

Neubestimmung der natürlichen irdischen Tritiumzerfallsrate und die Frage der Herkunft des „natürlichen“ Tritium

Von F. BEGEMANN *

The Enrico Fermi Institute for Nuclear Studies, The University of Chicago, Chicago (Ill.)
und Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz

(Z. Naturforschg. 14 a, 334—342 [1959] ; eingegangen am 5. Januar 1959)

The terrestrial decay rate of “natural” tritium has been re-determined from measurements of the tritium content of old snow samples from Greenland. The finding by CRAIG and BEGEMANN and LIBBY has been confirmed that the tritium decay rate is about 10 times higher than was anticipated previously.

- Two mechanisms to explain the discrepancy are discussed,
a) production by the low energy component of the cosmic radiation and
b) the accretion of solar tritium by the earth, as suggested by FELD and ARNOLD.

It is shown that in case all the tritium is produced by cosmic radiation the tropospheric production rate may be expected to vary *in antiphase* with the sunspot cycle, whereas in case of accretion of solar tritium by the earth the variation should be *in phase* with the sunspot cycle. In both cases a phase shift between the stratospheric production rate and the amount of tropospheric tritium is to be expected because of the residence time of tritium in the stratosphere. A measurement of the phase shift should allow to determine this residence time.

The data obtained on the Greenland samples appear to show such a variation of the production rate. The results can be explained best by assuming that all the tritium is produced by cosmic radiation. This result, however, is only preliminary. More systematic measurements are required to decide between the two possibilities.

Seit der Entdeckung von Tritium im atmosphärischen Wasserstoff und im Wasser^{1, 2} sind eine Reihe von Arbeiten erschienen, die sich mit der natürlichen irdischen Tritiumproduktionsrate** \bar{Q} beschäftigen³⁻¹². Dabei wurde dieses Problem gleichzeitig von zwei verschiedenen Seiten in Angriff genommen.

a) Einmal wurde die Tritiumkonzentration im Wasser von Niederschlägen, Flüssen und Seen gemessen und daraus die Zerfallsrate berechnet^{4, 5, 8, 9, 11, 12}. Unter stillschweigender Annahme radioaktiven Gleichgewichts wurde diese gleich der Produktionsrate gesetzt.

b) Zum anderen wurden die Wirkungsquerschnitte der für die Erzeugung von Tritium in Frage kommenden Reaktionen gemessen. Diese zusammen mit den Werten für die Intensität der kosmischen Strahlung ergaben direkt die atmosphärische Produktionsrate^{3, 6, 7, 10}. Dabei wurden im wesentlichen die (n, t)-Reaktion am Stickstoff und die Erzeugung von

Tritium durch Spallationsreaktionen an Stickstoff und Sauerstoff untersucht. Abschätzungen der Produktionsrate in der Lithosphäre und Hydrosphäre [z. B. durch (α , n)-Reaktionen] ergaben, daß diese gegenüber der atmosphärischen Produktionsrate zu vernachlässigen ist⁴.

Tab. 1 gibt eine Zusammenstellung der von verschiedenen Autoren berechneten Werte.

Arbeit	$\bar{Q} \left[\frac{\text{T-Atome}}{\text{cm}^2 \text{ sec}} \right]$	Methode
(3)	0,4—0,9	b
(4)	0,12	a
(5)	0,14	a
(6)	0,2	b
(7)	0,14	b
(8)	1,7	a
(9)	2,0	a
(10)	0,14	b
(11)	1,1	a

Tab. 1. Die von den verschiedenen Autoren gefundenen Werte für die natürliche irdische Tritiumproduktionsrate.

* Jetzt: Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz.
¹ V. FALTINGS u. P. HARTECK, Z. Naturforschg. 5 a, 438 [1950]; Nature, Lond. 166, 1109 [1950].
² A. v. GROSSE, W. H. JOHNSTON, R. L. WOLFGANG u. W. F. LIBBY, Science 113, 1 [1951].
** Unter der Produktions- und Zerfallsrate wird die Zahl der pro cm² und s Erdoberfläche entstehenden bzw. zerfallenden T-Atome verstanden. Die Begriffe Entstehen bzw. Zerfallen schließen Zufuhr von außen bzw. Entweichen nach außen mit ein.
³ E. L. FIREMAN, Phys. Rev. 91, 922 [1953].
⁴ S. KAUFMAN u. W. F. LIBBY, Phys. Rev. 93, 1337 [1954].

⁵ H. v. BUTTLAR u. W. F. LIBBY, J. Inorg. Nucl. Chem. 1, 75 [1955].
⁶ E. L. FIREMAN u. F. S. ROWLAND, Phys. Rev. 97, 780 [1955].
⁷ L. A. CURRIE, W. F. LIBBY u. R. L. WOLFGANG, Phys. Rev. 101, 1557 [1956].
⁸ H. CRAIG, Phys. Rev. 105, 1125 [1957].
⁹ F. BEGEMANN u. W. F. LIBBY, Geochim. Cosmochim. Acta 12, 277 [1957].
¹⁰ L. A. CURRIE, Phys. Rev., im Druck.
¹¹ B. J. GILETTI, J. L. KULP u. F. BAZAN, Trans. Amer. Geophys. U., im Druck.
¹² F. BEGEMANN, A/Conf. 15/P/1963.



Während alle bis zum Jahre 1956 erschienenen Arbeiten eine gute Übereinstimmung zwischen der Zerfallsrate und der Produktionsrate ergaben, konnten CRAIG⁸ und BEGEMANN und LIBBY⁹ erstmalig zeigen, daß erstere wesentlich größer ist als bis dahin angenommen wurde.

Neubestimmung der Zerfallsrate

Aus verschiedenen Gründen erschien jedoch eine weitere unabhängige Neubestimmung der natürlichen Zerfallsrate auf möglichst einfachem Wege ratsam. Die dafür in Frage kommenden Wasserproben müssen folgende Bedingungen erfüllen:

1. Ihr Alter muß gut bekannt sein.
2. Sie dürfen seit 1952 oder zumindest seit 1954 nicht mehr mit der Atmosphäre in Verbindung gestanden haben. Die seither durch thermonukleare Explosionen erzeugten relativ großen Tritium-Mengen^{5, 9, 11-14} machen eine Messung der natürlichen Zerfallsrate an jüngeren Proben praktisch unmöglich.

