

## Radioaktive Isotope als Luftmassenindikatoren (I)

HELMUT MÜH, ALBERT SITTKUS, GERTRAUD ALBRECHT und SYLVIVS HARTWIG

Max-Planck-Institut für Kernphysik, Außenstelle Freiburg-Schauinsland

(Z. Naturforschg. 21 a, 1123—1127 [1966]; eingegangen am 21. März 1966)

Professor Dr. W. GENTNER zum 60. Geburtstag gewidmet

Aus der Beobachtung der von der kosmischen Strahlung erzeugten Isotope  $Be^7$ ,  $P^{32}$ ,  $P^{33}$  und  $S^{35}$  sind Rückschlüsse auf die Geschichte einer Luftmasse möglich. Messungen der Absolutkonzentrationen und der Isotopenverhältnisse an Regenwasserproben im Jahre 1965 zeigen, daß sich der Einschub stratosphärischer Luft in die Troposphäre im Einzelfall nachweisen läßt. Die Bestimmungen des  $P^{33}$ -Gehaltes deuten darauf hin, daß der in der Literatur benutzte Ausbeutefaktor um etwa 25% zu klein angesetzt ist.

Durch Wechselwirkung mit der kosmischen Strahlung werden in der Atmosphäre verschiedene radioaktive Isotope erzeugt. Die Isotope  $Be^7$ ,  $P^{32}$ ,  $P^{33}$  und  $S^{35}$  eignen sich zum Studium von atmosphärischen Austauschvorgängen, die in Zeiten bis zu 300 Tagen ablaufen<sup>1</sup> (Tab. 1). In der vorliegenden Arbeit wird

$S$  = Zahl der Kernreaktionen (Sternproduktionsrate) pro Gramm Luft,  
 $y_n$  = Ausbeutefaktor pro Stern,  
 $\lambda_n$  = Zerfallskonstante,  
 $c_n$  = Konzentration (Atome pro Gramm Luft).

Unter der Voraussetzung, daß die Turbulenz in der Troposphäre genügend groß ist, kann für die Sternproduktionsrate ein Mittelwert  $\bar{S}_T$  genommen werden<sup>2, 3</sup>.

$$\left(\bar{S}_T = 6,7 \cdot 10^{-4} \frac{\text{Sterne}}{\text{g Luft sec}}\right).$$

Dann ergibt Gl. (1):

$$c_n(t) = \frac{y_n}{\lambda_n} \cdot \bar{S}_T (1 - e^{-\lambda_n t}) \quad (2)$$

mit  $c_n(0) = 0$ .

Diese Funktion ist in Abb. 1 für  $Be^7$  aufgetragen (Kurve für  $a = 0$ ). Nach etwa 300 Tagen wird die Sättigungskonzentration

$$C_n = \frac{y_n}{\lambda_n} \bar{S}_T; \left(\text{für } Be^7 \text{ } 201 \frac{\text{Atome}}{\text{g Luft}}\right) \text{ erreicht.}$$

In einem 2. Beispiel betrachten wir nun eine Luftmasse, die zunächst in der Stratosphäre bestrahlt wurde und nach einer Zeit  $T$  in die Troposphäre abgestiegen ist. Dort wird sie mit gereinigter Troposphärenluft gemischt, und dieser Luftkörper wird weiter bestrahlt. Der Konzentrationsverlauf wird dann durch Gl. (3) beschrieben.

$$c_n(t) = \frac{y_n}{\lambda_n} [\bar{S}_T (1 - e^{-\lambda_n t}) + a \bar{S}_s (1 - e^{-\lambda_n T}) e^{-\lambda_n t}], \quad (3)$$

Isotope	Halbwertszeit	Strahlung	Ausgangselement	Ausbeute pro Kernreaktion
1	2	3	4	5
$Be^7$	54 Tage	$\gamma$ 476 KeV	N, O	$4,5 \cdot 10^{-2}$
$P^{32}$	14 Tage	$\beta^-$ 1700 KeV	Ar	$5,1 \cdot 10^{-2}$
$P^{33}$	25 Tage	$\beta^-$ 250 KeV	Ar	$4,2 \cdot 10^{-2}$
$S^{35}$	87 Tage	$\beta^-$ 167 KeV	Ar	$9,5 \cdot 10^{-2}$

Tab. 1.

