

Anna PAZDUR

ZASTOSOWANIE LICZNIKA PROPORCJONALNEGO  
DO POMIARU KONCENTRACJI RADONU  
W MIESZANINIE GAZÓW Rn-CO<sub>2</sub>. APARATURA POMIAROWA

**Streszczenie.** Omówiono szczegółowo konstrukcję stanowiska aparaturowego do pomiarów koncentracji <sup>222</sup>Rn w badaniach nad zjawiskiem dyfuzji termicznej w mieszaninie gazów Rn-CO<sub>2</sub>.

### 1. Wstęp

Powszechnie występującym zanieczyszczeniem radioaktywnym CO<sub>2</sub> podlegającego pomiarowi w chronometrii metodą C-14, [1], jest <sup>222</sup>Rn o okresie połowicznego zaniku  $T_{1/2} = 3.825$  dni. Ten stosunkowo krótki (w porównaniu z półokresem rozpadu izotopu <sup>14</sup>C wynoszącym 5730 lat) półokres rozpadu radonu powoduje, że obecność <sup>222</sup>Rn, a przede wszystkim krótkożytych produktów rozpadu radonu w ilości zaledwie setek tysięcy atomów wywołuje zakłócenia w procesie pomiaru radioaktywności izotopu <sup>14</sup>C. Z powodu bardzo niskiej zazwyczaj koncentracji radonu w CO<sub>2</sub> (względne stężenie rzędu 10<sup>-14</sup>-10<sup>-16</sup>) niemożliwe jest usunięcie radonu na drodze chemicznej.

Niemożliwe jest również ze względu na bardzo zbliżone temperatury wrzenia Rn i CO<sub>2</sub> (-62°C dla Rn i -78°C dla CO<sub>2</sub>) efektywne usunięcie radonu metodą destylacji.

Mało wydajna okazała się również metoda proponowana przez de Vrlesa [2-3], polegająca na ekstrakcji radonu przez odpompowanie z zestalonego CO<sub>2</sub>. Dyskusja szeregu zjawisk fizycznych, które można wykorzystać do usunięcia radonu, prowadzona w ramach własnych dociekań, doprowadziła do wniosku, że duże nadzieje można wiązać z wykorzystaniem zjawiska termodyfuzji [4-5], a w szczególności z zastosowaniem kolumny termodyfuzyjnej do separacji Rn i CO<sub>2</sub>.

Ze względu na brak danych literaturowych dotyczących istotnych dla tej metody stałych fizycznych - stałej termodyfuzji i współczynnika dyfuzji dla mieszaniny Rn-CO<sub>2</sub>, konieczne okazało się doświadczalne wyznaczenie powyższych wielkości.

Do wyznaczenia stałej termodyfuzji w mieszaninie gazów Rn-CO<sub>2</sub> zastosowano metodę dwóch naczyń, wykorzystując zjawisko termodyfuzji stacjonarnej [6].

Komory termodyfuzyjne zostały zaprojektowane i skonstruowane w ten sposób, aby spełniać nie tylko rolę naczyń umożliwiających przeprowadzenie procesu termodyfuzji, lecz również rolę detektorów promieniowania jonizującego. Taka konstrukcja naczyń do badania zjawiska dyfuzji termicznej pozwala na śledzenie zmian koncentracji radioaktywnego składnika mieszaniny w funkcji trwania procesu, a stąd na określenie czasu relaksacji i ewentualne wyznaczenie współczynnika dyfuzji zwykłej.

## 2. Aparatura pomiarowa

### 2.1. Konstrukcja liczników proporcjonalnych

Ze względu na laboratoryjne doświadczenie autorki w dziedzinie detekcji promieniowania jądowego za pomocą liczników proporcjonalnych wypełnionych  $\text{CO}_2$  oraz możliwą do osiągnięcia dużą precyzję określenia stężenia radonu naczynia termodyfuzyjne zostały zbudowane jako liczniki proporcjonalne.

Konstrukcja naczynia termodyfuzyjnego jako licznika proporcjonalnego jest przedstawiona na rys. 1.

