

Reinhold Fürth

Zur Theorie der Diffusion radioaktiver Stoffe

Časopis pro pěstování matematiky a fysiky, Vol. 66 (1937), No. 2, 123--130

Persistent URL: <http://dml.cz/dmlcz/121489>

## Terms of use:

© Union of Czech Mathematicians and Physicists, 1937

Institute of Mathematics of the Academy of Sciences of the Czech Republic provides access to digitized documents strictly for personal use. Each copy of any part of this document must contain these *Terms of use*.



This paper has been digitized, optimized for electronic delivery and stamped with digital signature within the project *DML-CZ: The Czech Digital Mathematics Library* <http://project.dml.cz>

# ČÁST FYSIKÁLNÍ.

## Zur Theorie der Diffusion radioaktiver Stoffe.

Reinhold Fürth, Prag.

Aus dem physikalischen Institut der deutschen Universität in Prag.  
(Eingegangen am 1. Dezember 1936.)

Bringt man eine dünne Schicht einer radioaktiven,  $\alpha$ -strahlenden Substanz  $A$  auf die Oberfläche einer Platte aus einer inaktiven, festen Substanz  $B$ , dann kann die Diffusion von  $A$  in  $B$  durch die Messung der zeitlichen Abnahme der Intensität der  $\alpha$ -Strahlung über der Platte mittels einer Zählvorrichtung für  $\alpha$ -Teilchen oder mittels einer Ionisationskammer untersucht werden. Die Theorie dieser von Hevesy und seinen Mitarbeitern angewendeten Methode wird entwickelt. Eine zweite Methode beruht darauf, daß in der Platte  $B$  eine langlebige, radioaktive Substanz  $C$  gleichmäßig verteilt ist, die ein kurzlebige aktives Zerfallsprodukt  $A$  liefert; die Menge des aus der Plattenoberfläche ins Vakuum diffundierenden Substanz  $A$  wird gemessen. Auch für diese Versuchsanordnung wird die Theorie entwickelt, sodaß man aus den erwähnten Messungen den Diffusionskoeffizienten von  $A$  in  $B$  berechnen kann.

### 1.

Der Untersuchung der Diffusion radioaktiver in nicht aktive Stoffe kommt deshalb eine große Bedeutung zu, weil die Messung der Strahlungsintensität ein sehr bequemes und einfaches Hilfsmittel zur genauen Bestimmung sehr kleiner Konzentrationen der diffundierenden Substanz darstellt. Es kann daher insbesondere dann Verwendung finden, wenn die Diffusion sehr langsam erfolgt, sodaß in solchen Entfernungen von der Ausgangsschicht, die der Messung zugänglich sind, in Diffusionszeiten brauchbarer Länge die Konzentration der diffundierenden Substanz viel zu klein wäre, als daß sie mit den sonst in der Diffusionsmesstechnik üblichen Methoden gemessen werden könnte. Dieser Fall liegt bei der Diffusion in festen Körpern bei normalen Temperaturen vor. Gerade hier ist nun die experimentelle Bestimmung von Diffusionskoeffizienten und ihrer Abhängigkeit von der Temperatur von großer Bedeutung, da sich hieraus auf die Bindungsverhältnisse der Atombausteine im Krystallgitter des Festkörpers schließen läßt. Daher ist die Diffusion in festen Körpern in neuerer Zeit sehr häufig von verschiedenen Forschern untersucht worden. Hevesy

und seine Mitarbeiter<sup>1)</sup> haben mit großem Erfolg solche Untersuchungen mit radioaktiven Körpern als diffundierenden Substanzen ausgeführt. Dabei hat man auch noch den Vorteil durch Verwendung eines radioaktiven Isotops des inaktiven Festkörpers als diffundierende Substanz den Koeffizienten der „Selbstdiffusion“ seiner Atome messen zu können.