über Beobachtungen an Regenwasser berichtet. Die Isotope entstehen durch Kernreaktionen zwischen der kosmischen Strahlung und den Luftkomponenten Sauerstoff, Stickstoff und Argon. Der Ausbeutefaktor je Kernreaktion ist aus Spalte 5 der Tab. 1 zu entnehmen. Die Zahl der Kernreaktionen hängt in erster Linie von der geographischen Breite und von der atmosphärischen Tiefe ab.

Wir betrachten eine (z. B. durch Ausregnen) vollständig gereinigte, troposphärische Luftmasse und setzen voraus, daß kein Austausch stattfindet. Die Änderung der Konzentration des Isotops  $n$  wird dann durch Gl. (1) beschrieben:

$$\frac{dc_n}{dt} = y_n \cdot S(\varphi, h) - \lambda_n \cdot c_n, \quad (1)$$

<sup>1</sup> D. LAL u. B. PETERS, Handbuch der Physik 46/2; dort zahlreiche weitere Literaturhinweise.

<sup>2</sup> B. BOLIN, in „Kernstrahlung in der Geophysik“, Springer-Verlag, Heidelberg 1962.

<sup>3</sup> B. PETERS, J. Atmosph. Terr. Phys. 13, 351 [1959].



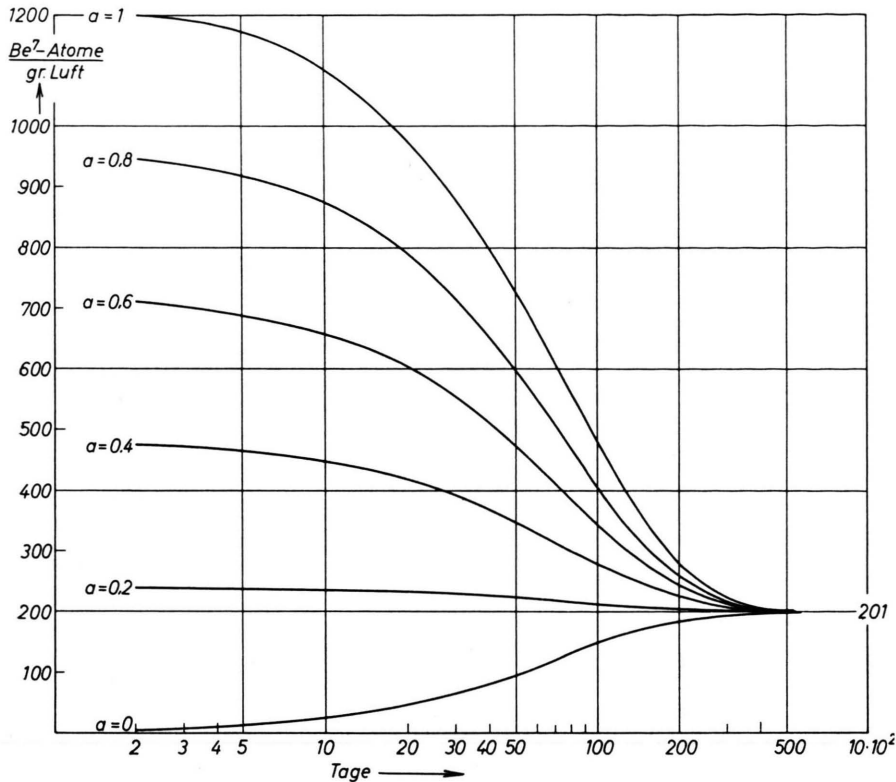


Abb. 1. Abhängigkeit der Be<sup>7</sup>-Konzentration von der Verweilzeit in der Troposphäre, wenn der Luftmasse verschiedene bis zur Sättigung bestrahlte stratosphärische Anteile beigemischt sind ( $\alpha = 0$  ausschließlich troposphärische Luft;  $\alpha = 1$  unvermischte stratosphärische Luft).

