. Szaggatott vonal: csak neutronoldali kompenzálás / $2\tau = 1,18$ nsec/, folytonos vonal: n és α oldali kompenzálás / $2\tau = 1,03$ nsec/

/5. ábra/ szélessége csak neutronoldali kompenzálás eredményeképpen $2\tau = 1,18$ nsec-ra csökkent, míg együttes n és α oldali kompenzálás hatására a szélesség $2\tau = 1,03$ nsec-ra változott /6. ábra/.

A $2\tau = 2,95$ nsec szélességű kompenzálatlan csucs szélességét lineáris elektronikus kompenzációval $2\tau = 1,8$ nsec-ra tudtuk csökkenteni, a pontosan figyelembe vett F és F' függvények segítségével $2\tau = 1,03$ nsec-ra. Lényegesen javult a rendszer idő- illetve energiafelbontása. További előnye a leírt módszernek, hogy a teljes amplitudóspektrum analizálását lehetővé teszi. Az eddigiekben csak magas küszöbenergia feletti jeleket vehettünk figyelembe az amplitudóspektrumból, mert kis jelamplitudónál az F függvény nem közelíthető egyenessel. Alacsonyabb küszöbenergiával növekszik a hatásfok, így a mérési idő csökkenthető. Sok detektoros nagy mérőrendszernél további előnyt jelent, hogy kevesebb elektronikus /analóg/ áramkörrel kell dolgozni, a hibalehetőségek csökkennek.

I r o d a l o m

- [1] Ádám, A., Deák, F., Jéki, L., Kozma, Gy., Pálla, G. and Szabó, L.: Acta Phys. Hung. /megjelenés alatt/
- [2] Ádám A., Pálla G. és Quittner P.: KFKI Közl. 11, 197 /1963/
- [3] Ádám, A., Kozma, Gy. and Quittner, P.: Nucl. Instr. and Methods 37, 98 /1965/

Érkezett: 1968. máj. 17.

KFKI Közl. 16.évf. 4. szám, 1968.

A FÉM-DITIZON RENDSZER STABILITÁSI VISZONYAINAK VIZSGÁLATA

I. Ólom-ditizonát stabilitási állandója

Írta: András László

Összefoglalás

1/ Extrakciós és potenciometrikus módszerrel meghatároztuk az ólom-ditizonát komplex stabilitási állandóját és kloroformban mért extrakciós állandóját, 0,1 n NaClO_4 ionerősség mellett. A kapott értékek: $\lg K_{\text{ex,CHCl}_3} = 3,18$; $\lg K_1 = 12,46$; $\lg K_2 = 7,45$; $\lg \beta_2 = 19,91$.

2/ Spektrofotometriás módszerrel meghatároztuk az ólom-ditizonát megoszlási hányadosát, $\lg \lambda_{2,\text{CHCl}_3} = 4,46$.

3/ Mérési eredményeinket összehasonlítottuk különböző közleményekben megjelent adatokkal, és megállapítottuk, hogy az egymástól nagymértékben különböző extrakciós állandók korlátozott pontosságú egyezést mutatnak akkor, ha nem hanyagoljuk el a kompetitív komplexképződési reakciókat az ólom és a különböző anionok között.

4/ Az újraszámolt adatokat felhasználva $\lg K_{\text{ex,CHCl}_3} = 3,59$; $\lg K_{\text{ex,CCl}_4} = 4,36$ és $\lg \lambda_{2,\text{CCl}_4}$ állandóra 3,43 értéket kaptunk, míg $\lg \beta_2$ -re 19,15-öt.

Bevezetés

A ditizont /difenil-tiokarbazon $\text{C}_6\text{H}_5\cdot\text{N}:\text{N}\cdot\text{C}/\text{S}/\cdot\text{NH}\cdot\text{NH}\cdot\text{C}_6\text{H}_5$, Beil. Ref. XVI. 26./ kb. 20 különböző fém, köztük az ólom detektálására és meghatározására használják [1, 2]. Igen bő irodalom, többek között két összefoglaló mű is [3, 4] foglalkozik a fém ditizonátok és az ólom-ditizonát extrakciós viselkedésével.

Az ólomkomplex extrakciós állandóját szén-tetrakloridra és kloroformra vonatkoztatva többben is meghatározták, a különböző szerzők azonban igen eltérő eredményeket közölnek. Célszerűnek látszott az ólom-ditizonát komplex stabilitási állandójának, mint a kísérleti közegtől független állandónak a meghatározása.

Elméleti rész

Valamely M^{n+} fémion és A^- ligandum ion közötti komplex képződési reakció felírható az

$$\beta_n = \frac{[MA_n]_o \cdot [H^+]^n}{[HA]_o^n \cdot C_M} \cdot \sum_1^m \kappa_m [B^-]^m \cdot \frac{\kappa_d^2}{\kappa_a^2 \cdot \lambda_n} \quad /9a/$$

ahol

$$\frac{[MA_n]_o \cdot [H^+]^n}{[HA]_o^n \cdot C_M} \cdot \sum_1^m \kappa_m [B^-]^m = K_{ex} \quad /9b/$$

a fémkomplex extrakciós állandója.

Az ólom-ditizonát komplex összetételét többen /pl. [5] / meghatározták, és 2:1 ditizon-fém arányt találtak. Ha feltételezzük, hogy nem képződik több magvu komplex, és csak a töltés nélküli komplex oszlik meg a két fázis között, továbbá állandó ionerősségű közegben az aktivitások helyett koncentrációkkal számolhatunk, az ólom-ditizonát stabilitási állandója a következő módon írható fel

$$\beta_2 = \frac{[Pb(HDz)_2]_o \cdot [H^+]^2}{[H_2Dz]_o^2 \cdot C_{Pb}} \cdot \sum_1^m \kappa_m [B^-]^m \frac{\kappa_d^2}{\kappa_a^2 \cdot \lambda_2} \quad /9c/$$

f/ A fémkomplex megoszlási hányadosa meghatározható a komplexnek az egymással egyensúlyban lévő, kölcsönösen ólom-ditizonáttal telített fázisokban mért koncentrációjának arányából.

Ha ólom-ditizonát csapadékot is tartalmazó vizes fázist egyszer ditizonos kloroform oldattal, majd ditizonmentes kloroformmal egyensúlyba hozzuk, a két szerves oldat koncentrációjából, ill. a fázisarányból adódik:

$$\lambda_2 = \frac{[Pb/HDz/2]_o}{[Pb/HDz/2]} = v_2 \left(\frac{1}{v_1} \cdot \frac{a \cdot c_1}{b \cdot c_2} - \frac{1}{v_2} \right) \quad /10/$$

ahol - v_2 az ólom-ditizonáttal telített vizes fázisnak másodszeri kirázáshoz felhasznált térfogata,

v_1 kiindulási /első kirázáshoz felhasznált/ vizes fázis térfogata,

v_1 első kirázáshoz felhasznált, ditizont tartalmazó szerves fázis térfogata,

v_2 második kirázáshoz felhasznált, csak kloroformot tartalmazó szerves fázis térfogata.

a, ill. b arányossági tényezők, ahol

$$a = \frac{v_1}{v_{c1}} \text{ ill. } b = \frac{v_2}{v_{c2}} \quad \text{ahol } v_{c1} \text{ és } v_{c2} \text{ az analízisre felhasznált}$$

ditizonos, ill. tiszta kloroformos fázis térfogata, c_1
ill. c_2 az ólom-ditizonát koncentrációja az analizált mintákban.

Kísérleti rész

Felhasznált anyagok

- 1/ CHCl_3 - p.a. készítmény, desztillációval tisztítva [2]
- 2/ Ditizon - Reanal p.a. készítmény, extrakciós, ammóniás módszerrel tisztítva [8, 9]. A pontos ditizon-koncentrációt higany-perkloráttal végzett extrakciós titrálással határoztuk meg.
- 3/ HCl , NH_4OH - izopiesztikus, desztillált [10].
- 4 A vizes /pl. NaClO_4 / oldatokat ditizzonnal tisztítottuk; a kloroformot és vizet egymással kölcsönösen telítettük.
- 5/ $\text{Pb}/\text{NO}_3/2$ - Analar készítmény.
- 6/ $\text{Pb}/\text{HDz}/2$ - kloroformból átkristályosított.

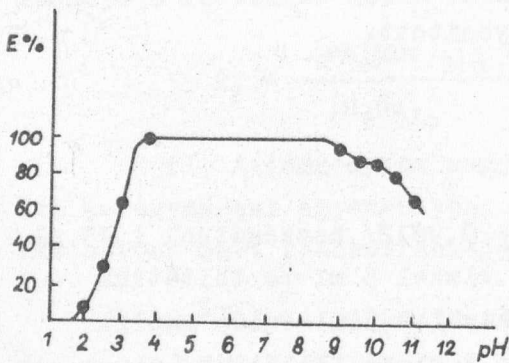
Metodika

- 1/ a/ A vizes fázis összetétele.
0,75 ml 0,2 n HClO_4 oldathoz / $f = 0,9832$ / hozzáadtunk 1,75 ml 0,2 n NaClO_4 oldatot, és ionmentes vízzel 5 ml-re töltöttük fel. Egy másik mintához fentiekén kívül 0,3 ml $8 \cdot 10^{-2}$ mól/l $\text{Pb}/\text{NO}_3/2$ oldatot adtunk, és szintén 5 ml-re töltöttük fel.
b/ Szerves fázis: 5 ml $1,4245 \cdot 10^{-2}$ mól/l ditizon kloroformban.
- 2/ Mindkét mintát Radiometer típusu pH regisztráló műszeren 0,0625 pH/perc sebesség mellett 0,2 n NaOH oldattal titráltuk. A képződési állandó értékét és a stabilitási állandót a két titrálás során fogott NaOH különbségéből számítottuk /Jensen-módszer [11] /.
- 3/ A stabilitási állandó számításához szükséges K_d és K_a értékek /4, 5 egyenlet/ irodalmilag is ismert adatok [23, 24], másrészt a
$$K_{a,E} = \frac{K_a}{1+K_d} \quad /11/$$
értéket, amely az un. kétfázisú disszociációs állandó, jelen mérés-sorozatban meghatároztuk / $\text{p}K_{a,E} = 10,7$ / és a számításokhoz ezt az értéket használtuk.
- 4/ A titráló oldat hozzáadása következtében beállott térfogatváltozást korrekcióba vettük.

- 5/a. A komplex megoszlási hányadosának meghatározásához szilárd, kloroformból átkristályosított ólom-ditizonátot és a következő folyadékterfogatokat használtuk: V_1 : 15-800 ml, V_2 : 8-450 ml, v_1 : 15-7,5 ml, v_2 : 4-10 ml.
- b. A meghatározást spektrofotometriás módszerrel, Spektromom 201 készüléken 520 m μ -nál végeztük el.

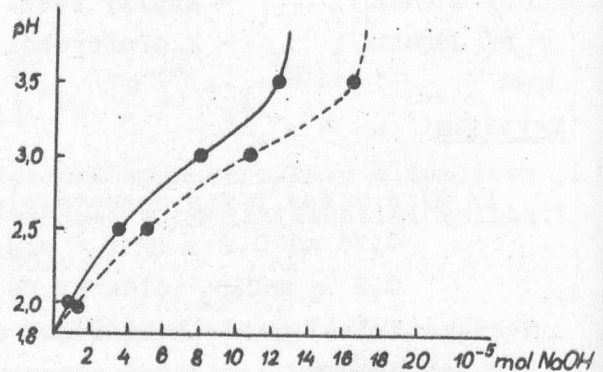
Eredmények

1/ Méréseink alapján felvettük az ólom-ditizonát extrakciós görbét 2,0 és 11,0 pH között /1. ábra/, valamint a titrálási /2. ábra/, és képződési görbét 1,8 és 3,5 pH között /3. ábra/. A grafikus kiértékeléshez szükséges adatok az 1. táblázatban találhatóak.



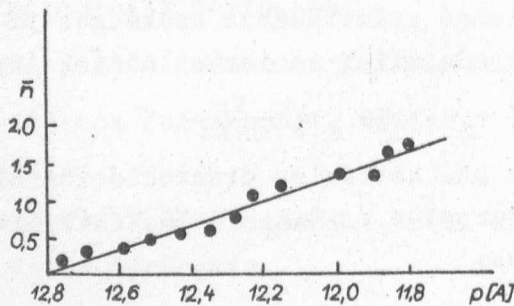
1. ábra

Ólom-ditizonát extrakciós görbéje a pH függvényében



2. ábra

Ólom-ditizonát titrálási görbéje



3. ábra

Ólom-ditizonát képződési görbéje

1. táblázat

pH	NaOH fogyás mól.10 ⁶	[A] _{p-kötött} ligandum mól.10 ⁶	\bar{n}	[A] · 10 ³	pA	[A] ² · 10 ²⁶
1,9	2,08	2,10	0,08	1,69	12,77	2,84
2,0	3,56	3,61	0,15	1,70	12,76	2,90
2,1	5,95	6,06	0,25	2,07	12,69	4,28
2,2	7,73	7,92	0,33	2,53	12,59	6,39
2,3	10,1	10,4	0,44	3,06	12,52	9,34
2,4	12,6	13,1	0,55	3,68	12,43	13,54
2,5	14,5	15,2	0,63	4,47	12,35	19,95
2,6	17,8	19,0	0,79	5,25	12,28	27,54
2,7	21,8	23,4	0,98	5,88	12,23	34,51
2,8	24,7	26,8	1,12	7,06	12,15	49,80
2,9	27,2	29,9	1,24	10,09	11,99	101,77
3,0	27,8	30,9	1,29	10,16	11,99	103,27
3,1	28,6	32,0	1,33	12,44	11,90	154,68
3,2	32,6	37,0	1,54	13,67	11,86	186,81

A grafikonról leolvasható értékek

$$\bar{n} = 0,5 \quad pA = 12,52 \quad \lg K_1 = 12,52 \quad K_1 = 3,32 \cdot 10^{12}$$

$$\bar{n} = 1,0 \quad pA = 12,20 \quad \lg \beta_2 \lambda_2 = 24,40 \quad \beta_2 \lambda_2 = 2,46 \cdot 10^{24}$$

$$\bar{n} = 1,5 \quad pA = 11,87 \quad \lg K_2 \lambda_2 = 11,87 \quad K_2 \lambda_2 = 7,42 \cdot 10^{11}$$

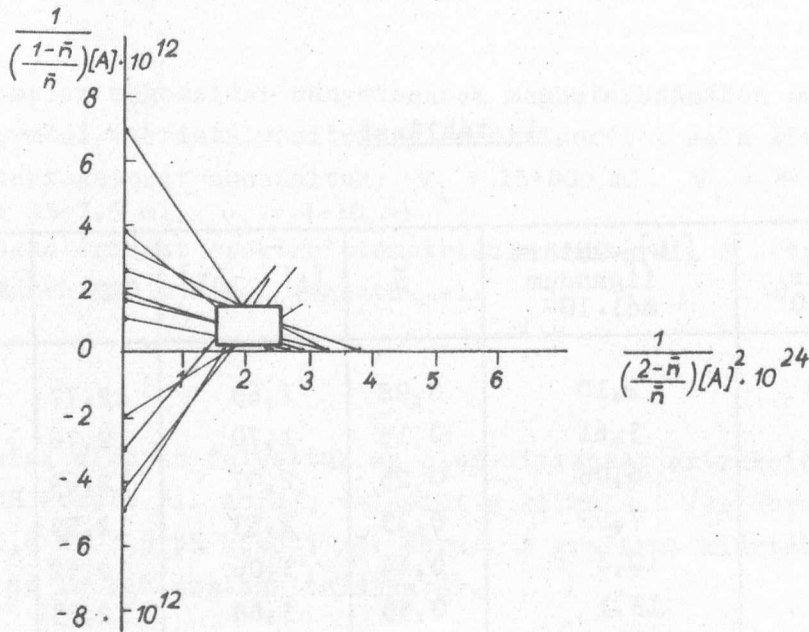
2/ A mérési eredményeket az eliminációs módszer szerint /7, 89. old./ feldolgozva K_1 és $\beta_2 \lambda_2$ értéke meghatározható az

$$\frac{1-\bar{n}}{\bar{n}} \cdot \frac{[A]}{K_1} + \frac{2-\bar{n}}{\bar{n}} \cdot \frac{[A]^2}{\beta_2 \lambda_2} = 1 \quad /12/$$

összefüggés alapján. Az eredmények a 4. ábráról olvashatók le.

