

# Časopis pro pěstování matematiky a fyziky

---

František Běhounek

Nová metoda kvantitativního určení radonu (radiové emanace) v atmosféře

*Časopis pro pěstování matematiky a fyziky*, Vol. 55 (1926), No. 1, 61--67

Persistent URL: <http://dml.cz/dmlcz/121056>

## Terms of use:

© Union of Czech Mathematicians and Physicists, 1926

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>

## Nová metoda kvantitativního určení radonu (radiové emanace) v atmosféře.<sup>1)</sup>

František Běhounek.

**Úvod.** Kvantitativní měření obsahu atmosféry na radon používalo dosud dvojí metodiky, a to buď přímého určení obsahu radonu absorpcí téhož v kokosovém uhlí,<sup>2)</sup> eventuelně kondensováním tekutým vzduchem,<sup>3)</sup> anebo měřením množství atomů indukované aktivity v atmosféře, odkud za předpokladu rovnovážného stavu mezi rozpadovými produkty a radonem jest množství téhož odvozeno. Tento druhý způsob, ať již používá metody aspirační k určení obsahu atmosféry na počet atomů indukované aktivity,<sup>4)</sup> anebo metody aktivního drátu<sup>5)</sup> (t. j. drátu nabitého na vysoký potenciál negativní a exponovaného po určitou dobu v atmosféře, na němž se tudíž indukovaná aktivita hromadí), není kvantitativním. V prvním případě intervenuje velmi hybnost atomů indukované aktivity, které jsou velmi náchylné ke tvoření těžkých, velmi málo pohyblivých agregátů<sup>6)</sup> často i neutrálních a tudíž vlivu elektrického pole při zpravidla používaném potenciálu buď částečně, anebo úplně unikajících. U metody aktivního drátu nelze přesně vymeziti obor působení elektrického pole a pohybu atmosféry, čímž mohou vznikati nekontrolovatelné chyby. Nejpřesnější výsledky poskytují obě metody stanovící přímo obsah radonu v atmosféře, avšak obě vyžadují laboratorního zařízení, prvá (absorpce v kokosovém uhlí) velmi dlouhé doby až 20 hodin, ježto pro kvantitativní absorpci radonu musí býti rychlost vzduchu, prosávaného kokosovým uhlím, velmi nízká; metoda používající kondensace radonu tekutým vzduchem vede rychleji k cíli, jmenovitě v modifikaci Olujičově<sup>7)</sup> a Wigandově,<sup>8)</sup> vyžaduje však tekutého vzduchu, neschopného delšího uschování.

**Nová metoda.** Výzkum radioaktivity vzduchu v Jáchymově jako příspěvek k teorii původu této radioaktivity<sup>9)</sup> předpokládá

<sup>1)</sup> Vyjde též v *Journal de Physique et le Radium*.

<sup>2)</sup> Eve, *Phil. Mag.* 1907, sv. 14, p. 724, 1908, sv. 16, p. 622, *Satterly*, *ibid.*, p. 584, 1910, sv. 20, p. 1, *Wright a Smith*, *Phys. Zts.*, 1914, p. 31.

<sup>3)</sup> *Satterly*, *loc. cit.*, *Ashman*: *Amer. Jour. of Sc.* 1908, p. 119.

<sup>4)</sup> *Kohlrausch*, *Wiener Ber. IIa*, 1906, sv. 115, p. 1263.

<sup>5)</sup> *Kurz*, *Habil. Schrift*, Mnichov, 1909 (*Techn. Hochschule*).

<sup>6)</sup> *Běhounek*, *Le Radium*, 1923, p. 77.