- $c_n$  = Konzentration des Isotops n (Atome pro Gramm Luft),
- $t$  = Bestrahlungsdauer in der Troposphäre,
- $T$  = Bestrahlungsdauer in der Stratosphäre,
- $a$  = Anteil der Beimischung der Luft stratosphärischen Ursprungs,
- $\bar{S}_s$  = mittlere Sternproduktionsrate in der Stratosphäre,
- $\bar{S}_T$  = mittlere Sternproduktionsrate in der Troposphäre.

Wir nehmen im folgenden<sup>2, 3</sup> an, daß die Produktionsrate in der abgestiegenen Luft das 6fache des troposphärischen Wertes betrug, d. h.  $\bar{S}_s = 6 \bar{S}_T$ . Für den Sonderfall, daß die Luft in der Stratosphäre vor dem Absteigen bis zur Sättigung bestrahlt wurde, vereinfacht sich Gl. (3) zu

$$c_n(t) = \frac{y_n}{\lambda_n} \cdot \bar{S}_T [1 + (6a - 1)e^{-\lambda_n t}]. \quad (3a)$$

Diese Funktion ist in Abb. 1 für verschiedene Parameter  $a$  aufgetragen.

Wird die Aktivität in atmosphärischen Niederschlägen bestimmt, so ist die Angabe der Konzentration in der ausgereinigten Luft nicht ohne weiteres

möglich, da sich die Luftmenge aus meteorologischen Daten nur abschätzen läßt. Nehmen wir an<sup>2</sup>, daß die verschiedenen radioaktiven Isotope gleich gut durch den Regen abgeschieden werden, dann ist das Isotopenverhältnis in der Luft und im Regen gleich. Für 2 Isotope n und m gilt Gl. (4)

$$\frac{c_n}{c_m} = \frac{\lambda_m y_n}{\lambda_n y_m} \cdot \frac{(1 - e^{-\lambda_n t}) + a \frac{\bar{S}_s}{\bar{S}_T} (1 - e^{-\lambda_n T}) e^{-\lambda_n t}}{(1 - e^{-\lambda_m t}) + a \frac{\bar{S}_s}{\bar{S}_T} (1 - e^{-\lambda_m T}) e^{-\lambda_m t}}. \quad (4)$$

Dieses Verhältnis ist unabhängig vom Absolutwert der Sternproduktionsrate; lediglich das Verhältnis  $\bar{S}_s/\bar{S}_T$  kommt noch vor. Für den Sonderfall langer Verweilzeit in der Stratosphäre ist eine der Abb. 1 entsprechende Kurvenschar in Abb. 2 für das Verhältnis Be<sup>7</sup>/P<sup>32</sup> aufgetragen. Eine für die Auswertung besser geeignete Darstellung benutzt das Isotopenverhältnis als Scharparameter. In Abb. 3 ist die Schar der Be<sup>7</sup>/P<sup>32</sup>- und P<sup>33</sup>/P<sup>32</sup>-Verhältnisse in dem betrachteten Fall gezeichnet. Wenn zwei Verhältnisse bekannt sind, so können die troposphärische Verweilzeit und das Mischungsverhältnis eindeutig abgelesen werden. Ist nur eines bekannt, so läßt sich