Wszystkie części metalowe konstrukcji zostały wykonane z miedzi, przejęcia izolacyjne pomiędzy katodą i drutem anodowym są szklane. Konstrukcja obu liczników jest podobna. Licznik mniejszy posiada zawór (8), który spełnia rolę ekranu odcinającego lub łączącego liczniki. Dodatkowe połączenie liczników ze sobą lub każdego licznika oddzielnie z aparaturą próżniową można uzyskać za pomocą kapilary (11) oraz kranu trójdrożnego. Każdy z liczników zaopatrzony jest w osłonę termostatyczną (9). Osłony podłączone są do oddzielnych termostatów. Odpowiednia temperatura termodyfuzyjnych komór licznikowych była uzyskiwana za pomocą obiegu cieczy termostatycznej, w przypadku małego licznika - wody, w przypadku każdego - glikolu. Nici anodowe liczników stanowi drut wolframowy o średnicy 0,05 mm. Promień katody małego licznika wynosi 20 mm, a długość rury katodowej 50,8 mm. Licznik duży posiada wymiary: promień katody - 35,7 mm, długość cylindra katody - 271 mm. Długość rurki termodyfuzyjnej wynosi  $L = 109,5$  mm, a jej promień  $r = 1,85$  mm. Promień kapilar łączących liczniki jest równy 1 mm, długość kapilar - około 50 cm. Objętości licznikowych komór termodyfuzyjnych wynoszą odpowiednio  $V_1 = 65,1 \text{ cm}^3$ ,  $V_2 = 1087 \text{ cm}^3$ .

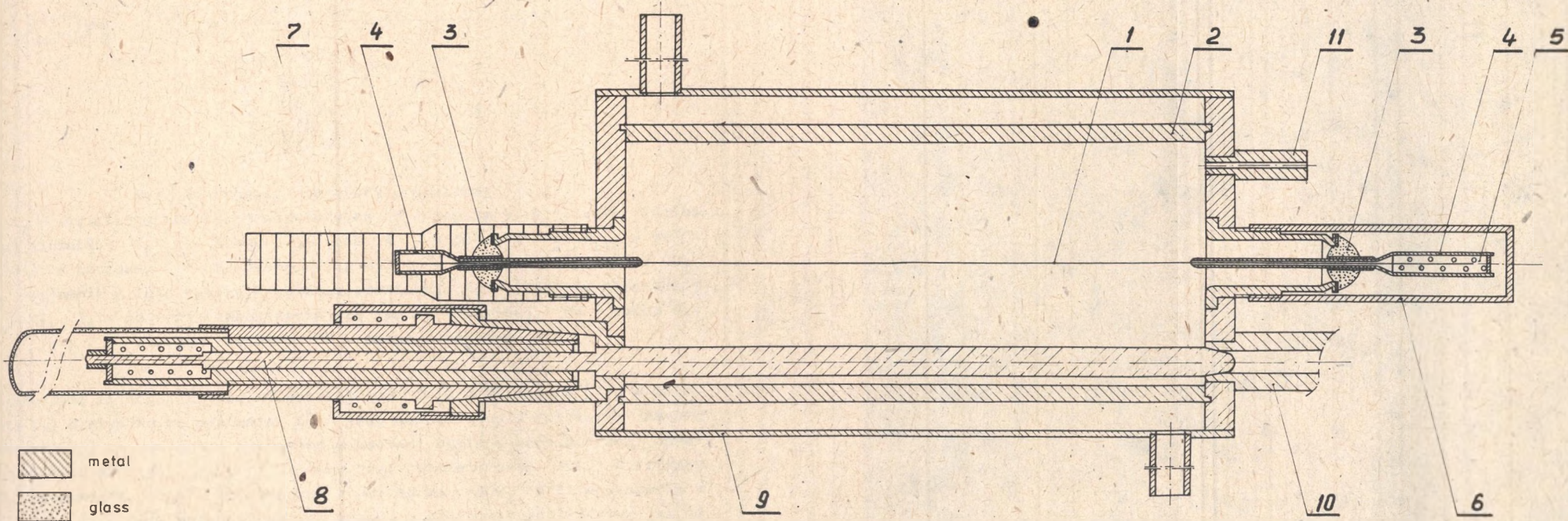
Części metalowe liczników łączone są za pomocą srebra lub cyny.