Auf Ersuchen von Herrn Hevesy und seiner Mitarbeiter habe ich zum Teil bereits vor einigen Jahren, zum Teil in neuerer Zeit die Theorie für verschiedene Meßanordnungen ausgebaut, die zur Messung des Diffusionskoeffizienten bei den erwähnten Versuchen dienen können und sich zum Teil auch schon sehr gut bewährt haben. Sie mögen im Folgenden kurz mitgeteilt werden.

## 2.

Die radioaktive  $\alpha$ -strahlende Substanz  $A$  werde in einer sehr dünnen Schicht auf die Oberfläche einer Platte aus der zu untersuchenden inaktiven Substanz  $B$  gebracht. Die Reichweite der  $\alpha$ -Strahlen von  $A$  in  $B$  sei gleich  $a$ . Mit einer geeigneten Szintillations- oder Zählrohrvorrichtung läßt sich die Anzahl  $n$  der  $\alpha$ -Teilchen zählen, die pro Zeiteinheit aus der Flächeneinheit der Platte nach oben austreten. Da die radioaktiven Atome durch Diffusion allmählich in die Platte eindringen, wird  $n$  im Laufe der Zeit abnehmen, da diejenigen  $\alpha$ -Teilchen vom Zähler nicht registriert werden, die in  $B$  eine größere Strecke als  $a$  zurücklegen müssten. Wir wollen die Funktion  $n(t)$  ermitteln.

Befindet sich ein Atom von  $A$  zur Zeit seines Zerfalles in einer Tiefe  $x$  unter der Plattenoberfläche, dann wird das von ihm ausgeschleuderte  $\alpha$ -Teilchen offenbar nur dann die Plattenoberfläche verlassen können, wenn die beiden Ungleichungen

$$x \leq a, \quad \cos \varphi \leq x/a \quad (1)$$

erfüllt sind, worin  $\varphi$  den Winkel zwischen der  $\alpha$ -Strahlrichtung und der Plattennormalen bedeutet. Da die Strahlung, die von einem kleinen Volumenelement  $dV$  ausgeht, nach allen Richtungen gleich stark ist, bedeutet die zweite der obigen Ungleichungen, daß von der Gesamtstrahlung aus  $dV$  nur der Bruchteil

$$\varepsilon = \frac{2\pi a (a - x)}{4\pi a^2} = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{x}{a}\right) \quad (2)$$

in die Zählvorrichtung gelangt. Für ein Volumenelement an der Plattenoberfläche gilt

$$\varepsilon_0 = \frac{1}{2}. \quad (2')$$

Auf Grund einer bekannten Formel der Diffusionstheorie ist die Menge  $c(x, t) dx$  von  $A$ , die in einer Schicht von der Fläche

Eins und der Dicke  $dx$  in der Tiefe  $x$  unter der Plattenoberfläche zur Zeit  $t$  enthalten ist, bezogen auf die Substanzmenge auf der Flächeneinheit der Oberfläche zur Zeit Null gleich

$$c(x, t) dx = \frac{1}{\sqrt{\pi Dt}} e^{-\frac{x^2}{4Dt}} dx, \quad (3)$$

worin  $D$  den Diffusionskoeffizienten von  $A$  in  $B$  bedeutet. Hierbei ist schon berücksichtigt, daß die Diffusion aus der Oberflächenschicht nur einseitig nach unten aber nicht nach oben erfolgen kann.

Da die Gesamtstrahlung aus dem Volumenelement  $dV$  der Größe  $c$  proportional ist, folgt wegen (1), (2), (2') und (3)

$$f(t) = \frac{n(t)}{n(0)} = \frac{1}{\varepsilon_0} \int_0^a \varepsilon \cdot c(x, t) dx = \frac{1}{\sqrt{\pi Dt}} \int_0^a \left(1 - \frac{x}{a}\right) e^{-\frac{x^2}{4Dt}} dx. \quad (4)$$

Führt man die Größe

$$\xi = \frac{a}{2\sqrt{Dt}} \quad (5)$$

ein, sowie die Gaußsche Fehlerfunktion

$$\psi(y) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^y e^{-u^2} du, \quad (6)$$

dann erhält man nach einfacher Rechnung aus (4)

$$f = \psi(\xi) - \frac{1}{\xi\sqrt{\pi}} (1 - e^{-\xi^2}). \quad (7)$$

Nach (7) kann  $f$  als Funktion von  $\xi$  graphisch oder tabellarisch dargestellt werden. Ist dann  $f$  durch Messung bekannt, dann kann hieraus  $\xi$  und damit nach (5) bei bekanntem  $a$  das gesuchte  $D$  bestimmt werden.