Az állandók értékei:

$$K_1 = /8,0 \pm 6,0/ \cdot 10^{11}; \quad \beta_2 \lambda_2 = /2,0 \pm 0,5/ \cdot 10^{24} \quad K_2 \lambda_2 = 2,5 \cdot 10^{12}.$$



4. ábra

K_1 és $\beta_2\lambda_2$ értékének meghatározása

3/ A mérési eredmények numerikus feldolgozása során a fenti állandókon kívül az ólom-ditizonát kloroformra vonatkoztatott extrakciós állandója, továbbá az

$$\bar{n} = \frac{K_1 [A] + 2\beta_2\lambda_2 [A]^2}{1 + K_1 [A] + \beta_2\lambda_2 [A]^2} \quad /13/$$

összefüggésből a

$$K_1 = \frac{\beta_2\lambda_2 [A]^2 (2 - \bar{n}) - \bar{n}}{[A] (\bar{n} - 1)} \quad /14/$$

alapján K_1 értéke is számítható.

A számításhoz szükséges adatokat és a kapott eredményeket a 2. táblázatban foglaltuk össze.

A kapott átlagértékek és négyzetes hibájuk a következők:

$$\begin{aligned} K_{\text{ex,CHCl}_3} &= /1,5 \pm 0,4/ \cdot 10^3 & K_1 &= /2,9 \pm 1,3/ \cdot 10^{12} \\ K_2\lambda_2 &= 8,14 \cdot 10^{11} & \beta_2\lambda_2 &= /2,36 \pm 0,65/ \cdot 10^{24} \end{aligned}$$

A Dyrssen által definiált módon^{*/} [12] kapott $\lg K = 2,9$.

*/

Dyrssen az extrakciós állandó azon értékét adja meg, melynél a fém megoszlási hányadosa 1, s így az extrakciós állandó csak a hidrogénion-koncentráció és a szerves fázis ligandum-koncentrációjának függvénye. Egy mólos ligandum-koncentrációt véve figyelembe $\lg K = N \cdot \lg [H^+]$. Ez az állandó a különböző ligandumok összehasonlítására ad módot.

2. táblázat

pH	$[MA_2]_0 \cdot 10^6$	$C_M \cdot 10^6$	$[H]^2$	$[HA]_0^2 \cdot 10^{10}$	$K_{ex} CHCl_3 \cdot 10^{-3}$	$\beta_2 \lambda_2 \cdot 10^{-24}$
1,9	1,05	22,95	$1,067 \cdot 10^{-4}$	47,78	1,022	1,606
2,0	1,81	22,19	$1,000 \cdot 10^{-4}$	45,71	1,701	2,796
2,1	3,03	20,97	$6,304 \cdot 10^{-5}$	42,47	2,145	3,378
2,2	3,96	20,03	$3,982 \cdot 10^{-5}$	40,07	1,965	3,084
2,3	5,22	18,78	$2,510 \cdot 10^{-5}$	36,90	1,891	2,969
2,4	6,55	17,45	$1,584 \cdot 10^{-5}$	33,78	1,761	2,764
2,5	7,61	16,39	$9,986 \cdot 10^{-6}$	31,37	1,478	2,321
2,6	9,48	14,52	$6,300 \cdot 10^{-6}$	27,32	1,505	2,362
2,7	11,72	12,28	$4,203 \cdot 10^{-6}$	22,84	1,756	2,756
2,8	13,42	10,58	$2,512 \cdot 10^{-6}$	19,70	1,617	2,539
2,9	14,94	9,26	$1,067 \cdot 10^{-6}$	17,10	1,028	1,614
3,0	15,45	8,55	$1,000 \cdot 10^{-6}$	16,26	1,111	1,744
3,1	16,02	7,98	$6,304 \cdot 10^{-7}$	15,36	0,824	1,294
3,2	18,50	5,50	$3,982 \cdot 10^{-7}$	11,71	1,444	1,795

4/ A töltés nélküli komplex megoszlási hányadosának / λ_2 / meghatározására vonatkozó adatokat a 3. táblázat tartalmazza.

3. táblázat

Sor-sz.	Vizes fázis térf. ml		Szerves fázis térf. ml		a/b 10^{-2}	c_1/c_2	$\lambda_2 \cdot 10^{-4}$
	V_1	V_2	v_1	v_2			
1	15	8	7,5	4	9,38	14,60	1,46
2	15	8	7,5	4	9,38	24,63	2,46
3	220	150	15,0	10	1,50	10,88	1,63
4	800	450	15,0	10	1,50	10,81	4,86
5	800	450	15,0	10	1,50	8,96	4,03

$\lambda_{2,CHCl_3}$ átlagértéke: $2,9 \pm 1,4 \cdot 10^4$

Értékelés

1/ A különböző módon kapott állandók értékeit a 4. táblázatban foglaltuk össze.

4. táblázat

	Jensen-féle grafikus [11]	Eliminációs grafikus [7]	Numerikus	Közvetlen meghatározás /10/ egyen- let szerint
K_1	$3,32 \cdot 10^{12}$	$/8,0 \pm 6,0 / \cdot 10^{11}$	$/2,9 \pm 1,3 / \cdot 10^{12}$	
$K_2 \lambda_2$	$7,42 \cdot 10^{11}$	$2,5 \cdot 10^{12}$	$8,14 \cdot 10^{11}$	
$\beta_2 \lambda_2$	$2,46 \cdot 10^{24}$	$/2,0 \pm 0,5 / \cdot 10^{24}$	$/2,36 \pm 0,65 / \cdot 10^{24}$	
λ_2	-	-	-	$/2,9 \pm 1,4 / \cdot 10^4$
K_2	$2,55 \cdot 10^7$	$8,36 \cdot 10^7$	$2,81 \cdot 10^7$	
β_2	$8,48 \cdot 10^{19}$	$6,90 \cdot 10^{19}$	$8,14 \cdot 10^{19}$	

2/ A kétféle grafikus módszer közül a Jensen-féle viszonylag magas, az eliminációs módszer viszonylag alacsony értékeket ad a különböző állandókra. A Jensen-féle módszer esetében a hiba meghatározása nem lehetséges, az eliminációs módszerrel kapott értékek hibája pedig viszonylag magas. Ezért az állandók valószínű értékeire a numerikus módszerrel kapott értékeket fogadtuk el.

$K_{ex, CHCl_3}$	$/1,5 \pm 0,4 / \cdot 10^3$
K_1	$/2,9 \pm 1,3 / \cdot 10^{12}$
K_2	$/2,81 \pm 1,62 / \cdot 10^7$
β_2	$/8,14 \pm 2,97 / \cdot 10^{19}$
λ_2	$/2,9 \pm 1,4 / \cdot 10^4$

Dyrssen szerinti lg K 2,9

3/ Az ólom-ditizonát extrakciójával kapcsolatosan megjelent sok közlemény közül négyet kívánunk részletesen foglalkozni.

a/ Biefeld és Patrick [13] cianidot, tartarátot és citrátot tartalmazó vizes, ill. fémre számítva 50 %-os ditizon felesleget tartalmazó kloroformos közegben pH-metrikus, ill. spektrofotometriás módszerrel vizsgálta az ólom-ditizonát extrakcióját. Extrakciós állandót nem számoltak, az E %-pH görbét vették fel. Az 50 %-os extrakcióhoz tartozó pH értékek alapján számítottuk a látszólagos extrakciós állandót.

b/ Babko és Pilipenko [14] nem közölt összetételű vizes oldat és szén-tetraklorid rendszerben, 3,0-5,0 pH intervallumban spektrofotometriás módszerrel az ólom-ditizonát instabilitási állandójára $K' = 1/\beta_2^X \lambda_2 = 2,2 \cdot 10^{-19}$ értéket kapott.

c/ Koroleff [15] cianidot, tartarátot, citrátot és acetátot tartalmazó vizes és szén-tetrakloridos, ill. kloroformos közegben spektrofotometriás módszerrel meghatározta a fenti rendszerekre vonatkoztatott extrakciós állandókat.

d/ Vouk és Weber [16] citrátot és cianidot tartalmazó vizes és szén-tetrakloridos rendszerben spektrofotometriás módszerrel meghatározták az ólom-ditizonát extrakciós állandóját.

Fenti közleményekben az extrakciós állandó

$$K_{\text{ex}} = \frac{[\text{MA}_n]_o [\text{H}]^n}{[\text{M}^{n+}] [\text{HA}]_o^n} \quad /15/$$

számítása során a szerzők nem vették figyelembe a /6/, ill. /7/ összefüggéseket, nevezetesen az ólom és a vizes fázis pontos pH értékének beállításához szükséges puffer oldatokban jelenlévő anionok közötti kölcsönhatást, azaz a kompetitív komplex-képződési reakciókat és azok egyensúlyi állandóit. Ezeknek az állandóknak a meghatározására, ill. közlésére néhány esetben a fentebb felsorolt közlemények megjelenése után jóval később került sor, s így fenti szerzők néha nem is ismerhették azokat.

Az 5. táblázatban összefoglaltuk a különböző anionokra vonatkozó, a rendelkezésünkre álló adatokból legmegbízhatóbbnak ítélt egyensúlyi állandókat, továbbá az 50 %-os extrakcióhoz tartozó pH értékeket, valamint az anionkoncentrációk figyelembevételével újraszámított, tehát az anionoktól független és csak az oldószertől függő extrakciós állandókat.

A "három szigma" szabály [22] alapján kiértékelve az 5. táblázatban feltüntetett számított eredményeket $K_{\text{ex,CHCl}_3}$ -ra $3,9 \pm 3,6 \cdot 10^3$, míg $K_{\text{ex,CCl}_4}$ -re $2,3 \pm 2,3 \cdot 10^4$ értéket kaptunk. A táblázatból látható, hogy a két állandóra kapott értékek lényegesen pontatlanabbak, mint az egy

5. táblázat

Anion	κ_m irodalom	Ion- erős- ség [B]	$\kappa_m [B^-]^m$	Oldószer	Extrakciós adat			Ujraszámolt K_{ex}
					50%-os extrakci- óhoz tar- tozó pH	K_{ex}	Irodalom	
Acetát	$\kappa_4 = 5,25 \cdot 10^6$ [17]	0,1	$5,25 \cdot 10^2$	CHCl ₃	5,8	$1,25 \cdot 10^1$	[13]	$6,56 \cdot 10^3$
		0,2	$8,4 \cdot 10^3$	CHCl ₃	5,5	$1,3 \cdot 10^{-1}$	[15]	$1,09 \cdot 10^3$
		0,2	$8,4 \cdot 10^3$	CCl ₄	5,0	2,4	[15]	$2,02 \cdot 10^4$
Citrát	$\kappa_2 = 5,25 \cdot 10^5$ [18]	0,1	$3,21 \cdot 10^5$	CHCl ₃	7,7	$1,95 \cdot 10^{-3}$	[13]	$6,26 \cdot 10^2$
		0,2	$1,35 \cdot 10^5$	CHCl ₃	7,75	$6,6 \cdot 10^{-6}$	[15]	$8,9 \cdot 10^{-1}$
	$\kappa_1 = 8,16 \cdot 10^6$ [19]	0,2	$1,35 \cdot 10^5$	CCl ₄	7,10	$5,4 \cdot 10^{-5}$	[15]	7,3
		0,3	$9,95 \cdot 10^5$	CCl ₄	-	$1,42 \cdot 10^{-3}$	[16]	$1,41 \cdot 10^3$
Tartarát	$\kappa_1 = 6,03 \cdot 10^3$ [21]	0,1	$6,03 \cdot 10^2$	CHCl ₃	6,3	1,23	[13]	$7,43 \cdot 10^3$
		0,2	$1,21 \cdot 10^3$	CHCl ₃	6,9	$2,3 \cdot 10^{-4}$	[15]	$2,78 \cdot 10^{-1}$
		0,2	$1,21 \cdot 10^3$	CCl ₄	6,5	$2 \cdot 10^{-3}$	[15]	2,42
Cianid	$\kappa_4 = 2 \cdot 10^{10}$ [20]*	0,1	$2 \cdot 10^6$	CHCl ₃	5,5	$4,88 \cdot 10^1$	[13]	$9,76 \cdot 10^7$
		0,1	$2 \cdot 10^6$	CHCl ₃	5,25	$9,7 \cdot 10^{-1}$	[15]	$1,94 \cdot 10^6$
		0,1	$2 \cdot 10^6$	CCl ₄	4,75	4,5	[15]	$9,00 \cdot 10^6$
		0,3	$1,62 \cdot 10^8$	CCl ₄	-	$2,93 \cdot 10^4$	[16]	$4,75 \cdot 10^4$

* Referálók által kétes megbízhatóságúnak ítélt adat.

méréssorozaton belül megengedhető lenne. Ha figyelembe vesszük azonban, hogy ezek különböző szerzők kb. két évtizedes eltéréssel közölt, ill. grafikusán ábrázolt adataiból kiinduló számítás végeredményeként adódtak, elfogadhatónak tekinthetők. Statisztikusan az általunk meghatározott $1,5 \pm 0,4 \cdot 10^3$ és a $3,9 \pm 3,6 \cdot 10^3$ érték megegyezőnek tekinthető.

A $K'_{Pb/HDz/2}$ szén-tetrakloridban meghatározott értéke $K' = 1/\beta_2^x \lambda_2 = 2,2 \cdot 10^{-19}$ [14]. A vizes fázis feltehetően 0,2 mól acetátot tartalmazott a pH 3-5 tartományban elvégzett méréseknél. Az 5. táblázat megfelelő adatainak figyelembevételével a $\beta_2 \lambda_2$ értéke $3,82 \cdot 10^{22}$ -nek adódik. A Babko és Pilipenkó által CCl_4 -re megadott kétfázisú disszociációs állandó értékét $2 \cdot 10^{-9}$ / figyelembe véve

$$K_{ex} = \beta_2 \lambda_2 \cdot /K'_{H_2Dz}/^2 \quad /16/$$

alapján K_{ex, CCl_4} kiszámítható. Ez az érték $2,02 \cdot 10^4$ -nek adódik, mely statisztikusan szintén egyezik az 5. táblázat adataiból számított átlagértékkel.

A λ_{2, CCl_4} állandó értéke kiszámítható a másutt [3] közölt adatokból. Az ólom-ditizonát oldékonysága kloroformban $1,4 \cdot 10^{-4}$ mól/l, kloroform és víz közötti megoszlási hányadosa $2,9 \cdot 10^4$, vizoldékonysága tehát $4,83 \cdot 10^{-9}$ mól/l. Mivel az ólom-ditizonát oldékonysága szén-tetrakloridban [3] $1,3 \cdot 10^{-5}$ mól/l, λ_{2, CCl_4} -re $2,69 \cdot 10^3$ értéket kapunk. Ily módon Babko és Pilipenko [14] adataiból β_2 -re kapott érték $1,42 \cdot 10^{19}$.

Mérési eredményeinket két grafikus és egy numerikus módszerrel értékeljük ki. Megállapítottuk, hogy a numerikus módszer által szolgáltatott eredmények tekinthetők a legmegbízhatóbbnak.

Jelen közleményben leírt kísérleteink során első ízben határoztuk meg az ólom-ditizonát képződési állandóit és kloroform-víz rendszerben megoszlási hányadosát. Meghatároztuk a fémkomplex kloroformra vonatkoztatott és az irodalomból már ismert extrakciós állandóját.

Az irodalomban kloroform, ill. szén-tetraklorid és víz rendszerre közölt adatok elemzésének eredményeként megállapítottuk, hogy az extrakciós állandókra egyes esetekben egymástól több nagyságrenddel eltérő értékek találhatók. Ezek az adatok mind egymás között, mind pedig az általunk meghatározott adatokkal jó egyezést adnak abban az esetben, ha nem hanyagoljuk el az ólom és a vizes fázis pontos pH értékének beállításához szükséges anionok között lejátszódó kompetitív komplexképződési reakciókat.

Saját adatainkat és az újra számolt adatokat felhasználva kiszámítottuk az ólom-ditizonát eddig nem közölt megoszlási hányadosát széntetraklorid-víz rendszerre.