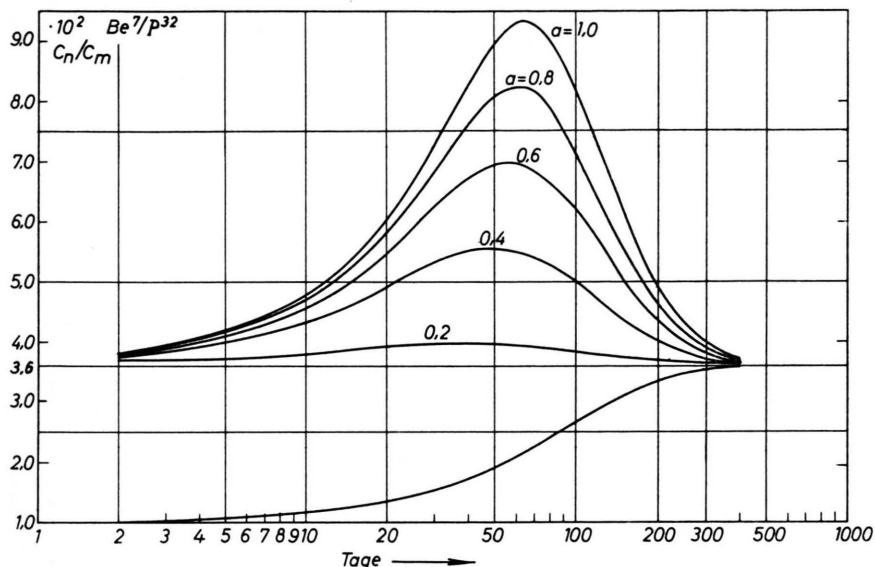


Abb. 2. Abhängigkeit des  $Be^7/P^{32}$ -Verhältnisses von der Verweilzeit in der Troposphäre, wenn der Luftmasse verschiedene bis zur Sättigung bestrahlte Anteile beigemischt sind ( $a=0$  ausschließlich troposphärische Luft;  $a=1$  unvermischte stratosphärische Luft).

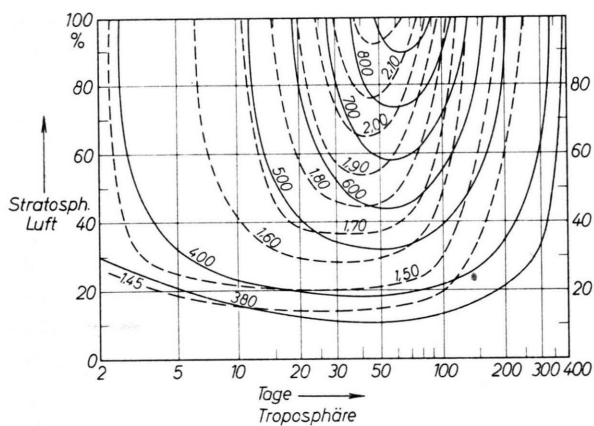


Abb. 3. Zusammenhang zwischen der Luftmischung und der troposphärischen Verweilzeit für  $Be^7/P^{32}$  (ausgezogene Kurven) und  $P^{33}/P^{32}$  (gestrichelt) mit den Isotopenverhältnissen als Parameter. —  $Be^7/P^{32}$ ; - - -  $P^{33}/P^{32}$ .

aus dem Diagramm noch eine untere Grenze für den Anteil der stratosphärischen Luft angeben.

Zur Durchführung von Luftmassenanalysen entwickelten wir ein Verfahren, alle 4 Isotope aus einer einzigen Regenprobe zu bestimmen.

Die atmosphärischen Niederschläge werden auf dem Dach des physikalischen Instituts in Freiburg (48° N) mit Auffangflächen von 0,5 bis 2,0 m<sup>2</sup>

gesammelt, mit Trägersubstanz versetzt und anschließend eingedampft. Nach Abtrennung des Siliciums werden nacheinander der Schwefel, der Phosphor und das Beryllium ausgefällt und durch mehrfaches Umfällen gereinigt<sup>4, 5</sup>. Beryllium liegt als Berylliumammoniumphosphat vor. Seine  $\gamma$ -Strahlung wird mit einem NaJ-Kristall (3 × 3'') gemessen, wobei durch Aufnahme des Spektrums von 0,12 bis 1,5 MeV die Abwesenheit von Spaltprodukten kontrolliert wird. Die Phosphorisotope liegen als Magnesiumammoniumphosphat in einem Präparat mit 2 mg/cm<sup>2</sup> Massenbelegung vor. Sie werden in einer Antikoinzidenzanordnung nachgewiesen, die Trennung von  $P^{32}$  und  $P^{33}$  geschieht durch Absorptionsmessung<sup>6, 7</sup>. Wegen der energiearmen  $\beta$ -Strahlung des  $S^{25}$  wurde der Schwefel in Form von H<sub>2</sub>S als Beimischung zum Zählgas eines Proportionalzählrohres in einer Antikoinzidenzanordnung bestimmt<sup>8, 9</sup>.

