

Andrzej BLUSZCZ, Włodzimierz MOŚCICKI

ANALIZA JAKOŚCIOWA I ILOŚCIOWA  
ZJAWISK TOWARZYSZĄCYCH POMIAROM BARDZO NISKICH KONCENTRACJI RADONU  
ZA POMOCĄ LICZNIKA PROPORCJONALNEGO

Streszczenie. Przedstawiono model fizyczny zjawiska adsorpcji radonu i produktów jego rozpadu na elektrodach licznika proporcjonalnego wypełnionego mieszaniną gazów Rn-CO<sub>2</sub>. Porównano wyniki obliczeń teoretycznych w oparciu o model z danymi eksperymentalnymi.

### 1. Wstęp

W laboratorium C-14 w Gliwicach podjęto badania nad możliwością odzielenia radonu od dwutlenku węgla w kolumnie termodyfuzyjnej [2]. W czasie pierwszych pomiarów stałej termodyfuzji okazało się, że termodyfuzji radonu w CO<sub>2</sub> towarzyszą inne procesy utrudniające istotnie interpretację otrzymanych wyników. Przy wyznaczaniu stałej termodyfuzji koncentrację Rn określa się przez pomiar jego aktywności licznikiem proporcjonalnym (szczegółowy opis aparatury i metodyki pomiarów znajduje się w [1] oraz [2]). Związane są z tym następujące utrudnienia:

- 1) w mieszaninie CO<sub>2</sub>-Rn występują promieniotwórcze produkty rozpadu radonu,
- 2) w procesie termodyfuzji zostaje zakłócona równowaga promieniotwórcza między radonem a jego produktami i zachodzą procesy pbnownego jej przywrócenia,
- 3) atomy radioaktywne mogą osadzać się na ściankach liczników (lub gromadzić przy nich), wpływając na rejestrowaną szybkość zliczeń.

Czynniki te w sposób istotny zakłócają pomiar aktywności radonu, utrudniając otrzymywanie prawidłowych wyników. W celu ilościowego określenia wpływu tych czynników, a w szczególności czynnika 3), na wyniki pomiarów przeprowadzone analizę zjawisk towarzyszących detekcji radonu w liczniku proporcjonalnym.

2. Prosty model zjawisk towarzyszących pomiarom aktywności mieszaniny  $\text{CO}_2\text{-Rn}$  za pomocą licznika proporcjonalnego

Radon  $^{222}\text{Rn}$  jest pośrednim ogniwem rodziny promieniotwórczej uranu  $^{238}\text{U}$ . Wśród wszystkich produktów rozpadu  $^{222}\text{Rn}$  można wyróżnić cztery, których wkład w całkowitą aktywność jest znacznie większy od wkładu pozostałych [1]. Dwa spośród nich:  $^{214}\text{Pb}$  oraz  $^{214}\text{Bi}$  wykazują  $\beta$  radioaktywność, a pozostałe:  $^{218}\text{Po}$  i  $^{214}\text{Po}$  oraz  $^{222}\text{Rn}$  są  $\alpha$  radioaktywne. Parametry aparatury pomiarowej pozwalają na rejestrację jedynie cząstek  $\alpha$ .

Można przypuszczać, że atomy radonu i produktów rozpadu są zjonizowane. Jonizacja może nastąpić w wyniku zderzenia ze zjonizowaną molekułą  $\text{CO}_2$  lub w wyniku rozpadu promieniotwórczego. Zjonizowane atomy są spychane przez pole elektryczne w kierunku ścianek licznika. W wyniku tego procesu zwiększa się koncentracja atomów radioaktywnych w obszarze przyległym do ścianek licznika, a tym samym maleje w pozostałej objętości licznika. W takich warunkach dochodzi do częstych zderzeń atomów radioaktywnych ze ściankami licznika, co może prowadzić do ich adsorpcji. Rozpady atomów, które przebywają na ściankach licznika lub w ich bezpośrednim pobliżu (w odległości rzędu mm), będą rejestrowane z prawdopodobieństwem mniejszym o około połowę od prawdopodobieństwa rejestracji rozpadu atomów pozostałych w objętości licznika. Przyczyną tego są tzw. efekty brzegowe w liczniku proporcjonalnym oraz wartość poziomu, na jakim dyskryminowane są impulsy licznika.