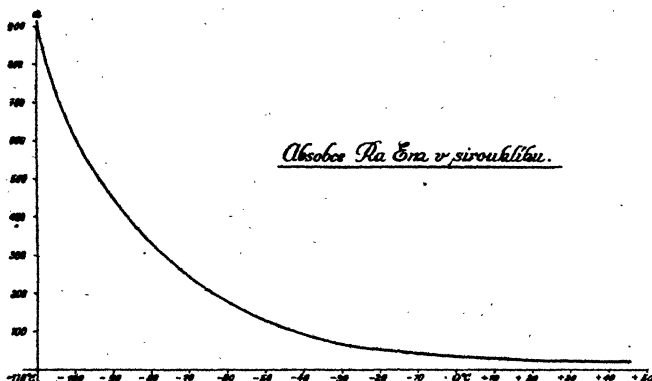
<sup>7)</sup> *Olujič*, *Jahrbuch Rad. El.*, 1918, p. 158.

<sup>8)</sup> *Wigand*, *Luftelektrische Untersuchungen bei Flugzeugaufstiegen*, Berlin, 1925, p. 36.

<sup>9)</sup> Bude předmětem zvláštní publikace.

v první řadě kvantitativní stanovení obsahu radonu ve vzduchu. Ježto použití tekutého vzduchu vzhledem k nesnadnému transportu by bylo bývalo pro serii analys velmi nákladné a technicky i značně obtížné, bylo nutno vypracovati jinou metodu než obě standardní metody dosud používané.

Použití metody kokosového uhlí nedoporučovala příliš dlouhá doba experimentu a nad to i kvantitativní chyby, které se častěji již při této metodě vyskytly.<sup>10)</sup> Zbývala tudíž jediná cesta, totiž použití vysoké absorpční schopnosti některých organických látek kapalných pro radon. Této metody použili již dříve Hofmann,<sup>11)</sup>



Obr. 1.

Mache a Rimmer,<sup>12)</sup> při čemž za absorpční medium sloužily uhlovodíky, v první řadě petrolej. Metoda nevedla však prakticky k cíli, ježto absorpční schopnost jest stále ještě příliš nízká u těchto látek; možno jimi absorbovati radon jen z malého kvanta vzduchu, takže ionizační efekt v měřicím aparátu jest jen řádu pozorovacích chyb a přesné změření tudíž vyloučeno. Při nové metodě byla hledána látka o vyšším absorpčním koeficientu než byl absorpční koeficient toluolu, který při Hofmannově uspořádání<sup>13)</sup> obnášel 66.69 pro teplotu  $-79^{\circ}$  a 11.76 při teplotě vzduchu v místnosti ( $20^{\circ}$  C). Zvolen byl sírouhlik, který po olivovém oleji má nejvyšší absorpční schopnost pro radon.<sup>14)</sup>

Meyer<sup>15)</sup> aplikoval na absorpci radonu v kapalinách obvyklý vztah platný pro absorpci jiných plynů v závislosti na teplotě, při normálním tlaku, totiž

$$\alpha = A + B \cdot e^{-\frac{1}{T}}$$

<sup>10)</sup> Wright a Smith, loc. cit.

<sup>11)</sup> Hofmann, Phys. Zts., 1905, p. 337.

<sup>12)</sup> Mache-Rimmer, Phys. Zts., 1906, p. 617.

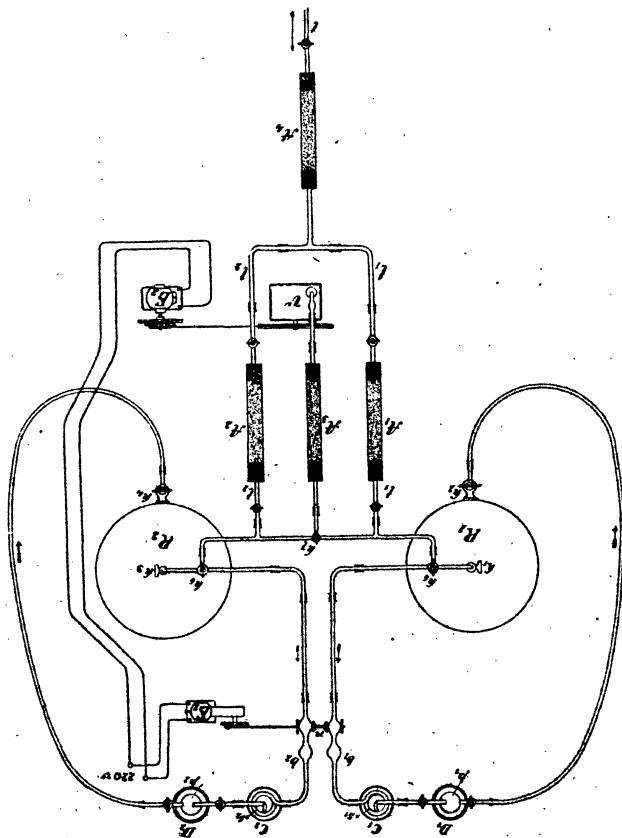
<sup>13)</sup> Loc. cit.