### 2.2. Aparatura próżniowa

#### 2.2.1. Otrzymywanie i oczyszczanie $\text{CO}_2$

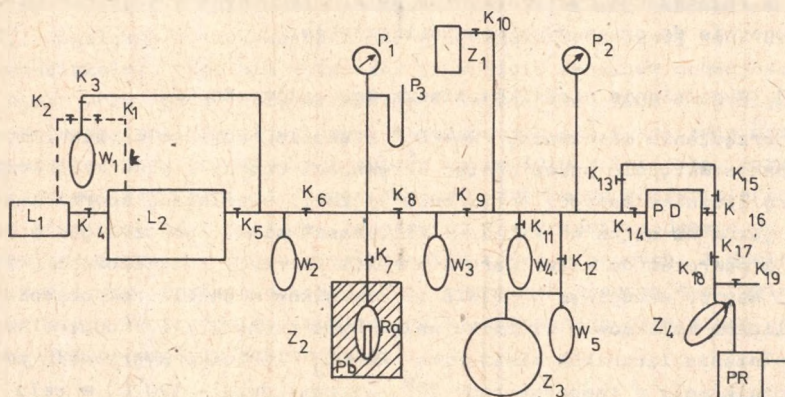
Schemat aparatury próżniowej służącej do pompowania liczników, wypełnianie mieszaniną  $\text{Rn-CO}_2$  oraz otrzymywanie mieszaniny  $\text{Rn-CO}_2$  jest przedstawiony na rys. 2. W pomiarach stosowano  $\text{CO}_2$  otrzymany i oczyszczany





Rys. 1. Szczegółowa konstrukcja licznikowej komory termodyfuzyjnej do pomiaru stałej termodyfuzji w mieszaninie gazów Rn-CO<sub>2</sub>  
 (2) - rura katodowa, (3) - izolatory szklane, (4) - tulejki centrujące nici anodowe, (7) - gniazdo wysokiego napięcia, (6) - tulejka ekranująca, (10) - rurka termodyfuzyjna, (8) - zawór, (9) - osłony termostatyczna, (11) - wyjście kapilar





Rys. 2. Schemat aparatury próżniowej

$L_1, L_2$  - licznikowe komory termodyfuzyjne,  $K$  - kapilary,  $K_1$  - zawór odcinający liczniki,  $K_2-19$  - krany próżniowe,  $W_1-5$  - pułapki  $CO_2$ ,  $P_1-2$  - próżniomierze oporowe,  $P_3$  - manometr rtęciowy,  $Z_1$  - zbiornik ciśnieniowy  $CO_2$ ,  $Z_2$  - pojemnik z igłą radową w osłonie ołowianej,  $Z_3$  - zbiornik mieszanki  $R_n - CO_2$ ,  $Z_4$  - zbiornik zabezpieczający pompy rotacyjnej,  $PD$  - pompa dyfuzyjna rtęciowa,  $PR$  - pompa rotacyjna

standardową metodą przyjętą w Laboratorium C-14 w Gliwicach [7]. W metodzie tej otrzymany ze spalania  $CO_2$  jest absorbowany w roztworze zasady amoniakalnej, a następnie wytrącony w postaci węglanu wapnia przez dodanie chlorku wapnia.  $CaCO_3$  rozkładany jest rozcieńczonym  $HCl$ . Otrzymany  $CO_2$  przechodzi przez układ płuczek z roztworem  $AgNO_3$  oraz wymrażarek w celu usunięcia pary wodnej oraz par kwasu, a następnie oczyszczany jest w obiegu termogravitacyjnym zawierającym piece ze srebrem o temperaturach  $350^\circ C$  i  $500^\circ C$ , gdzie usuwane są zanieczyszczenia elektroujemne w postaci tlenków siarki, azotu itp.