Nie wdając się szczegółowo we wszystkie subtelnosci procesu prowadzącego do adsorpcji względnie do gromadzenia się atomów przy ściankach, można przyjąć następujące założenia:

- atomy radioaktywne jednego izotopu można podzielić na dwie grupy: atomy znajdujące się w objętości oraz atomy znajdujące się na ściankach lub w ich bezpośrednim sąsiedztwie;
- prawdopodobieństwo rejestracji rozpadu atomu pierwszej grupy wynosi  $P_I = 1$ , a drugiej  $P_{II} = 1/2$ ,
- ilość atomów w objętości zmienia się zgodnie ze wzorami

$$\left(\frac{dN_{iv}}{dt}\right)_{\text{ads}} = -\frac{1}{t_i} [N_{iv}(t) - N_{iv}^e(t)] \quad (1)$$

$$N_{iv}(t) + N_{is}(t) = N_i(t) \quad i = 1, 2, 3, 4, 5$$

gdzie:

$N_{iv}(t)$  - ilość atomów  $i$ -tego izotopu grupy pierwszej,

$N_{is}(t)$  - ilość atomów  $i$ -tego izotopu grupy drugiej,

$N_{iv}^e(t)$  - równowagowa ilość atomów w objętości,

$t_i$  - średni czas przebywania nadmiarowych atomów w objętości,

$N_i(t)$  - całkowita ilość atomów  $i$ -tego izotopu określona prawami przemian promieniotwórczych [1],

symbol  $\left(\frac{dN_{iv}}{dt}\right)_{ads}$  oznacza szybkość zmniejszenia się liczby atomów w objętości na skutek adsorpcji na ściankach lub gromadzenia się w ich pobliżu.

Jeśli symbolem  $\left(\frac{dN_{iv}}{dt}\right)_{dec}$  oznaczyć szybkość zmian ilości atomów w wyniku przemian promieniotwórczych, to całkowita szybkość zmian wyniesie:

$$\frac{dN_{iv}}{dt}(t) = \left(\frac{dN_{iv}}{dt}\right)_{ads} + \left(\frac{dN_{iv}}{dt}\right)_{dec} \quad (2)$$

W stanie równowagi spełniony jest warunek

$$\frac{N_{iv}(t)}{N_{is}(t)} = \frac{N_{iv}^e(t)}{N_{is}^e(t)} = \text{const} \quad (3)$$

oraz

$$N_{iv}(t) + N_{is}(t) = N_i(t)$$

Można z tych równań otrzymać związek

$$N_{iv}^e(t) = b_i N_i(t), \quad b_i \in (0, 1) \quad (4)$$

gdzie:  $b_i$  jest stałą charakteryzującą stan równowagi (por. (3)).

Korzystając z (1), (2) oraz (4), można zapisać

$$\frac{dN_{iv}}{dt}(t) = -\lambda_i N_{iv}(t) - \frac{1}{t_1} [N_{iv}(t) - b_i N_i(t)] \quad (5)$$

$$\frac{dN_{iv}}{dt}(t) = -\lambda_i N_{iv}(t) + \lambda_{i-1} N_{i-1v}(t) - \frac{1}{t_1} \cdot$$

$$[N_{iv}(t) - b_i N_i(t)] \quad i = 2, 3, 4, 5$$

$$N_{iv}(t) + N_{is}(t) = N_i(t) \quad i = 1, 2, 3, 4, 5$$

gdzie:  $\lambda_i$  jest stałą rozpadu  $i$ -tego izotopu.