3. Der Tritiumgehalt der Proben soll ein möglichst direktes Maß für die mittlere Zerfallsrate sein.

Weine erfüllen zwar die erste und zweite Bedingung, im allgemeinen jedoch nicht die dritte. Einmal wird bei ihnen ein mehr oder weniger großer Anteil des Wassers aus dem Boden stammen (mit unbekanntem Tritiumgehalt), zum anderen hängt der Tritiumgehalt von Niederschlägen in den in Frage kommenden Gebieten in entscheidender Weise vom Anteil und der Tritiumkonzentration des wiederverdampften „Oberflächenwassers“ ab.

Als für unsere Zwecke sehr gut geeignet erschienen jedoch Schneeproben aus Grönland. Das Alter der Proben, d. h. der Zeitpunkt, zu dem der Schnee fiel, läßt sich aus der Stratifikation des Schnees, die durch das Schmelzen einer dünnen Oberflächenschicht während des arktischen Sommers und die damit verbundene Änderung sowohl der Kristallstruktur als auch der Dichte des Schnees entsteht, in eindeutiger und einfacher Weise bestimmen. Ein Austausch zwischen den einzelnen Schichten findet praktisch nicht statt, und die Dicke der während des Sommers schmelzenden Oberflächenschicht ist so gering, daß durch das einsickernde Schmelzwasser ebenfalls keine Störungen zu erwarten sind. Außerdem aber sind die Niederschläge in Grönland sicher hauptsächlich marinen Ursprungs, d. h. es handelt sich um verdampftes Ozeanwasser. Da dessen Tritiumgehalt vernachlässigbar ist^{5, 9, 14}, wird der der Proben nur von der Produktionsrate und der Niederschlagsmenge abhängen.

Die Proben wurden am 13. September 1956 etwa 300 km östlich von Thule in einer Höhe von etwa 2300 m durch das U. S. Army Corps of Engineers genommen. Das Alter der Proben wurde an Ort und Stelle von Dr. E. W. MARSHALL, Snow, Ice and Permafrost Research Establishment, Wilmette (Ill.) bestimmt, die Messungen am Enrico Fermi Institute for Nuclear Studies, Chicago, durchgeführt. Experimentelle Einzelheiten sind an anderer Stelle beschrieben^{4, 5, 9, 14}. Die Ergebnisse der Messungen zeigt Tab. 2.

Für die Berechnung der natürlichen Zerfallsrate fallen die vier letzten Proben (1952–1956) aus,

Jahr	$(T/H \cdot 10^{18})_{\text{gem.}}$	$(T/H \cdot 10^{18})_{t=0}$	Niederschlagsmenge ¹⁵ in cm Wasseräquival.
1944–45	$8,2 \pm 1$	$16,4 \pm 2$	38
45–46	$7,3 \pm 0,7$	$13,8 \pm 1,5$	44
46–47	$7,4 \pm 0,8$	$13,2 \pm 1,6$	39
47–48	$8,2 \pm 0,6$	$13,9 \pm 1,3$	36
48–49	$6,1 \pm 0,4$	$9,8 \pm 0,7$	46
49–50	$8,2 \pm 0,6$	$12,4 \pm 1,0$	34
50–51	$6,4 \pm 0,4$	$9,1 \pm 0,6$	48
51–52	$9,0 \pm 0,6$	$12,1 \pm 0,8$	50
52–53	$17,1 \pm 1,0$	$21,7 \pm 1,5$	31
53–54	$24,4 \pm 1,5$	$29,2 \pm 2,0$	37
54–55	186 ± 8	212 ± 10	50
55–56	95 ± 4	101 ± 5	44

Tab. 2. Tritiumgehalt von Schneeproben aus Grönland (etwa 300 km östlich Thule, Höhe etwa 2300 m). In Spalte 2 sind die gemessenen Tritiumkonzentrationen aufgeführt, in Spalte 3 die für das Alter der Proben korrigierten Werte.

¹³ R. M. BROWN u. W. E. GRUMMIT, Can. J. Chem. **34**, 220 [1956].

¹⁴ F. BEGEMANN, Final Report, Contract Nr. AF 18(600)–564 [1957].

da sie deutlich den Anstieg des Tritiumgehalts infolge thermonuklearer Explosionen zeigen. (Zum Vergleich zeigt Abb. 1 die Variation des Tritiumgehaltes von Niederschlägen, die in Chicago gesamt-

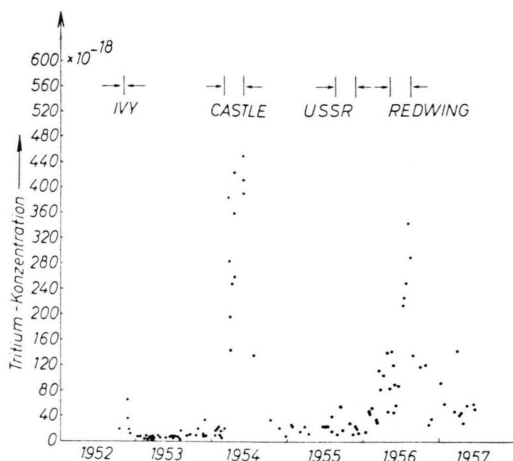


Abb. 1. Die Variation der Tritiumkonzentration in Niederschlägen aus Chicago (U.S.A.) als Folge thermonuklearer Explosionen. Die Zeiten der einzelnen Versuchsserien sind eingezeichnet 4, 5, 9, 12, 14.

melt wurden. Der Einfluß der einzelnen Versuchsserien ist deutlich zu erkennen.)

Die jährliche Niederschlagsmenge wurde aus der Dicke und Dichte der Schneesichten zwischen zwei aufeinanderfolgenden dünnen Schichten geänderter Dichte und Kristallstruktur bestimmt. Da die Bildung dieser Schichten nicht jedes Jahr zur gleichen Zeit geschieht, sondern irgendwann im Juli oder August¹⁵, sind die in Tab. 2 angegebenen jährlichen Niederschlagsmengen mit einem zusätzlichen Fehler von etwa 10% behaftet. Für die Berechnung der mittleren Tritiumzerfallsrate während der Zeit von 1944 bis 1952 erscheint es daher besser, die mittlere jährliche Niederschlagsmenge und den mittleren Tritiumgehalt der Proben zu verwenden als die aus den jährlichen Daten errechneten Zerfallsraten zu mitteln.