Die Theorie kann offensichtlich auch dann angewendet werden, wenn nach Hevesy statt der  $\alpha$ -Strahlung die „Rückstoßstrahlung“ von  $A$  gemessen wird, indem die aus der Plattenoberfläche austretenden Rückstoßatome durch ein elektrisches Feld gesammelt werden und ihre Menge durch die von ihnen ausgehende  $\alpha$ - oder  $\beta$ -Strahlung ermittelt wird.

### 3.

Wir wollen nun annehmen, daß die aus der Platte austretenden  $\alpha$ -Teilchen nicht einzeln gezählt, sondern die Ionisation gemessen wird, die sie in dem Gasraum oberhalb der Platte hervorrufen.

Wir müssen dann zunächst berechnen, wieviele Ionen durch einen  $\alpha$ -Strahl gebildet werden, der aus der Tiefe  $x$  unter der Plattenoberfläche unter dem Winkel  $\varphi$  gegen die Plattennormale abgeschossen wurde.

Es sei  $\nu(z) dz$  die Ionenzahl, die auf der Strecke zwischen  $z$  und  $z + dz$  vom Beginn der  $\alpha$ -Strahlbahn gerechnet, erzeugt wird. Dabei soll das Stück der  $\alpha$ -Strahlbahn, das im Gasraum verläuft, auf eine äquivalente Strecke in der Substanz  $B$  umgerechnet sein (durch Multiplikation mit dem Verhältnis der entsprechenden Reichweiten). Da die in  $B$  zurückgelegte Strecke gleich ist  $x/\cos \varphi$ , so ist die gesuchte Ionenzahl gleich

$$\int_{x/\cos \varphi}^a \nu(z) dz = F(a) - F\left(\frac{x}{\cos \varphi}\right), \quad (8)$$

worin zur Abkürzung die Funktion

$$F(y) = \int_0^y \nu(z) dz \quad (9)$$

eingeführt ist.

Da wieder die Bedingung (1) in Geltung ist, folgt mit Benützung von (8) an Stelle von (2)

$$\begin{aligned} \varepsilon(x) &= 2\pi \int_0^{\arccos \frac{x}{a}} \sin \varphi \left[ F(a) - F\left(\frac{x}{\cos \varphi}\right) \right] d\varphi : 4\pi \cdot F(a) = \\ &= \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{x}{a} \right) - \frac{x}{2F(a)} \int_x^a \frac{1}{y^2} \cdot F(y) dy, \end{aligned} \quad (10)$$

während (2') natürlich in Geltung bleibt. An Stelle von (4) folgt daher

$$f = \frac{1}{\varepsilon_0} \int_0^a \varepsilon(x) \cdot c(x, t) dx = \frac{4\xi}{a\sqrt{\pi}} \int_0^a \varepsilon(x) e^{-\frac{x^2 \xi^2}{a^2}} dx, \quad (11)$$

worin für  $\varepsilon$  aus (10) einzusetzen ist.

Ist die Funktion  $\nu(z)$  bekannt, dann läßt sich zunächst aus (9) die Funktion  $F(y)$  und daraus weiter nach (10) die Funktion  $\varepsilon(x)$  auf numerischem oder graphischem Wege ermitteln. Aus (11) läßt sich dann schließlich die Funktion  $f(\xi)$  auf die gleiche Weise berechnen und graphisch oder tabellarisch darstellen. Der weitere Vorgang ist dann der gleiche wie oben unter 2.