I r o d a l o m

- [1] Snell, F.D., Snell, C.T.: Colorimetric Methods of Analysis, Van Nostrand, New York, 1951, 1-40
- [2] Welcher, F.J.: Organic Analytical Reagents, Van Nostrand, New York, 1955, III. 481-509
- [3] Iwantseff, G.: Das Dithizone und seine Anwendung in der Mikro- und Spurenanalyse, Weinheim, 1958
- [4] Stary, J.: The Solvent Extraction of Metal Chelates, Pergamon Press, Oxford, 1964
- [5] Cooper, S.S., Hibbits, J.H.: J. Am. Chem. Soc. 75, 5084 /1952/
- [6] Schläfer, H.L.: Komplexbildung in Lösung, Springer-Verlag Berlin, 1961, 4
- [7] Rosotti, F.J.C. and Rosotti, H.: The Determination of Stability Constants, McGraw-Hill, New York, 1961, XIII.
- [8] Duncan, J.F., Thomas, F.G.: J. Am. Chem. Soc. 1960, 2814
- [9] Geiger, R.W., Sandell, F.B.: Anal. Chim. Acta 8, 197 /1953/
- [10] Irving, H., Cox, J.J.: Analyst 83, 526 /1958/
- [11] Jensen, B.S.: Acta. Chem. Sca. 13, 1347 /1959/
- [12] Dyrssen, D.: Svensk. Kemisk Tidskrift 68, 212 /1956/
- [13] Biefeld, L.P., Patrick, T.M.: Ind. Eng. Chem., Analyt. Ed 14, 275 /1942/
- [14] Бабко, А.К., Пилипенко, А.Т.: Журн.Аналит.Химии 2, 33 /1947/
- [15] Koroleff, F.: Merentutkimuslaitoksen Julkaisu Harforskningsintitutes Skrift 145, 7 /1950/
- [16] Vouk, V.B., Weber, O.A.: Analyst 85, No.1006, 46 /1960/
- [17] Burns, E.A., Hume, D.N.: J. Am. Chem. Soc., 78, 3958 /1956/ cf. Stability Constants, The Chemical Society, London, 1957. I. 3.
- [18] Kety, S.S.: J. Biol. Chem. 142, 181 /1942/ cf. ibid. I. 39.
- [19] Suzuki, S.: J. Chem. Soc. Japan, 73, 92 /1952/ cf. ibid
- [20] Kolthoff, I.M., Lingane, J.J.: Polarography, Interscience, New York, 1941, p. 268. cf. ibid. II. 36.
- [21] Pánova, V.E.: Zsurn.Neorg.Himii 1, No.3, 22 /1956/ cf. Stability Constants. The Chemical Society, London, 1964.
- [22] Batuner, L.M., Pozin, M.E.: Matematikai módszerek a kémiai gyakorlatban, Műsz. Könyvkiadó, Bp. 1963, 556
- [23] Sandell, E.B.: J. Am. Chem. Soc. 72, 4660 /1950/
- [24] Irving, H., Bell, C.F.: J. Chem. Soc. 1216 /1952/

Érkezett: 1968. jun. 6.

KFKI Közl., 16.évf. 4.szám, 1968.

KIÉRTÉKELÉSI ELJÁRÁS INTEGRÁLIS NONLINEARITÁSNAK DISZKRÉT MÉRÉSI ADATOKBÓL VALÓ MEGHATÁROZÁSÁRA

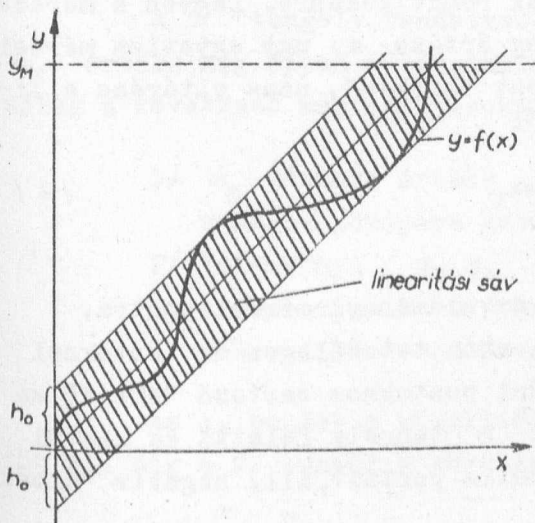
Irta: Jávor András

Összefoglalás

A cikk egzakt kiértékelési eljárást ismertet rendszerek integrális nonlinearitásának kiértékelésére, ami az eddigiekben általánosan alkalmazott próbálgatásos eljárás helyett kerülhet alkalmazásra. A kiértékelés elve szerkesztéssel vagy egyszerű analóg célszámítógéppel realizálható. Végül bemutatjuk a digitális számítógéppel történő kiértékelés lehetőségét.

Bevezetés

A mérés technika legkülönbözőbb területein szükség van olyan be-
rendezésekre, melyek valamely "x" fizikai mennyiség változásának hatásá-
ra egy másik - azonos, vagy eltérő jellegű - "y" fizikai mennyiség vál-
tozását hozzák létre, oly módon, hogy a köztük fennálló függvénykapcsolat
meghatározott hibahatáron belül lineáris legyen. Ilyen jellegű feladato-
kat oldanak meg például a lineáris erősítők, az amplitudó-idő konverterek
[1] vagy az energiaérzékeny nukleáris detektorok [2].



1/a ábra

Ezen rendszerek fontos jel-
lemző adata az integrális nonlinea-
ritás [3] értéke, melyet a következő
módon definiálhatunk /lásd az 1/a.
ábrát/.

Amennyiben az origón át
huzott egyenessel párhuzamos, az
y tengely mentén $\pm h_0$ távolságra
eltolt két egyenes, valamint a
vizsgált értéktartomány maximumánál
/ y_M / huzott, az x tengellyel
párhuzamos egyenes és a pozitív
féltengelyek által határolt nonli-

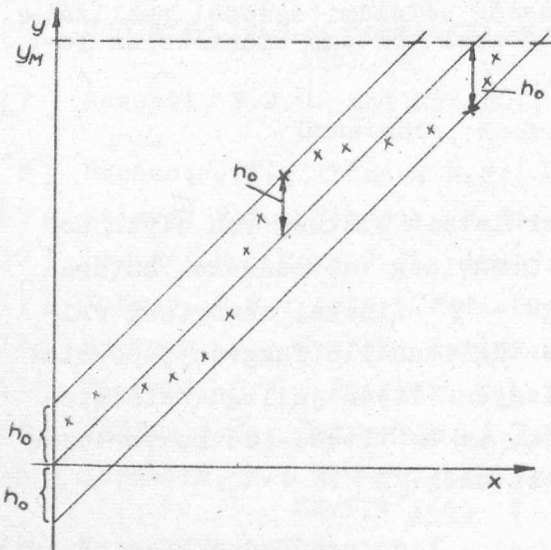
nearitási sávon belül van az $y = f/x$ függvény minden pontja, de semmilyen más egyenes meredekség választás esetén sincsen belül h_0 értéknél bármennyivel is kisebb $|h_0 - dh|$ hibahatáron, úgy az integrális nonlinearitás értéke:

$$L_i = \pm \frac{h_0}{y_M} \quad /1/$$

A nonlinearitás meghatározását gyakran nem a teljes $y = f/x$ függvény folyamatos felvételével, hanem a függvény egyes diszkrét pontjainak meghatározásával végzik, aminek egyes esetekben mérés-technikai, más esetekben elvi okai vannak. Alábbi vizsgálatainknál is ezt az esetet tárgyaljuk.

Az egzakt szerkesztési eljárás elve

Az edigi szerkesztési eljárásoknál az f/x függvény diszkrét pontjait ábrázolták /lásd az 1/b. ábrát/ és ezekre kellett illeszteni egy



1/b ábra

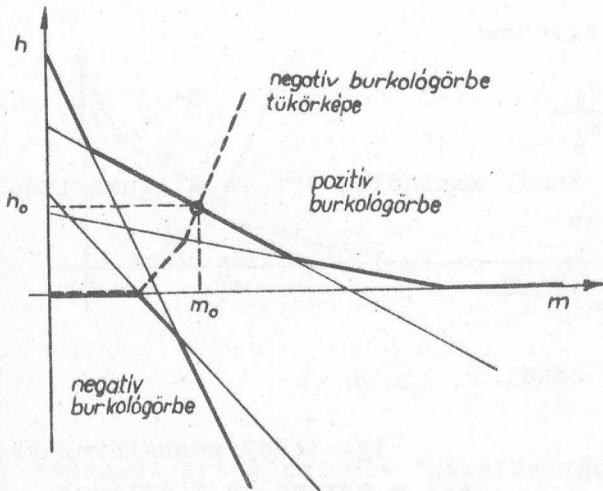
olyan egyenest, melynek meredeksége a nonlinearitás meghatározásának megfelelő meredekségű. Itt a probléma abban van, hogy az m_0 meredekség értéke, melynél a linearitási sáv a legkisebb lesz, előre nem ismert, és így többszöri próbálgatás szükséges.

Kiséreljük meg először ennek meghatározását, feltételezve, hogy mérési eredményeink diszkrét x_i, y_i értékpárok formájában állnak rendelkezésre. Legyen a meredekség értéke m , úgy egyetlen mérési pont "hibája", azaz eltérése a lineáris függvény által megszabott értéktől

$$h_i = y_i - mx_i \quad /2/$$

lesz.

Ábrázolva h_i -t m függvényében valamennyi mérési pontra, megkapjuk a 2. ábrán látható diagrammot, ahol tetszőleges m értéknél huzott függőleges kimetszi az egyes mérési pontokhoz tartozó "hibát" az illető meredekség választása mellett. Az m tengely feletti és alatti egyenes szakaszok burkológörbéje a maximális pozitív, ill. negatív "hibák"



2. ábra

szolgáltatja. Ilyen módon eljutottunk az integrális nonlinearitás próbálgatás-mentes egzakt meghatározásához, és az y_M ismeretében most már az /1/ egyenletnek megfelelően számítható.

Néhány speciális szempont

Gyakorlati esetek jelentős részében néhány százalékos vagy még kisebb nonlinearitások igen pontos meghatározása szükséges. Ezzel egyidejűleg a várható, m_0 és a maximális $h_0 = h_M$ közelítő értéke előre ismert. Ez a helyzet általában azonos típusú berendezések sorozatban való vizsgálata esetén. A nagypontosságú szerkesztés érdekében ilyenkor a következő módon járhatunk el a rendelkezésre álló - gyakorlatban korlátozott - felület optimális kihasználása céljából.

A h tengely rendelkezésre álló szakaszát úgy osztjuk be, hogy h_M értéke még éppen ábrázolható legyen, míg az m tengelyre vonatkozólag a következő megfontolásokat tesszük:

- 1/ m_0 várható értéke lehetőleg a rendelkezésre álló tengelyszakasz közepére kerüljön.
- 2/ Valamennyi $/ x_1 y_1 /$ mérési adatpárhoz tartozó egyenes metszéspontja az m tengellyel ábrázolható legyen a rendelkezésre álló tengelyszakaszon.

Az 1. pontot a közelítőleg várható m_0 érték ismeretében elégítjük ki, míg a 2. pontot a következő megfontolás segítségével.

értékét adja különböző m értékek választása esetén. A negatív burkológörbét tükrözve az m tengelyre a különböző előjelű hibák abszolút értékét kapjuk. Mivel a két burkológörbe folyamatos és monoton csökkenő, ill. növekvő, könnyen belátható, hogy a maximális hibák minimumát, azaz a nonlinearitás meghatározásához szükséges h_0 értéket a két burkológörbe metszéspontjában kapjuk, míg a metszéspont másik koordinátája az ismeretlen m_0 meredekséget

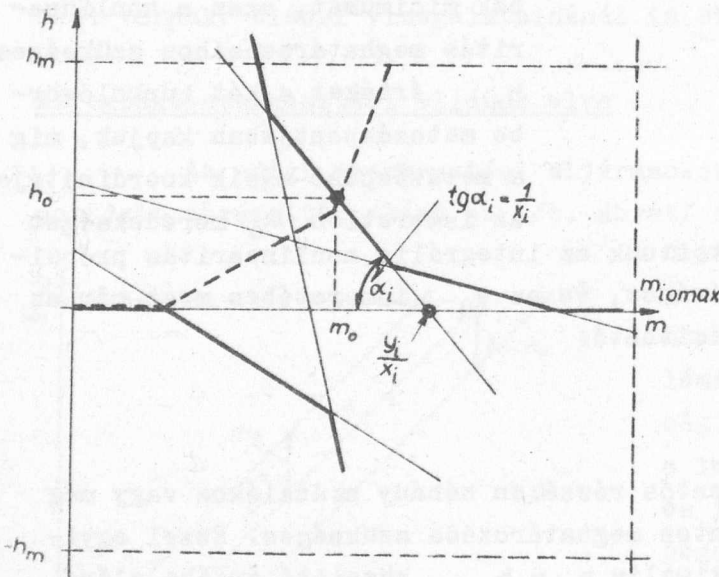
Az i -edik mérési adatpárhoz tartozó egyenes

$$m_{i0} = \frac{y_i}{x_i} \quad / 3 /$$

ponton fogja az m tengelyt metszeni. Ennek maximális értéke a linearitási sávon belüli várható adatokkal számolva

$$m_{i0max} = m_0 + \frac{h_M}{x_1} \quad / 4 /$$

ahol x_1 a legkisebb értékű az x_i -k közül.



3. ábra

Igy tehát meghatároztuk azt a maximális m értéket, melynek még ábrázolhatónak kell lenni. A szerkesztést most úgy végezzük el, hogy az m tengely y_i/x_i pontjain átmenő $1/x_i$ meredekségű egyeneseket húzunk, és ezekkel végezzük el az előzőekben leírt műveleteket /lásd a 3. ábrát/.

Egyes esetekben az integrális nonlinearitás kiértékelésénél az $y = m x + b$ alakú függvénytől való eltérés meghatározására tö-

rekszünk, ahol b értéke ismert.

Igy a mérési pontok "hibája"

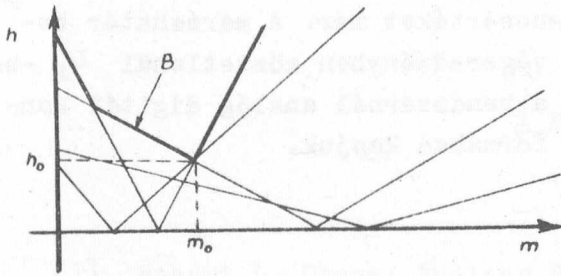
$$h_i = y_i - /mx_i + b/ \quad / 5 /$$

lesz.

Könnyen belátható, hogy valamennyi eddigi megfontolásunk továbbra is érvényes marad, csupán y_i helyett $|y_i - b|$ -vel kell számolni.

A kiértékelési eljárás implementálása analóg célkészülékkel

Olyan esetekben, mikor nagyszámu hasonló berendezésnél kell a nonlinearitást meghatározni - például sorozatgyártás esetén -, érdemes lehet a kiértékelési eljárást célkészülékre bízni.



4. ábra

Az alábbiakban ezért röviden utalunk az implementálás lehetőségére. Célszerű figyelembe venni a következő megfontolásokat.

1/ Az ismertett szerkesztési eljárással azonos eredményre jutunk, ha a

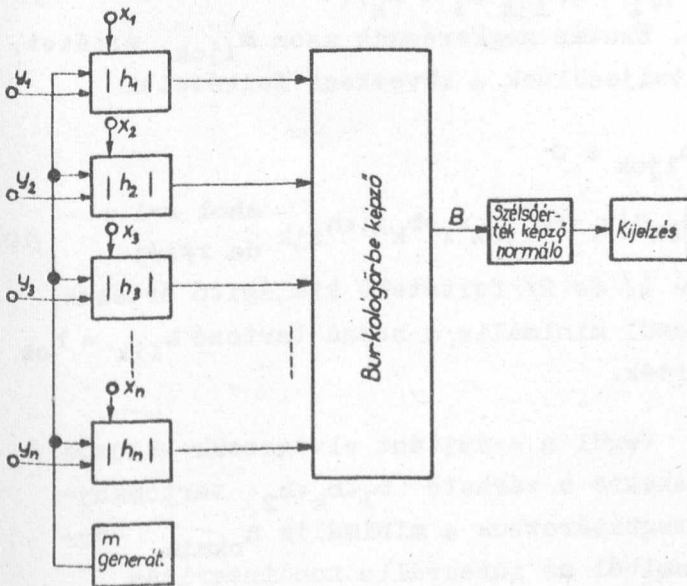
$$h_i = |y_i - mx_i|$$

16 /

abszolút értékben vett "hibafüggvényeket" ábrázoljuk, majd ezek burkológörbéjének képezzük a minimumát /lásd a 4. ábrát/.

2/ A hasonló rendszerek sorozatban történő vizsgálata miatt h_M és $m_{i\text{omax}}$ értéke ismert.

A kiértékelő berendezés egy lehetséges változatának bloksémája látható az 5. ábrán, mely n mérési pontra vonatkozó kiértékelést végez el.



4. ábra

A $|h_i|$ -kel jelölt blokkok az egyes mérési pontokra állítják elő a /6/ egyenletnek megfelelő görbét. x_i , a mérési hely és y_i , a mért érték beállítandók, és az "m-generátor" szolgáltatja a bemenőjelet, melynek amplitúdója $m_{i\text{omax}}$ értékű. Ezen egységek realizálhatók például hosszufarkú párhelyes kapcsolással, melynek szimmetrikus kimeneteit logikai "vagy" kapcsolathoz hasonlóan kapcsoljuk össze diódákkal. Az y_i értéke a kollektorfeszültséggel, míg x_i értéke például a kollektorellenállással állítható be, míg az m-generátor periódikus

fűrészfél-generátor lehet. A burkológörbe képző lényegében olyan diódás hálózat, amely mindig a maximális értékkel jelentkező bemenőjelet adja a kimenetre, ahol a B burkológörbét kapjuk. A szélsőérték-képző és normáló állítja elő az

$$L_i = \frac{\min B}{Y_M}$$

17 /

értéket. Ez legegyszerűbb esetben csucsegyenirányítós feszültségmérő lehet, mely $/h_m - \min B/$ impulzuscsúcserőleértéket mér. A mérés határ beállítása meghatározza y_M értékét, és végeredményben közvetlenül L_1 -ben lehet a kijelzőt skálázni. Alkalmazható a rendszernél analóg digitál konverter is és így az eredményt digitális formában kapjuk.

