ZESZYTY NAUKOWE POLITECHNIKI ŚLĄSKIEJ 1981

Seria: MATEMATYKA-FIZYKA z. 39 Nr kol. 686

Anna PAZDUR

POMIAR STAŁEJ TERMODYFUZJI W MIESZANINIE GAZÓW $^{222}Rn-CO_2$

Streszczenie. Przedstawiono metodykę pomiaru stałej termodyfuzji w mieszaninie gazów $Rn-CO_2$, numeryczne opracowanie wyników pomiarów oraz wyniki eksperymentalne wyznaczenia równowagowego stopnia wzbogacenia i stałej termodyfuzji w badanej mieszaninie gazów.

1. Wstęp

W pierwszych kontrolnych pomiarach zmian szybkości zliczeń pochodzących od radonu i jego produktów rozpadu stwierdzono występowanie pewnych zjawisk towarzyszących rozpadowi promieniotwórczemu radonu i jego pochodnych, które tłumaczono w ramach następujących hipotez:

1. Radon, a przede wszystkim produkty rozpadu radonu (atomy metalu) mogą być adsorbowane na elektrodach licznika z pewną charakterystyczną dla tego procesu stałą czasową. Stan stacjonarny, w którym szybkość zaniku liczby zliczeń będzie odpowiadała szybkości zaniku aktywności radonu, nastąpi po czasie wynoszącym kilka (5 do 8) stałych czasowych charakteryzujących adsorpcję radonu i produktów rozpadu na ściankach licznika. Eksperymentalnie stwierdzono, że stała ta wynosi około 600 min [1-2].

2. Możliwe jest występowanie zjawiska desorpcji atomów radonu i produktów rozpadu ze ścianek licznika. Przyczyną desorpcji są zderzenia jonów dodatnich dochodzących do katody licznika z powierzchnią katody w czasie pracy licznika (przy włączonym wysokim napięciu) [2].

Obserwowano procesy adsorpcji w przerwach między pomiarami i desorpcji w czasie pomiaru.

Stanowisko pomiarowe, którym posługiwano się w pracy, nie pozwalało na dokładne wyznaczenie stałych czasowych związanych z ustalaniem się stanu równowagi promieniotwórczej pomiędzy radonem i produktami jego rozpadu, zjawiskiem adsorpcji i desorpcji. Dlatego doświadczenia nad badaniem zjawiska termodyfuzji należało zaprojektować w ten sposób, aby przy wyliczeniach stopnia wzbogacenia i stałej termodyfuzji wartości stałych czasowych wyżej wymienionych zjawisk i powodowane tymi zjawiskami zmiany szybkości zliczeń nie wchodziły w rachubę.

2. Metodyka przeprowadzania eksperymentów z badaniem zjawiska dyfuzji termicznej w mieszaninie Rn-CO_2

Pomiary zmian koncentracji radonu w badaniach zjawiska dyfuzji termicznej były wykonywane za pomocą małej komory licznikowej [1]. Zjawiska towarzyszące rejestracji radonu oraz konstrukcja stanowiska aparaturowego narzuciły następujący sposób przeprowadzania eksperymentów z badaniem termodyfuzji w mieszaninie Rn-CO_2.

2.1. Po wypełnieniu komór termodyfuzyjnych mieszaniną Rn-CO_2 do standardowego ciśnienia (475 Tr w temp. pokojowej), bezpośrednio po wypełnieniu na licznik mały włączono wysokie napięcie odpowiadające napięciu pracy licznika. Zawór odcinający komory oraz kran łączący je poprzez rurkę kapilarną pozostawały otwarte, aby nastąpił równomierny rozkład stężenia radonu w całej objętości komór. Wysokie napięcie pozostawiono włączone na licznik przez cały czas trwania eksperymentów w celu wyeliminowania stwierdzonego wcześniej zjawiska desorpcji. W czasie trwania pomiarów wartość wysokiego napięcia ulegała zmianie w niewielkich granicach w celu uzyskania nominalnej wartości parametru k, określającego punkt pracy oraz w czasie ustalania temperatur komór termodyfuzyjnych. Zmiana gęstości gazu w liczniku małym wskutek konwekcyjnego dopływu gazu z dużej komory po jej nagrzaniu (powodowała oczywiście przesunięcie punktu pracy licznika małego w kierunku wyższych napięć.

2.2. Gaz pozostawał w komorach przez okres około 3 dni od chwili wypełnienia do momentu rozpoczęcia grzania dużej komory i chłodzenia licznika małego.