<sup>14)</sup> Meyer-Schweidler, Radioaktivität, 1916, p. 327.

<sup>15)</sup> Meyer, Wiener Ber., IIa, 1913, sv. 122, p. 1281.

kde  $a$  = absorpční koeficient,  $A$ ,  $B$ , a  $\nu$  jsou konstanty příslušný plyn a kapalinu charakterisující,  $\vartheta$  jest teplota v t. zv. korespondujících setinových stupních, t. j. vyjádřená v setinách intervalu mezi bodem tání a varu kapaliny.

Pro sirouhlík plyne z experimentů Ramstedtové <sup>16)</sup>  $A = 13$ ,  $B = 900$ ,  $\nu = 0,054$ . Teoretickou křivku, udávající závislost absorpce



Obr. 2.

radonu v sirouhlíku na teplotě, na základě této rovnice sestrojenou, předvádí obr. 1. Je z ní patrné rychlé stoupání absorpčního koeficientu s klesající teplotou. Na tomto základě byla vypracována metoda kvantitativního určení radonu v atmosféře. K ochlazení sirouhlíku bylo použito Thilorierovy směsi, t. j. směsi pevného  $\text{CO}_2$  a éteru, jejíž průměrná teplota obnáší  $-80^\circ \text{C}$ . Při této teplotě jest

<sup>16)</sup> Mlle Ramstedt, Le Radium, 1911, p. 253.

absorpční koeficient dle udaného vztahu roveň 328 a jest tudíž více jak čtrnáctkrát vyšší než absorpční koeficient při teplotě místnosti ( $\alpha = 23$ ). Oproti dosavadním metodám, při nichž analysovaný vzduch byl nepřetržitě prosován absorpčním ev. kondensujícím mediem, použito bylo u z a v ř e n é h o v o l u m u v z d u c h u, v němž týž cirkuloval sirouhlíkem, ochlazeným na  $-80^\circ \text{C}$ .

Experimentální uspořádání znázorňuje obr. čís. 2.  $R_1$  a  $R_2$  jsou dva válcové vzduchotěsné recipienty, zhotovené z 1 mm silného zinkového plechu, z nichž každý má objem 75 litrů. Opatřen jest každý 2 kohouty, z nichž jeden ( $K_1$  event.  $K_3$ ) namontován jest do středu horní základny, druhý pak ( $K_2$  ev.  $K_4$ ) na plášť těsně u základny dolní. Sirouhlík nalézá se ve dvou promývačkách,  $p_1$  a  $p_2$ , ponořených do Thilorierovy směsi v Dewarově nádobě  $D_1$  a  $D_2$ . Dolní kohouty recipientů jsou spojeny kaučukovou hadicí s jednou rourkou promývaček, která nezasahuje do vnitř téže. Horní kohouty jsou spojeny přes dvojcestné kohouty  $K_5$  ev.  $K_6$  a balonky  $b_1$  a  $b_2$  s druhou rourkou promývaček, sahajících až ke dnu promývačky. Balonky  $b_1$  a  $b_2$  jsou opatřeny příslušnými ventilky, takže po zmačknutí jich proudí vzduch jen jedním směrem, šipkou vyznačeným. Mačkání balonků děje se automaticky pomocí nárazníku  $n$ , poháněného elektromotorkem  $E_1$ , a rychlost cirkulace vzduchu možno tudíž regulovati.

