

keine direkte Bedeutung mehr haben. Die Erklärung von EBERHARDT und GEISS²⁹ erschien dann einleuchtend, daß nämlich das ¹²⁹Xe nicht in situ aus dem ¹²⁹I entstanden ist, sondern daß es sich dabei um Reste einer Uratmosphäre handelt, wobei es – wie gesagt – sogar zweifelhaft erscheint, daß diese eingeschlossenen Gase die Verhältnisse in der wahren Uratmosphäre richtig wiedergeben.

Wir hoffen, daß die noch nicht abgeschlossenen Versuche an abgetrennten einzelnen Mineralen weitere Aufschlüsse zu diesen Fragen geben werden.

Herrn Professor Dr. E. BAIER danken wir für den im Mineralogischen Institut der Universität Mainz zur

²⁹ P. EBERHARDT u. J. GEISS, Z. Naturforsch. **15 a**, 547 [1960].

Verfügung gestellten Arbeitsplatz, den Herren Dr. A. HELKE und Dr. J. PENSE für Hilfe bei der Beschaffung des für die mineralogischen Untersuchungen notwendigen Instrumentariums und besonders Herrn Präparator HOWE für die Herstellung der Schiffe.

Für Mithilfe bei der Ausführung der experimentellen Arbeiten danken wir herzlich Fräulein U. HOFFMANN, H. LÜCKERT und M. GÖRRES sowie den Herren B. SPETTEL und B. WELLNER.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft haben wir für die leihweise Überlassung eines HF-Generators zu danken, für weitere Sachbeihilfen dem Bundesministerium für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft.

The research reported in this paper has been sponsored in part by the Office of Aerospace Research, Air Force Cambridge Research Laboratories, U.S. Air Force, through its European Office under Contract No. AF 61 (052)-465.

Zur Berechnung der Diffusion von radioaktiven Gasen I

(Edelgasdiffusion in Festkörpern 6)*

Von H. GAUS

Aus dem HAHN-MEITNER-Institut für Kernforschung, Sektor Kernchemie, Berlin
(Z. Naturforschg. **16 a**, 1130–1135 [1961]; eingegangen am 11. Juli 1961)

Die Diffusion radioaktiver Gase aus Probekörpern wird mit der elementaren Diffusionsgleichung berechnet. In diesem Teil I wird das Zeitverhalten der resultierenden Aktivität in Fortsetzung einer Arbeit von INTHOFF und ZIMEN für Kugel, Zylinder und Quader berechnet, wenn keine Neuproduktion stattfindet. Etwaige Diffusion vor Meßbeginn wird streng berücksichtigt. Es wird mit zeitabhängiger Diffusionskonstanten gerechnet und das Verhalten des resultierenden Gasstromes diskutiert. In einem folgenden Teil II wird die Diffusion bei Neuproduktion in entsprechender Weise betrachtet.

Die Diffusion eines radioaktiven Gases aus einem Probekörper kann untersucht werden, indem das Gas durch Bestrahlung mittels Kernreaktion in dem Körper hergestellt wird¹. Häufig ist die Diffusion bei Zimmertemperatur zu vernachlässigen, so daß, wenn die Probe bei dieser Temperatur mit vernachlässigbarer Absorption bestrahlt und erst während der Messung erhitzt wird, mit einer gleichmäßigen Verteilung des Gases über den Körper als Anfangsbedingung gerechnet werden kann. Für diesen Fall ist in einer Arbeit von INTHOFF und ZIMEN² der Gasinhalt des Körpers bzw. die entsprechende Aktivität (damit auch die Aktivität des herausdiffundierten Gases sowie der austretende Gasstrom) als Funktion der Zeit berechnet worden. Das zeitliche Verhalten ist dabei erstens durch die Zerfallskonstante der radioaktiven Atome und zweitens durch

eine Abklingkonstante der Diffusion, bei der Kugel etwa $\pi^2 D/R$ (D = Diffusionskonstante, R = Kugelradius) bestimmt. Die strenge Lösung läßt sich für einfache Körper aus der FOURIER-Zerlegung leicht als Reihe darstellen, wobei für große Zeiten (bezüglich der Diffusion) nur der erste Summand eine Rolle spielt³. Für sehr kleine Zeiten (wieder bezüglich der Diffusion) haben INTHOFF und ZIMEN eine einfache Näherungsformel erhalten, die in vielen Fällen die Bestimmung der Diffusionskonstante durch Messung ermöglicht.