Przed rozpoczęciem procesu zmian temperatur komór kontrolowano stężenie radonu w liczniku małym, a następnie ustawiono wartość wysokiego napięcia na liczniku, odpowiadającą punktowi pracy po uzyskaniu przez komory żądanych temperatur. Zmianę wartości napięcia pracy ustalono wcześniej w oddzielnych doświadczeniach.

Eksperymenty z nagrzaną dużą komorą i chłodzoną małą przeprowadzono w dwóch wersjach:

a) Po zamknięciu kranu odcinającego układ komór od aparatury próżniowej i zamknięciu zaworu łączącego liczniki nagrzewano dużą komorę i chłodzono licznik mały za pomocą obiegów cieczy termostatycznych do odpowiednich wartości temperatur. Czas osiągania żądanych temperatur komór wahał się w poszczególnych eksperymentach od 40 do 45 min. Wyrównywanie ciśnień gazu w obu komorach następowało poprzez rurkę kapilarną łączącą komory. Z chwilą osiągnięcia przez komory odpowiednich wartości temperatur i ustalenia dokładniej wartości napięcia pracy licznika małego rozpoczynano pomiary śledzenia zmian szybkości zliczeń w funkcji czasu. W trakcie trwania pomiarów temperatury komór były podtrzymywane za pomocą obiegów cieczy termostatycznych i kontrolowane za pomocą termome-

trów rtęciowych. Podczas śledzenia zmian koncentracji radonu zjawisko dyfuzji termicznej nie występowało z powodu odcięcia obu komór przez zawór oraz małego przekroju kapilary i stosunkowo dużej jej długości. Po zakończeniu serii pomiarowej termostaty wyłączono, otwierano zawór odcinający liczniki i przy obniżonej wartości napięcia pracy licznika małego do napięcia pracy w temperaturze pokojowej obu komór pozostawiano gaz w licznikach na okres 2-3 dni, do chwili rozpoczęcia drugiej wersji eksperymentu.

b) Druga wersja eksperymentu miała na celu śledzenie zmian koncentracji radonu w funkcji czasu w obecności zjawiska termodyfuzji. Ustalania temperatur komór termodyfuzyjnych i punktu pracy małej komory licznikowej oraz pomiary zmian stężenia radonu w funkcji czasu były wykonywane w ten sam sposób jak w wersji pierwszej, przy czym zawór odcinający naczynia termodyfuzyjne przez cały czas trwania doświadczenia pozostawał otwarty. Otwarcie zaworu powodowało wystąpienie zjawiska termodyfuzji poprzez rurkę termodyfuzyjną.

Dla zadanej różnicy temperatur wykonano po dwa eksperymenty z otwartym i zamkniętym zaworem odcinającym komory, w odwróconej kolejności, dla dwóch różnych wypełnień komór termodyfuzyjnych mieszaniną gazów $Rn-CO_2$.

Dla poszczególnych par eksperymentów z otwartym zaworem odcinającym komory termodyfuzyjne (obecność zjawiska termodyfuzji) oraz zaworem zamkniętym (brak zjawiska termodyfuzji), różnica funkcji opisujących zmianę stężenia radonu w czasie w obu wersjach eksperymentu powinna oddawać przebieg zmiany stężenia radonu w małej komorze na skutek obecności zjawiska dyfuzji termicznej.

Wartości ciśnienia mieszaniny $Rn-CO_2$ wypełniające komory termodyfuzyjne w temperaturze pokojowej (P_L), napięcia pracy licznika małego w tej samej (pokojowej) temperaturze obu liczników (V_{P1}), napięcia pracy po nagrzaniu dużej komory i ochłodzeniu małej (V_{P2}), temperatur obu komor termodyfuzyjnych (T_1, T_2) są zestawione w tabeli 1.

3. Wyniki pomiarów i opracowanie wyników pomiarów

3.1. Opracowanie numeryczne bezpośrednich wyników pomiarów

Przyjęta metodyka eksperymentów pozwala na konstrukcję uproszczonego modelu matematycznego do opisu zmian stężenia radonu w funkcji czasu, w opisanych powyżej dwóch wersjach eksperymentu.

W celu aproksymacji bezpośrednich wyników pomiarów zmian rejestrowanej szybkości zliczeń w mniejszej komorze termodyfuzyjnej, powodowanych konwekcyjnym dopływem gazu po nagrzaniu dużej komory (komory termodyfuzyjne odcięte), przyjęto funkcję w postaci:

Tabela 1

Zestawienie pomiarów wykonanych przy badaniu zjawiska dyfuzji termicznej w mieszaninie $Rn-CO_2$