Die Werte aus Tab. 2 ergeben dann mit einer mittleren Tritiumkonzentration von $(12,6 \pm 1) \cdot 10^{-18}$ T/H und einer mittleren jährlichen Niederschlagsmenge von 42 cm Wasseräquivalent eine Zerfallsrate von 1,12 T-Atome/cm² sec. Dabei ist vorausgesetzt, daß die Aufenthaltsdauer des Tritiums in der Atmosphäre klein ist gegenüber seiner Halbwertszeit, was für die Troposphäre sicher richtig ist^{9, 13}. Nimmt man jedoch an, daß der überwiegende Teil des Tritiums oberhalb der Tropopause in der Stratosphäre gebildet wird und daß die mittlere Aufenthaltsdauer

des Tritiums in der Stratosphäre etwa dieselbe ist wie die von radioaktiven Spaltprodukten, d. h. etwa 10 Jahre¹⁶, so ergibt sich eine Zerfallsrate von etwa 2 T-Atomen/cm² sec.

Dabei sei noch auf zwei komplizierende Umstände hingewiesen. Einmal wurde die mittlere jährliche Niederschlagsmenge am Herkunftsort der Schneeproben für die Berechnung der Zerfallsrate benutzt, nicht aber die über die Polarkappe integrierte mittlere Niederschlagsmenge. Da letztere nur etwa 20 cm Wasseräquivalent pro Jahr ist¹⁷, ergibt sich in diesem Fall eine mittlere Zerfallsrate von etwa 1 T-Atom/cm² sec. Außerdem liegt der hier durchgeführten Berechnung die stillschweigende Annahme zugrunde, daß alles über der Polarkappe produzierte Tritium dort auch durch Niederschläge oder Austausch deponiert wird. Wegen der relativ geringen jährlichen Niederschlagsmenge ist es jedoch denkbar, daß ein Teil des Tritiums durch horizontale Vermischung in Zonen geringerer Breite transportiert und dort deponiert wird. Aus diesem Grunde kann der Wert von 1 T-Atom/cm² sec als untere Grenze für die natürliche Zerfallsrate angesehen werden.

Diskussion

Da somit wohl bewiesen ist, daß die Tritiumzerfallsrate etwa zehnmal größer ist als die bisher berechnete Produktionsrate, taucht die Frage auf, wie diese Diskrepanz zu erklären ist. Wenn die bisher bekannten und untersuchten Prozesse zur Tritiumerzeugung für die gesamte Produktionsrate verantwortlich sein sollen, müssen entweder die Wirkungsquerschnitte wesentlich größer sein als sie bisher gemessen wurden (was nicht sehr wahrscheinlich ist), oder aber der Beitrag der energiearmen Komponente der kosmischen Strahlung zur Produktionsrate muß bisher wesentlich unterschätzt worden sein (s. Tab. 3).

Die Messungen der Wirkungsquerschnitte für die Tritiumerzeugung durch schnelle Protonen an Stickstoff und Sauerstoff zeigten für dünne Targets keinen Anstieg zwischen 450 MeV und 6,2 BeV¹⁰. Es ist daher anzunehmen, daß die Wirkungsquerschnitte auch für geringere Protonenenergien noch beträchtlich sind. [Die Energieschwelle für (p, t)-Reaktionen an ¹⁴N ist 22,5 MeV, an ¹⁶O 20,4 MeV.] Wenn es außerdem berechtigt ist, das Energiespektrum der

¹⁵ H. BADER u. W. E. MARSHALL, persönliche Mitteilung.

¹⁶ W. F. LIBBY, Proc. Nat. Acad. Sci. **42**, 365 [1956].

¹⁷ F. MÖLLER, Petermanns Geogr. Mitt. **95**, J. 1 [1951].

Erzeugende Komponente	\bar{Q} [T.-Atome/cm ² sec]	
	Bester Wert	Grenzen
Nukleonen ($E > 100$ MeV)	0,082	0,062—0,102
Neutronen ($E < 10$ MeV)	0,05	0,022 —0,077
Nukleonen (10 MeV $< E < 100$ MeV)	0,01	0,0026—0,046
μ -Mesonen, γ	10^{-5}	
Total	0,14	0,09—0,22

Tab. 3⁷. Tritiumerzeugung in der Atmosphäre. Das gesamte Tritium wird etwa je zur Hälfte in der Stratosphäre und der Troposphäre erzeugt.

kosmischen Strahlung mit demselben Exponenten, wie er für höhere Energien gefunden wurde, nach kleineren Energien zu extrapolieren¹⁸ (die Zahl der die Erde bombardierenden Primärteilchen im Energieintervall von 20—100 MeV wäre dann etwa zehnmal größer (mit $\gamma = -2,5$) als die mit $E > 100$ MeV], könnte man damit vielleicht die Diskrepanz zwischen Zerfallsrate und Produktionsrate erklären.

Auf eine andere Möglichkeit, die hohe Tritiumzerfallsrate zu erklären, haben FELD und ARNOLD unabhängig voneinander hingewiesen⁸. Sie schlagen vor, die Differenz zwischen Zerfallsrate und der Produktionsrate durch kosmische Strahlung durch den Einfang von solarem Tritium durch die Erde zu erklären. Aus verschiedenen Anhaltspunkten (erdmagnetische Störungen, Verformung von Kometenschweif usw.) weiß man, daß die Erde ständig von einem intensiven Strom korpuskularer Teilchen getroffen wird. BIERMANN¹⁹ berechnet z. B., daß ständig etwa $10^{11} - 10^{12}$ Teilchen/cm² sec die äußeren Schichten der irdischen Atmosphäre treffen. Aus der Erscheinung der *aurora borealis*, die heute ebenfalls allgemein auf den Einfluß einer ionisierten Korpuskularstrahlung zurückgeführt wird²⁰, berechnet sich ein Teilchenfluß von etwa derselben Größenordnung. Aus der Höhe, in der *aurorae* auftreten, sowie aus der DOPPLER-Verschiebung mancher Spektrallinien läßt sich auch die Mindestenergie der Teilchen abschätzen. Die am häufigsten beobachteten Höhen sind etwa 110 km²⁰; damit Protonen bis in diese Höhe

vordringen können, müssen sie eine Mindestenergie von etwa 25 keV haben. Gelegentlich jedoch sind *aurorae* in Höhen bis herab zu 70 km beobachtet worden, was einer Protonenmindestenergie von etwa 5 MeV entspricht. Um das Eindringen ionisierter Teilchen dieser Energien in die in Frage kommenden Zonen zu erklären, sind verschiedene Mechanismen vorgeschlagen worden²¹⁻²³.