In Teil I der vorliegenden Untersuchung werden diese Rechnungen, die die sogenannte Post-Aktivierungs-Diffusion⁵ betreffen, verallgemeinert. Auch der mittlere Zeitbereich wird für Kugel, Zylinder und Quader durch Approximationen überdeckt, die für alle Zeiten gültig sind. Die Randverarmung durch

* Vorausgehende Publikationen siehe Anm. 1–5.

¹ K. E. ZIMEN, Trans. Chalmers Univ. Techn., Gothenburg, No. 175 [1956].

² W. INTHOFF u. K. E. ZIMEN, Trans. Chalmers Univ. Techn., Gothenburg, No. 176 [1956].

³ K. E. ZIMEN u. L. DAHL, Z. Naturforsch. **12 a**, 167 [1957].

⁴ F. FELIX, Nukleonik **1**, 66 [1958].

⁵ K. E. ZIMEN, HMI-B 16, Mai 1961.



Diffusion wird streng behandelt. Allgemein wird mit zeitabhängiger Diffusionskonstante gerechnet. Das zeitliche Verhalten des austretenden Gasstromes wird bestimmt. In Teil II wird die Diffusion bei Neuproduktion, die sogenannte *Dum*-Aktivierungs-Diffusion⁵, für beliebige Zeitabhängigkeit dieser Produktion und der Diffusionskonstante berechnet. Die Lösungen lassen sich auch bei räumlich ungleichmäßiger Produktion aus den entsprechenden Lösungen der quellenfreien Gleichung durch Integration gewinnen. Als Beispiel wird das Verhalten bei zeitlich konstanter Produktion und stufenförmiger Änderung der Produktion diskutiert, das auch die erwähnte Randverarmung durch Diffusion ergibt. Ferner wird zeitlich periodische Neuproduktion betrachtet. Das Ziel dieser Rechnungen ist, die Methoden zur Messung der Diffusionskonstanten zu erweitern. Ferner sollen die Effekte bestimmt werden, die sich auf Grund der Diffusion bei Änderung der Diffusionskonstanten ergeben, um eventuelle weitere Effekte bei Temperaturänderungen⁴ davon unterscheiden zu können. Die Ergebnisse lassen sich zum Teil auf die Diffusion von Neutronen anwenden.

1. Rechnung bei zeitabhängiger Diffusionskonstante

Die Diffusionsgleichung für das radioaktive Gas ohne Neuproduktion lautet

$$\frac{d}{dt} c(r, t) = D(t) \Delta c(r, t) - \lambda c(r, t). \quad (1)$$

Hierin ist

$c(r, t)$ = Konzentration des Gases (Gasatome/cm³),
 $D(t)$ = Diffusionskonstante (cm²/sec),
 λ = Zerfallskonstante (sec⁻¹).

Als räumliche Randbedingung wird im folgenden durchweg das Verschwinden von $c(r, t)$ auf der Oberfläche des Probekörpers angenommen. Dann lässt sich die Zeitabhängigkeit der Diffusionskonstanten eliminieren, indem man² $\tilde{c} = c \cdot \exp \lambda t$ für c und dann⁶ – wie auch von der FERMISCHEN Altersgleichung her bekannt –

$$u = \frac{1}{D_0} \int_0^t D(t') dt' \quad (2)$$

⁶ J. CRANK, The Mathematics of Diffusion, Clarendon Press, Oxford 1956.