Oczyszczony w ten sposób  $CO_2$  był następnie transportowany w zbiorniku ciśnieniowym ( $Z_1$ ) i przechowywany w rezerwuarze ( $Z_3$ ).

### 2.2.2. Sporządzanie mieszanki gazów $R_n - CO_2$

Źródłem  $^{222}Rn$  był  $^{226}Ra$  zgromadzony w otwartej igłę radowej w postaci związku  $RaSO_4$  zawierającego 1 mg radu. Igłę radową umieszczoną została w specjalnym zbiorniczku próżniowym ( $Z_2$ ) podłączonym do aparatury próżniowej za pomocą szlifi i pozostawała w zbiorniczku zawsze w atmosferze  $CO_2$ . Zbiorniczek z igłą radową oraz część przewodu osłonięto piętnastocentymetrową warstwą ołowiu. Ze względu na podobne temperatury zestawienia  $Rn$  i  $CO_2$  ( $-68^\circ C$  i  $-71^\circ C$ ) mieszankina  $Rn$  i  $CO_2$  ze zbiorniczka z igłą radową mogła być przeprowadzana do rezerwuaru ( $Z_3$ ) o objętości 5 l, zawierającego czysty  $CO_2$ , za pomocą wymrażarek ( $W_3, W_5$ ) chłodzonych ciekłym

azotem. W rezerwuarze tym mieszanina była przechowywana przez okres co najmniej tygodnia do czasu wypełniania liczników.

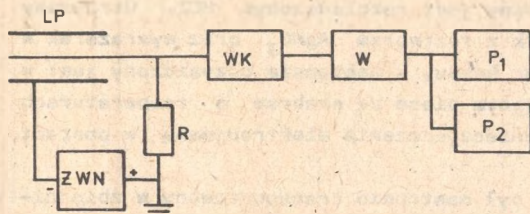
### 2.2.3. Wypełnianie liczników mieszaniną gazów Rn-CO<sub>2</sub>

Po sporządzeniu mieszaniny Rn-CO<sub>2</sub> stężenie radonu w mieszaninie było kontrolowane wstępnie przez pomiar aktywności radonu i produktów rozpadu za pomocą licznika małego. W tym celu liczniki wypełniano sporządzoną mieszaniną gazów na okres od kilku do kilkunastu minut, po czym gaz przeprowadzono z powrotem do rezerwuaru i w razie potrzeby rozcieńczono czystym CO<sub>2</sub> tak, aby po właściwym wypełnieniu liczników w chwili rozpoczęcia pomiarów liczba impulsów w liczniku małym była rzędu  $2 \cdot 10^4$  cpm. Po kontrolnym wypełnieniu liczników mieszaniną Rn-CO<sub>2</sub> liczniki wygrzewano pod próżnią (licznik mały w temperaturze 70<sup>o</sup>, licznik duży - 120<sup>o</sup>C) w celu usunięcia gazu zaadsorbowanego na ściankach, po czym wypełniano czystym CO<sub>2</sub>. W atmosferze czystego CO<sub>2</sub> liczniki przebywały aż do momentu wypełnienia właściwą mieszaniną Rn-CO<sub>2</sub>.

Liczniki wypełniano mieszaniną Rn-CO<sub>2</sub> przez odparowywanie zestalonego gazu w wymrażarce (W<sub>2</sub>) (por. rys. 2), przy otwartych kranach K<sub>1-6</sub>, kontrolując wartość ciśnienia za pomocą manometru rtęciowego (P<sub>3</sub>).

### 2.3. Aparatura elektroniczna

Schemat aparatury elektronicznej do współpracy z układem liczników jest przedstawiony na rys. 3. Dodatnia wartość wysokiego napięcia podawana była na nici anodowe liczników



Rys. 3. Schemat aparatury elektronicznej  
LP - licznik proporcjonalny, ZWN - układ zasilacza wysokiego napięcia, WK - wtórnik katodowy, W - wzmacniacz, P<sub>1-2</sub> - przetworniki tranzystorowe

z układu zasilaczy wysokiego napięcia poprzez kalibrowany dzielnik napięcia. Wartość wysokiego napięcia na każdym z liczników oddzielnie oraz na wejściu i wyjściu dzielnika napięć można było kontrolować przez odpowiednie podłączenie woltomierza elektrostatycznego.