Über die Zusammensetzung dieser Korpuskularstrahlung ist nur sehr wenig bekannt. Zwar ist beobachtet worden, daß Ca gelegentlich von der Sonne mit Geschwindigkeiten größer als der Entweichgeschwindigkeit emittiert wird²⁴, quantitative Daten liegen jedoch nicht vor. Man ist also bei der Diskussion der Möglichkeit, ob Tritium darin enthalten sein könnte, mehr oder weniger auf Vermutungen angewiesen, zumal keinerlei experimentelle oder theoretische Daten über das Vorhandensein von Tritium auf der Sonne vorliegen.

Eine der Möglichkeiten, Tritium auf der Sonne zu erzeugen, ist die (n, p)-Reaktion ($\sigma = 5400$ barn) an ${}^3\text{He}$. Leider weiß man weder etwas über die Existenz von freien Neutronen auf der Sonne noch kennt man die solare Häufigkeit von ${}^3\text{He}$, jedoch kann man letztere zumindest abschätzen.

Da die Sonne etwa 99% ihrer Energie aus Fusionsreaktionen von Wasserstoff zu Helium (pp-Zyklus) gewinnt²⁵ und man sowohl den Reaktionszyklus als auch die mittlere Reaktionszeit der an ihm beteiligten Zwischenprodukte kennt²⁶ (s. Tab. 4), läßt sich daraus die Häufigkeit von ${}^3\text{He}$ berechnen. Mit den

Reaktion	Energietönung [MeV]	Mittl. Reaktionszeit
${}^1\text{H}(p, \beta^+) {}^2\text{H}$	$2 \cdot 0,164 + (2 \cdot 0,257)$	$1,4 \cdot 10^{10}$ a
$\beta^+ + e^- \rightarrow 2\gamma$	$2 \cdot 1,022$	
${}^2\text{H}(p, \gamma) {}^3\text{He}$	$2 \cdot 5,494$	5,7 sec
${}^3\text{He}({}^3\text{He}, 2p) {}^4\text{He}$	12,847	10^6 a
$4 \cdot {}^1\text{H} \rightarrow {}^4\text{He}$	$26,207 + (0,514)$	

Tab. 4²⁷. Der pp-Zyklus (BETHE, CRITCHFIELD und SALPETER). Die drei ersten Reaktionen kommen im ganzen Zyklus zweimal vor. In Klammern ist der Teil der Energie geschrieben, der in Form von Neutrinos geliefert wird.

¹⁸ B. J. O'BRIEN, Nature, Lond. **182**, 521 [1958].

¹⁹ L. BIERMANN, Z. Astrophys. **29**, 274 [1951].

²⁰ J. W. CHAMBERLAIN u. A. B. MEINEL, in „The Earth as a Planet“, Editor G. P. Kuiper, Univ. of Chicago Press, Chicago 1954.

²¹ S. CHAPMAN u. V. C. A. FERRARO, Terr. Magn. **45**, 245 [1940].

²² D. F. MARTYN, Nature, Lond. **167**, 92 [1951].

²³ W. H. BENNET u. E. O. HULBERT, Phys. Rev. **95**, 315 [1954].

²⁴ H. W. DODSON, E. R. HEDEMAN u. J. W. CHAMBERLAIN, Astrophys. J. **117**, 66 [1953].

²⁵ B. STRÖMGREN, in „The Sun“, Editor G. P. Kuiper, Univ. of Chicago Press, Chicago 1953.

²⁶ W. A. FOWLER, V. Coll. Intern. d'Astrophys. Liège, Mem. Soc. Roy. Soc. Liège (IV) **14**, 88 [1954].

²⁷ A. UNSÖLD, Naturwiss. **44**, 145 [1957].

Reaktionszeiten aus Tab. 4 ergeben sich folgende Werte für die Atomzahlenverhältnisse:

$${}^3\text{He}/\text{H} \sim 10^{-5} \text{ und } {}^3\text{He}/{}^4\text{He} \sim 2 \cdot 10^{-4}.$$

Dabei ist ein Atomzahlenverhältnis $\text{H}/\text{He} = 20$ angenommen²⁵. (Ein geringerer Wert würde das Verhältnis ${}^3\text{He}/\text{H}$ kaum beeinflussen.) Direkte Messungen des ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ -Verhältnisses waren bisher ohne Erfolg, es konnte nur nachgewiesen werden, daß es kleiner ist als 0,02²⁸, was somit nicht im Widerspruch zu dem Ergebnis der hier durchgeführten Rechnung steht.

Es soll nicht versucht werden, die Möglichkeit der Neutronenproduktion auf der Sonne zu diskutieren. Da es aber einen Beschleunigungsmechanismus für Protonen geben muß, der diesen eine Energie bis zu 20 BeV geben kann²⁹, kann man wohl die Bildung von freien Neutronen nicht ohne weiteres ausschließen.

Im folgenden sei darauf hingewiesen, daß es möglich sein sollte zu entscheiden, ob einer der hier erwähnten Prozesse der zusätzlichen Tritiumproduktion bedeutsam ist.

I. Einfang von solarem Tritium

Es ist bekannt, daß die Emission von Materie durch die Sonne eng mit dem Auftreten von chromosphärischen Eruptionen zusammenhängt, die ihrerseits wieder eine enge statistische Beziehung zur Anzahl der Sonnenflecken zeigen^{24, 30–34}. Da letztere im Laufe eines 11-Jahres-Zyklus sehr stark schwankt (Abb. 2), kann man erwarten, daß der von der Sonne emittierte Partikelstrom ähnliche starke Schwankungen zeigt, und zwar *in Phase* mit dem Sonnenfleckenzyklus. BIERMANN¹⁹ berechnet z. B. die normale Partikelemission bei „ruhiger Sonne“ (von fleckenfreien Gebieten) zu $10^{11} - 10^{12}$ pro cm^2 und sec (gemessen in Erdnähe), die bei „gestörter Sonne“ (aus der Umgebung von aktiven Fleckengruppen) jedoch zu 10^{13} . Wenn also Tritium in diesem Partikelstrom enthalten ist, kann man erwarten, daß diese starke Variation gleichbedeutend mit einer zeitlich variablen irdischen Tritiumproduktionsrate ist. Zwar werden die troposphärischen Schwankungen der Produktions-

rate wegen der wahrscheinlich relativ langen mittleren Aufenthaltsdauer des Tritiums in der Stratosphäre sowie wegen des als konstant angenommenen Beitrags der kosmischen Strahlung zur Produktionsrate nicht so ausgeprägt sein wie in der Stratosphäre, der Effekt sollte aber trotzdem meßbar sein.