für t substituiert, wobei D_0 beliebig ist und im folgenden gleich $D(0)$ gesetzt wird. Es ergibt sich

$$\frac{d}{du} \tilde{c} = D_0 \Delta \tilde{c}. \quad (3)$$

Demnach erhält man aus einer Lösung $c_0(r, t)$ für konstantes D_0 eine solche $c(r, t)$ für variables $D(t)$, indem man in c_0 den Faktor $\exp(-\lambda t)$ herauszieht und im Rest t durch u nach (2) ersetzt:

$$c(r, t) = e^{-\lambda t} e^{\lambda u} c_0(r, u). \quad (4)$$

Da man den Gasinhalt $C(t)$ des Körpers durch Integration über das Volumen erhält, gilt die gleiche Verallgemeinerung auch für diesen bzw. für die entsprechende Aktivität $A^S = \lambda C$. Für die Aktivität A^G des herausdiffundierten Gases gilt natürlich

$$A^S(t) + A^G(t) = A^S(0) e^{-\lambda t}, \quad (5)$$

worin $A^S(0)$ die Anfangsaktivität ist. Bei der Auswertung von Messungen wird meistens der um den Zerfall korrigierte Bruchteil

$$F(t) = [A^G(t)/A^S(0)] \cdot \exp \lambda t \quad (6)$$

aufgetragen, der also mit zunehmendem t von null bis eins ansteigt.

2. Approximation für Kugel, Zylinder und Quader

Wir nehmen zuerst als zeitliche Randbedingung gleichmäßige Verteilung der Gaskonzentration über den Probekörper für $t=0$ an. Die hierdurch für $t=0$ gegebene Unstetigkeit von c am Rande lässt sich physikalisch als Grenzfall auffassen (Abschn. 3).

Die Reihen, die sich für $A^S(t)$ bei Kugel, Zylinder und Quader aus der FOURIER-Zerlegung ergeben, sind in² aufgeschrieben und werden hier wegen der weiteren Diskussion noch einmal – nach (4) für zeitabhängige Diffusionskonstante – angegeben. Der Index S wird der Kürze halber im folgenden weggelassen.

Kugel:

$$A(t) = A(0) e^{-\lambda t} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{6}{\pi^2} \frac{1}{n^2} \exp[-n^2 \xi(t)] \quad (7)$$

mit

$$\xi(t) = \frac{\pi^2}{R^2} \int_0^t D(t') dt', \quad R = \text{Kugelradius.}$$

Zylinder:

$$A(t) = A(0) e^{-\vartheta t} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{8}{\pi^2} \frac{1}{(2m+1)^2} \cdot \exp[-(2m+1)^2 \eta(t)] \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{j_n^2} \exp[-j_n^2 \eta(t)/\pi^2 \alpha^2] \quad (8)$$

mit

$$\eta(t) = \frac{\pi^2}{L^2} \int_0^t D(t') dt', \quad L = \text{Zylinderlänge},$$

$\alpha L = \text{Zylinderradius}$, $j_n = n$ -te Nullstelle der nullten BESSEL-Funktion, $j_1 = 2,4048$, $j_2 = 5,5201$ usw.

Für den Quader ergibt sich entsprechend ein Produkt aus drei Summen, die gleich der Summe über m in (8) sind, mit jeweils einer der drei Kantenlängen L_1, L_2, L_3 des Quaders an Stelle von L .

In ² ist für $A(t)$ eine Näherungsformel für sehr kleine ξ bzw. η abgeleitet, indem die Summation in den Reihen durch eine Integration von 0 bis ∞ ersetzt wurde. Diese Approximation wollen wir verallgemeinern. Da für große ξ bzw. η nur die ersten Summanden der Reihen wichtig sind, kann man den Gültigkeitsbereich erweitern, indem man die ersten Summanden stehen lässt und nur den Rest integriert. Ferner lässt sich die Approximation durch genauere Bestimmung der unteren Integrationsgrenze verbessern. Da die Summanden in den Reihen monoton abnehmen, erhält man nämlich – wenn man den ersten Summanden extra ansetzt – für den Rest zu viel, wenn man von $n=1$ ab integriert, und zu wenig bei Integration von $n=2$ ab. Mithin gibt es ϑ zwischen 0 und 1 so, daß

$$\sum_{n=1}^{\infty} a_n = a_1 + \int_{2-\vartheta}^{\infty} a_{n'} dn'. \quad (9)$$