Nr pomiaru	P_L [mm Hg]	V_{P1} [V]	V_{P2} [V]	K	T_1 [°K]	T_2 [°K]	Wersja pomiaru
1	472	2470	2710	0,3462	293,5	393,6	bez termodyfuzji
	472	2470	2710	0,3354	293,6	293,8	z termodyfuzją
2	477	2510	2740	0,3435	293,3	393,8	z termodyfuzją
	477	2510	2740	0,3465	293,4	293,7	bez termodyfuzji
3	473	2490	2770	0,3550	288,3	402,7	bez termodyfuzji
	473	2490	2770	0,3463	288,6	402,8	z termodyfuzją
4	473	2510	2780	0,3471	288,3	402,9	z termodyfuzją
	473	2500	2780	0,3461	288,2	402,8	bez termodyfuzji

$$Y(t) = A_1 e^{-B_1 t} + A_2 e^{-B_2 t} \tag{3.1}$$

gdzie A_1, A_2, B_1 i B_2 oznaczają pewne stałe parametry.

Stałe czasowe

$$\tau_1 = \frac{1}{B_1}, \quad \tau_2 = \frac{1}{B_2} \tag{3.2}$$

mogą być interpretowane (w znacznym uproszczeniu) jako wynik nałożenia się stałych czasowych związnach z rozpadem promieniotwórczym radonu i jego pochodnych, konwekcyjnym dopływem gazu oraz zjawiskiem adsorpcji.

W przypadku obecności zjawiska termodyfuzji (zawór między komorami otwarty) jako funkcję opisującą przebieg zmian szybkości zliczeń w czasie przyjęto sumę trzech eksponent:

$$Y(t) = A_1 e^{-B_1 t} + A_2 e^{-B_2 t} + A_3 e^{-B_3 t}. \tag{3.3}$$

Stałą czasową

$$\tau_3 = \frac{1}{B_3} \tag{3.4}$$

można interpretować (również w sposób uproszczony) jako nałożenie się stałych czasowych zjawiska dyfuzji termicznej i zjawisk towarzyszących.

Należy podkreślić, że założenie postaci funkcji $Y(t)$ jako sumy tylko dwóch lub trzech eksponent nie oddaje rzeczywistego przebiegu zjawisk i zostało przyjęte tylko ze względu na prostotę obliczeń numerycznych. Funkcje $Y(t)$ zostały dopasowane numerycznie metodą najmniejszych kwadratów. Obliczenia wykonano na maszynie cyfrowej Odra 1305, w artymetyce zmiennoprzecinkowej z podwójną precyzją [3-4].

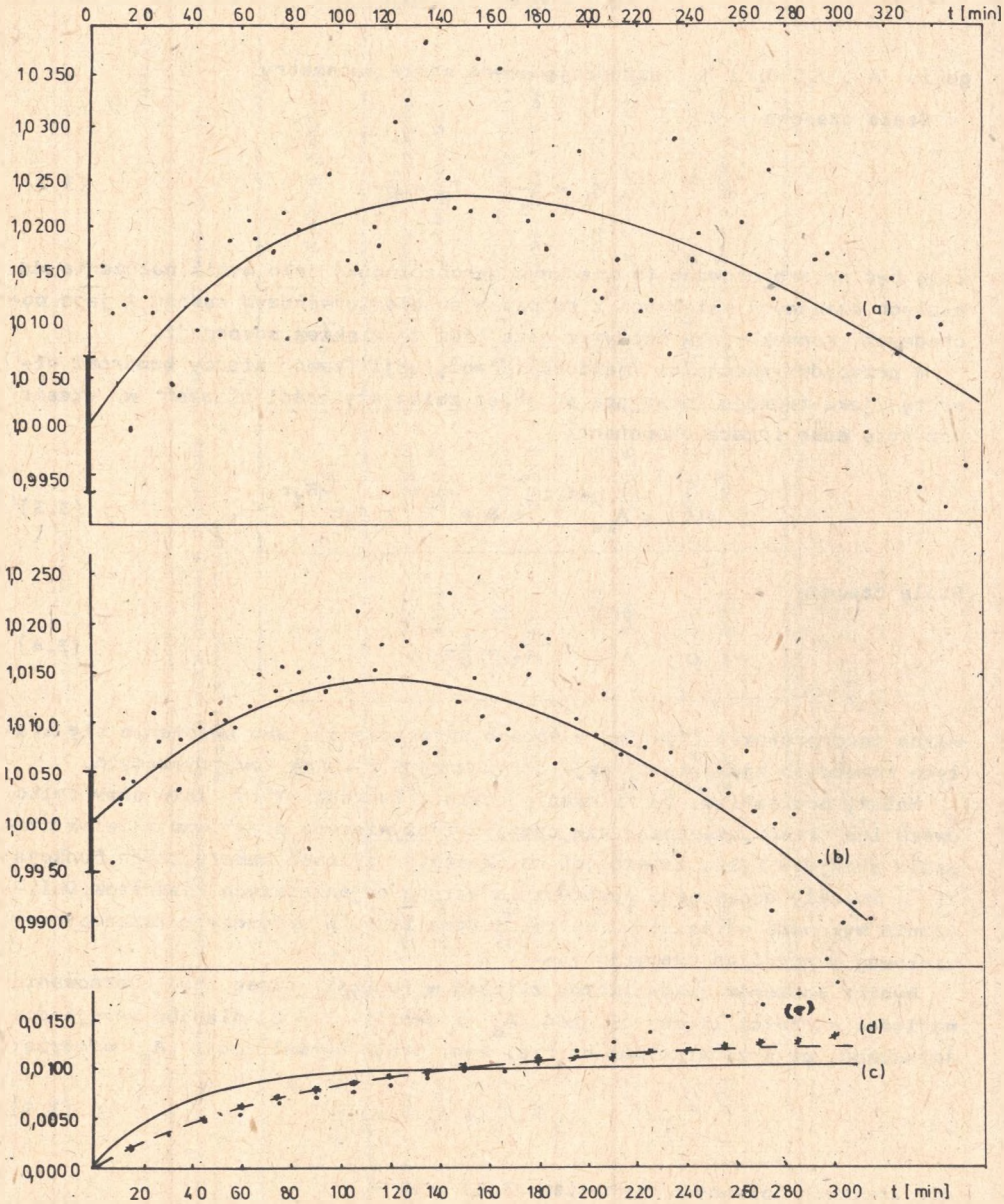
Wyniki pomiarów zmian liczby zliczeń w funkcji czasu po unormowaniu względem wartości liczby zliczeń A_o w chwili $t = 0$, dla obu wersji doświadczeń, są przedstawione na rys. 1-4. Stałe normalizacji A_o wynoszą:

$$A_o = A_1 + A_2 + A_3 \tag{3.5}$$

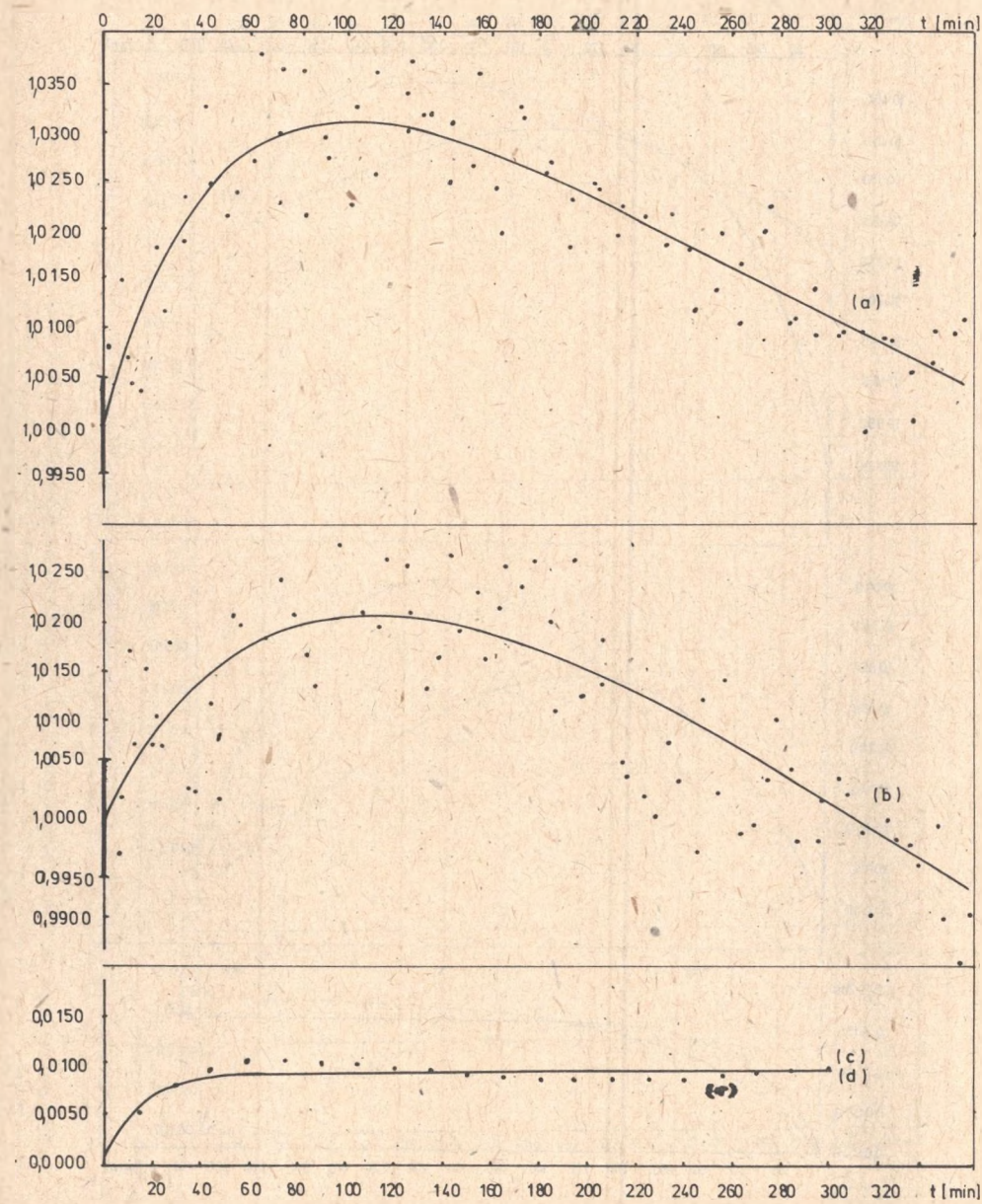
dla krzywych opisanych równaniem (3.3) oraz