Eine besondere Vereinfachung der Formel (11) ergibt sich, wenn  $\nu$  von  $z$  unabhängig ist (was im allgemeinen allerdings nicht der Fall sein wird). Aus (9) wird dann

$$F(y) = \nu \cdot y \quad (9')$$

und aus (10)

$$\varepsilon(x) = \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{x}{a} \right) + \frac{x}{2a} \log \frac{x}{a}, \quad (10')$$

sodaß an Stelle von (11) gilt

$$f = \varphi(\xi) - \frac{1}{\xi \sqrt{\pi}} [(1 - e^{-\xi^2}) (1 + \log \xi) - \varphi(\xi)], \quad (12)$$

worin  $\varphi$  die transzendente Funktion

$$\varphi(\xi) = \frac{1}{2} \int_0^{\xi^2} \log u \cdot e^{-u} du \quad (13)$$

bedeutet.

#### 4.

Um die Rechenarbeit zu vermeiden, die mit der Auswertung der Resultate mittels der unter 3. entwickelten Formeln verbunden ist, kann der Versuch so abgeändert werden, daß durch ein geeignetes Blendensystem von allen aus der Platte austretenden Strahlen nur die in die Ionisationskammer eintreten können, die die Platte nahezu normal zu ihr verlassen haben. Die Eintrittsblende in die Kammer habe die Entfernung  $b$  von der Platte (wiederum in äquivalentem Maß gemessen).

An Stelle von (10) gilt dann einfacher

$$\frac{\varepsilon(x)}{\varepsilon_0} = \frac{F(a) - F(x + b)}{F(a) - F(b)},$$

sodaß statt (11) die folgende Beziehung herauskommt

$$f = \frac{1}{F(a) - F(b)} \left\{ F(a) \cdot \varphi(\xi) - \frac{2\xi}{a\sqrt{\pi}} \int_0^a F(x + b) e^{-\frac{x^2}{a^2} \xi^2} dx \right\}, \quad (15)$$

die eine leichtere Auswertung ermöglicht.

#### 5.

Während bei den im Vorhergehenden behandelten Fällen die Diffusion einer radioaktiven Substanz aus einer Oberflächenschicht ins Innere eines inaktiven Festkörpers untersucht wurde, soll nun die Diffusion einer radioaktiven Substanz aus dem Festkörper betrachtet werden. Der feste Körper  $B$  bestehe aus einer

Platte, deren eine ebene Begrenzungsfläche an ein Vakuum angrenze, in das hinein die Diffusion des Stoffes  $A$  erfolge. Durch eine entsprechende Umhüllung der Platte an den anderen Begrenzungsflächen sei dafür gesorgt, daß durch diese keine Diffusion von  $A$  erfolgen kann. Die Dicke der Platte sei so groß gewählt, daß während der Beobachtungszeit praktisch keine Änderung der Konzentration von  $A$  an der vom Vakuum abgewendeten Seite der Platte zu beobachten ist. Gemessen werde die Menge  $Q$  von  $A$ , die aus der Flächeneinheit der Begrenzungsfläche der Platte in der Zeiteinheit ins Vakuum diffundiert. Die Substanz  $A$  soll dauernd aus einer dritten Substanz  $C$  entstehen, die den Körper  $B$  mit konstanter Konzentration erfüllt. Es werde angenommen, daß die Zerfallszeit von  $C$  gegenüber der von  $A$  sehr groß sei, sodaß während der Beobachtungszeit keine Änderung in der gleichmäßigen Verteilung von  $C$  zu bemerken ist. Es findet demnach auch keine Diffusion von  $C$  in  $A$  statt.

Entsprechend den oben formulierten Bedingungen wollen wir annehmen, daß der Körper  $A$  den positiven Halbraum vollkommen erfülle und an der Ebene  $x = 0$  an das Vakuum angrenze. Die konstante Konzentration von  $C$  sei  $C$ , die variable Konzentration von  $A$  sei  $c(x, t)$ . Die Zerfallskonstante von  $C$  sei  $\Lambda$ , die von  $A$  sei  $\lambda$ . Das Verhältnis der Atomgewichte von  $A$  und  $C$  sei gleich  $\alpha$ .