Regelmäßige Messungen der Isotope  $Be^7$ ,  $P^{32}$  und  $P^{33}$  aus Regenwasser liegen für das Jahr 1965 vor.  $S^{35}$  wurde an einigen Proben Anfang 1965 bestimmt,  $Be^7$  auch schon ab August 1964.

In Abb. 4 ist die monatliche  $Be^7$ -Ablagerung durch Regen aufgetragen. Sie zeigt einen Jahresgang mit einem Maximum im Sommer 1965. Dieses Sommer-

<sup>4</sup> D. S. C. POLSON, Anal. Chim. Acta 6, 452 [1952].

<sup>5</sup> J. HURÉ et al., Anal. Chim. Acta 7, 37 [1952].

<sup>6</sup> D. LAL u. B. PETERS, Progress in Element. Particle and Cosmic Ray Physics 6, 3 [1962].

<sup>7</sup> S. HARTWIG, Diplomarbeit, Freiburg 1966.

<sup>8</sup> W. BERNSTEIN, Rev. Sci. Instr. 21, 158 [1950].

<sup>9</sup> G. ALBRECHT, Diplomarbeit, Freiburg 1965.

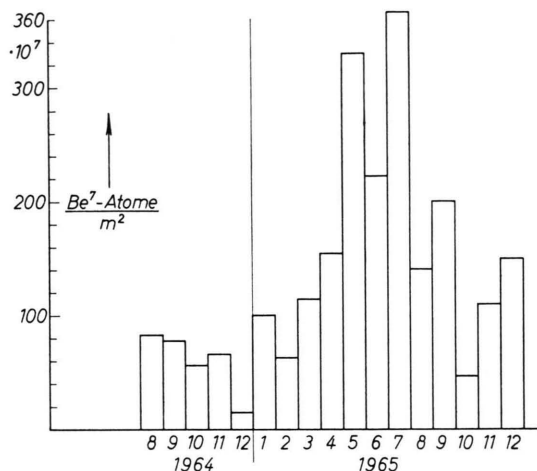


Abb. 4. Monatssummen der durch Regen am Boden abgeschiedenen  $\text{Be}^7$ -Mengen.

maximum wurde auch schon von anderen Autoren in unseren Breiten beobachtet (SCHUMANN<sup>10</sup> in Heidelberg 1960/61, BLEICHRODT und ABKOUDE<sup>11</sup> in Rijswijk 1961/62). Es ist außerdem von Beobachtungen der Spaltproduktaktivität bekannt und wird mit einem gesteigerten Austausch zwischen Troposphäre und Stratosphäre in den Sommermonaten erklärt.

Für den Zeitraum April – Juli 1965 ist die  $\text{Be}^7$ -Ablagerung der einzelnen Regenperioden in Abb. 5 detailliert dargestellt. Zum Vergleich ist auch noch die im Regenwasser beobachtete Spaltproduktaktivität und die Regenmenge aufgetragen. Man sieht aus dieser Darstellung, daß die hohen Summen der Monate Mai und Juli durch hohe  $\text{Be}^7$ -Ablagerung in kurzen Zeitspannen verursacht werden. Einen ganz ähnlichen Verlauf zeigt die Spaltproduktaktivität. Abgesehen von dem Zeitraum 25. Mai bis Ende Juni (Störung durch Schwaden der 2. chinesischen Bombe) stammt das Spaltproduktmaterial aus Versuchen, die mehr als 2 Jahre zurückliegen. Die troposphärische Verweilzeit ist nicht groß genug, um die Spaltproduktaktivität nach so langer Zeit zu erklären. Sie stammt aus dem stratosphärischen Reservoir, in dem sie eine wesentlich größere Verweilzeit hat<sup>12</sup>. Mit den Spaltproduktschüben wird dann auch das in den stratosphärischen Luftpaketen produzierte  $\text{Be}^7$  nach unten transportiert.