$$A_o = A_1 + A_2 \tag{3.6}$$

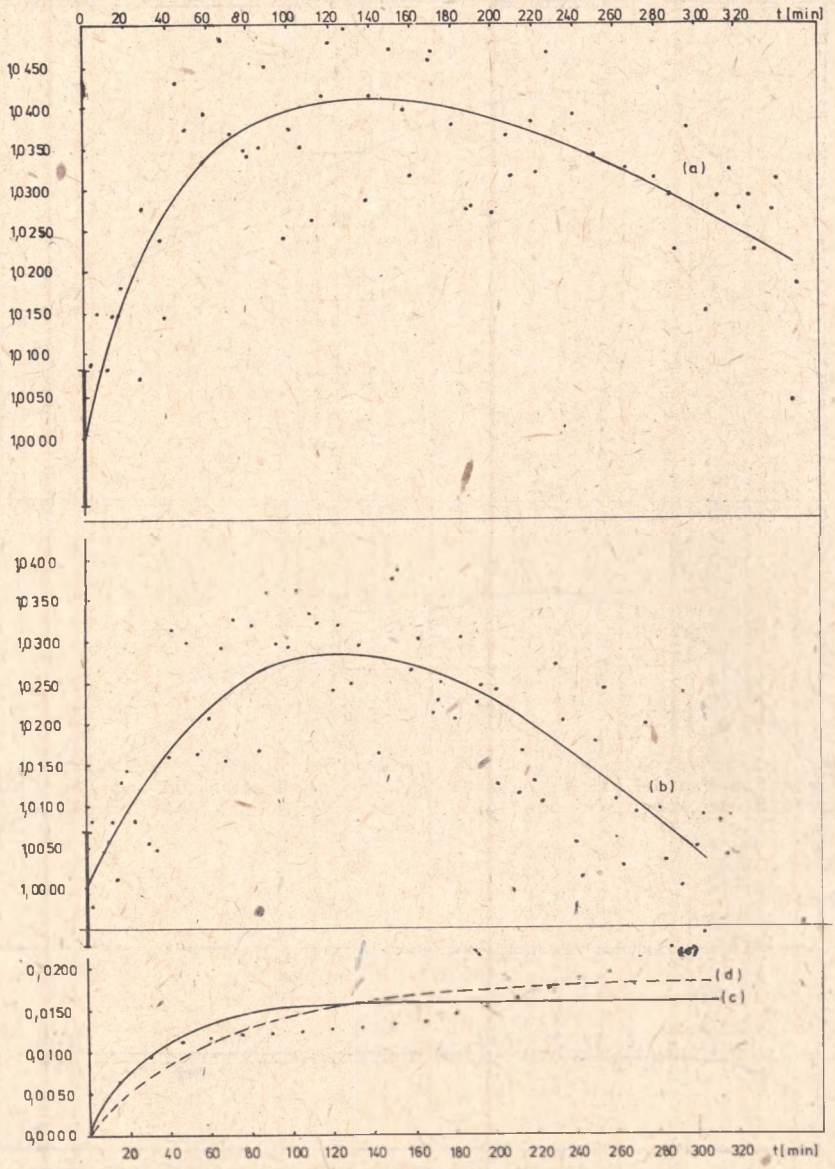
w przypadku krzywych opisanych równaniem (3.1).