Kiértékelés digitális számítógéppel

Végül célszerű megvizsgálni, hogy eddigi megfontolásaink hogyan programozhatók digitális számítógépre.

Ez a kérdés különösen olyan esetekben lényeges, mikor b értéke sem ismert. Ilyenkor a következő megfontolásokból indulhatunk ki. Adottnak feltételezett b_k esetén h_0 értéke biztosan két $h_1/m/$ függvény metszéspontján lesz.

Meghatározandók tehát először páronként valamennyi

$$|y_i - /m_{ijk} x_i + b_k/| = |y_j - /m_{ijk} x_j + b_k/| \quad /8/$$

egyenlet gyökei $i=1...n, j=1...n \ i \neq j$ feltétel mellett, valamint a

$$h_{ijk} = |y_i - /m_{ijk} x_i + b_k/| \quad /9/$$

értékek. Ezután megkeressük azon m_{ijk} értéket, melyre teljesülnek a következő feltételek

$$1/ \ m_{ijk} \geq 0$$

$$2/ \ h_{rk} = |y_r - /m_{ijk} x_r + b_k/| \leq h_{ijk} \quad \text{ahol } r=1... \quad /10/$$

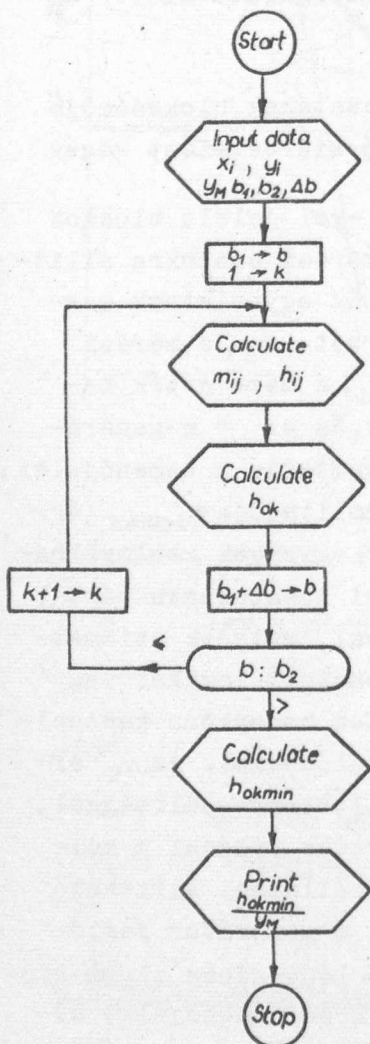
de $r \neq i, j$

3/ Az 1/ és 2/ feltételt kielégítő értékek közül minimális a hozzá tartozó $h_{ijk} = h_{ok}$ érték.

Végül a számítást elvégezzük különböző b_k értékekre a várható $b_1 < b_k < b_2$ tartományban, és meghatározzuk a minimális h_{okmin} értéket, amiből az integrális nonlinearitás

$$L_1 = \pm \frac{h_{okmin}}{y_M} \quad /11/$$

lesz. A flow diagrammot a 6. ábra mutatja.



6. ábra

I r o d a l o m

- [1] Robert L. Chase: Nuclear Pulse Spectrometry /McGraw-Hill 1961/
- [2] Prof.Dr.Ewald Fünfer, Prof.Dr.Hugo Neuert: Zählröhre und Szintillationszähler. / Verlag G.Braun Karlsruhe 1959/
- [3] Маталин, Л.А., Чубаров, С.И., Иванов, А.А.: Многоканальные анализаторы ядерной физики , Атомиздат, Москва 1967

Érkezett: 1968. máj. 15.

KFKI Közl. 16.évf. 4.szám, 1968.

**SZÁMOLÓGÉP-PROGRAM POLIKRISTÁLYOS
ANYAGOK RÖNTGEN-DIFFRAKCIÓS KÉPÉNEK
KIÉRTÉKELÉSE
(ILU 7 VONALPROFIL-ANALIZIS)**

Irta: Ungár Tamás

Összefoglalás

Harrison az utóbbi időben megmutatta, hogy a Bragg-reflexió intenzitásának Fourier-sorba fejtésével a kristályban lévő mikrodeformációk eloszlása meghatározható. A jelen munka a fenti gondolatot továbbfejlesztette a deformáció-és szemcseméret-eloszlás egyidejű meghatározására.

1. Bevezetés

Pólikristályos anyagok röntgen-diffrakciós vizsgálatáról Warren [1] kitűnő áttekintést adott a "Progress in Metal Physics" c. sorozat 8. kötetében. Warren ebben a dolgozatában megmutatta, hogy a Bragg-reflexiók intenzitás-eloszlásában jelentkező másodrendű effektusok, mint pl. a vonalszélesedés, az intenzitás-eloszlások aszimmetriái, vagy egészen kis csúcstolódások, hogyan fejezhetők ki a kristály reális szerkezetére jellemző különböző paraméterekkel: 1 a koherens szemcsemérettel, (2) bizonyos mikrodeformációkkal, (3) rétegződési hibák sűrűségével, stb. A módszer lényege abban áll, hogy a Bragg-reflexiók pontosan ismert intenzitáseloszlását Fourier-sorba fejtve, a Fourier-együtthatók összefüggésbe hozhatók az előbb felsorolt paraméterekkel.

Az utóbbi időben Harrison [2] megmutatta, hogyan lehet a Fourier-együtthatók sorbafejtésével meghatározni a kristályban lévő mikrodeformációk eloszlását. Harrison módszerében feltételezte, hogy az un. szemcseméret-és deformációs együtthatókat /1. 2. részt/ már sikerül valamilyen más módon szétválasztani. A szerző [3], Harrison eljárását továbbfejlesztve kimutatta, hogy a deformációeloszlás meghatározása és a szemcseméret-és deformációs együtthatók szétválasztása egyszerre elvégezhető.

*/ Eötvös Lóránd Tudomány Egyetem, Kisérleti Fizikai Tanszék.

A Warren által kidolgozott, majd Harrison és a szerző által továbbfejlesztett vonalprofil-analízis előnyösen alkalmazható deformált fémek és bizonyos, speciális fázisátalakulások vizsgálatára. A módszer gyakorlati megvalósítása olyan sok numerikus számolási munkát követel, amelynek elvégzése rutinszerű vizsgálatok esetén reménytelen feladat lenne. Ezért lényegében az egész számolási feladat elvégzésére számológép programot készítettünk ICT ALGOL nyelven, amely egy átlagos mérési sorozat kiértékelését 20-30 másodperc alatt végzi el.

A következőkben megadjuk a vonalprofil-analízis módszerének rövid áttekintését és az "ILU7 VONALPROFIL-ANALIZIS" nevű ICT ALGOL program leírását.

2. A vonalprofil-analízis módszerének rövid áttekintése

Warren [1] jelöléseit használva írjuk fel valamilyen polikristályos anyagról szórt röntgensugárzás intenzitáseloszlását, egyelőre csak a 001 reflexióra szorítkozva

$$P / \theta / = K / \theta / N \{ A_n \cos 2 n (h_3 - 1) + B_n \sin 2 n (h_3 - 1) \} , \quad /1/$$

ahol $K / \theta /$ lassan változó függvénye θ -nak, a diffrakció szögének, N az elemi cellák átlagos száma a koherensen szóró tartományokban, $h_3 - 1 = 2a(\sin\theta - \sin\theta_0)/\lambda$, θ_0 az adott reflexióhoz tartozó Bragg-szög, a az un. effektív cellaméret a 001 irányban, $a = \lambda d$, ahol d a hálózati síkok távolsága ugyancsak a 001 irányban és λ a röntgensugárzás hullámhossza. Kőbös kristályra az A_n és B_n Fourier-együtthatókat a következő alakban írhatjuk

$$A_n = N_n / N \langle \cos 2nLh_0 e_L / a \rangle \text{ átl.} \quad /2/$$

$$B_n = N_n / N \langle \sin 2nLh_0 e_L / a \rangle \text{ átl.} \quad /3/$$

ahol N_n az adott krisztallográfiai irányban n számú elemi cellát tartalmazó koherens tartományok átlagos száma, és az e_L mikrodeformációkat a következőképpen definiáljuk

$$e_L = (\bar{L} - L) / \bar{L} \quad . \quad /4/$$

A /2-3/ és /4/ egyenletekben L és \bar{L} átlagolási távolságokat jelentenek a reális és az ideális /deformációmentes/ kristályban és kőbös kristályra $h_0^2 = h^2 + k^2 + l^2$. Rugalmasan izotróp, kőbös kristály esetén a /2/ és /3/ kifejezések az összes hkl reflexiókra érvényesek, ha azonban a kristály rugalmasan anizotróp, akkor a deformációeloszlás a különböző krisztallográfiai irányokban más és más lesz, amit a /2/ és /3/ egyenletekben figyelembe kell venni. Meg kell jegyezni, hogy a megszorítás, mely

szerint az /1/ egyenletet valamilyen kristály 001 reflexiójára irtuk fel, nem lényeges, és Stokes és Wilson [4] és Warren [5] megmutatták, hogy ez a megszorítás nem változtat a végső eredmények teljes általánosságán.

Az A_n és B_n Fourier-együtthatókat felbonthatjuk szemcseméret, A_n^S és deformációs, A_n^D együtthatók szorzatára, ahol

$$A_n^S = N_n / N \quad , \quad B_n^S = N_n / N \quad /5/$$

$$A_n^D = \langle \cos 2\pi L h_0 e_L / a \rangle \quad , \quad B_n^D = - \langle \sin 2\pi L h_0 e_L / a \rangle \quad /6/$$

A szemcseméret-és a deformációs együtthatók szétválasztását a következőképpen végezhetjük el /3/. Kobe [6] nyomán fejtjük sorba a /2/ és /3/ egyenletek jobb oldalát. Ha a Fourier-együtthatók rendjéről áttérünk az L koherenciahossz szerinti jelölésre, melyről az /1/ és /2/ egyenleteket összevetve könnyen belátható, hogy az éppen effektív cellaméret és a Fourier-együtthatók rendjének a szorzata $L = na$, a következő egyenleteket kapjuk

$$A_L = A_L^S - \frac{1}{2!} (2\pi L h_0 / a)^2 A_L^S \langle e_L^2 \rangle + \frac{1}{4!} (2\pi L h_0 / a)^4 A_L^S \langle e_L^4 \rangle + \dots \quad /7/$$

$$B_L = - (2\pi L h_0 / a) A_L^S \langle e_L \rangle + \frac{1}{3!} (2\pi L h_0 / a)^3 A_L^S \langle e_L^3 \rangle + \dots \quad /8/$$

ahol $\langle e_L^n \rangle$ a deformációeloszlás n -ik momentuma, L távolságra átlagolva.

Ha több, mondjuk m számú reflexió intenzitáseloszlását meg tudjuk mérni, akkor a /7/ és /8/ egyenleteket az összes reflexiókra felírva két lineáris egyenletrendszert kapunk a páros és a páratlan deformációs momentumokra, a következő normálási feltétellel

$$\langle e_L^0 \rangle = 1 \quad /9/$$

A /9/ normálási feltétel azt jelenti, hogy a /7/ egyenletrendszerből kapott, nem normált, nulladik deformációs momentum azonos az A_L^S szemcseméret-együtthatóval.

A $p/L/$ szemcseméreteloszlást Bertaut [7] nyomán a szemcseméret-együtthatók L szerinti második differenciahányadosából kaphatjuk meg, amely a következő alakban írható

$$p/L/ = (2A_L^S - A_{L+a}^S - A_{L-a}^S) / (A_0^S - A_a^S) \quad , \quad /10/$$

ahol a az effektív cellaméret és egyben a koherenciahossz lépésköze.

Ha csak két reflexiót mérünk, akkor a fenti algoritmus a szemcseméret-és deformációs együtthatók szétválasztására azonos Warren [1] módszerével.

A következőkben megadjuk a fentiekben vázolt vonalprofil-analízishez készített számológép-program leírását, amely végső soron meghatározza az $\langle e_L^n \rangle$ deformációs momentumokat a koherenciahossz függvényében és az A_L^S szemcseméret-együtthatókat, ill. a p/L szemcseméret-eloszlást.

3. Az "ILU7 VONALPROFIL-ANALIZIS" nevű számológép program leírása

Az előző részben vázolt vonalprofil-analízis alapján számológép-programot készítettünk ICT ALGOL programozási nyelven. A programot eljárásokból építettük fel, ahol az egyes eljárások egy-egy zárt algoritmust hajtanak végre. A program utolsó része, amely az eljárások deklarációja után következik, az eljárások aktivizálásából, a számolás szervezéséből és a nyomtatási kép kialakításából áll. A következőkben megadjuk az egyes eljárások és a program utolsó, szervező részének részletes leírását.

3.1 A "HÁTTÉRKORR" eljárás

Amennyiben az egyes reflexiók intenzitáseloszlásának mérése rögzített beütésszám mellett történt, az eljárás kiszámítja a mért időértékek reciprokát. Ebben az esetben a REC nevű bemenő paraméter értéke 1 kell, hogy legyen. A továbbiakban az eljárás a mért intenzitásértékekből lineáris interpolációval levonja a háttérintenzitásokat. Ha a mérési pontok száma egyetlen profilra $2N+1$ és $Y/0$ ill. $Y/N1$ /az egyes mérési intervallumok kezdő, ill. végpontjaiban mért intenzitásértékek, akkor a háttérintenzitás levonása a következő egyenlet szerint történik

$$Y /i/ = Y /i/ - (1 - k) Y /0/ - k Y /N1/ \quad , \quad /11/$$

ahol $i = 0, 1, 2, \dots, 2N$, $k = i / N1$ és az egyenlet baloldalán a háttér nélküli intenzitásértékek állnak.

3.2 A "LOPOSU" eljárás

A "LOPOSU" nevű eljárás a /11/ egyenlet baloldalán álló intenzitásértékeket korrigálja Rachinger [8] korrekciós formulája szerint, amely a Lorentz-féle polarizációs faktor és az atomszórás tényezők négyzetének szorzata. A Lorentz-féle polarizációs faktort átalakíthatjuk a következő módon

$$\frac{1 + \cos^2 2\theta}{\sin^2 \theta} = \frac{1 + (1 - \sin^2 \theta)^2}{\sin^2 \theta} \quad /12/$$

A program jelölései szerint $t = \sin \theta$ és K_1 a Lorentz-féle polarizációs faktor

$$K_1 = [1 + (1 - 2t^2)^2] / t^2 \quad /13/$$

A Rächinger-korrekciónak így a következő alakban írható

$$Y / i / = Y / i / / K_1 f / i /^2 \quad /14/$$

ahol a baloldalon a korrigált intenzitásértékek állnak, és $f / i /$ -vel jelöltük az atomszórás tényezőket, amelyeket az eljárás egy előre megadott táblázatból, lineáris interpolációval határoz meg. Ezek után kerül sor a

$K\alpha_1$ vonal súlypontjának meghatározására $\sin \theta$ skálában /1.a 3.3 részt/.

Legyen valamely reflexió mérési intervallumának két végpontja θ_0 és θ_N , és a mérési pontok száma $2N + 1$, akkor a skála lépésköze

$$\Delta \theta = (\theta_N - \theta_0) / 2N \quad /15/$$

A mért profil súlypontja $\sin \theta$ skálában a következőképpen írható

$$\begin{aligned} SP' = \langle \sin \theta \rangle &= \frac{\int Y(\sin \theta) \sin \theta d(\sin \theta)}{\int Y(\sin \theta) d(\sin \theta)} \\ &= \frac{\int Y(\theta) \sin \theta \cos \theta d\theta}{\int Y(\theta) \cos \theta d\theta} \end{aligned}$$

Az integrálokat összegekkel helyettesítve

$$SP' = \frac{\sum_1 Y / i / \sin(\theta_0 + i\Delta\theta) \cos / \theta_0 + i\Delta\theta /}{\sum_1 Y / i / \cos / \theta_0 + i\Delta\theta /} \quad /16/$$

A $K\alpha_1$ vonal súlypontját SP' -ből a következőképpen határozhatjuk meg. Írjuk fel a Bragg-egyenletet a $K\alpha_1$ és $K\alpha_2$ reflexiókra

$$\lambda_1 = 2d \sin \theta_1$$

$$\lambda_2 = 2d \sin \theta_2$$

A $K\alpha_1$ és $K\alpha_2$ vonalak súlypontjainak különbségét a következő kifejezés adja meg

$$\Delta(\sin \theta)_{SP} = \frac{\lambda_2 - \lambda_1}{2d} = \frac{\Delta \lambda}{2d} \quad /17/$$

Az SP' közös súlypontra igaz a következő egyenlet

$$\bar{\lambda} = 2d SP' \quad ,$$

ahol

$$\bar{\lambda} = (2\lambda_1 + \lambda_2) / 3 .$$

Felhasználva, hogy a $K\alpha_1$ és $K\alpha_2$ vonalak intenzitásaránya 2 : 1, a $K\alpha_1$ vonal súlypontjára Zsoldos [9] nyomán a következőt kapjuk

$$SP = SP' (1 - \Delta\lambda/3\bar{\lambda}) \quad /18/$$

A program jelöléseit használva

$$SP' = A / B ,$$

$$SPK = 1 - \Delta\lambda/3\bar{\lambda} \quad \text{és} \quad /19/$$

$$SP = SPK A / B$$

A /19/ egyenletekből látható, hogy az SPK súlypontkorrekció független a diffrakció szögétől és ezért adott sugárzáshoz egyszer és mindenkorra megadható.