Ziemlich das gleiche erhält man, wenn man die Integrationsgrenze (etwa $n=2$) vorgibt und einen passenden Bruchteil des entsprechenden Summanden zufügt, also

$$\sum_{n=1}^{\infty} a_n = a_1 + \vartheta' a_2 + \int_2^{\infty} a_{n'} dn' \quad (10)$$

setzt. ϑ bzw. ϑ' werden natürlich von ξ bzw. η abhängen. Da sich wegen der ersten Summanden für große ξ bzw. η jedenfalls richtige Werte ergeben, erhält man eine gute Approximation, wenn man ϑ oder ϑ' so wählt, daß für $\xi = \eta = 0$ das Richtige, d. h. 1 für die Summen in (7) und (8) herauskommt. Die Integration über n lässt sich ausführen,

wenn man wie in ² zunächst die Nenner in den Summanden durch eine Integration ausdrückt, z. B.

$$\frac{1}{n^2} \exp[-n^2 \xi] = \int_{\xi}^{\infty} d\xi' \exp[-n^2 \xi'] \quad (11)$$

setzt und dann die Integrationsreihenfolge vertauscht, d. h. zuerst über n' integriert. Integrale über Produkte mit dem Fehlerintegral lassen sich durch partielle Integration in einfache Integrale umformen. Man erhält so nach (10) mit $\vartheta' = 0,580$

$$\sum_{n=1}^{\infty} \frac{6}{\pi^2} \frac{1}{n^2} \exp[-n^2 \xi] \approx \frac{6}{\pi^2} \cdot \{e^{-\xi} + 0,6449 \cdot e^{-4\xi} - \sqrt{\pi \xi} [1 - \Phi(2\sqrt{\xi})]\}, \quad (12)$$

worin $\Phi(x)$ das Fehlerintegral, tabelliert z. B. in JAHNKE-EMDE ⁷, ist.

Für die beim Zylinder auftretende Summe erhält man entsprechend nach (9) mit $\vartheta = 0,436$

$$\sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{j_n^2} \exp[-j_n^2 \xi] \approx 0,6917 \exp(-5,783 \xi) + 0,3083 \exp(-17,05 \xi) \quad (13) \\ - 4 \sqrt{\frac{\xi}{\pi}} [1 - \Phi(\sqrt{17,05 \cdot \xi})],$$

wobei die Nullstellen der BESSEL-Funktion ab $n=2$ wie in ² durch

$$j_n \approx \pi(n - 0,25)$$

approximiert wurden.

Für die erste der in (8) auftretenden Summen ergibt sich mit $\vartheta' = 0,6033$

$$\sum_{m=0}^{\infty} \frac{8}{\pi^2} \frac{1}{(2m+1)^2} \exp[-(2m+1)^2 \xi] \quad (14)$$

$$\approx \frac{8}{\pi^2} \{e^{-\xi} + 0,2337 e^{-9\xi} - \frac{1}{2} \sqrt{\pi \xi} [1 - \Phi(3\sqrt{\xi})]\}.$$

In der Näherung (12) ist der Fehler durchweg kleiner als 1%, in (13) und (14) kleiner als 0,5%. Für sehr kleine ξ kann man die Exponentialfunktion gleich 1 und $\Phi = 0$ setzen, was in der angegebenen Genauigkeit in (12) für $\xi \lesssim 0,01$, in (13) für $\xi \leq 0,001$ [d. h. für η/α in (8) ebenfalls $\leq 0,01$] und in (14) für $\xi \leq 0,3$ möglich ist. Für größere ξ rechnet man bequemer mit den ersten beiden oder dem ersten Summanden der linken Seiten, das gilt in (12) für $\xi \geq 0,7$, in (13) für $\xi \geq 0,03$ und in (14) für $\xi \geq 0,3$.