Ten układ równań opisuje funkcja  $N_{iv}(t)$ ,  $N_{is}(t)$  dla wszystkich izotopów łańcucha radonowego. Znając je, można określić funkcje opisujące szyb-

kość zliczeń licznika. Po uwzględnieniu założenia o prawdopodobieństwie rejestracji rozpadu, szybkość zliczeń  $I_1(t)$  można wyrazić wzorem

$$I_1(t) = \lambda_i N_{iV}(t) + \frac{1}{2} \lambda_i N_{iS}(t)$$

a po uwzględnieniu (5)

$$I_1(t) = \frac{1}{2} \lambda_i [N_{iV}(t) + N_i(t)] \quad (6)$$

Ponieważ promieniowanie  $\beta$  nie jest rejestrowane, całkowita szybkość zliczeń wyraża się sumą

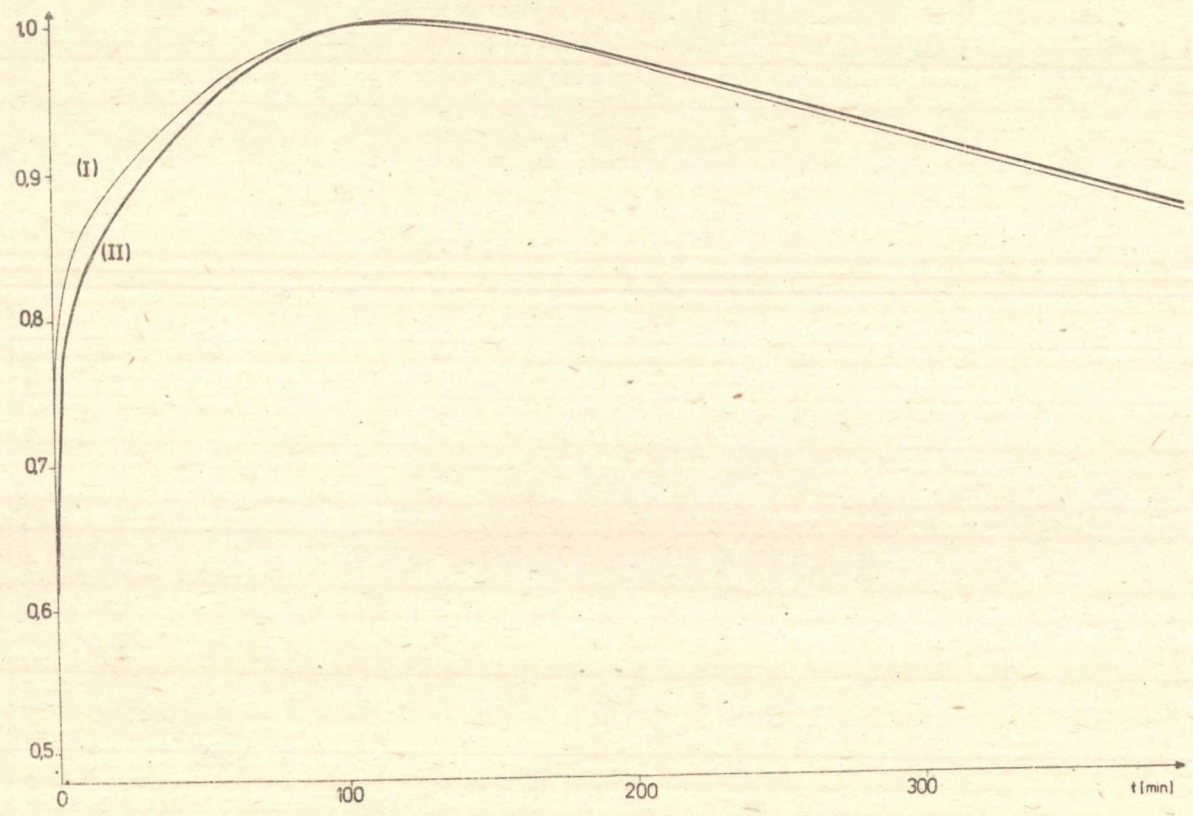
$$I(t) = I_1(t) + I_2(t) + I_5(t) \quad (7)$$

W czasie badań rozpatrzone trzy proste przypadki szczególne przedstawionego modelu, zadane różnymi wartościami stałych  $t_i$  oraz  $b_i$ :