3.3 A "SINETLIN" eljárás

A Bragg-egyenlet alapján könnyen belátható, hogy a reciprok tér természetes koordinátája $\sin\theta / \lambda$. Ezért rögzített λ mellett a θ skála egyenletes lépéseiben mért intenzitásértékeket áttranszformáljuk $\sin\theta$ szerint egyenletes lépésekben haladó sorozattá. Az eljárás a következő algoritmus szerint viszi át a θ szerint lineáris skálát $\sin\theta$ szerint lineáris skálába.

1. Az egyes reflexiók intenzitáseloszlását ugyanabban a $\sin\theta$ intervallumban kell sorbafejteni /1. az /1/ egyenletet/, ami azt jelenti, hogy minden reflexiót a reciprok tér ugyanakkorra tartományában tekintünk zérustól különböző intenzitásúnak. Ezért előre ki kell jelölnünk egy rögzített $\sin\theta$ intervallumot, a program jelöléseivel $D1$ -et, úgy, hogy az összes mért reflexiók mérési tartományainak megfelelő $\sin\theta$ intervallumok beleférjenek $D1$ -be, azaz

$$D1 \geq \sin\theta_N - \sin\theta_0 \quad /20/$$

az összes mért reflexiókra.

2. Az eljárás kijelöl egy - az adott reflexió mérési intervallumánál háromszor nagyobb - intervallumot úgy, hogy a két intervallum középpontja egybeessen. Vesszővel jelölve a háromszor nagyobb intervallum osztópontjait, az eredeti és az új intervallumok végpontjai között a következő összefüggések állnak fenn

$$\begin{aligned} \theta'_0 &= 2\theta_0 - \theta_N && \text{és} && /21/ \\ \theta'_N &= 2\theta_N - \theta_0 \end{aligned}$$

3. Ezek után az eljárás, $6N$ részre osztva a $[\theta'_0, \theta'_N]$ intervallumot $/2N+1$ a mérési pontok száma/, kiszámítja az egyes osztópontok szinuszáit.

4. SP -t választva a $D1$ intervallum középpontjául az eljárás rendre összehasonlítja a $D1$ intervallum egy-egy osztópontját $[\theta'_0, \theta'_N]$ intervallum osztópontjaival és a megfelelő mért intenzitásértékekből lineáris interpolációval kiszámítja a $\sin\theta$ -ban lineáris intenzitás értékeket

$$Y /i/' = Y /k/ R + Y /k-1/ (1-R) \quad , \quad /22/$$

ahol

$$R = \frac{\sin(\theta)_i - \sin(\theta'_{k-1})}{\sin(\theta'_k) - \sin(\theta'_{k-1})} \quad \text{és}$$

$$\sin(\theta'_{k-1}) < \sin(\theta)_i \leq \sin(\theta'_k) \quad /23/$$

$$\begin{aligned} i &= 0, 1, 2, \dots, 2N, \\ k &= 0, 1, 2, \dots, 6N \end{aligned}$$

3.4 A "FOURIER" eljártás

A Fourier-eljárás egyrészt meghatározza az intenzitáseloszlások Fourier-együtthatóit, másrészt szétválasztja a $K\alpha_1$ és $K\alpha_2$ reflexiókat, végül elvégzi az un. Stokes [10] korrekciót. Az eljárás végén az ABFO nevű tömbben megkapjuk az egyes reflexiók $K\alpha_1$ részének valós $/\cos/$ és képzetes $/\sin/$ Fourier-együtthatóit.

3.4.1 A Fourier-együtthatók kiszámítása Goertzel [11] rekurziós módszere alapján

Jelöljük a mért intenzitásértékeket Y_n -el, és írjuk fel a következő Fourier-sort

$$Y_n = \frac{1}{2} a_0 + \sum_{p=1}^N \left[a_p \cos \frac{2\pi np}{2N+1} + b_p \sin \frac{2\pi np}{2N+1} \right] \quad /24/$$

$$n = 0, 1, 2, \dots, 2N \quad ,$$

ahol az a_p és b_p Fourier-együtthatókat a következő egyenletek definiálják

$$a_p = \frac{2}{2N+1} \sum_{n=0}^N Y_n \cos \frac{2\pi np}{2N+1} \quad \text{és} \quad /25/$$

$$b_p = \frac{2}{2N+1} \sum_{n=1}^N Y_n \sin \frac{2\pi np}{2N+1} \quad . \quad /26/$$

Vezessük be az $U_{n,p}$ számokat a következő definíció alapján

$$U_{n+1,p} \sin x = \sum_{j=n+1}^{2N} Y_j \sin /j-n/ x \quad , \quad /27/$$

ahol

$$x = 2\pi p / (2N+1) \quad .$$

A /27/ egyenletből a következő rekurziós egyenletet vezethetjük le

$$U_{n,p} \sin x = (Y_n + 2\cos x U_{n+1} - U_{n+2}) \sin x \quad ,$$

ahonnan

$$U_{n,p} = Y_n + 2\cos x U_{n+1,p} - U_{n+2,p} \quad /28/$$

és

$$U_{2N+2,p} = U_{2N+1,p} = 0$$

A /27/ és /28/ kifejezésekbe $n=0$ -t helyettesítve a Fourier-együtthatókra a következő egyenleteket kapjuk

$$a_p = \frac{2}{2N+1} /Y_0 + U_{1,p} \cos \frac{2\pi p}{2N+1} - U_{2,p}/ \quad /29/$$

és

$$b_p = \frac{2}{2N+1} U_{1,p} \sin \frac{2\pi p}{2N+1} \quad . \quad /30/$$

$U_{1,p}$ -t és $U_{2,p}$ -t az eljárás a /28/ rekurziós képlet alapján számítja ki. A /29/ és /30/ egyenletekben szereplő trigonometrikus függvények kiszámítása a következő rekurziós képletek alapján történik

$$\cos [(p+1) x] = \cos(px) \cos x - \sin(px) \sin x \quad , \quad /31/$$

$$\sin [(p+1) x] = \sin(px) \cos x - \cos(px) \sin x \quad , \quad /32/$$

ahol $x = 2\pi / (2N+1)$. Itt jegyezzük meg, hogy valahányszor a számolás során hasonló, egyenletes lépésekben változó trigonometrikus függvényérték-sorozatot kellett kiszámítanunk, mindig felhasználtuk a /31/ és /32/ rekurziós formulákat.

3.4.2 A K_{α_1} és K_{α_2} vonalak szétválasztása

Varga László [12] javaslata alapján, ahelyett, hogy meghatároznánk a K_{α_1} vonal intenzitáseloszlását, közvetlenül a K_{α_1} vonal Fourier-együtthatóit számítjuk ki, ezzel elkerülve a lineáris interpolációval járó számolási hibákat.

Írjuk a mért profilok Fourier-együtthatóit a következő alakba

$$a_p = \frac{2}{t_N - t_0} \int_{t_0}^{t_N} Y / t / \cos / 2\pi p \frac{t}{Dl} / dt \quad /33/$$

ahol $Y/t/$ a mért intenzitáseloszlás, Dl az előre rögzített $\sin\theta$ intervallum $/l., 3.3$ részt/, $t = \sin\theta$. A b_p képzetes Fourier-együttható alakja, /33/-ből egyértelműen látható. Legyen Y_1 és Y_2 a $K\alpha_1$ és $K\alpha_2$ vonalak intenzitáseloszlása, és tételezzük fel, hogy igazak a következő összefüggések

$$Y / t / = Y_1 / t / + Y_2 / t / \quad /34/$$

$$Y_1 / t / = 2Y_2 / t + \Delta t / \quad , \quad \text{és} \quad /35/$$

ahol Δt a $K\alpha_1$ és $K\alpha_2$ vonalak távolsága. /34/ és /35/-ből a következőt kapjuk

$$Y / t / = Y_1 / t / + \frac{1}{2} Y_1 / t - \Delta t / \quad . \quad /36/$$

A /36/ egyenletet /33/-ba helyettesítve a következő kifejezéshez jutunk

$$a_p = a'_p \left[1 + \frac{1}{2} \cos 2\pi p \frac{\Delta t}{Dl} \right] - \frac{1}{2} b'_p \sin \left(2\pi p \frac{\Delta t}{Dl} \right) \quad , \quad /37/$$

ahol a'_p a $K\alpha_1$ vonal valós $/\cos/$ Fourier-együtthatója. A mért profil b_p képzetes Fourier-együtthatójára a /37/ egyenlethez teljesen hasonló kifejezést kapunk, amely /37/-tel együtt egyenletrendszert ad a $K\alpha_1$ vonal Fourier-együtthatóira. Ezt az egyenletrendszert megoldva, a $K\alpha_1$ vonal Fourier-együtthatóira a következő kifejezéseket kapjuk

$$a'_p = \frac{1}{\text{Det}} \left\{ a_p \left[1 + \frac{1}{2} \cos \left(2\pi p \frac{\Delta t}{Dl} \right) \right] + \frac{1}{2} b_p \sin \left(2\pi p \frac{\Delta t}{Dl} \right) \right\} \quad /38/$$

$$b'_p = \frac{1}{\text{Det}} \left\{ b_p \left[1 + \frac{1}{2} \cos \left(2\pi p \frac{\Delta t}{Dl} \right) \right] - \frac{1}{2} a_p \sin \left(2\pi p \frac{\Delta t}{Dl} \right) \right\} \quad , \quad /39/$$

ahol

$$\text{Det} = \left[1 + \frac{1}{2} \cos \left(2\pi p \frac{\Delta t}{Dl} \right) \right]^2 - \frac{1}{4} \sin^2 \left(2\pi p \frac{\Delta t}{Dl} \right) \quad . \quad /40/$$

Az eljárás a /38/ és /39/ képletek alapján végzi el a $K\alpha_1$ és $K\alpha_2$ vonalak szétválasztását.

3.4.3 A Stokes [10] korrekció

Az instrumentális és fizikai profilok Fourier-együtthatóit felhasználva az eljárás elvégzi az un. Stokes [10] korrekciót és megadja a

"valódi" fizikai profil Fourier-együtthatóit. Ha $H_r/n/$ ill. $H_i/n/$ -nel jelöljük a mért reflexiók és $G_r/n/$ ill. $G_i/n/$ -nel az instrumentális profilok Fourier-együtthatóit, akkor a "valódi" fizikai profilok Fourier-együtthatóit a következő képletek adják meg

$$A_n = \frac{H_r/n/ G_r/n/ + H_i/n/ G_i/n/}{G_r/n/^2 + G_i/n/^2} \quad /41/$$

$$B_n = \frac{H_i/n/ G_r/n/ - H_r/n/ G_i/n/}{G_r/n/^2 + G_i/n/^2} \quad /42/$$

Ha az "SPNE" nevű bemenő paraméter értéke egytől különböző, akkor az eljárás a G_i és G_r instrumentális Fourier-együtthatókat lineáris interpolációval határozza meg a megfelelő fizikai profilok szögtartományában. Ennek a lehetőségnek elsősorban akkor van jelentősége, ha az instrumentális és fizikai profilok nem ugyanannak az anyagnak a reflexiói.

3.5 A "SZEMCSEMSZETV" eljárás

Az eddig leírt eljárások megadják a különböző korrekciókkal korrigált Ka_1 vonalak Fourier-együtthatóit. A következő eljárások ezekből a Fourier-együtthatókból meghatározzák a deformációs momentumokat /1. a /7/ és /8/ egyenleteket/ és a szemcseméret-együtthatókat, ill. a szemcseméret-eloszlást.

Ha m számú különböző reflexiót mérünk, akkor a /7/ és /8/ egyenleteket egy-egy reflexióra felírva, egy-egy m -ed rendű egyenletrendszerhez jutunk, ha csak a sorfejtésben elhanyagoljuk a $2m-1$ -nél magasabb rendű tagokat. A /7/ és /8/ egyenletrendszerek együtthatómátrixai legyenek P_L és R_L . Jelöljük egy adott koherenciahosszhoz, de különböző reflexiókhoz tartozó valós és képzetes Fourier-együtthatókból alkotott vektorokat a_L és b_L -l

$$a_L = / A_L(h_o^{(1)}), A_L(h_o^{(2)}), \dots, A_L(h_o^{(m)}) / \quad /43/$$

$$b_L = / B_L(h_o^{(1)}), B_L(h_o^{(2)}), \dots, B_L(h_o^{(m)}) / \quad /44/$$

és a páros és páratlan deformációs momentumokból alkotott vektorokat E_e és E_o -val

$$E_e/L/ = / < e_L^0 >, < e_L^2 >, \dots, < e_L^{2/m-1} > / \quad /45/$$

$$E_o/L/ = / < e_L >, < e_L^3 >, \dots, < e_L^{2m-1} > / \quad /46/$$

A fenti jelölésekkel a /7/ és /8/ egyenletrendszereket a következő alakban írhatjuk [3]

$$a_L = A_L^S P_L E_e /L/ \quad , \quad /47/$$

$$b_L = A_L^S R_L E_o /L/ \quad . \quad /48/$$

Az eljárás a /47/ és /48/ egyenletek alapján a következő lépések szerint határozza meg a deformációs momentumokat és a szemcseméret-együtthatókat.

1. Az "AMTR" és "BMTR" tömbök helyén az eljárás kiszámítja a P_L és R_L együttható-mátrixokat.

2. Ezek után a "GJINV" mátrixinvertáló eljárás segítségével meghatározza az "AMTR" és "BMTR" mátrixok inverzét /l. 3.7 részt/.

3. Végül kiszámítja az a_L és /AMTR/⁻¹ ill. a b_L és /BMTR/⁻¹ vektorok és inverz mátrixok szorzatát. A szorzatvektorok első eleme az A_L^S szemcseméret-együttható, amellyel E_e -t és E_o -t végig osztva megkapjuk a deformációs momentumokat. Az eljárás a "DEMO" nevű tömbben megadja a deformációs momentumokat és az "AS1" nevű két indexes tömb első oszlopában a szemcseméret-együtthatókat.

3.6 A "DIFFERENCIA" eljárás

A szemcseméret-együtthatókat felhasználva, Bertaut /7/ képlete alapján /l. /10/ egyenletet/ az eljárás meghatározza a $p/L/$ szemcseméret-eloszlást, amely az "AS1" nevű kétindexes tömb második oszlopában jelenik meg.

3.7 A "GJINV" eljárás

Krammer Gergely [13] nyomán a program felhasználja a "GJINV" mátrixinvertáló eljárást, amely az eredeti mátrix helyén szolgáltatja a mátrix inverzét /l. KFKI Programkönyvtár/.

3.8 A "CURV" eljárás

Az eljárás külső /"external"/ eljárásként működik, ezért részletesen nem is deklaráltuk, megtalálható a "KFKI Programkönyvtár"-ban. A nyomtatási kép kialakításánál használtuk fel, a szemcseméret-együtthatók és a szemcseméret-eloszlás felrajzolásához.

4. A program szervezése

Az eddig leírt eljárások deklarációja után következik az adatok beolvasása, az eljárások aktivizálása és a program szervezése. A nyomtatási kép kialakítását és az eredmények kiíratását, eltekintve a deformációs momentumok nyomtatásától, a program az egyes eljárásokon kívül, a szervezési részben hajtja végre.