Die stratosphärische Tritiumproduktionsrate werde beschrieben durch die Funktion

$$Q_{\text{Str}}(t) = \bar{Q}_{\text{Str}} \left(1 + A \sin \frac{2\pi t}{\tau} \right), \quad (1)$$

wobei \bar{Q}_{Str} die mittlere stratosphärische Produktionsrate einschließlich Erzeugung durch kosmische Strahlung in T-Atomen/ cm^2 sec und τ die Periode des

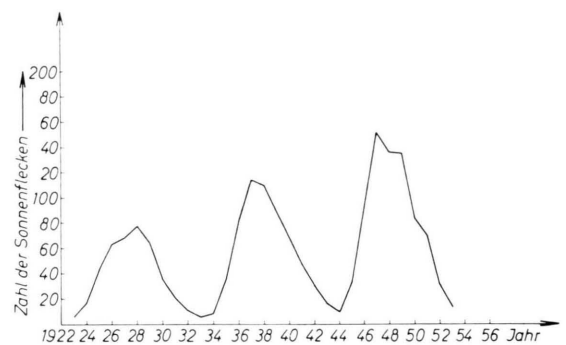


Abb. 2. Die Anzahl der Sonnenflecken für die Zeit von 1923 bis 1953. (Siehe z. B. D. J. SCHÖVE, *The Sunspot Cycle from 649 B.C. to 2000 A.D.*³⁵.)

Sonnenfleckenzyklus (11 Jahre) ist. A beschreibt die Größe der Schwankungen der Produktionsrate. (Im einfachsten Fall, wenn Q_{Str} direkt proportional zur Anzahl der Sonnenflecken ist, läßt sich A aus Abb. 2 ablesen. Sie zeigt auch, daß A für die verschiedenen Zyklen nicht notwendigerweise denselben Wert zu haben braucht.) $t = \tau/4$ bei Sonnenfleckenmaximum.

Die Menge des in der Stratosphäre pro cm^2 vorhandenen Tritiums ist dann

$$T_{\text{Str}}(t) = \bar{Q}_{\text{Str}} \left[\frac{1}{\lambda} + \frac{A}{\sqrt{\lambda^2 + (2\pi/\tau)^2}} \sin \left(\frac{2\pi t}{\tau} - \alpha \right) \right]. \quad (2)$$

$1/\lambda$ ist die mittlere Verweilzeit der Tritiumatome in der Stratosphäre. Diese wird durch drei Prozesse bestimmt sein (Abb. 3), nämlich den radioaktiven Zerfall von Tritium in ${}^3\text{He}$ (λ_1), den Transport von Tritium in die Troposphäre (λ_2) und das Entweichen

²⁸ J. L. GREENSTEIN, *Astrophys. J.* **113**, 531 [1951].

²⁹ Siehe z. B.: *Conv. Intern. R. Cosm. Nuovo Cimento*, Suppl. Vol. VIII, Serie X, Part I.

³⁰ R. G. GIOVANELLI, *Astrophys. J.* **91**, 334 [1940].

³¹ S. CHAPMAN u. J. BAETELS, *Geomagnetism*, Oxford 1940.

³² H. W. NEWTON, *Monthl. Not. Roy. Astr. Soc.* **102**, 2 [1942].

³³ M. A. ELLISON, *Monthl. Not. Roy. Astr. Soc.* **102**, 11 [1942].

³⁴ J. BAETELS, *FIAT-Bericht, Geophysics Part I* [1948].

³⁵ D. J. SCHÖVE, *J. Geophys. Res.* **60**, 127 [1955].

von Tritium in den Weltraum (λ_3). Da λ_3 sicher gegenüber λ_1 und λ_2 zu vernachlässigen ist, ist $\lambda = \lambda_1 + \lambda_2$. (Für stabile Atome ist $\lambda = \lambda_2$.)

α beschreibt die Phasenverschiebung zwischen dem zeitlichen Verlauf der Produktionsrate und dem der Menge des in der Stratosphäre vorhandenen Tritiums, und zwar ist

$$\operatorname{tg} \alpha = 2 \pi / \tau \lambda. \quad (3)$$

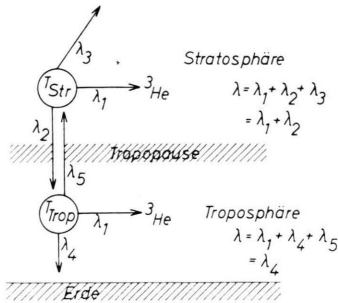


Abb. 3. Modell der irdischen Atmosphäre. Die verschiedenen Prozesse, die die Verweilzeit des Tritiums in der Stratosphäre und der Troposphäre bestimmen, sind angedeutet.

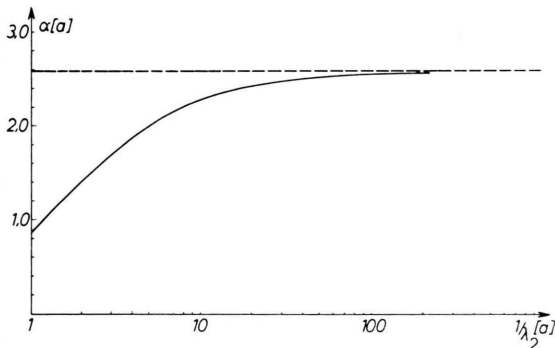


Abb. 4. Die zu erwartende Phasenverschiebung der in der Stratosphäre vorhandenen Tritiummenge gegenüber der Produktionsrate als Funktion von τ_2 .

$$T_{\text{Trop}}(t) = \left(Q_{\text{Trop, K.S.}} + \frac{\lambda_2}{\lambda} \bar{Q}_{\text{Str}} \right) \left[\frac{1}{\lambda_4} + \frac{\lambda_2 \bar{Q}_{\text{Str}} A}{\left(Q_{\text{Trop, K.S.}} + \frac{\lambda_2}{\lambda} \bar{Q}_{\text{Str}} \right) \sqrt{\lambda^2 + \left(\frac{2\pi}{\tau} \right)^2} \sqrt{\lambda_4^2 + \left(\frac{2\pi}{\tau} \right)^2}} \sin \left(\frac{2\pi t}{\tau} - \alpha - \beta \right) \right]. \quad (5)$$

$1/\lambda_4$ ist die mittlere Verweilzeit des Tritiums in der Troposphäre (Abb. 3), die etwa 1–2 Monate ist^{9, 13}. $\beta = \arctan(2\pi/\tau \lambda_4)$ beschreibt die zusätzlich zwischen Stratosphäre und Troposphäre auftretende Phasen-

verschiebung. Sie ist jedoch so klein (etwa 1 Monat), daß die in Abb. 4 dargestellte Phasenverschiebung für die Stratosphäre auch als richtig für die Troposphäre angenommen werden kann.