Při experimentech používáno bylo rychlosti 3 až 5 litrů/min. při úhrnné cirkulační době 1 hodiny, což znamená při dvojitě pracujícím aparátu, že úhrnné kvantum vzduchu 150 litrů, obsažených v recipientech, projde 3 až 4krát sirouhlíkem. Při cirkulaci byl vzduch před příchodem do promývaček předběžně chlazen ve spirálách měděných  $s_1$  a  $s_2$ , ponořených do chladivé směsi, obsažené v nádobě  $C_1$  a  $C_2$ . Směs pozůstávala ze stejných váhových dílů sody, dusičnanu amonného a vody a snižovala teplotu vzduchu s teploty v místnosti ( $+18^\circ \text{C}$ ) na  $-4^\circ \text{C}$ .

Oba recipienty lze evakuovati pomocí vývěvy otočením kohoutů  $K_1$ ,  $K_5$ ,  $K_7$ ,  $K_6$  a  $K_3$  tak, aby recipienty komunikovaly pouze s vývěvou. Použito bylo olejové vývěvy americké Cenco-Hyvac, poháněné motorkem o 1/10 HP ( $E_2$ ). Celý objem 150 litrů byl během jedné hodiny vyčerpán na 12  $m/m$  Hg. Naplnění recipientů vnějším vzduchem dělo se dvěma cestami, totiž trubicí  $t$ , dělí se na  $t_1$  a  $t_2$  a trvalo pouhých 10 minut. Jak při čerpání, tak při plnění byl vzduch filtrován skleněnou vatou a sušen chloridem vápenatým, v absorpčních trubicích  $A_1$  až  $A_4$ .

Pochod každého experimentu byl následující: nejdříve vyčerpány oba recipienty až na 10  $mm$  Hg (kontrolováno zkráceným rtuťovým manometrem), načež naplněny vzduchem, jehož obsah radonu měl být zjištěn. Již před naplněním připraveny chladivé směsi a do obou promývaček dáno úhrnem 460  $cm^3$   $\text{CS}_2$ , absorbující při  $-80^\circ \text{C}$  radon ze 150 litrů vzduchu, aby zatím sirouhlík byl řádně

ochlazen na teplotu Thilorierovy směsi. Po naplnění obou recipientů vzduchem, vyžadujícím asi 10 minut a uzavření kohoutů od absorpčních rour  $A_1$  a  $A_2$  a kohoutu  $K_7$ , otočeny kohouty  $K_3$  a  $K_6$  tak, aby oba recipienty komunikovaly s cirkulačním systémem, načež tžž uveden do chodu.

Po dokončené cirkulaci vyjmuty obě promývačky z chladicí směsi a ve vodní lázni uvedeny na teplotu  $30^\circ \text{C}$ . Při této teplotě provedena postupně extrakce radonu a převedení téhož do ionizační komory. Tato byla předběžně evakuována na tlak  $< 1 \text{ mm Hg}$  a na to spojena s kratší rourkou promývačky, kdežto delší rourka téže, sahající až k jejímu dnu, byla spojena přes absorpční trubici obsahující chlorid vápenatý a skleněnou vatu s vnějším vzduchem.

Mezi promývačku a kondensátor (čili ionizační komoru) vepnuta byla malá promývačka, obsahující nasycený roztok hydroxydu draselného v alkoholu, za účelem absorpce sirouhlíkových par.<sup>17)</sup> Převádění radonu dalo se pak stupňovitě tak, že byl částečně otevřen spojovací kohout mezi kondensátorem a promývačkou, takže se tlak vzduchu mezi promývačkou a kondensátorem vyrovnal (vzduch při tom pomalu perlí sirouhlíkem a alkoholickým roztokem hydroxydu draselného), na to uzavřen a otevřen kohout mezi absorpční rourou a sirouhlíkem tak dlouho, dokud se uvnitř promývačky neobnovil atmosférický tlak, při čemž vzduch znovu proudí sirouhlíkem a strhuje s sebou radon. Na to celý pochod opakován tak dlouho, až tlak vzduchu uvnitř kondensátoru stoupnul na  $\frac{1}{2}$  atmosférického tlaku, načež celý pochod opakován pro druhou promývačku, až uvnitř kondensátoru se tlak vyrovnal na tlak atmosférický.