Stabilność zasilaczy wysokiego napięcia wynosiła około 0,1%, a dokładność pomiaru napięcia około 1%.

Oryginalna konstrukcja liczników wymagała odpowiednio skonstruowanych gniazd doprowadzających wysokie napięcie na nici anodowe liczników (rys. 1). W konstrukcji gniazd jako materiał izolacyjny zastosowano teflon, którego własności izolacyjne nie ulegają zmianie w stosowanym w pomiarach przedziale temperatur (od 15<sup>o</sup>C do 130<sup>o</sup>C). Poprzez wtórnik katodowy (WK)



impulsy z licznika podawano na wzmacniaczu (W) o wzmocnieniu maksymalnym 2000, regulowanym skokowo co 2 dB. Wzmacniacz specjalnej konstrukcji był nieprzeciążalny, tzn. nie wytwarzał na wyjściu impulsów podwójnych lub potrójnych przy pojedynczych impulsach wejściowych 1000 razy większych od maksymalnych impulsów wejściowych mieszczących się w zakresie dynamicznym wzmacniacza. Czas narastania impulsów na wyjściu z licznika, oszacowany z oscylogramu, przy napięciu odpowiadającym wybranemu napięciu pracy mieścił się w granicach od 2 do 4  $\mu$ s. Impulsy po wzmocnieniu podawano na układ rejestrujący złożony z dwóch przeliczników tranzystorowych z dyskryminatorami amplitudy impulsów o odpowiednio wybranych progach dyskryminacji. Pracę aparatury kontrolowano impulsami z kalibrowanego generatora impulsów, podawanymi na wejście wzmacniacza.

## LITERATURA

- [1] LIBBY W.E.: Radiocarbon Dating, Univ. of Chicago Press, 2nd ed., 1955.
- [2] de VRIES H.: Appl. Sci. Res., B61, 461 (1957).
- [3] RALPH E.K., MICHAEL M.N.: Coed. Dating Techniques for the Archaeologist, MIT Press, Combridge, Mass., Ch.1, (1971).
- [4] PAZDUR A., PAZDUR M.: Zeszyty Naukowe Pol. Śl. s. "Mat.-Fiz.", z. 23, 71 (1973).
- [5] PAZDRU M., PAZDUR A.: Ibidem, z. 23, ss. 89 (1973).
- [6] GRIU K.E., IBBS T.L.: Termiczeskaja diffuzja w gazach. Moskwa 1956.
- [7] MOŚCICKI W., ZASTAWNY A., POMYKAŁA W.: Materiały Konferencji Naukowo-Technicznej "Zastosowanie Naturalnych Izotopów Promieniotwórczych w Hydrogeologii", Katowice 1974.

## ПРИМЕНЕНИЕ ПРОПОРЦИОНАЛЬНОГО СЧЕТЧИКА

К ИЗМЕРЕНИИ КОНЦЕНТРАЦИИ РАДОНА В БИНАРНОЙ ГАЗОВОЙ СМЕСИ Rn-CO<sub>2</sub>.  
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

## Резюме

В работе описано подробно экспериментальную установку применяемую в исследовании процесса термодиффузии в бинарной газовой смеси Rn-CO<sub>2</sub>.

ON THE USE OF PROPORTIONAL COUNTER IN PRECISE MEASUREMENTS OF  
RADON CONCENTRATION IN  $Rn-CO_2$  MIXTURE. THE CONSTRUCTION OF  
MEASURING APPARATUS

S u m m a r y

In the study of thermal diffusion process in  $Rn-CO_2$  gas mixture a proportional counter was used for measurements of  $Rn^{222}$  concentration. The details of construction of experimental set-up used in these investigations are described.

Wpłynęło do Redakcji 20.XII.1977 r.

Recenzent

Doc. dr hab. inż. Andrzej Zastawny