Für das folgende wird es wichtig sein zu wissen, ob das stratosphärische Tritium als HT oder als HTO vorliegt. Oberhalb der Tropopause ändert sich die relative Wasserdampfkonzentration nur geringfügig, der Mittelwert für das Volumenverhältnis Wasser/Luft ist etwa $36 \cdot 10^{-5}$. Der entsprechende Wert für das Verhältnis Wasserstoff/Luft ist etwa $37 \cdot 10^{-7}$. Das Volumenverhältnis Wasser/Wasserstoff ist somit etwa 100. Hinzu kommt, daß die Gleichgewichtskonstante $K = (\text{HTO}) (\text{H}_2) / (\text{H}_2\text{O}) (\text{HT})$ für niedrige Temperaturen beträchtliche Werte annimmt (20°C : $K = 6,24$; -60°C : $K \sim 15$)^{38, 39}. Selbst wenn kein thermodynamisches Gleichgewicht zwischen HT und HTO besteht, kann man als sehr wahrscheinlich annehmen, daß die Hauptmenge des Tritium als HTO vorliegen wird. Im folgenden wird also angenommen werden, daß das stratosphärische Tritium als HTO in die Troposphäre transportiert wird und hier nicht erst zu HTO verbrannt werden muß.

Die Tritiumproduktionsrate unterhalb der Tropopause – und alle bisher durchgeführten Messungen erlauben ja nur, diese zu bestimmen – ist dann gegeben durch die troposphärische Produktionsrate durch die kosmische Strahlung ($Q_{\text{Trop, K.S.}}$) und den Tritiumfluß aus der Stratosphäre in die Troposphäre, d. h.

$$Q_{\text{Trop}}(t) = Q_{\text{Trop, K.S.}} + \lambda_2 \cdot T_{\text{Str}}(t). \quad (4)$$

Die in der Troposphäre pro cm^2 vorhandene Menge Tritium ist

³⁶ R. M. GOODY, „The Physics of the Stratosphere“, Cambridge Univ. Press, Cambridge 1954.

³⁷ E. GLUECKAUF in „Compendium of Meteorology“, Amer. Met. Soc., Boston 1951.

³⁸ W. F. LIBBY, J. Chem. Phys. **11**, 101 [1943].

³⁹ J. F. BLACK u. H. S. TAYLOR, J. Chem. Phys. **11**, 395 [1943].

Da $\lambda_4 \gg 2\pi/\tau$ und $Q_{\text{Trop, K.S.}} \ll (\lambda_2/\lambda) \bar{Q}_{\text{Str}}$ (siehe Tab. 3), vereinfacht sich (5) zu

$$T_{\text{Trop}}(t) = \frac{\lambda_2}{\lambda_4} \bar{Q}_{\text{Str}} \cdot \left[\frac{1}{\lambda} + \frac{A}{\sqrt{\lambda^2 + (2\pi/\tau)^2}} \sin\left(\frac{2\pi t}{\tau} - \alpha\right) \right] = \frac{\lambda_2}{\lambda_4} T_{\text{Str}}(t). \quad (6)$$

Abb. 5 zeigt die für verschiedene Werte von A und $\tau_2 = 1/\lambda_2$ zu erwartenden relativen Schwankungen (Δ) der in der Troposphäre vorhandenen Menge Tritium. Die mittlere Aufenthaltsdauer (τ_2) von Spaltprodukten, speziell ^{90}Sr , in der Stratosphäre ist etwa 10 Jahre¹⁶. Da das Tritium jedoch aus größeren

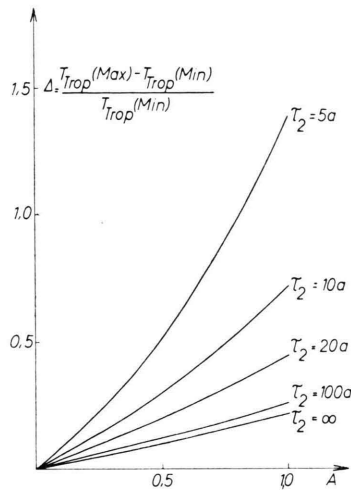


Abb. 5. Die relativen Schwankungen der in der Troposphäre vorhandenen Tritiummenge $\Delta = \frac{T_{\text{Trop}}(\text{Max}) - T_{\text{Trop}}(\text{Min})}{T_{\text{Trop}}(\text{Min})}$ als Funktion der Schwankungsamplitude der Produktionsrate A für verschiedene Werte von τ_2 .

Höhen in die Troposphäre herabgebracht werden muß, kann man wahrscheinlich $\lambda_2 = 10^{-1} \text{ a}^{-1}$ als obere Grenze annehmen.

Unter der einfachsten Annahme (s. oben), daß die Tritiumproduktionsrate direkt proportional der Anzahl der Sonnenflecken und daß die Produktion durch die kosmische Strahlung zu vernachlässigen ist, ergibt sich für die letzten drei Sonnenfleckenzyklen (1923–1955) $A \sim 0,85$. Dieser Wert dürfte somit eine obere Grenze sein. Selbst wenn der Tritiumtransport aus der Stratosphäre in die Troposphäre nur ein sehr langsamer Prozeß ist, sollten die rela-

tiven Schwankungen des in der Troposphäre vorhandenen Tritiums durchaus meßbar sein (Abb. 5).