Při tomto způsobu převádění radonu do kondensátoru nelze teoreticky stanovit, jak velká část z radonu v  $\text{CS}_2$  absorbovaného byla do kondensátoru převedena a bylo tudíž nutno empiricky tuto stanovit.

Za tím účelem a současně za účelem zjištění účinnosti této nové metody, byl pokusně stanoven t. zv. koeficient užitkový. Použito bylo normálního roztoku o obsahu  $1,27 \cdot 10^{-7}$  gramu radia prvku, z něhož bylo kvantitativně převedeno do předběžně evakuovaných recipientů určité množství radonu, jehož velikost byla teoreticky zjištěna.<sup>18)</sup>

Po provedené cirkulaci a extrakci měřen potom radon v kon-

<sup>17)</sup> Vniknutí těchže do kondensátoru může úplně zkazit celý experiment tím způsobem, že páry sirouhlíku rozpustí t. zv. vakuový vosk, jímž jest kondensátor kolem jantaru za účelem vzduchotěsnosti zaléván a rozpuštěný vosk pokrývající jantarovou izolaci, úplně ruší její isolační schopnost.

<sup>18)</sup> Kvantitativnost tohoto převedení kontrolována tím způsobem, že po provedené aspiraci radonu do recipientů byl po dobu 10 minut roztokem pomalu proháněn proud vzduchu, plnicí evakuovanou ionizační komoru. Po dosažení rovnov. stavu měřen byl radon v ní obsažený a nalezen v mezích  $\pm 1\%$  vždy roven jen onomu kvantu, které během 10 minut se z roztoku vyvinulo.

densátoru skutečně obsažený a vypočteno procento z množství do recipientů aspirovaného. Výsledek 6 experimentů podává následující tabulka:

Radon aspirovaný do recipientů $\times 10^{10}$ Curie.	Radon extrahovaný do kondensátoru $\times 10^{10}$ Curie.	Užitkový koeficient,
584	502,2	0,860
190	166,3	0,875
105	90,6	0,863
46,2	39,3	0,850
25,4	21,5	0,846
2220,0	1931,4	0,870
	Střední hodnota = 0,861.	

Užitkovým koeficientem jest nazván radon do kondensátoru převedený a vyjádřený v poměru k radonu aspirovanému.

Odchyly od střední hodnoty užitkového koeficientu obnášejí necelá  $\pm 2\%$  a efekt v ionizační komoře (kondensátoru) měřený jest tedy ekvivalentní radonu, obsaženému ve 150 . 0, 861 litrech, t. j. ve 129 litrech vzduchu.

Měření prováděno bylo dvojitým elektrometrem Wulfovým s oddělitelnou ionizační komorou vlastní konstrukce, o obsahu 3 litrů a cylindrického tvaru. Střední elektroda, odisolovaná jantarem, spojena vodivě nasazením kondensátoru na elektrometr s oběma vlákny, která byla nabita na  $-220$  voltů, zatím co plášť elektrometru a kondensátoru byl spojen se zemí.

Měřen potom ionizační proud v rovnovážném stavu pro určitý obor škály, pomocí normálního roztoku kalibrovány. Za účelem zjištění citlivosti měření byla před každým experimentem několikrát (4 až 6krát) měřena t. zv. spontánní ionisace či aktivita, t. j. úbytek náboje při kondensátoru obsahujícím obyčejný, suchý vzduch.<sup>19)</sup> Střední nalezená hodnota spontánní ionisace by odpovídala  $2,53 \cdot 10^{-11}$  Curie, při čemž tento spontánní proud kolísal v mezích  $\pm 2,5\%$  kolem této hodnoty. Jest tudíž možno zjistiti stejně velké množství radonu, jaké odpovídá spontánnímu proudu, s přesností  $\pm 2,5\%$  a jednu desetinu tohoto množství, tedy  $2,53 \cdot 10^{-12}$  Curie, ještě s přesností  $\pm 25\%$ .<sup>20)</sup>