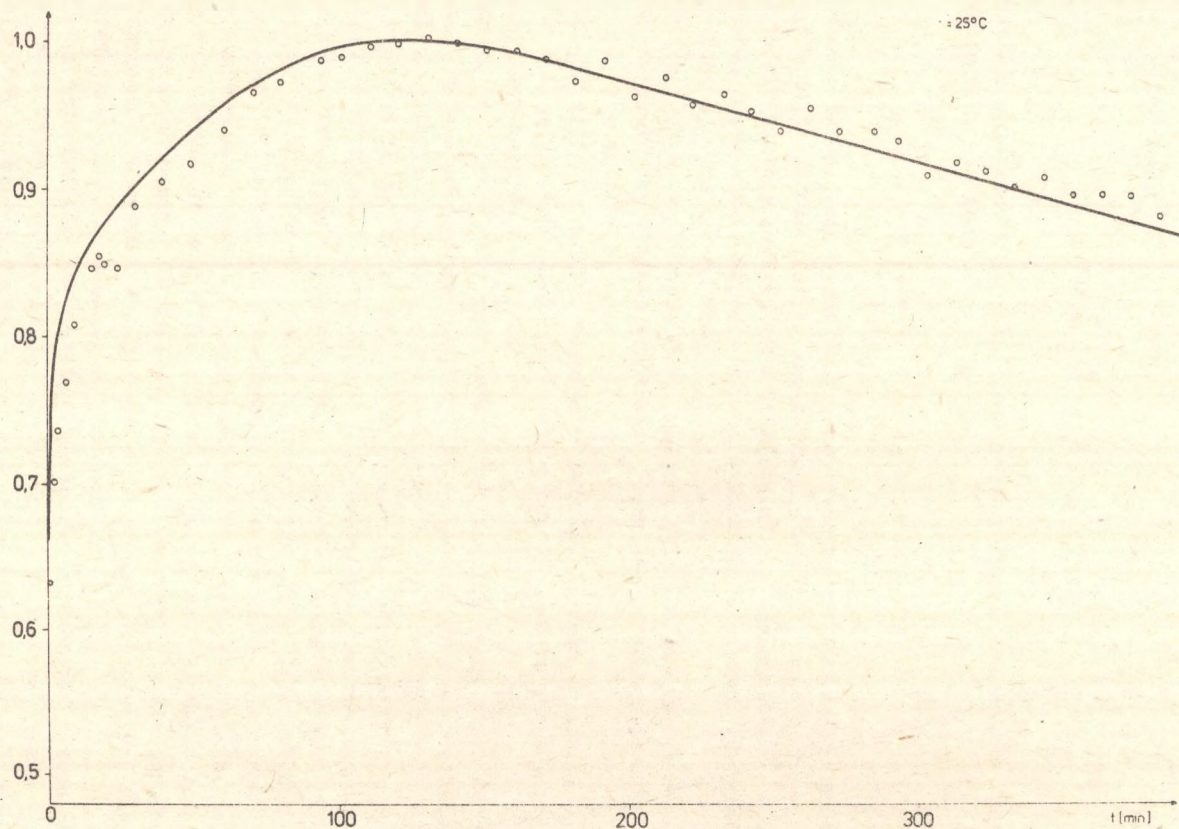
- 1) wszystkie izotopy radioaktywne "adsorbują" się identycznie, a w stanie równowagi wszystkie znajdują się na ściankach licznika. Odpowiada to wartościom:  $t_i = t_0$ ,  $b_i = 0$ ,  $i = 1, 2, 3, 4, 5$ ,
- 2) adsorpcja różnych izotopów jest jednakowa, lecz w stanie równowagi pewna ich część pozostaje w objętości. Odpowiada to wartościom:  $t_i = t_0$ ,  $b_i = b$ ,  $i = 1, 2, 3, 4, 5$ ,
- 3) produkty rozpadu radonu "adsorbują" się identycznie, to znaczy  $t_i = t_0$ ,  $b_i = b$ ,  $i = 2, 3, 4, 5$ . Radon jest "adsorbowany" w innym stopniu niż produkty jego rozpadu ( $t_1, b_1$ ).