⁷ JAHNKE, EMDE u. LÖSCH, Tafeln höherer Funktionen, Teubner, Stuttgart 1960.

Für die sehr kleinen ξ , d. h. unter Vernachlässigung linearer Terme in ξ , erhält man für Kugel, Quader und Zylinder die erwähnte Formel von INTHOFF und ZIMEN

$$A(t) = A(0) e^{-\lambda t} \left[1 - \frac{F}{V} \frac{2}{V\pi} \sqrt{\int_0^t D(t') dt'} \right] \quad (15)$$

oder nach (6)

$$F(t) = \frac{2}{V\pi} \frac{F}{V} \sqrt{\int_0^t D(t') dt'}, \quad (16)$$

wobei F die Oberfläche und V das Volumen des Probekörpers ist und der Übergang zu zeitabhängigem D Gl. (4) entspricht.

Zur Bestimmung der Diffusionskonstante durch Messung bei beliebigen t kann man nach⁸ das berechnete $F(t)$ als Funktion von ξ (bzw. η) und das gemessene $F(t)$ als Funktion von t aufzeichnen. Trägt man dann in einem ξ, t -Achsenkreuz die zum gleichen $F(t)$ -Wert gehörenden Punkte auf, so erhält man ξ und aus der Steigung D als Funktion von t . Man erhält dann in den Zeitabschnitten, in denen D konstant ist, Stücke einer Geraden, gleichgültig wie langsam oder über wieviel Stufen das Aufheizen erfolgte. Werden viele Messungen – beim Zylinder (8) mit gleichem α – durchgeführt, bei denen nur am Anfang erhitzt wird, so kann man auch einen Satz von Kurven $F(t)$ auf Pauspapier zeichnen, die für verschiedene D berechnet sind (d. h. in verschiedenem Maßstab aufgezeichnet sind). Durch Auflegen dieses Papiers auf die Meßkurve sieht man sogleich, wie gut die gemessenen Punkte mit dem berechneten Verlauf übereinstimmen und kann den Wert von D entnehmen. Für die Berechnung des korrigierten Bruchteils sind die oben angegebenen Approximationen meistens ausreichend, für Kugel und einige Formen von Zylinder und Quader sind auch Tabellen mit genauen dreistelligen Werten berechnet worden⁵.

Im Bereich der Gültigkeit von (16) ist es zweckmäßig, das Quadrat von $F(t)$ aufzutragen, wie in² § 4 in ähnlichem Zusammenhang angegeben, da das Quadrat nach (16) bis auf einen Faktor gleich ξ bzw. η ist. Der Fehler bleibt bis zu $F(t) \approx 0,25$ unterhalb 5%.

Die für die Auswertung benötigte Anfangsaktivität $A(0)$ wird meistens durch eine Parallelmessung in kürzerer Zeit bestimmt, da sonst wegen der Mul-

tiplikation mit $\exp \lambda t$ – vgl. (6) – zu große Fehler auftreten².

3. Randverarmung durch Diffusion

Wenn auch während der Bestrahlung der Probe eine merkliche Diffusion stattfindet, was z. B. bei höheren Temperaturen der Fall ist, darf man nicht mehr mit räumlich gleichmäßiger Verteilung des Gases als Anfangsbedingung rechnen. Man muß dann für $t = 0$ denjenigen Verlauf der Konzentration $c_s(r)$ ansetzen, der sich als stationärer Zustand bei „unendlich langer“ Bestrahlung einstellt. Wir kennzeichnen die Größen, die sich unter dieser Anfangsbedingung ergeben, mit dem Index 1 und versehen die gleichmäßige Anfangsverteilung entsprechenden Größen wie in Abschn. I mit dem Index 0. Die Diffusionskonstante sei zunächst zeitlich konstant. Dann gilt, wie in Teil II erläutert wird,

$$\begin{aligned} c_1(r, t) &= \frac{1}{c_0(0)} \int_{-\infty}^0 dt' q c_0(r, t-t') \\ &= \frac{q}{c_0(0)} \int_t^\infty d\tau c_0(r, \tau). \end{aligned} \quad (17)$$