In einer unendlich dünnen Schicht von der Dicke  $dx$  und der Fläche Eins beträgt der Massenzuwachs von  $A$  infolge des Zerfalls von  $C$  in der Zeit  $dt$ :  $\Lambda\alpha C \cdot dx dt$  und der Massenverlust infolge seines eigenen Zerfalles:  $\lambda c dx dt$ . Der Massenzuwachs von  $A$  infolge seiner Diffusion beträgt, wie aus der Diffusionstheorie bekannt ist, da  $c$  nur von einer Koordinate  $x$  abhängt:  $D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} dx dt$ .

Der gesamte Massenzuwachs von  $A$  ist also schließlich

$$\left( D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \alpha \Lambda C - \lambda c \right) dx dt. \quad (16)$$

Andererseits muß dieser auch gleich sein:

$$\frac{\partial c}{\partial x} dx dt. \quad (17)$$

Durch Gleichsetzen der Ausdrücke (16) und (17) ergibt sich die Differentialgleichung

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \alpha \Lambda C - \lambda c, \quad (18)$$

die unter der Randbedingung

$$c = 0 \text{ für } x = 0 \quad (17)$$

zu integrieren ist.

Wir wollen uns mit der stationären Lösung dieser Gleichung begnügen, die sich ohne weiteres auf die zu behandelnde Aufgabe anwenden läßt, wenn man mit der Messung von  $Q$  so lange wartet, bis sich stationäre Verhältnisse eingestellt haben. Es gilt dann an Stelle von (18) die Gleichung

$$D \frac{d^2c}{dx^2} + \alpha AC - \lambda c = 0, \quad (20)$$

deren allgemeine Lösung lautet

$$c = Ae^{\sqrt{\frac{\lambda}{D}}x} + Be^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D}}x} + \frac{\alpha AC}{\lambda}. \quad (21)$$

Da  $c$  sicherlich überall endlich sein muß, gilt zunächst  $A = 0$  und weiter wegen der Randbedingung (10):  $B = -\frac{\alpha AC}{\lambda}$ . Aus (21) wird daher

$$c = \frac{\alpha AC}{\lambda} (1 - e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D}}x}). \quad (22)$$

Das gesuchte  $Q$ , die Diffusionsstromdichte an der Ebene  $x = 0$  ergibt sich aus

$$Q = D \left( \frac{dc}{dx} \right)_{x=0} \quad (23)$$

mit Benützung von (22) zu

$$Q = \frac{\alpha AC}{\sqrt{\lambda}} \cdot \sqrt{D}. \quad (24)$$

Da  $\alpha$ ,  $\lambda$ ,  $A$  und  $C$  bekannt sind, läßt sich durch Messung von  $Q$  auch der gesuchte Diffusionskoeffizient  $D$  bestimmen.

Prag, im November 1936.

\*

### K teorii difuze radioaktivních látek.

(Obsah předešlého článku.)

Vpravíme-li tenkou vrstvu nějaké radioaktivní látky  $A$ , vysílající záření  $\alpha$ , na povrch desky z neaktivní pevné látky  $B$ , pak můžeme vyšetřovati průběh difuze  $A$  do  $B$  tím, že měříme časové klesání intensity záření  $\alpha$  nad deskou buď nějakým zařízením

pro počítání částic  $\alpha$  nebo ionizační komorou. Této metody užil Hevesy a jeho spolupracovníci; její teorie je předmětem předešlého článku. Jiná metoda záleží v tom, že se v celé desce  $B$  rozdělí stejněměrně nějaká dlouhodobá radioaktivní látka  $C$ , jejímž rozpadem vzniká aktivní produkt  $A$ , který se rychle rozpadá; měří se množství látky  $A$  difundující z jedné rovinné stěny desky do okolního vakua. Také teorie tohoto pokusu je podána, takže možno z těchto měření vypočísti koeficient difuze látky  $A$  do  $B$ .

---