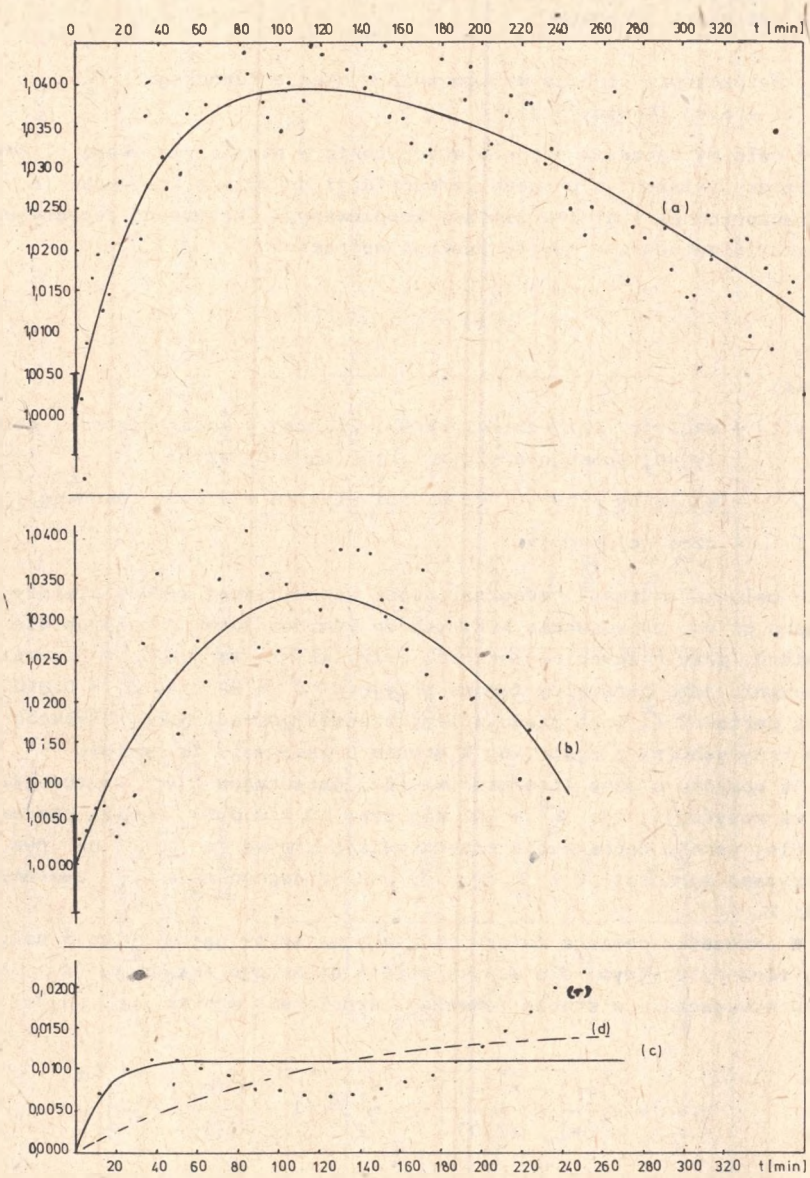
Rys. 1. Pomiar 1. Względne zmiany szybkości zliczeń
(a) - w obecności zjawiska termodyfuzji, (b) - brak zjawiska termodyfuzji, (r) - różnica krzywych (a) i (b), (c) i (d) - krzywe dopasowane do (r) dla różnych wartości τ^o i Q^o



Rys. 2. Pomiar 2. Względne zmiany szybkości zliczeń
(a) - w obecności zjawiska termodyfuzji, (b) - brak zjawiska termodyfuzji, (r) - różnica krzywych (a) i (b), (c) i (d) - krzywe dopasowane do (r) dla różnych wartości τ^o i Q^o



Rys. 3. Pomiar 3. Względne zmiany szybkości zliczeń
(a) - w obecności zjawiska termodyfuzji, (b) - brak zjawiska termodyfuzji, (r) - różnica krzywych (a) i (b), (c) i (d) - krzywe dopasowane do (r) dla różnych wartości τ^{o} i Q^{o}



Rys. 4. Pomiar 4. Względne zmiany szybkości zliczeń

(a) - w obecności zjawiska termodyfuzji, (b) - brak zjawiska termodyfuzji, (r) - różnica krzywych (a) i (b), (c) i (d) - krzywe dopasowane do (r) dla różnych wartości τ^{o} i Q^{o}

Podwójną wartość dyspersji dopasowania krzywych zaznaczono na wykresach odcinkami pionowymi.