Hierbei ist q die zeitlich konstante Produktionsrate bis $t = 0$, die wir als räumlich gleichmäßig annehmen wollen, und $c_0(0)$ die demgemäß räumlich konstante Anfangsverteilung von c_0 . Bei räumlich ungleichmäßiger Produktion gilt eine entsprechende Gleichung (s. Teil II). Die Aktivität erhält man durch Integration über das Volumen V des Probekörpers und Multiplikation mit λ .

$$\text{Mit } \lambda V c_0(0) = A_0(0) \quad (18)$$

$$\text{folgt } A_1(t) = \frac{\lambda V q}{A_0(0)} \int_t^\infty d\tau A_0(\tau). \quad (19)$$

Hiermit läßt sich allgemein der Verlauf bei sogenannter Randverarmung durch Diffusion auf den bei gleichmäßiger Anfangsverteilung zurückführen. Für Kugel und Zylinder ergeben sich zum Beispiel, wie leicht zu sehen ist, in den Reihen (7) und (8) zusätzliche Faktoren im Nenner. Es wird

Kugel:

$$A_1(t) = V q e^{-\lambda t} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{6}{\pi^2} \frac{1}{1+n^2 \xi_0} \frac{1}{n^2} \exp[-n^2 \xi(t)] \quad (20)$$

$$\text{mit } \xi_0 = \frac{\pi^2}{R^2} D_0 \frac{1}{\lambda},$$

⁸ A. B. AUSKERN, WAPD-TM-185, Febr. 1960.

Zylinder:

$$A_1(t) = V q e^{-\lambda t} \sum_{\substack{m=0 \\ n=1}}^{\infty} \frac{32}{\pi^2} \frac{1}{1 + [(2m+1)^2 + (j_n/\pi\alpha)^2]\eta_0} \quad (21)$$

$$\cdot \frac{1}{(2m+1)^2} \frac{1}{j_n^2} \exp[-((2m+1)^2 + (j_n/\pi\alpha)^2) \eta(t)]$$

$$\text{mit } \eta_0 = \frac{\pi^2}{L^2} D_0 \frac{1}{\lambda}.$$

Die Reihe für den Quader ergibt sich entsprechend. Dabei kann gemäß (4) die Diffusionskonstante wieder beliebig zeitlich veränderlich sein, während D_0 der konstante Wert während der Bestrahlung bedeutet. Für die weitere Diskussion ist die Größenordnung von

$$\beta = F/V \cdot \sqrt{D_0/\lambda} \quad (22)$$

wesentlich. Ist $\beta \gtrsim 0,3$, so konvergieren die Reihen (20) und (21) für alle Zeiten so gut, daß wenige Summanden zur Berechnung genügen und keine Approximationsformeln erforderlich sind. Für kleinere β gilt das nur für hinreichend große ξ und η .

Für diese β ist es zweckmäßig, die Approximation von INTHOFF und ZIMEN zu übertragen. Hierzu schreiben wir (19) in der Form

$$A_1(t) = A_1(0) - \frac{\lambda V q}{A_0(0)} \int_0^t d\tau A_0(\tau) \quad (23)$$

und setzen A_0 nach (15) mit konstantem D_0 ein. Es ergibt sich

$$A_1(t) = A_1(0) - V q \left\{ 1 - e^{-\lambda t} + \frac{F}{V} \sqrt{\frac{D_0}{\lambda}} \left[\frac{2}{\sqrt{\pi}} e^{-\lambda t} \sqrt{\lambda t} - \Phi(\sqrt{\lambda t}) \right] \right\}. \quad (24)$$