4.1 A bemenő adatok jelentése és beolvasási sorrendje

1. N $2N+1$ a mérési pontok száma egyetlen reflexió esetén.
 2. L1 Az instrumentális és fizikai profilok együttes száma egyetlen vonalprofil-analízis esetén.
 3. L2 Az instrumentális profilok száma.
 4. R2 $R2+1$ a táblázatosan beadott atomszórási tényezők száma /1. a /13/ bemenő adatot/.
 5. SPNE Ha $SPNE=1$, akkor a Stokes korrekcióhoz az instrumentális profilok Fourier-együtthatói között nem történik lineáris interpoláció. SPNE bármilyen más értéke mellett az állítás ellenkezője teljesül /1. 3.4.3 részt/.
 6. FN Ha $FN=1$, akkor nincs atomszórási tényezők szerinti korrekció, a Rachinger-korrekció azonos lesz a Lorentz-polarizációs korrekcióval /1. 3.2 részt/.
 7. $a_3 \times 10^4$ Effektiv cellaméret, $a_3 = \lambda / 2 D_1$ /1. 2. részt/.
 8. REC Ha $REC=1$, akkor a program meghatározza a mért időértékek reciprokát /rögzített beütésszám mérése esetén /1. 3.1 részt/.
 9. $DF \times 10^5$ Az atomszórási tényezők táblázatának /14/ lépésköze $\sin\theta$ -ban.
 10. $D_1 \times 10^5$ Előre rögzített $\sin\theta$ intervallum /1. 3.3 részt/.
 11. $SPK \times 10^5$ Súlypontkorrekció a K_{α_1} vonalra /1. 3.2 részt/
 $SPK = 1 - \Delta\lambda / 3\bar{\lambda}$.
-
12. HO h_o^2 értékek a fizikai profilokra $h_o^2 = h^2 + k^2 + l^2$,
/1. 4.4 részt/.

13. $F \times 10^2$ Atomszórási tényezők $F/O:R2/$. F -et kétszer kell beolvasni: 1. az adatszalag elején, 2. amikor az $R1 = L2$ -höz tartozó "TETN" értéke le van írva /1. 4.3 részt/. Az atomszórási tényezőkre vonatkozóan lásd a [14]-es irodalmi hivatkozást.
-
14. $R1$ A profilok sorszám. Instrumentális profilokra $R1 = 1, 2, \dots, L2$, fizikai profilokra $R1 = L2+1, L2+2, \dots, L1$ /1. 4.6 részt/.
15. NEEV Ezzel a négy karakterrel bezárólag tetszőleges szöveg szerepelhet az adatszalagon, mely az eredménylistán kimásolásra kerül. Akkor és csak akkor kell beolvasni, ha $R1 = L2 + 1$!
16. $Y /i/$ Intenzitásértékek, vagy fix beütéses mérés esetén a mért időértékek, tetszőleges relatív skálában.
17. $TETO \times 10^2$ A mérési intervallum kezdőpontja 2θ -ban.
19. $TETN \times 10^2$ A mérési intervallum végpontja 2θ -ban.

Az egyszerűbb gépelhetőség érdekében a /7/-ik paraméter valódi értékének 10^4 szeresét, a /9/, /10/ és /11/-ik paraméterek valódi értékének 10^5 szeresét és a /13/, /17/ és /18/-ik paraméterek valódi értékének 100-szorosát kell beolvasatni az adatszalagon.

4.2 Állandó bemenő adatok

Az első tizenegy /N SPK / bemenő adat értéke egyetlen vizsgált anyag vonalprofil-analizise közben nem változik, így egyetlen futtatás alkalmával csak egyszer kerülnek beolvasásra. Az egyetlen anyag itt azt jelenti, hogy az anyag kémiai és krisztallográfiai összetétele nem változik, természetesen valamilyen hőkezelésnek vagy deformációnak alávetett mintasorozat minden egyes tagja a vonalprofil-analízis szempontjából ugyanannak az anyagnak számít.

4.3 Az atomszórási tényezők / /13/-ik bemenő paraméter/ beolvasása

Az instrumentális profilok gyakran lehetnek a vizsgált anyagtól különböző anyag reflexiói, így a hozzájuk tartozó atomszórási tényezők is eltérhetnek a vizsgált anyag atomszórási tényezőitől. Az instrumentális

profilokat a megfelelő atomszórási tényezőkkel együtt csak egyszer kell beolvasatni. Az utolsó instrumentális profil R1 sorszáma hatására a szerkezeti tényezők még egyszer beolvasásra kerülnek. Ezek után ez a sorszám többször nem fordul elő, és így az atomszórási tényezőket nem kell többé bevinni.

Ha valamilyen ötvözet vagy vegyület vonalprofil-analizisét akarjuk elvégezni, akkor a megfelelő összetétel szerint súlyozott, átlagos atomszórási tényezőket kell beolvasatni.

4.4 A Miller-indexek négyzetösszegének / /12/-ik bemenő paraméter/ beolvasása

Ha különböző Miller-indexű minták vonalprofil-analizisét akarjuk végrehajtani ugyanazokkal az instrumentális profilokkal, akkor a Miller-indexek HO négyzetösszegeit és az F atomszórási tényezőket újra be kell olvasatni. Ezt úgy érhetjük el, hogy az előző vonalprofil-analizishez tartozó utolsó fizikai profil R1 sorszámát L1 -ről L1+1 -re változtatjuk. Ennek hatására HO és F újra beolvasásra kerülnek.

4.5 Változó bemenő adatok

A fennmaradó öt / R1 . . . TETN / paraméter, a /15/-ös NEEVKivé-
telével, minden egyes profilra jellemző, így minden egyes profillal együtt ciklikusan be kell olvasatni. A NEEV paraméter csak egy-egy vonalprofil-analizisre jellemző, ezért csak egy-egy új mintához tartozó profilsorozat előtt kell beolvasatni, akkor és csak akkor, ha $R1 = L2 + 1$.

4.6 A számolás befejezése

Az R1 sorszám révén minden egyes profil helye egyértelművé válik a számolás során. Ha valamely vonalprofil-analizis végén az utolsó profil sorszáma L1 /instrumentális és fizikai profilok együttes száma/, akkor a program visszatér abba az állapotba /a "START" címkére/, amelyből egy új fizikai profilsorozat beolvasása után egy újabb analízist tud végrehajtani. Ez azt jelenti, hogy újra be kell olvasatni a /14/ ... /18/ adatszoportokat, a fizikai reflexiók számának megfelelő sokszor. Mindezt annyiszor tehetjük, ahány mérési sorozatunk van a 4.2 értelemben ugyanarról az anyagról.

Ha ugyanazokkal az instrumentális profilokkal különböző minták vonalprofil-analizisét akarjuk elvégezni, akkor erre vonatkozóan l. a 4.4 részt.

A számolást úgy tudjuk befejezni, hogy az utolsó mérési sorozat végén, az utolsó fizikai profil sorszámaként L1 helyett L1+2 -ot olvas-
tatunk be.

4.7 Az eredmények kiíratása

A számolás eredményei "LINE PRINTER" listán, táblázatosan kerül-
nek kinyomtatásra, ahol az egyes táblázatokban összefoglalt számok jelen-
tését a táblázatok fejlécei adják meg.

Az 1-es, 2-es, 3-as és 4-es kapcsolók bekapcsolása révén lehető-
ség nyílik arra, hogy a nyomtatási képet szabadon megváltoztassuk, annak
megfelelően, hogy mennyire vagyunk kíváncsiak a számolás részleteredményei-
re. A kapcsolók hatása a következő.

1-es kapcsoló bekapcsolva

Kinyomtatásra kerülnek az egyes fizikai profilok valós /cos/és
képzetes /sin/, $K\alpha_1$ -re vonatkozó, korrigált Fourier-együtthatói,
az L koherenciahossz függvényében.

2-es kapcsoló bekapcsolva

Kinyomtatásra kerülnek az A_L^D és B_L^D / l. /6/ egyenletet/ de-
formációs Fourier-együtthatók az egyes fizikai profilokra, a
koherenciahossz függvényében.

3-as kapcsoló bekapcsolva

A "CURV" rajzoló eljárás /l. 3.8 részt/ a koherencia függvényé-
ben kirajzolja a szemcseméret-együtthatókat és a szemcseméret-
eloszlást.

4-es kapcsoló bekapcsolva

Kinyomtatásra kerülnek a szemcseméret-együtthatók és a szemcsemé-
ret-eloszlás diszkrét értékei.

A deformációs momentumok a kapcsolóktól függetlenül mindig ki-
nyomtatásra kerülnek, az L koherenciahossz függvényében sorokba és a mo-
mentumok rendje szerint oszlopokba rendezve.

Az itt leírt számológép-programmal végzett röntgenmérés-kiérté-
kelésekről a későbbiekben szeretnénk beszámolni.

Az "ILU7 VONALPROFIL ANALIZIS" program bárkinek rendelkezésére áll, vagy a "KFKI Programkönyvtár"-ban, vagy a szerzőnél.

Itt szeretnék köszönetet mondani Ivanyos Lajosnének és Kramer Gergelynek, akik állandó segítséget nyújtottak a programozásnál és Dr. Zsoldos Lehelnek, aki a vonalprofil-analízis elvi kérdéseinek a tisztázásában nyújtott segítséget. Köszönetemet szeretném kifejezni Sőtér Máriának, akinek fáradhatatlan segítsége nélkül a program el sem készíthetett volna.

I r o d a l o m

- [1] Warren, B.E.: X-Ray Study of Deformed Metals, Progress in Metal Physics, 8, 147, Ed. by B. Chalmers, Pergamon Press 1959.
- [2] Harrison, J.W.: Acta Cryst. 20, 390 /1966/
- [3] Ungár T.: Acta Cryst. 23, 174 /1967/
- [4] Stokes, A.R., Wilson, A.J.C.: Proc. Camb. Soc. 40, 197 /1943/
- [5] Warren, B.E.: Acta Cryst., Camb. 8, 483 /1955/
- [6] Kobe, D.H.: Acta Cryst. 13, 767 /1960/
- [7] Bertaut, F.: C.R. Acad. Sci. Paris, 228, 187 /1949/
- [8] Rachinger, W.A.: J. Sci. Instrum. 25, 254 /1949/
- [9] Zsoldos L.: Szóbeli közlés.
- [10] Stokes, A.R.: Proc. Phys. Soc. /London/ 61, 382 /1948/
- [11] Goertzel, G.: Amer. Math. Monthly, 65, 34 /1958/
- [12] Varga L.: Szóbeli közlés
- [13] Kramer G.: KFKI Programkönyvtár, GJINV.
- [14] Int. Union Cryst., Int. Tabl. of X-Ray Cryst.: Kynoch Press, 3, 210 /1962/

Érkezett: 1968. máj. 21.
KFKI Közl., 16.évf. 3.szám, 1968.

TRANZISZTOROS MŰVELETI ERŐSÍTŐK

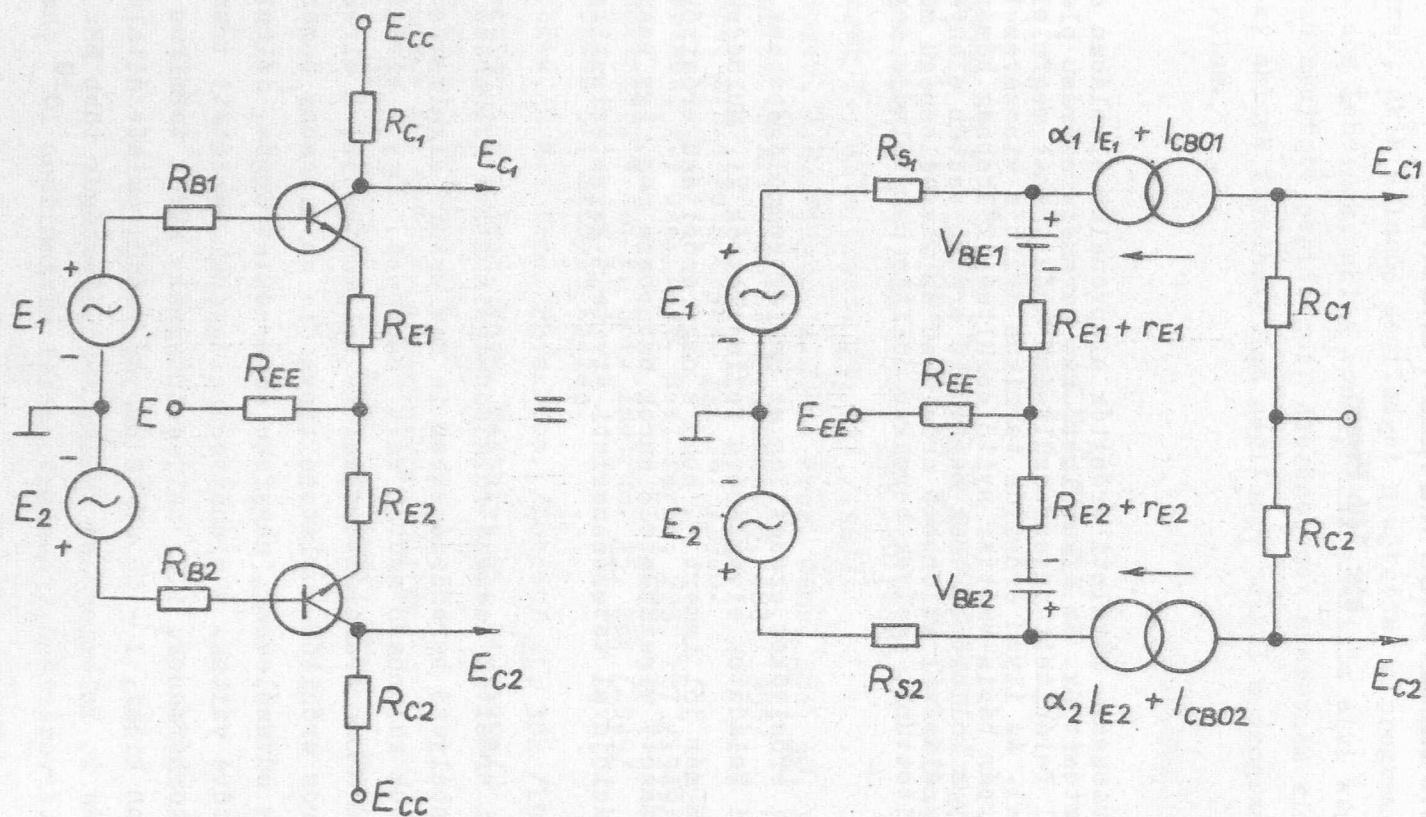
Irta: Tóth Ferenc

Összefoglalás

A nagy pontosságú műveleti erősítők alapvonalát általában chopper stabilizálással biztosítják. Ez elkerülhető kis paraméterszórású planár tranzisztorpárok felépített egyenfeszültségű erősítőknél megfelelő munkapont választásával. Az ilyen erősítők termikus driftje visszavezethető az első tranzisztorpár bázis-emitter nyitófeszültség-különbség hőmérsékletfüggésére, amely a kollektoráramok megfelelő aránya esetén elenyésző lesz. Ennek felhasználásával különböző erősítésű és sávzélességű műveleti erősítőket építettünk, amelyek termikus driftje nem haladja meg a $2 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$ értéket.

A műveleti erősítőket eredetileg az analóg számológépekhez különböző matematikai feladatok elvégzésére fejlesztették ki. Működésük lényege, - amint az már jól ismert -, hogy a nagy erősítésű erősítők átvitelét az alkalmazott visszacsatoló hurok határozza meg, így passzív elemek kombinációjával tetszésszerű átviteli karakterisztika megvalósítható.

A műveleti erősítők kedvező tulajdonságaik miatt különböző automatikus mérő és szabályozó berendezésekben is széleskörű alkalmazásokra találtak, használatuk különösen azután vált rohamossá, hogy a kívánt pontosságú paraméterértékek tranzisztorokkal is teljesíthetők; a direktcsatolt tranzisztoros erősítők korlátozó tényezői: az alacsony bemenő impedancia, keskeny sávzélesség, nagyfokú hőmérsékletfüggés, jelentős drift kiküszöbölhetővé váltak. A planártechnológiával készített tranzisztorpárok, tranzisztorhármak, ill. teljes integrált körök termikus driftje viszonylag nagyon kicsi, $1 - 25 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$ nagyságrendű, emiatt általában a chopper stabilizálás is feleslegessé válik, sávzélességük több MHz, bemenő ellenállásuk tervezérlésű tranzisztorokkal minimálisan 10^{10} ohm.



1. ábra Tranzisztoros differenciálerősítő és-helyettesítő kapcsolása

Tranzisztoros erősítők nullpontstabilitása

A műveleti erősítőnek gyakran nagyon lassan változó jeleket kell átvinnie, ezt legegyszerűbben direktcsatolással lehet biztosítani. Ilyen elrendezésnél a vezérlőjel nélküli kimenőjel, a nullvonal, függeni fog az egyes fokozatok beállítási feltételeitől, tápfeszültségektől, hőmérséklettől, az elemek időbeli stabilitásától. Tranzisztoros fokozatoknál a legnagyobb problémát a hőmérsékletfüggés jelenti, csökkentésére sok áramkörü megoldást fejlesztettek ki.

A kimenő-szint külső tényezőktől való függése csökkentésének legegyszerűbb módja a differenciálerősítő-kapcsolás /1. ábra/.