Czas  $t_0$  jest określony przez rozmiary licznika oraz stałą dyfuzji i szybkość dryfu zjonizowanych atomów w  $CO_2$ . Stała dyfuzji i ruchliwość jonów zależą głównie od masy i rozmiarów atomów. Dla radonu i jego produktów rozpadu wielkości te różnią się nieznacznie. Uzasadnia to przyjęcie założenia o równości  $t_i = t_0$ . Stała  $b$ , określająca stan równowagi, powinna być taka sama, jak się wydaje, dla produktów rozpadu radonu ulegających silnej adsorpcji i mieć wartość bliską zeru [6]. Jeśli chodzi o radon, to prace de Vriesa [4] oraz Nydala [5] wskazują, że adsorbuje się on bardzo słabo nawet w niskich temperaturach. Stąd też, w ostatnim przypadku, wynika odrębne założenie dla radonu. Układ równań (5) można rozwiązać np. metodą transformacji Laplace'a. Wartości funkcji  $I(t)$  dla poszczególnych przypadków obliczano, korzystając z programu napisanego dla EMC Odra-1204 [1].

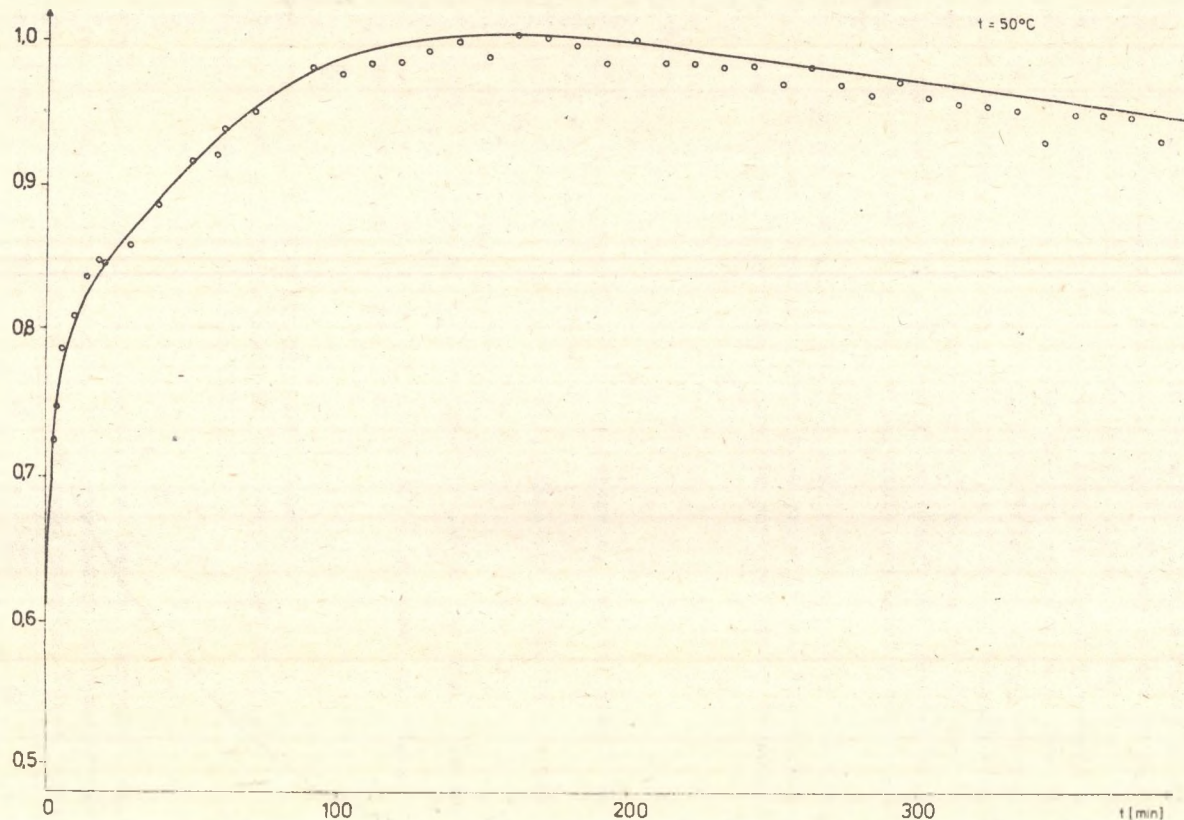
Wykresy tych funkcji dla wybranych wartości parametrów przedstawiono na rys. 1-4. Funkcje te zawierają, oprócz  $t_i$  i  $b_i$ , jeszcze jeden parametr  $k$ , który określa względną ilość produktów rozpadu, w mieszaninie w chwili początkowej, w stosunku do takiej ich ilości, która byłaby w równowadze promieniotwórczej z początkową ilością radonu [1].