Auch hier kann man wieder gemäß (4) verallgemeinern für zeitabhängige Diffusionskonstante. Setzen wir nun voraus, daß β etwa $\lesssim 0,1$ ist, so gilt die Näherung (15) bis z. B. $\lambda t = 4$ noch mit ca. 5% Fehler, und mit mindestens gleicher Genauigkeit wird nach (24)

$$V q - A_1(0) = q F \sqrt{D_0/\lambda} = \beta V q. \quad (25)$$

Dies ist dann also die gegenüber gleichmäßiger Anfangsverteilung fehlende Aktivität, was in Teil II noch genauer erörtert wird. Wenn man auf die meßbare Anfangsaktivität $A_1(0)$ beziehen will, muß man q in (24) gemäß (25) durch $A_1(0)$ ausdrücken. Man erhält so für den auf diese Anfangsaktivität bezogenen Bruchteil [vgl. (6)] der Aktivität des

herausdiffundierten Gases

$$F_1(t) = \frac{\beta}{1-\beta} \left(\frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\lambda u} - f(\lambda u) \right) \quad (26)$$

$$\text{mit } f(x) = 1 - e^x [1 - \Phi(\sqrt{x})] = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{x} - x + \frac{4}{\sqrt{\pi} 3} x^{3/2} \dots. \quad (27)$$

Gl. (26) tritt also bei Randverarmung durch Diffusion für entsprechend kleine Zeiten an Stelle von (16), sofern das durch (22) definierte β nicht zu groß ist. Dabei ist u durch (2) gegeben, und $t=0$ ist der Zeitpunkt des Bestrahlungsendes. Bleibt $D=\text{const}=D_0$ auch für $t>0$, so ist $u=t$. Wenn das der Fall ist und sofort ab $t=0$ gemessen wird, kann man durch Vergleich der gemessenen und der nach (26) berechneten Werte von $F_1(t)$ den Faktor $\beta/(1-\beta)$ und damit D_0 bestimmen. Wenn das Präparat nach Abschluß der Bestrahlung noch bis $t=t_1$ liegen bleibt, die Diffusion ab t_1 mit eventueller Erhitzung gemessen und auf die dann vorhandene Aktivität $A(t_1)$ bezogen wird, so ist der um den Zerfall ab t_1 korrigierte Bruchteil

$$F_{\text{gem}}(\tau) = \frac{F_1(t_1+\tau) - F_1(t_1)}{1 - F_1(t_1)},$$

wobei $\tau=t-t_1$ die Zeit ab Meßbeginn ist. Hierfür ergibt sich aus (24) mit (25)

$$(1-\beta) F_{\text{gem}}(\tau) + [1 - F_{\text{gem}}(\tau)] \beta \left[\frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{x_1} - f(x_1) \right] = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{F}{V} \sqrt{D_1 t_1 + \int_0^{\tau} D(\tau') d\tau' - \beta f(\lambda u)}, \quad (28)$$

worin $x_1 = \lambda t(D_1/D_0)$ und D_1 die Diffusionskonstante während der Lagerung (Mittelwert), $D(\tau)$ die während der Messung ist. Hiernach läßt sich die Randverarmung durch Diffusion vor der Messung berücksichtigen, wenn D_0 und D_1 wenigstens annähernd bekannt sind; man kann dann β und x_1 in (28) einsetzen und D zunächst mit $f(\lambda u) = 1$ bestimmen und dann iterieren. Wird in der nicht zu großen Zeitspanne von t_1 bis t_2 erhitzt, so kann bei der Iteration für $t>t_2$

$$u = [D_1 t_2 + \frac{1}{2} (D - D_1) (t_2 - t_1) + D(t - t_2)]/D_0$$

setzen. Wegen der Vergrößerung von D beim Erhitzen erreicht hierbei $f(\lambda u)$ im allgemeinen bald den Grenzwert 1; es ist für

$$\begin{array}{ccccccc} \lambda u & = & 0,01 & 0,1 & 1 & 10 & 100 \\ f(\lambda u) & = & 0,104 & 0,276 & 0,572 & 0,829 & 0,944. \end{array}$$

In (28) kann man auch zum limes $D_0 \rightarrow 0$ übergehen, für $t_1 = 0$ ergibt sich richtig (16).