II. Tritiumerzeugung ausschließlich durch kosmische Strahlung

FORBUSH⁴⁰ konnte 1954 durch eine sorgfältige Analyse der vorliegenden experimentellen Ergebnisse zeigen, daß die Intensität der kosmischen Strahlung nicht nur kurzzeitige (tägliche und 27-tägige) Schwankungen aufweist, sondern auch eine solche mit einer Periode von 11 Jahren, und zwar in Antiphasse mit dem Sonnenfleckenzyklus. Seither sind eine Reihe von Arbeiten erschienen, die dieses Ergebnis glänzend bestätigt haben^{41–45}. Sie zeigen, daß die Intensitätsschwankungen im wesentlichen auf eine Änderung des Anteils der energiearmen Komponente zurückzuführen sind.

Wenn also alles Tritium durch die kosmische Strahlung erzeugt wird, sollte die troposphärische Produktionsrate – falls überhaupt – in Antiphasse mit dem Sonnenfleckenzyklus variieren.

Alle im vorhergehenden Abschnitt durchgeführten Rechnungen können (mit $t = \tau/4$ bei Sonnenfleckenminimum) übernommen werden, es bleibt nur A für diesen Fall abzuschätzen.

Nach NEHER⁴¹ war 1954 (Sonnenfleckenminimum) die Anzahl der Primärteilchen mit $E > 150 \text{ MeV}$ in großen Höhen (30 g/cm^2) und in der Nähe des geomagnetischen Nordpols mindestens 2,4-mal größer als 1937 (Sonnenfleckenmaximum). In der Nähe des Äquators jedoch war die relative Änderung um den Faktor 19 kleiner⁴⁴. Selbst wenn man berücksichtigt, daß sich das Energiespektrum der kosmischen Strahlung sehr stark änderte⁴⁵, und damit die relative Änderung der Zahl der Primärteilchen mit $E > 20 \text{ MeV}$ von Sonnenfleckenminimum zu Sonnenfleckenmaximum noch größer ist als der von NEHER gefundene Wert für Primärteilchen mit $E > 150 \text{ MeV}$, dürfte die über die gesamte Erde gemittelte Intensität nicht um mehr als den Faktor 2 schwanken, was $A = 0,33$ entspricht.

Die relativen Schwankungen der in der Troposphäre vorhandenen Menge Tritium (Δ) sollten in diesem Fall wesentlich kleiner sein als im Falle des

⁴⁰ S. E. FORBUSH, J. Geophys. Res. **59**, 534 [1954].

⁴¹ H. V. NEHER, Phys. Rev. **103**, 228 [1956].

⁴² H. V. NEHER, Phys. Rev. **107**, 588 [1957].

⁴³ J. R. WINCKLER u. L. PETERSON, Nature, Lond. **181**, 1317 [1958].

⁴⁴ H. V. NEHER u. S. E. FORBUSH, Phys. Rev. Lett. **1**, 173 [1958].

⁴⁵ P. MEYER u. J. A. SIMPSON, Nuovo Cim. Suppl. Vol. VIII, Serie X, 233 [1958].

Herkunft	Bezeichnung	Jahr	T/H · 10 ¹⁸	(T/H · 10 ¹⁸) _{Mittel}
Naples, N.Y. (U.S.A.)	Widmers N.Y. Riesling	1940	6,6 ± 0,4	5,8 ± 0,3
		1946	5,4 ± 0,3	
		1952	5,6 ± 0,3	
Tain, Drôme (Frankreich)	Hermitage Rhone	1929	4,3 ± 1,4	3,4 ± 0,3
		1942	3,92 ± 0,4	
		1947	3,0 ± 0,3	
		1951	3,8 ± 0,5	
Frankreich	Chateau Laujac Bordeaux	1928	4,6 ± 0,7	4,3 ± 0,3
		1934	3,3 ± 0,9	
		1939	5,6 ± 0,9	
		1945	4,2 ± 0,3	
Jerez de la Frontera (Spanien)	Sherry	1942	3,55 ± 0,5	3,1 ± 0,4
		1947	2,67 ± 0,75	
		1951	3,0 ± 1,0	

Tab. 5^{4, 5}. Tritiumgehalt von Weinen verschiedener Herkunft und verschiedenen Alters (rückextrapoliert auf $t=0$). Die Mittelwerte in Spalte 5 sind „gewogene Mittel“.

Einfangs von solarem Tritium durch die Erde (s. Abb. 5), und sie sollten (bis auf die von τ_2 abhängende Phasenverschiebung) in Antiphasse mit dem Sonnenfleckenzklus auftreten.

Wenn also eine und nur eine der beiden hier diskutierten Möglichkeiten der zusätzlichen Tritiumproduktion richtig ist, müßte ohne weiteres zu entscheiden sein, um welche der beiden es sich handelt.

III. Auswertung der vorliegenden experimentellen Ergebnisse

Die experimentelle Prüfung der Frage, ob die in der Troposphäre vorhandene Tritiummenge tatsächlich Schwankungen der hier diskutierten Art aufweist und ob und in welchem Zusammenhang sie mit dem Sonnenfleckenzklus stehen, kann an Proben geschehen, die die drei Bedingungen, die an die für die Bestimmung der Zerfallsrate geeigneten Proben gestellt wurden, erfüllen (s. oben). Tatsächlich liegen bereits einige solche Messungen vor. Das sind einmal die von KAUFMAN und LIBBY⁴ und die von v. BUTTLAR und LIBBY⁵ durchgeführten Messungen des Tritiumgehaltes von Weinen verschiedener Herkunft und verschiedenen Alters (Tab. 5) und außerdem die in Tab. 2 angegebenen Ergebnisse der Tritiumbestimmung an Schneeproben aus Grönland.

Wie Tab. 5 zeigt, sind die Mittelwerte der Tritiumkonzentration für die Weine verschiedener Herkunft verschieden. Die Gründe dafür sind die folgenden:

a) Der relative Anteil des aus dem Boden aufgenommenen Grundwassers ist je nach Herkunft sehr verschieden. Wächst der Wein an steilen Hängen,

kann dieser Anteil klein sein, wächst er in der Ebene, wird er größer sein. Da der Tritiumgehalt des Grundwassers kleiner ist als der von Niederschlägen, wird auch der Tritiumgehalt der Weine dadurch beeinflusst werden.

b) Der Tritiumgehalt von Niederschlägen hängt sehr stark vom Ort ab, an dem diese fallen, da er außer von der mittleren Aufenthaltsdauer des Wasserdampfes in der Atmosphäre entscheidend vom Tritiumgehalt des verdampften Wassers abhängt, das die Quelle der Niederschläge bildet.