3.2. Wyznaczenie stopnia wzbogacenia w stanie równowagi i stałej termodyfuzji

W celu wyznaczenia stopnia wzbogacenia w stanie równowagi i ewentualnie czasu relaksacji procesu termodyfuzji do różnic krzywych (a) i (b) zaznaczonych na rys. 1-4 liniami kropkowanymi (krzywe r) dopasowywano numerycznie metodę iteracyjną funkcji postaci

$$y(t) = Q(1 - e^{-t/\tau}) \tag{3.7}$$

gdzie:

$y(t)$ - względny przyrost szybkości zliczeń w małej komorze termodyfuzyjnej spowodowany zjawiskiem termodyfuzji,

Q - względny przyrost szybkości zliczeń w stanie równowagi,

τ - czas relaksacji.

W celu sprawdzenia jednoznaczności zastosowanej metody iteracyjnej wykonano po dwa dopasowania krzywych do wyników doświadczalnych dla każdego pomiaru, przy różnych parametrach przybliżenia zerowego. W pierwszym dopasowaniu jako parametry zerowe przyjęto τ^o = 50 min, Q^o = 0.0100. Przyjęta wartość τ^o jest rzędu stałej czasowej określającej szybkość narastania krzywych (r) z rys. 1-4. W drugim dopasowaniu za wartość τ^o przyjęto, w oparciu o dane literaturowe [5], czas rzędu czasu relaksacji procesu termodyfuzji, tj. τ^o = 150 min oraz Q = 0.0250. Wyniki pierwszej i drugiej wersji dopasowania przedstawiają krzywe (c) i (d) na rys. 1-4, a otrzymane wartości Q i τ oraz dysperse dopasowania S_y zestawiono w tabeli 2.

W przypadku pomiaru zmiany składu mieszaniny gazów tylko w małym naczyniu termodyfuzyjnym, dla małych stężeń cięższego składnika ($X_1 \ll X_2$), stopień wzbogacenia w stanie równowagi wyraża się wzorem (np. [6]):

$$q(\infty) = \frac{X_1^1(\infty)}{X_1^2(\infty)} = \frac{X_1^1(\infty)}{X_1^1(0)}\left[1 + \frac{V_1T_2}{V_2T_1}\left(1 - \frac{X_1^1(\infty)}{X_1^1(0)}\right) + \Delta\right]^{-1} \tag{3.8}$$

gdzie:

$X_1^1(\infty)$, $X_1^1(0)$ - stężenia cięższego składnika (radonu) w stanie równowagi w małej komorze,

V_1, V_2 - objętości komór,

Tabela 2

Parametry dopasowanych krzywych według równania (3.7) oraz wyznaczone wartości stopnia wzbogacenia i stałej termodyfuzji dla mieszaniny $Rn-CO_2$

Mniejszym stałym czasowym odpowiadają parametry zerowe $\tau^o = 50$ min, $Q^o = 0.0100$, większym - $\tau^o = 150$ min, $Q^o = 0.0250$.

Nr pomiaru	T [°K]	Q	τ [min]	S_y [10^2]	q(∞)	α	$\bar{q}(\infty)$	$\bar{\alpha}$
1	337,5	0,0100	32,1	0,3542	1,011	0,038	1,012	0,042
		0,0128	98,6	0,0273	1,014	0,047		
2	338,9	0,0093	15,3	0,0705	1,010	0,034	1,010	0,034
3	339,5	0,0161	30,9	0,3128	1,017	0,050	1,018	0,054
		0,0186	68,5	0,2520	1,020	0,059		
4	339,3	0,0109	11,5	0,3904	1,012	0,036	1,015	0,044
		0,0164	118,2	0,4118	1,018	0,053		

T_1, T_2 - temperatury komór,

Δ - pewna niewielka poprawka na objętość gazu w rurce termodyfuzyjnej.

W obecnych warunkach eksperymentalnych stosunek $X_1^1(\infty)/X_1^1(0)$ wynosi:

$$\frac{X_1^1(\infty)}{X_1^1(0)} = Q + 1 \tag{3.9}$$

Zatem, bez uwzględnienia niewielkiej poprawki Δ, stopień wzbogacenia w stanie równowagi jest opisany wyrażeniem

$$q(\infty) = \frac{1 + Q}{1 - Q \times \frac{V_1 T_2}{V_2 T_1}} \tag{3.10}$$

Stałą termodyfuzji α wyznaczano ze wzoru [7]

$$\alpha = \frac{\ln q(\infty)}{\ln(T_2/T_1)}. \tag{3.11}$$

Wartości $q(\infty)$ oraz α, dla wartości Q otrzymanych z różnych dopasowań są podane w tabeli 2. W tabeli tej podano również średnie wartości stopnia wzbogacenia $\bar{q}(\infty)$ i stałej termodyfuzji $\bar{\alpha}$ z obu dopasowań.