<sup>10</sup> G. SCHUMANN u. M. STOEPPLER, J. Geophys. Res. **13**, 3827 [1963].

<sup>11</sup> J. F. BLEICHRODT u. E. R. VAN ABKOUDE, J. Geophys. Res. **15**, 4629 [1963].

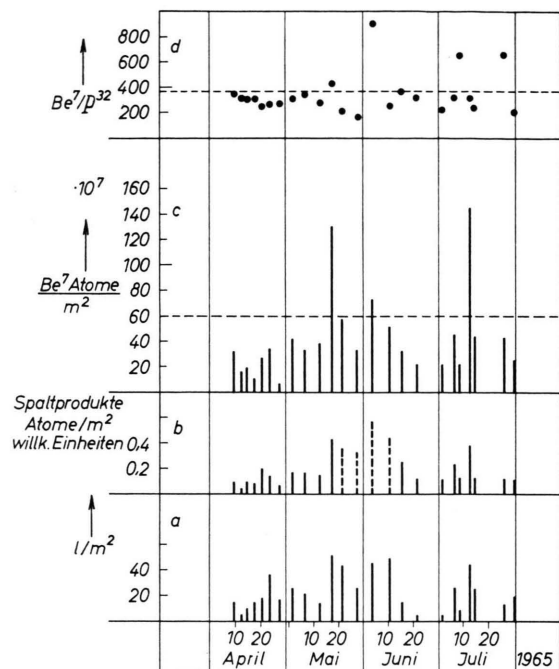


Abb. 5. In kurzen Sammelperioden gefallener Regen (a), abgeschiedenes Spaltprodukt (b),  $\text{Be}^7$  (c) und  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$ -Verhältnis (d). Die mittlere Sammelperiode betrug 4 Tage, die Ordinaten sind im Schwerpunkt des Intervalls aufgetragen.

Ein weiteres Argument dafür, daß die große  $\text{Be}^7$ -Ablagerung durch zeitlich recht eng begrenzte Einschübe aus der Stratosphäre verursacht wird, ergibt die Abschätzung der in der Troposphäre erzeugten  $\text{Be}^7$ -Konzentration. Mit der Annahme<sup>12</sup> – die troposphärische Verweilzeit beträgt 30 Tage, und der troposphärische Gehalt wird in einer Regenperiode vollständig abgeschieden – ergibt sich aus Gl. (2) eine Ablagerung von  $60 \cdot 10^7 \text{ Be-Atome/m}^2$ . Die gemessene Abscheidung übertrifft den schon sehr hoch eingeschätzten troposphärischen Anteil in einzelnen Fällen erheblich.

Aus der früher abgeleiteten Gl. (4) ergibt sich für das Atomzahlverhältnis zweier Isotope bei langer Bestrahlung und unveränderter Sternproduktionsrate (z. B. Bestrahlung eines Luftpaketes in konstanter Höhe) ein Sättigungswert.

$$\left(\frac{C_m}{C_n}\right) = \frac{\lambda_m y_n}{\lambda_n y_m}; \quad \text{Sättigungswert } \frac{\text{Be}^7}{\text{P}^{32}} = 370;$$

$$\frac{\text{P}^{33}}{\text{P}^{32}} = 1,45; \quad \frac{\text{S}^{35}}{\text{Be}^7} = 0,031.$$

<sup>12</sup> C. E. JUNGE, Air Chemistry and Radioactivity, Academic Press, New York and London 1963.