**Přednosti nové metody.** Přednost leží jednak v možnosti provedení i na místech mimo laboratoř, ježto transport kyslíčnicku uhlíčitého v bombě jest snadno proveditelný, jednak v tom, že vzduch k analýze potřebný jest aspirován během 10 minut, kdežto při me-

<sup>19)</sup> Do této spontánní aktivity ovšem spadá i parazitní vliv izolátorů, t. j. prchání náboje jimi a přes ně.

<sup>20)</sup> V nejnovější době podal Halledauer (Wiener Anzeiger, 1925, p. 10, č. 2) kompenzační metodu ionizační, umožňující měřiti s jistotou kvanta až  $10^{-14}$  Curie, čímž by ovšem přesnost všech dosavadních měření, jejíž mez všeobecně tvořila s malými odchylkami svrchu zmíněná čísla, byla podstatně zvýšena.

tožé používající kondensace radonu ochlazením tekutým vzduchem, bylo by potřebí nejméně 1½ hodiny,<sup>21)</sup> tedy doby 9krát delší, při které ovšem se mohla časová koncentrace radonu změnit. Daná metoda jest tudíž vhodnější při sledování časového průběhu koncentrace radonu v atmosféře. Umožňuje nad to přesnější prozkoumání výškového rozdělení radonu než metoda Wigandova,<sup>22)</sup> ježto nebude obtížno konstruovati malé vzduchové reservoárky, v nichž by se v určitých výškách příslušné množství vzduchu komprimovalo a potom analysovalo po aspiraci do recipientů obvyklým způsobem. Přesnost metody samotné (bez zřetele k měření samotnému) obnáší nejméně  $\pm 3\%$ . Experiment probíhá většinou automaticky, spotřeba širouhlíku jest nepatrná, ježto během experimentu vzhledem k použité nízké teplotě jest vypařování minimální a při extrakci, která trvá necelých 8 minut, obnáší pouze několik procent upotřeběného množství.

Posléze úbytek Thilorierovy směsi během experimentu jest tak nepatrný, že není třeba ji obnovovati.

Státní radiologický ústav ČSR, v srpnu 1925.

\*

### Sur une nouvelle méthode de dosage du radon contenu dans l'atmosphère.

(Extrait de l'article précédent.)

La nouvelle méthode emploie la grande solubilité du radon dans le sulfure de carbone refroidi, le coefficient d'absorption de celui-ci étant de 328 pour la température de  $-80^{\circ}\text{C}$ .

Un dispositif travaillant automatiquement a été monté où l'air destiné à l'analyse est contenu dans deux grands récipients étanches à 75 litres chacun et barbote pendant une heure par le sulfure de carbone refroidi à  $-80^{\circ}\text{C}$  par le mélange de Thilorier (la neige d'acide carbonique mélangée avec un peu de l'éther). Avant l'analyse le dispositif est vidé au préalable par une pompe à vide et l'air à analyser le remplit en 10 minutes; le coefficient d'efficacité de la méthode a été déterminé en une série d'expériences avec une solution normale du radium à 0,861, avec une précision de plus de  $\pm 2$  pour cent.

La méthode est plus précise que celle de l'air liquide ou du charbon de noix de coco, et peut être employée aux endroits éloignés du laboratoire et notamment pour suivre la distribution verticale du radon dans l'atmosphère, car l'air peut être facilement comprimé dans des vases propices, transporté au laboratoire et analysé. Elle est aussi bien plus avantageuse pour déterminer la variation temporaire du radon du même endroit, car la prise de l'air ne demande pas plus de 10 minutes.

Prague, Institut du Radium, août 1925.

<sup>21)</sup> Olujč, loc. cit.

<sup>22)</sup> Loc. cit.