In küstennahen Gebieten handelt es sich bei den Niederschlägen fast ausschließlich um verdampftes Meerwasser mit einem sehr kleinen Tritiumgehalt, die Tritiumkonzentration der Niederschläge wird also ebenfalls klein sein. In küstenfernen Gebieten dagegen ist das kontinentale „Oberflächenwasser“ mit seiner um ein mehrfaches höheren Tritiumkonzentration eine wesentliche Quelle der Niederschläge, deren Tritiumgehalt also entsprechend höher sein wird. (In diesem Sinne handelt es sich z. B. beim Staat New York, aus dem der Wein mit dem höchsten mittleren Tritiumgehalt stammt, wegen der vorherrschenden Westwinde um ein küstenfernes Gebiet.)

In Abb. 6 ist die auf $t=0$ rückextrapolierte Tritiumkonzentration der Weine als Funktion des Jahrganges aufgetragen. Offensichtlich schließen diese Ergebnisse eine systematische Abhängigkeit des Tritiumgehaltes vom Jahrgang nicht aus, die geringe Anzahl der gemessenen Proben läßt aber eine Auswertung als verfrüht erscheinen.

Die Ergebnisse der Tritiumbestimmungen an den Schneeproben aus Grönland erscheinen insofern besser für eine Auswertung geeignet zu sein, da die Proben von 1944–1952 fast einen ganzen Sonnenfleckenzyklus repräsentieren und sie außerdem ein

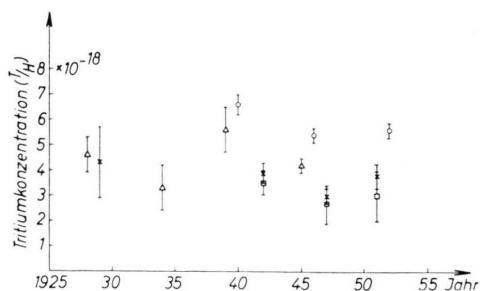


Abb. 6. Die auf $t=0$ rückextrapolierte Tritiumkonzentration von Weinen verschiedener Herkunft und verschiedenen Alters (nach KAUFMAN u. LIBBY⁴ und v. BUTTLAR u. LIBBY⁵). ○ Widmer's N.Y. Riesling, Naples, N.Y. (U.S.A.), × Hermitage Rhone, Tain, Drôme (Frankreich), △ Chateau Laujac Bordeaux (Frankreich), □ Jerez de la Frontera, Sherry (Spanien).

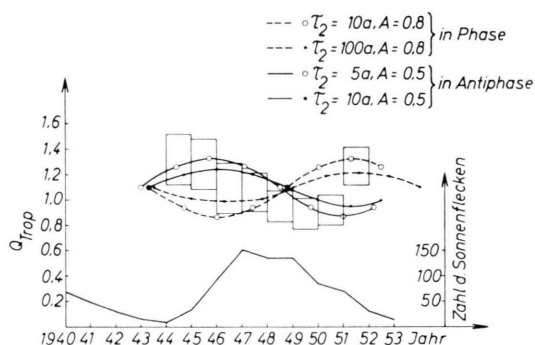


Abb. 7. Die troposphärische Tritiumproduktionsrate für die Zeit von 1944–1952, berechnet aus Messungen an Schneeproben aus Grönland (300 km östlich von Thule, Höhe etwa 2300 m). Ebenfalls eingezeichnet sind die für verschiedene Werte von A und τ_2 zu erwartenden Kurven für die troposphärische Produktionsrate a) für den Einfang von solarem Tritium durch die Erde (---) und b) ausschließliche Produktion durch die kosmische Strahlung (.....). Zum Vergleich ist die Anzahl der Sonnenflecken aufgetragen (rechte Ordinate).

direkteres Maß für die in der Troposphäre vorhandene Tritiummenge darstellen als die Weine (s. oben).

In der oben angegebenen Weise kann aus der Tritiumkonzentration und der jährlichen Niederschlagsmenge die troposphärische Produktionsrate

Jahr	$Q_{\text{Trop}} \left[\frac{\text{T-Atome}}{\text{cm}^2 \text{ sec}} \right]$
1944–45	$1,32 \pm 0,2$
45–46	$1,28 \pm 0,2$
46–47	$1,09 \pm 0,2$
47–48	$1,06 \pm 0,15$
48–49	$0,95 \pm 0,12$
49–50	$0,89 \pm 0,12$
50–51	$0,92 \pm 0,12$
51–52	$1,27 \pm 0,15$

Tab. 6. Die troposphärischen Tritiumproduktionsraten von 1944–1952, berechnet aus Messungen an Schneeproben aus Grönland (s. Tab. 2). Die angegebenen Fehler schließen die 10-proz. Unsicherheit in der jährlichen Niederschlagsmenge ein (s. oben).

berechnet werden (Tab. 6 und Abb. 7). Da hier nur eventuelle Schwankungen, nicht aber der Absolutwert der Produktionsrate interessieren, muß nur vorausgesetzt werden, daß die jährlichen Niederschlagsmengen am Herkunftsort der Proben – wie sie in Tab. 2 angegeben sind – in einem konstanten Verhältnis zu den über die Polarkappe gemittelten jährlichen Niederschlagsmengen stehen.

Die in Abb. 7 eingezeichneten Kurven zeigen für verschiedene Werte von τ und A die zu erwartende Variation der in der Troposphäre vorhandenen Tritiummenge (in willkürlichen Einheiten) unter der Annahme, daß entweder alles Tritium durch die kosmische Strahlung erzeugt wird oder aber alles Tritium solaren Ursprungs ist. Die Ergebnisse deuten an, daß die troposphärische Tritiumproduktionsrate (bis auf eine Phasenverschiebung von etwa 2 Jahren) in Antiphase mit dem Sonnenfleckenzyklus variiert, was gleichbedeutend mit Produktion durch kosmische Strahlung wäre. Es sind aber sicherlich noch weitere systematische Messungen notwendig, um diese Frage endgültig zu entscheiden.

Den Herren Prof. Dr. W. F. LIBBY und A. TURKEVICH danke ich für viele Anregungen und kritische Diskussionen. Mein Dank gilt auch besonders Dr. H. BADER, Dr. W. E. MARSHALL und dem U. S. Army Corps of Engineers für die Beschaffung der Schneeproben aus Grönland.

Der experimentelle Teil der Arbeit wurde unterstützt durch die U. S. Air Force, Contract Nr. AF 18 (600) – 564.