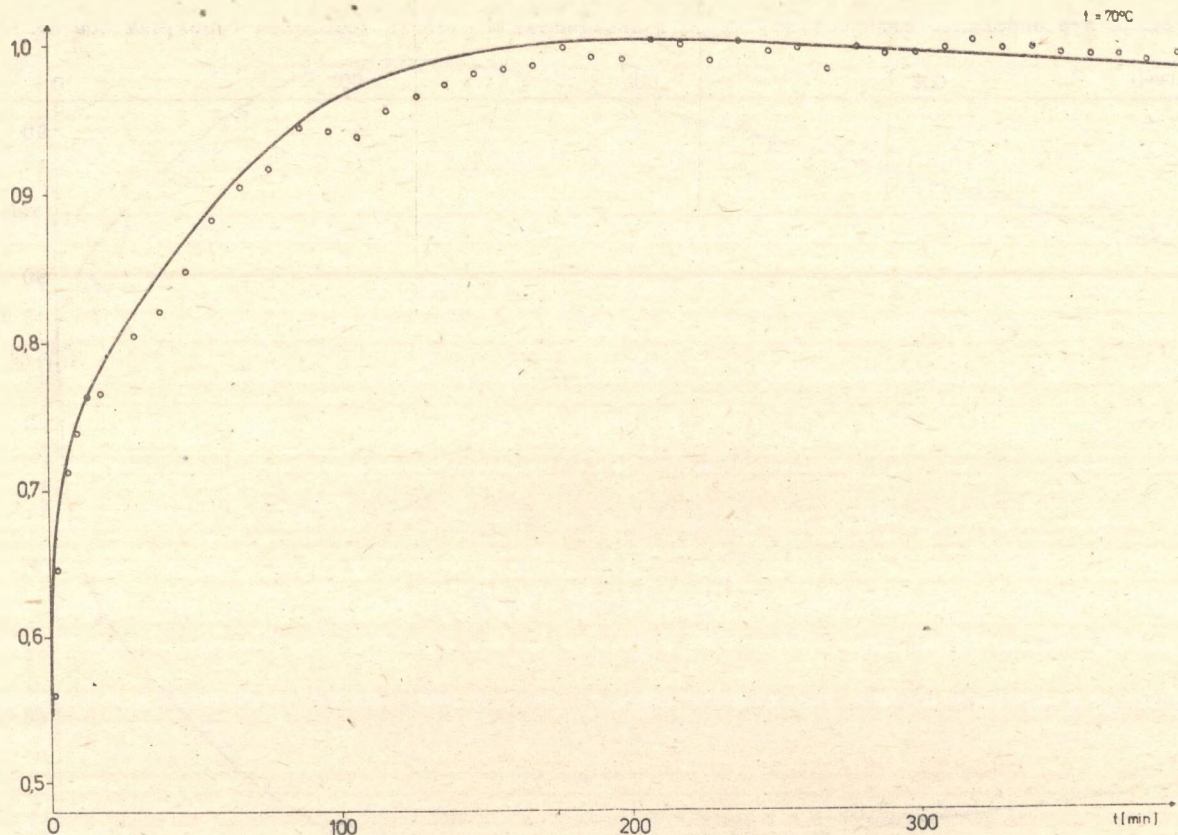
Rys. 1. Wykresy funkcji  $I(t)$  otrzymane dla wartości parametrów I:  $k = 0,4$ ,  $b_1 = 0,4$ ,  $t_1 = 500$  min.,  $b_i = 0$ ,  $t_i = 50$  min., II  $k = 0,3$ ,  $b_1 = 0,4$ ,  $t_1 = 500$  min.,  $b_i = 0$ ,  $t_i = 50$  min.