Przy założeniu, że zależność α od temperatury ma postać [6-8]:

$$\alpha_T = A' - B'/T \tag{3.12}$$

wartość α zmierzoną przy temperaturach komór T_1 i T_2 można przypisać temperaturze określonej wyrażeniem

$$\bar{T} = \frac{T_1 T_2}{T_2 - T_1} \ln(T_2/T_1) \tag{3.13}$$

We wszystkich czterech pomiarach różnice wartości T wynoszą co najwyżej 2^oK (tj. około 0,6%). Wynika stąd, że wyznaczone wartości $\bar{\alpha}$ z poszczególnych pomiarów w granicach błędu można przypisać temperaturze T równej średniej wartości $\bar{T}$ ze wszystkich pomiarów. Wartość α_T odpowiadająca temperaturze T będzie średnią wartością wielkości $\bar{\alpha}$ ze wszystkich czterech pomiarów.

Zatem wyznaczona eksperymentalnie wartość stałej termodyfuzji dla mieszaniny gazów $Rn-CO_2$, przy śladowym stężeniu radonu, w temperaturze

$$\Phi\ T = 338{,}8^oK$$

wynosi:

$$\alpha_T = 0{,}044 \pm 0{,}004.$$

4. Podsumowanie

Spowodowana własnościami konstrukcyjnymi komór konieczność ograniczenia się w eksperymentach do stosunkowo małej różnicy temperatur komór termodyfuzyjnych spowodowała, że obserwowane wzbogacenie mieszaniny w radon było niewielkie. Efekt wzbogacenia niewiele większy od 1% był obserwowany w obecności "tła" tego samego rzędu (maksymalny względny przyrost szybkości zliczeń w małej komorze pod nieobecność zjawiska termodyfuzji wynosił około 2%).

Zastosowana metodyka przeprowadzenia eksperymentów, pozwalająca na wyeliminowanie trudnych do ilościowego ujęcia zjawisk adsorpcji i resorpcji radonu i jego pochodnych na ściankach komór, dała w efekcie końcowym zadowalającą reprodukowalność wyników pomiaru stopnia wzbogacenia i stałej termodyfuzji. Jeżeli założyć, że zastosowany model matematyczny jest wystarczająco dokładny, a charakterystyczny kształt krzywych doświadczalnych wywołany jest zjawiskiem dyfuzji termicznej oraz zjawiskami ubocznymi, dwukrotna aproksymacja przyrostu szybkości zliczeń krzywymi relaksacyjnymi o kilkakrotnie różniących się czasach relaksacji pozwala określić maksymalny błąd pojedynczego pomiaru. Błąd ten waha się w granicach od 10% do 18% w zależności od pomiaru.

LITERATURA

[1] PAZDUR A.: Wyznaczenie stałej termodyfuzji w mieszaninie gazów Rn-CO_2. Inst. Fiz. Pol. Śl. Gliwice, 1977.

[2] BLUSZCZ A.: Fizyczne problemy pomiaru bardzo niskich koncentracji radonu przy pomocy licznika proporcjonalnego. Inst. Fiz. Pol. Śl. Gliwice, 1976.

[3] BRANDT S.: Metody obliczeniowe analizy danych. PWN, Warszawa 1975.

[4] WHITE III J.J.: Appl. Phys. 5, 57 (1974).

[5] LONSDALE H.K., MASON E.A.: J. Phys. Chem., 61, 1544 (1957).

[6] ANNIS B.K., HUMPHREYS A.E.: Phys. Fluids, 11, 2122 (1968).

[7] HUMPHREYS A.E., MASON E.A.: Phys. Fluids, 13, 65 (1970).

[8] PAL A.K. et al.: J. Phys. B. Atom. Molec. Phys. 7, 178 (1974).

ИЗМЕРЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТА ТЕРМОДИФФУЗИИ
В БИНАРНОЙ ГАЗОВОЙ СМЕСИ $Rn-CO_2$

Р е з ю м е

Представлено методику измерений коэффициента термодиффузии в бинарной газовой смеси $Rn-CO_2$ метод нумерической обработки результатов измерений и полученные экспериментальные результаты определения степени равновесного обогащения и коэффициента термодиффузии в исследуемой смеси.

MEASUREMENT OF THERMAL DIFFUSION CONSTANT IN $^{222}Rn-CO_2$
GAS MIXTURE

S u m m a r y

The experimental procedure and mehtod of statistical analysis of results of measurements of thermal diffusion constant is presented. The values of steady-state enrichment coefficient and thermal diffusion constant determined for $^{222}Rn-CO_2$ are given.

Wpłynęło do Redakcji 20.XII.1977 r.

Recenzent

Doc. dr hab. inż. Andrzej Zastawny