Helyettesítő kapcsolása alapján a bemenőjel nélküli terheletlen szimmetrikus erősítőre felírható [1] kimenő feszültségérték jó közelítéssel:

$$E_{C1} - E_{C2} \approx G_D (E_2 - E_1 - \Delta V_{BE} + R_{S2} I_{CBO2} - R_{S1} I_{CBO1}) +$$

$$+ \frac{G_D}{2R_{EE}} \left(\frac{R_{S1}}{\beta_1} - \frac{R_{S2}}{\beta_2} - \Delta R_{EE} \right) \left[\frac{E_1 + E_2}{2} - V_{BE} + \frac{R_{S1} I_{CBO1} + R_{S2} I_{CBO2}}{2} - E_{EE} \right] +$$

$$+ R_C (I_{CBO2} - I_{CBO1})$$

ahol G_D a terheletlen differenciálerősítő egyenáramon vett erősítését jelöli:

$$G_D = \frac{2R_C}{R_{E12} + \frac{R_{S1}}{\beta_1} + \frac{R_{S2}}{\beta_2}}$$

V_{BE} a tranzisztorok bázis-emitter nyitó feszültségét, $R_{S1} = R_B + r_b$ báziskörü eredő bemenő ellenállást jelöli, a többi betű jelentése az ábráról leolvasható.

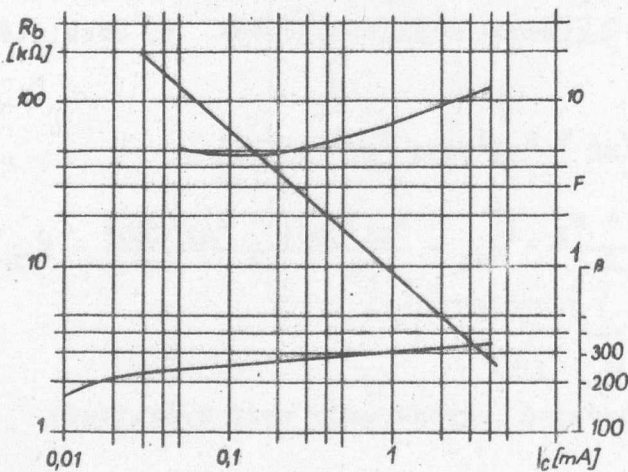
A fenti összefüggésből nyilvánvaló, hogy bemenőjel nélkül, azonos tranzisztor β , I_{CBO} és V_{BE} mellett a kimenő feszültség nulla, ha a megfelelő ellenállásértékek is azonosak. Ez természetesen nem teljesíthető tetszésszerű pontossággal, a paraméterek szórása, ill. azok eltérő hőmérsékletfüggése miatt. Ha a külső tényezők - tápfeszültség, ellenállások - változásától eltekintünk, a tranzisztor-paraméterek szórásán kívül a hőmérsékletváltozás a következők miatt viszi el a kimenőszintet:

1. Az áramerősítési tényezők hőmérsékletfüggése;
2. Bázis-kollektor záróáram változása;
3. Bázis-emitter nyitófeszültség hőmérsékletfüggése.

E tényezők hőfokfüggését részletesen vizsgálták [1, 2, 3, 4], az egyes effektusok csökkentésének lehetőségei a következők.

1/ Az áramerősítési tényezőket a munkaponti kollektoráram-értéknél össze kell válogatni, 10 - 20 % pontosságon belül. A hőfokfüggés növekvő kollektorárammal szintén nő, ezért lehetőség szerint kis munkaponti áramot kell használni.

A kollektoráram csökkentésének további előnye a tranzisztor ön-fűtéséből adódó termikus driftcsökkenés; ugyancsak kisebb lesz a tranzisztor zaja is, bár ez utóbbi a típustól kismértékben függően kb. 100 μ A alatt ismét növekszik /2. ábra/.



2. ábra

BAY 91 tranzisztor áramerősítési tényező, bemenő ellenállás és zajtényező változása a kollektoráram függvényében

bázisáram is csökken, és ezen keresztül az áramerősítési tényező hőmérsékletfüggése által okozott drift [2] jelentősen mérséklődik. Hátrányos viszont az áramerősítési tényezőnek a kollektorárammal együtt történő változása, bár planár típusoknál ez viszonylag mérsékelt /2. ábra/; másrészt túlságosan nagy munkaellenállásokra van szükség, ami szélessávú típusoknál korlátozó tényező. Emiatt a kollektoráram megválasztásánál kompromisszumos megoldást kell találni, az első fokozatban 5 - 500 μ A közötti áramok használatosak.

2/ A bázis kollektor záróáram a hőmérséklettel exponenciálisan növekszik, és általában nagy szórást mutat, válogatással nem illeszthető könnyen. Szilícium planár tranzisztorok záróárama 25°C-nál legfeljebb 1 nA, és még 150°C-nál sem éri el az 1 μ A-t, ezért a legtöbb esetben, ha a bemenő ellenállások nem túlságosan nagyok, hatásuk figyelmen kívül hagyható.

3/ Hőmérsékletváltozásra a kimenő feszültség legnagyobb eltolódását a bázis-emitter nyitó feszültség, ill. ezek különbsége okozza. Hőmérsékleti együtthatója 2,3 - 2,5 mV/°C, értékét befolyásolják a bázis és emitter körben lévő ohmos veszteségi ellenállások, a kollektoráram; a szórás azonban ikertranzisztoroknál viszonylag kicsi. 0 és +70°C között a bázis-emitter nyitó feszültség-különbségből adódó ekvivalens termikus drift 5 - 25 μ V/°C.

A kollektoráram egyenletéből meghatározható a kimenőfeszültség-változás hőmérsékletfüggése. A szilíciumtranzisztor záróáramát elhanyagolva a kollektoráram:

$$I_C = AT^r e^q \frac{V_F - V_{BE}}{kT}$$

vagy

$$V_{BE} = \frac{kT}{q} [\ln I_C - r \ln AT] + E_F,$$

ahol A a félvezetőre jellemző konstans; r a bázis kisebbségi töltéshordozó diffúziós állandójától függő állandó: $1,5 \leq r \leq 3$; V_F a félvezető valencia és vezetési sáv energiakülönbsége, k a Boltzmann állandó; q az elektromos töltés és T az abszolút hőmérséklet.

A V_{BE} feszültség hőmérséklet szerinti differenciálhányadosát képezve:

$$\frac{\partial V_{BE}}{\partial T} = k/q [\ln I_C - r \ln AT] + E_F - rk/q$$

vagy a két tranzisztor nyitófeszültség-különbségének hőmérsékletfüggése:

$$\frac{\partial V_{BE1,2}}{\partial T} = \frac{\partial V_{BE1}}{\partial T} - \frac{\partial V_{BE2}}{\partial T} = \frac{k}{q} [\ln I_{C1} - \ln I_{C2} - r (\ln T_1 - \ln T_2)]$$

A két tranzisztor hőmérsékletét azonosnak tekintve /közös tokozás/

$$\frac{\partial V_{BE1,2}}{\partial T} = \frac{k}{q} \ln \frac{I_{C1}}{I_{C2}}$$

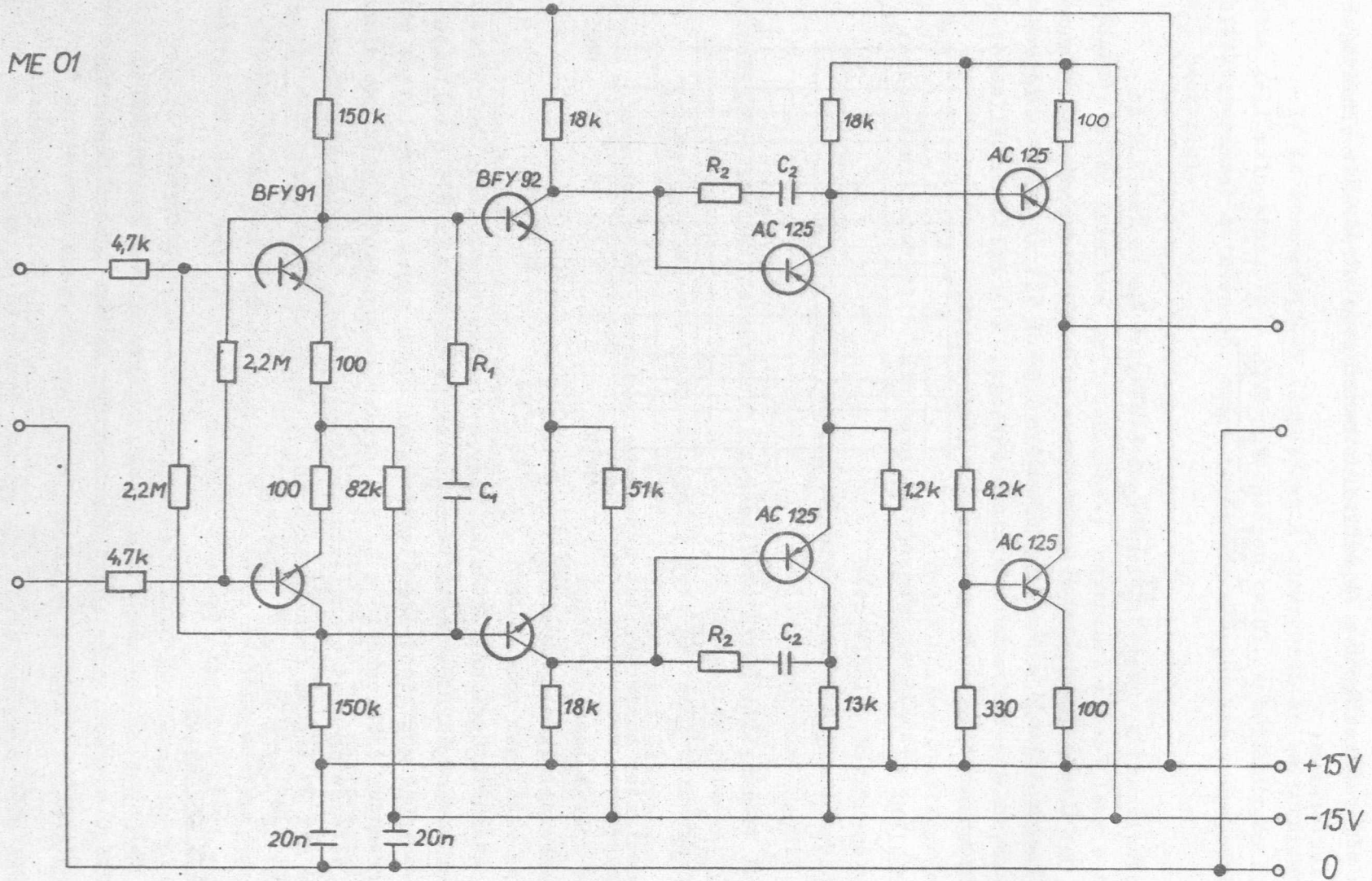
Az összefüggésből kitűnik, hogy a tranzisztorok adott nyitófeszültség-különbségéből származó termikus drift kiküszöbölhető a kollektoráramok arányának megfelelő megválasztásával. Ilyen módon a gyakorlatban kb. 1 nagyságrenddel csökkenthető a teljes erősítőre vonatkozó drift, ha nincs lényeges eltérés az első tranzisztorok áramerősítési tényezői között. A BFY 91 és BFY 92 típusu tranzisztoroknál a megadott $10 - 20 \mu V/^\circ C$ érték helyett $1 - 2 \mu V/^\circ C$ könnyen elérhető.

Az erősítők kapcsolása

Különböző mérési és szabályozási célokra eltérő felépítésű és sávszélességű műveleti erősítőket készítettünk azonos bemenő fokozattal /3, 4, 5. ábra/.

Az első tranzisztorpár bázisáramát beállító ellenállások az ellen-
ütemű kollektorokra csatlakoznak, ez részben javítja a közös módusu ve-