4. Zeitverhalten des austretenden Gasstromes

Der Zusammenhang des aus dem Probekörper tretenen Gesamtstromes J (Gasatome pro sec) mit der außen bzw. innen befindlichen Aktivität ist nach (1) gegeben durch

$$A^G(t) = \lambda \int_0^t e^{-\lambda(t-t')} J(t') dt' \quad (29)$$

und $A(t) = \lambda \int_t^\infty e^{-\lambda(t-t')} J(t') dt' . \quad (30)$

Durch entsprechendes Differenzieren kann man $J(t)$ aus den Aktivitäten bestimmen, es ist z. B.

$$\frac{J(t)}{A(0)} = e^{-\lambda t} \frac{1}{\lambda} \frac{d}{dt} F(t) . \quad (31)$$

Geht man von $c(r, t)$ (Abschn. 1) aus, so erhält man $J(t)$ direkter aus $D(t)$ $\text{grad } c(r, t)$ und kann die Aktivität aus (29) oder (30) erhalten, wenn man wieder u als Integrationsvariable benutzt, was wegen des Faktors $D(t')$ allgemein möglich ist. Die Ausdrücke für J , die aus den für die Aktivität angegebenen Gleichungen folgen, sollen der Kürze halber nicht alle hingeschrieben werden. In den Summen (7) und (8) kürzen sich die Nenner heraus [die Darstellung (11) entspricht (30)]; wegen des Differenzierens von u bzw. ξ, η tritt D wieder als Faktor auf.

Im Bereich der Gültigkeit von (26) ergibt sich nach (31)

$$\frac{J(t)}{A_1(0)} = \frac{D(t)}{\lambda} \frac{F}{(1-\beta)V} \sqrt{\frac{\lambda}{D_0}} e^{-\lambda t} e^{\lambda u} [1 - \Phi(\sqrt{\lambda u})] \quad (32)$$

$$\rightarrow \frac{D(t)}{\lambda} \frac{F}{(1-\beta)V} e^{-\lambda t} \frac{1}{\sqrt{\int_0^t D(t') dt'}} . \quad (33)$$

Der asymptotische Ausdruck gilt für große u ; er entspricht auch (mit $\beta=0$) dem Grenzübergang $D_0 = D(0) \rightarrow 0$. Er ergibt sich deshalb auch bei der in Abschn. 1 und 2 angenommenen Randbedingung. Für positives $D(0)$ wird bei dieser Randbedingung der Strom unendlich für $t \rightarrow 0$, wegen des senkrechten Abfalles von $c(r, 0)$ am Rand.

Allgemein macht sich eine Änderung von D merkbar erstens durch den explizit auftretenden Faktor D und zweitens durch eine Änderung des Zeitmaßstabes der Diffusion entsprechend der Definition von u . Ein plötzlicher unstetiger Anstieg von D , etwa um den Faktor γ , bewirkt deshalb zunächst einen Sprung des Stromes auf den γ -fachen Betrag; die zweite Einwirkung macht sich nur stetig bemerkbar, entsprechend einer stetigen Änderung des Gradienten von $c(r, t)$ ⁹ und bewirkt einen steileren Abfall als vorher, gemäß der um γ zusammengeschobenen Zeitskala der Diffusion. Im Bereich von (32) verbleibt schließlich eine Vergrößerung des Stromes um $\sqrt{\gamma}$. Erfolgt der gleiche Anstieg von D nicht plötzlich, sondern stetig in einer Zeitspanne (etwa linear mit der Zeit), so ergibt sich auch für den Strom ein stetiger Anstieg bis zu einer Spitze geringerer Höhe, wobei die Höhe der Spitze stark von der Zeitspanne abhängt, innerhalb deren der Anstieg von D erfolgt. Entsprechende Kurven lassen sich leicht nach (33), (32) oder auch mit den aus (30) folgenden Summen für Kugel, Zylinder usw. berechnen.

⁹ F. J. STUBBS u. G. N. WALTON, AERE R 3093, Okt 1959.