Rys. 2. Zmiany względnej szybkości zliczeń przy wypełnieniu mieszaniną  $\text{CO}_2$ -Rn w temperaturze  $25^\circ\text{C}$ . Linia ciągła jest wykresem funkcji  $I(t)$  dla wartości parametrów  $k = 0.3$ ,  $b_1 = 0$ ,  $t_i = t_c = 600$  min.



Rys. 3. Zmiany względnej szybkości zliczeń w temperaturze 50°C. Linia ciągła otrzymana dla wartości parametrów  $k = 0.3$ ,  $b_1 = 0.7$ ,  $b_i = 0$ ,  $t_i = t_0 = 600$  min.



Rys. 4. Zmiany względnej szybkości zliczeń w temperaturze 70°C. Linie ciągłe otrzymana dla wartości parametrów  $k = 0.2$ ,  $b_1 = 1$ ,  $b_2 = 0$ ,  $t_1 = t_0 = 600$  min.



### 3. Porównanie modelu z wynikami pomiarów

Porównanie wyników pomiarów z przewidywaniami teoretycznymi pozwala na przyjęcie przedstawionego modelu. Odpowiedni dobór parametrów prowadzi do dobrej zgodności modelu z danymi doświadczalnymi w trzech przedstawionych poprzednio przypadkach. Jednakże w dwóch pierwszych przypadkach należałoby je dobierać w taki sposób, że np.  $t_0$  silnie zależałoby od temperatury, w której prowadzono pomiar, a radon musiałby ulegać adsorpcji w takim samym stopniu, co produkty rozpadu. Jest to sprzeczne z danymi literaturowymi [4, 5]. Pozostaje zatem przypadek trzeci, w którym przyjmuje się odrębne parametry dla radonu i dla jego produktów. Obliczenia dla tego przypadku prowadzono dla różnych kombinacji wartości parametrów.

Na rysunkach 2, 3 i 4 przedstawiono wyniki pomiarów w różnych temperaturach oraz krzywe otrzymane teoretycznie najlepiej pasujące do tych wyników.

Rozpatrzony w artykule model zjawisk zachodzących w liczniku przy pomiarach aktywności radonu, jako dobrze przybliżający rzeczywistość, może być pomocny przy interpretacji wyników pomiarów stałej termodyfuzji.

#### LITERATURA

- [1] Bluszcz A., Prace dyplomowa magisterska, Instytut Fizyki Pol.Sl. 1976.
- [2] Pazdur A., praca doktorska.
- [3] Penczenkow G.M., Lebediew W.P., Kinetyka chemiczna i kataliza, PWN, Warszawa, 1964.
- [4] de Vries H., Apl.Sci.Rev. B6 (1957) 461.
- [5] Nydal R., Proc.Int.Conf.Low Radioact.Meas. and Appl. Czechoslovakia, 6-10Oct., 1975, s. 345.
- [6] Kaminsky M., Atomic and Ionic Impact Phenomena on Metal Surfaces, Springer Verlag, Berlin 1965.

КАЧЕСТВЕННЫЙ И КОЛИЧЕСТВЕННЫЙ АНАЛИЗ ЯВЛЕНИЯ,  
СОПУТСТВУЮЩИХ ИЗМЕРЕНИЯМ ОЧЕНЬ НИЗКИХ КОНЦЕНТРАЦИИ РАДОНА,  
ПРИ ПОМОЩИ ПРОПОРЦИОНАЛЬНОГО СЧЕТЧИКА

#### Резюме

В работе представлена физическая модель адсорбции радона и продуктов его распада на электродах пропорционального счетчика, заполненного смесью газов Rn-CO<sub>2</sub>. Результаты теоретических расчетов были сравнены с экспериментальными данными.

QUALITATIVE AND QUANTITATIVE ANALYSIS OF SOME PHYSICAL PROCESSES  
ENCOUNTERED IN MEASUREMENTS OF LOW LEVEL RADON ACTIVITY  
BY MEANS OF PROPORTIONAL COUNTER

S u m m e r y

Physical model for absorption of radon and its decay products on the electrodes of the proportional counter filled with Rn-CO<sub>2</sub> mixture is presented. The results of calculations based on developed model are compared with observed changes of counting rate of radon and its decay products.