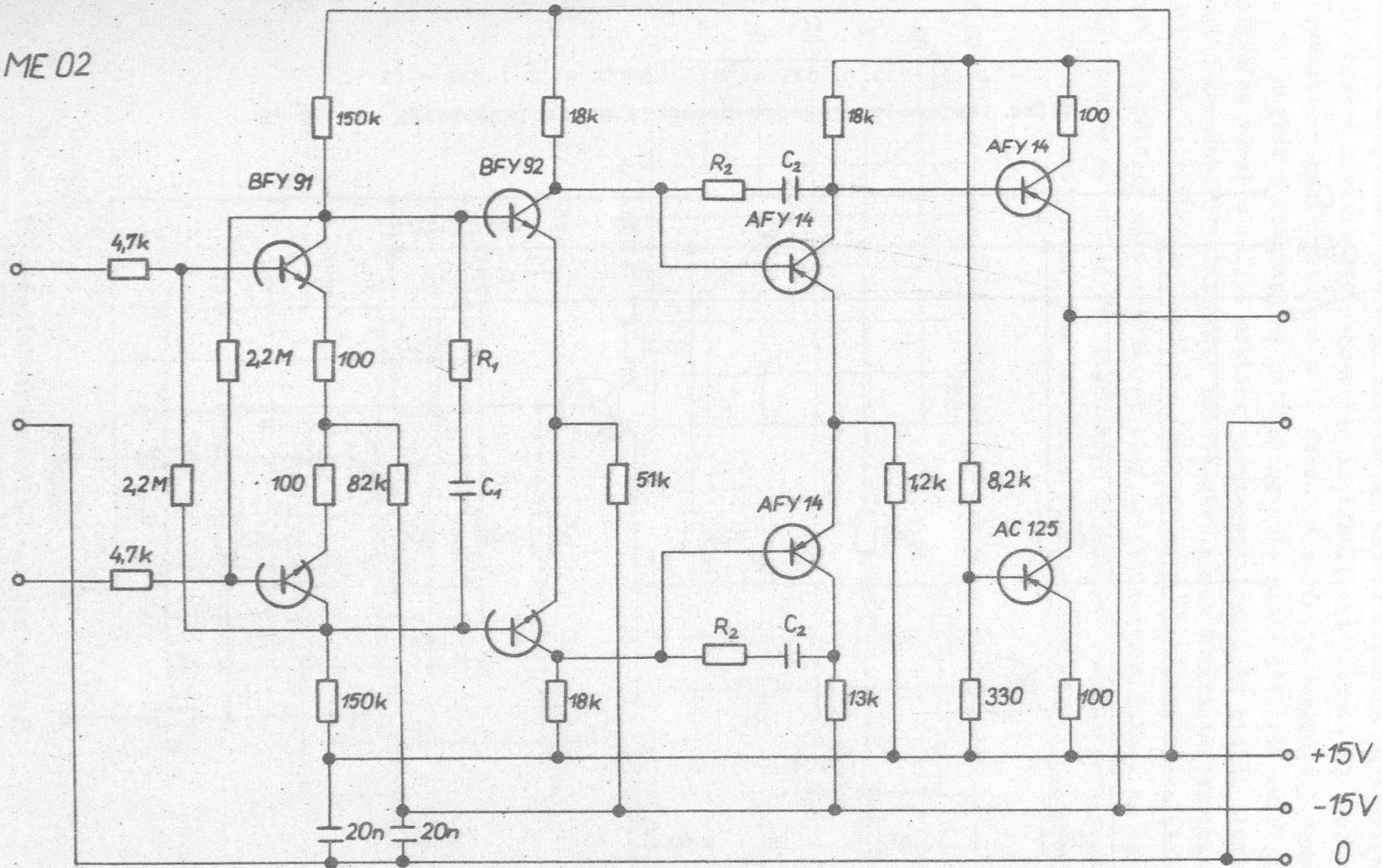
ME 01



3. ábra Keskenysávu műveleti erősítő kapcsolási rajza

$$R_1 = 1,8k\Omega ; C_1 = 100nF ; R_2 = 180\Omega ; C_2 = 3,3nF$$

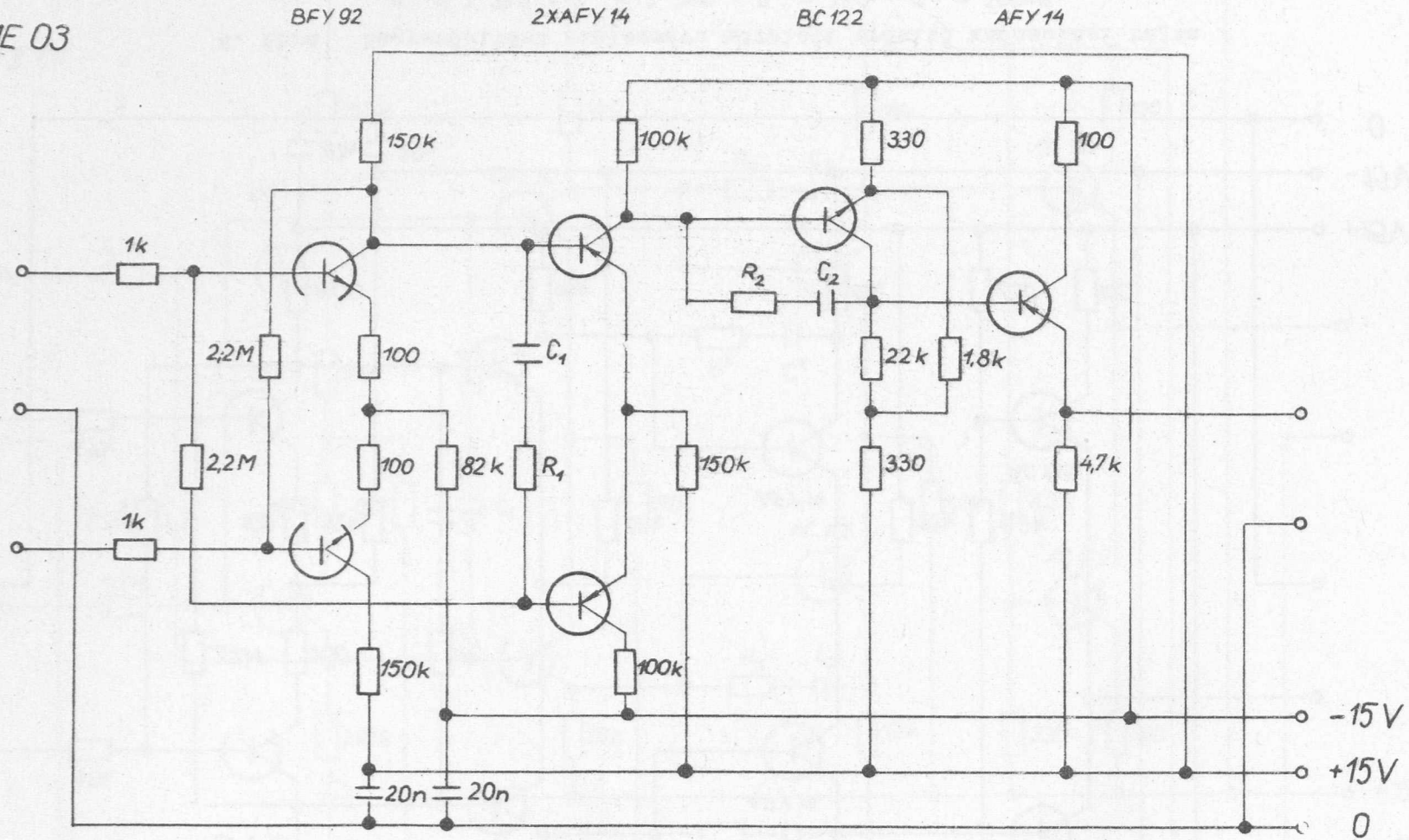
ME 02



4. ábra Nagyerősítésű szélessávu műveleti erősítő kapcsolási rajza

$R_1 = 2,2k\Omega$; $C_1 = 2,2nF$; $R_2 = 1k\Omega$; $C_2 = 100pF$

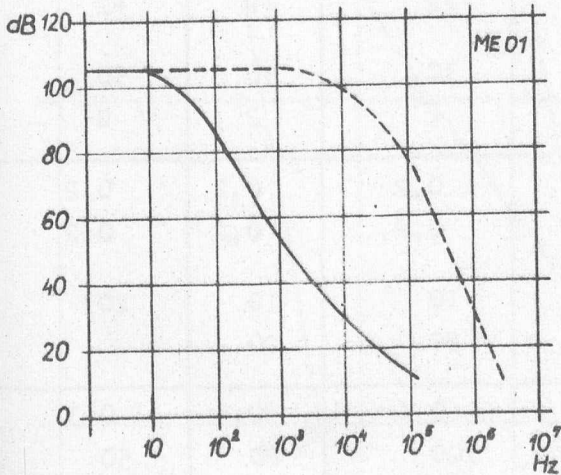
ME 03



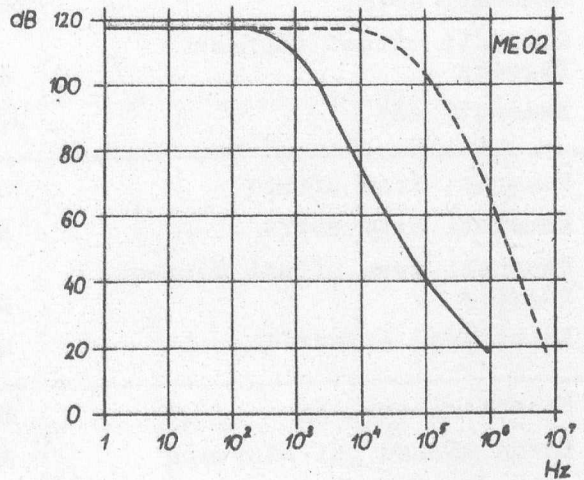
5. ábra Egyszerűsített szélessávú erősítő kapcsolási rajza

$$R_1 = 2k\Omega ; C_1 = 3,3nF ; R_2 = 1k\Omega ; C_2 = 47pF$$

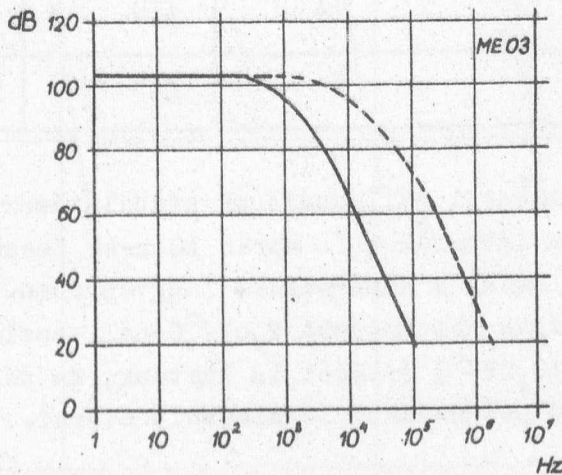
zérlelőjel elnyomást, másrészt hatékonyan növeli a bemenő-impedanciát anélkül, hogy a pozitív visszacsatolás instabilitást okozna [5] . Az erősítők frekvencia-karakterisztikái a 6. ábrán láthatók, a szaggatott vonallal ki-huzott görbék a kompenzálás nélküli nyitott hurku átvitelt mutatják, a folytonos vonal a teljes negatív visszacsatolásnál is stabil átvitelt biztosító kompenzáló időállandók bekötésével mérhető karakterisztikákat tünteti fel. A főbb specifikációs adatokat az 1. táblázat tartalmazza, amelyet 5-5 példány mért eredményei alapján állítottunk össze. Az egyszerű felépítés és az utolsó két fokozatban germánium tranzisztorok használata ellenére a mért paraméterek változása 10°C és 60°C között elhanyagolható.



6/a ábra



6/b ábra



6/c ábra

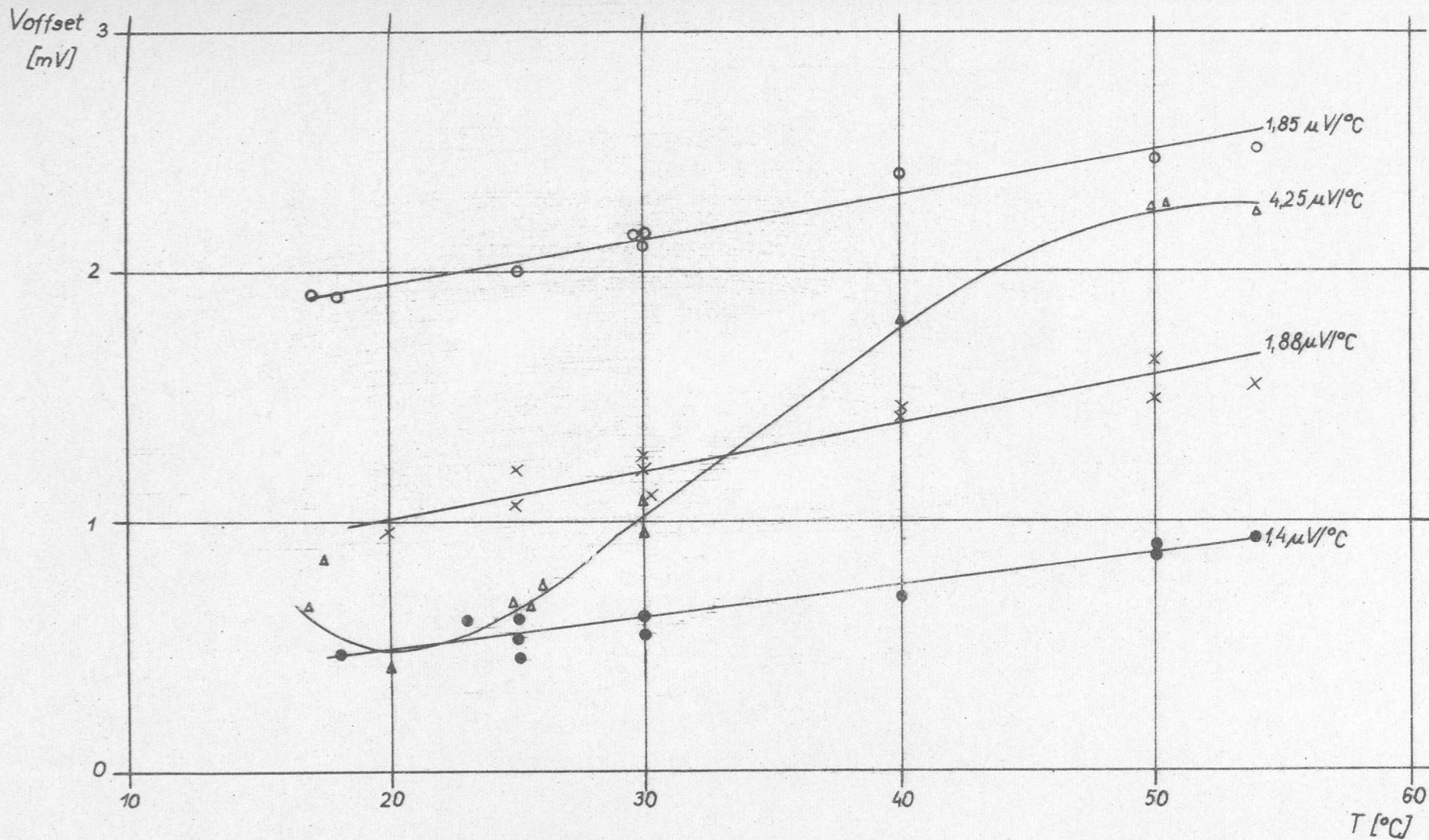
Műveleti erősítők frekvencia-karakterisztikái.
Szaggatott vonal a kompenzálás nélküli;
folytonos vonal a kompenzált erősítők átvitelét mutatja

1. táblázat

Típus		ME 01	ME 02	ME 03
Egyenfesz. erősítés		150.000	500.000	120.000
Sávszélesség /kisjel egys. erősítés/ Teljes telj. kimenet	MHz	0,2	10	1
	KHz	1	30	10
Bemeneti offset	mV	$\pm 0,2$	$\pm 0,2$	$\pm 0,3$
Bemeneti drift	$\mu\text{V}/^\circ\text{C}$	± 2	± 2	± 2
Bemeneti offset tápfesz. függése	mV/V	30	30	50
Bemeneti zaj	μV	2	2	2
Bemeneti áram offset	μA	0,2	0,2	0,2
Bemeneti áram drift	$\text{nA}/^\circ\text{C}$	0,2	0,2	0,2
Bemeneti áram offset tápfesz. függése	nA/V	10	10	20
Különbbségi áramdrift	nA	20	20	
Bemenő ellenállás	Mohm	0,4	0,3	0,3
Közös módusu jel elnyomás	dB	100	80	50
Kimenő ellenállás	ohm	300	100	1000
Kimenő feszültség	V	± 10	± 10	± 10
kimenő áram	mA	± 10	± 10	± 1
Tápfeszültség	V	± 15	± 15	± 15

Az erősítők kimeneti nullvonalának stabilitására jellemző tipikus kimenőszint-eltolódások láthatók a 7. ábrán 10 x-es feszültségerősítésnél mérve 10 kohm bemenő ellenállásnál a hőmérséklet függvényében. A drift értékét meghatározva, ez általában nem nagyobb $2\mu\text{V}/^\circ\text{C}$ -nál. Aszimmetrikus áramerősítésű tranzisztornál $10\mu\text{V}/^\circ\text{C}$ értéket is kaptunk, de néhány erősítőnél $0,12\mu\text{V}/^\circ\text{C}$ és $0,5\mu\text{V}/^\circ\text{C}$ pontosságot is sikerült elérni.

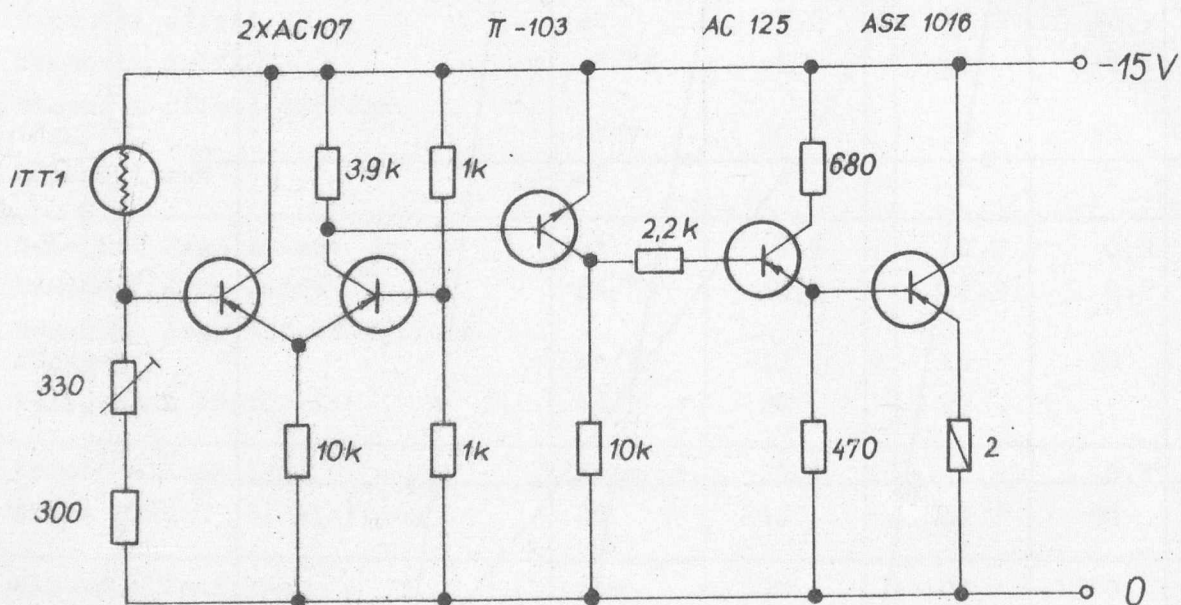
Az erősítők tápfeszültsége $\pm 15\text{V}$, relatív stabilitásuk 10^{-4} , a hullámosság nem haladja meg a $100\mu\text{V}_{\text{eff}}$ értéket.



7. ábra Műveleti erősítők kimenő feszültségváltozása a hőmérséklet függvényében 10 x-es erősítésnél

Hőmérsékletstabilitás

Az erősítők a termikus drift teljes kiküszöbölése miatt hőmérsékletstabilizált fémblokkra építhetők. A fűtött blokk hőmérséklete 40°C , kiképzése olyan, hogy arra további hőmérséklet-stabilizálandó elem, pl. referenciakörök is ráhelyezhetők. A hőmérsékletváltozást hidba kapcsolt termisztor érzékeli, felerősített jele fűtőelemnek használt tranzisztor áramát változtatja /8. ábra/. Egyszerű termikus árnyékolással a test hőmérséklet-ingadozása a $\pm 0,05^{\circ}\text{C}$ értéket nem haladja meg hosszú időn keresztül, így a hőmérsékleti hatások teljes mértékben kiküszöbölhetők.



8. ábra

Hőmérséklet stabilizáló blokk kapcsolási rajza

Köszönetnyilvánítás

Köszönettel tartozom Kovács Károly, Pretz József és Fónagy János technikusoknak, akik az erősítőket elkészítették és a beméréseket végezték.

Irodalom

- [1] Korn, G.A.: Electronic Analog and Hibrid Computers. McGraw-Hill Comp. /1964/
- [2] Hoffait, A.H., Thornton, R.D.: Proc. IEEE 52, 179 /1964/
- [3] Beneteau, P.I., Murari, E.: Electronic Eng. 39, 252 /1967/
- [4] Babbs, R.S.: Instr. Pract. 156, 1967 Febr.
- [5] Nambiar, K.T.: Electr. Design, 11, June 7 /1963/

Érkezett: 1968. márc. 29.

KFKI Közl., 16.évf. 4.szám, 1968.