Dieser Wert wird nur überschritten, wenn sich eine Luftmasse aus einem Gebiet höherer Produktionsrate (Stratosphäre) in eines niedriger (Troposphäre) verlagert (Abb. 2). Beobachten wir ein größeres Verhältnis, so bedeutet das in unserem Modell eine Beimischung stratosphärischer Luft.

Im Laufe des Untersuchungszeitraumes wurde das Grenzverhältnis für  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$  in 14 von 65 Fällen überschritten. Dagegen deutet das  $\text{P}^{33}/\text{P}^{32}$ -Verhältnis in viel mehr Fällen (37) auf Beimischungen stratosphärischer Luft hin. Im Rahmen der Meßgenauigkeit läßt sich diese Diskrepanz nicht durch Meßfehler erklären, daher scheint die Annahme gerechtfertigt, daß der von LAL<sup>1</sup> übernommene Wert für die  $\text{P}^{33}$ -Produktion um ca. 25% zu klein ist.

Eine weitere Stütze für eine zu klein angesetzte Produktionsrate des  $\text{P}^{33}$  ergibt ein Vergleich der in der Troposphäre zur Verfügung stehenden und der beim Ausregnen erfaßten  $\text{P}^{33}$ -Konzentration. Aus dem Beobachtungsmaterial wurden etwa 20 Fälle ausgesucht, deren  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$ -Verhältnis darauf hindeutet, daß keine wesentlichen Beimengungen stratosphärischer Luft zur abgeschiedenen Aktivität beitragen. Mit Hilfe von Abb. 2 wurde die troposphärische Verweilzeit  $t$  ermittelt und die zu erwartende  $\text{P}^{33}$ -Konzentration (in Luft) nach Gl. (1) errechnet. Aus meteorologischen Daten über die Höhe und Mächtigkeit der Wolkenschicht<sup>13, 14</sup> wurde die ausgereinete Luftmasse abgeschätzt und damit aus

der gemessenen  $\text{P}^{33}$ -Ablagerung auf die  $\text{P}^{33}$ -Konzentration in der ausgereinigen Luft geschlossen. Der Vergleich zeigt trotz der groben Abschätzung Übereinstimmung für die  $\text{Be}^7$ - und  $\text{P}^{32}$ -Konzentration; dagegen sind die errechneten  $\text{P}^{33}$ -Werte in der überwiegenden Zahl der Fälle zu klein.

Für die weiteren Untersuchungen wurden die  $\text{P}^{33}$ -Werte daher nicht verwertet, so daß zur Analyse von Luftmassen nur noch das  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$ -Verhältnis bleibt (Abb. 5, d). Zusätzlich zu den drei oben erhaltenen Hinweisen auf stratosphärische Luftbeimengungen zeigt das  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$ -Verhältnis durch Überschreiten des Grenzwertes (370) in zwei weiteren Fällen Einschübe aus der Stratosphäre an. Damit haben wir von April bis Juli 1965 in 5 kurzen Zeitspannen wesentliche Beimengungen von Stratosphärenluft festgestellt.

Obwohl durch den Fortfall der  $\text{S}^{35}$ - und  $\text{P}^{33}$ -Meßdaten die möglichen Informationen über die „Geschichte“ einer Luftmasse stark eingeschränkt sind, lassen sich in manchen Fällen recht weitgehende Angaben über den Anteil der stratosphärischen Luftbeimengung und die troposphärische Aerosolverweilzeit machen. Zum Beispiel ergibt die Probe vom 27. Juli 1965 ( $\text{Be}^7/\text{P}^{32} = 670$ ) nach Abb. 3 eine Mindestbeimischung von 50% und eine Zeit zwischen 30 und 100 Tagen.

Die Untersuchungen wurden mit Unterstützung der Schutzkommission beim Bundesministerium des Innern durchgeführt.

<sup>13</sup> LUDLAM, Handbuch der Physik 48, 518 [1957].

<sup>14</sup> Wetterkarte des Wetteramtes Stuttgart.