

|   | K                    | Anm. | In                   | Anm. |
|---|----------------------|------|----------------------|------|
| $T$ °C                                  | 100                  |      | 200                  |      |
| $D$ $\text{cm}^2/\text{s}$              | $4,4 \cdot 10^{-5}$  | 10   | $2,25 \cdot 10^{-5}$ | 8    |
| $D_{\text{eff}}$ $\text{cm}^2/\text{s}$ | $2,8 \cdot 10^{-4}$  | 7    | $7,5 \cdot 10^{-5}$  | 7    |
| $r_o$ cm                                | $3 \cdot 10^{-2}$    | 7    | $3 \cdot 10^{-2}$    | 7    |
| $J$ A                                   | 10,1                 | 7    | 10,1                 | 7    |
| $\alpha$ $\Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$   | $6,43 \cdot 10^4$    | 13   | $3,24 \cdot 10^4$    | 13   |
| $\eta$ Poise                            | $4,58 \cdot 10^{-3}$ | 14   | $1,68 \cdot 10^{-2}$ | 15   |
| $b$ $\text{cm}^2/\text{Vs}$             | 0,42                 |      | 0,071                |      |
| $\delta$ $\text{cm}^{-1}$               | $0,90 \cdot 10^{-2}$ |      | $1,09 \cdot 10^{-2}$ |      |

Tab. 1. Zur Auswertung der Gln. (13) und (26) für Kalium und Indium.

Wir kommen zu dem Ergebnis, daß wahrscheinlich magnetohydrodynamische Konvektion bei Kapilla-

<sup>13</sup> Liquid Metals Handbook, Navexos P 733 (Rev.), 1954, S. 42–43.

ren von Durchmessern der Größenordnung 0,6 mm und Strömen von  $\approx 10 \text{ A}$  den wesentlichen Beitrag zu  $D_{\text{eff}}$  liefert. Dieser Beitrag verschwindet mit der 4-ten Potenz des Stromes und der 2-ten Potenz des Kapillarenradius, und er dürfte daher bei engeren Kapillaren keine Rolle spielen, soweit deren Konizität nicht groß ist. Kleinere Beiträge zu  $D_{\text{eff}}$  liefern die thermische Konvektion und die Elektroosmose. Es bedarf weiterer Untersuchungen, um festzustellen, ob sich diese Konvektionsarten so weit unterdrücken oder berechnen lassen, daß die Isotopenüberführung in flüssigen Metallen als Methode zur Messung von Selbstdiffusionskoeffizienten in flüssigen Metallen geeignet wird.

<sup>14</sup> J. BUDDE, K. FISCHER, W. MENZ u. F. SAUERWALD, Z. phys. Chem. (Leipzig) **218**, 100 [1961].

<sup>15</sup> M. F. CULPIN, Proc. Phys. Soc., Lond. B **70**, 1069 [1957].

## Tritium und Deuterium im atmosphärischen Wasserstoff

Von BERNHARD GONSIOR \*

II. Physikalisches Institut der Universität Heidelberg

und IRVING FRIEDMAN

U. S. Geological Survey, Washington D. C./U. S. A.

(Z. Naturforschg. **17 a**, 1088–1091 [1962]; eingegangen am 19. September 1962)

T and D measurements on a set of atmospheric hydrogen samples of 1957 and 1958 are reported, the samples being taken nearly continuously with only a few days distance from each other. Appreciable variations are found, which are only partly due to local admixture of industrial  $\text{H}_2$ . Especially one peak a factor of ten higher than normal was found, which is very probably due to direct injection of unburnt tritium in a nuclear explosion.

FALTINGS und HARTECK<sup>1</sup> konnten im Jahre 1950 zeigen, daß der Tritiumgehalt in atmosphärischem Wasserstoff um mehrere Größenordnungen höher liegt als im Regenwasser (s. a. GROSSE et al.<sup>2</sup>). Kürzlich wurden eine Reihe von weiteren Arbeiten über den Tritium- und Deuteriumgehalt von atmosphärischem Wasserstoff veröffentlicht<sup>3–7</sup>, in denen der hohe Tritiumgehalt, sein Anstieg in den letzten Jahren und seine beträchtlichen Schwankungen zum Teil auf verschiedene Weise gedeutet werden. Zumindest die Tatsache eines Aktivitätsanstiegs um 1

bis 2 Zehnerpotenzen zwischen 1950 und 1960 scheint jedoch gesichert, selbst angesichts der Diskrepanz der Meßwerte für den ursprünglichen von künstlichem Tritium unbeeinflußten Wert, nämlich  $3,5 \cdot 10^4$  T. U. (siehe Anm.<sup>8</sup>) für 1948<sup>7</sup> bzw.  $3,8 \cdot 10^3$  T.U. für 1950<sup>1</sup>. Im folgenden soll über Tritium- und Deuteriummessungen an einer dichten zeitlichen Folge von Proben aus den Jahren 1957 und 1958 berichtet werden. Der mittlere Tritiumgehalt liegt für diese Zeit bei etwa  $3 \cdot 10^5$  T.U. und weist starke Schwankungen auf.

\* Jetzt: Institut für Kernphysik der Universität Köln.

<sup>1</sup> V. FALTINGS u. P. HARTECK, Z. Naturforschg. **5 a**, 438 [1950].

<sup>2</sup> A. v. GROSSE, A. D. KIRSCHENBAUM, J. L. KULP u. W. S. BROECKER, Phys. Rev. **93**, 250 [1954].

<sup>3</sup> B. GONSIOR, Naturwiss. **46**, 201 [1959].

<sup>4</sup> F. BEGEMANN u. I. FRIEDMAN, Z. Naturforschg. **14 a**, 1024 [1959].

<sup>5</sup> K. F. BISHOP u. B. T. TAYLOR, Nature, Lond. **185**, 26 [1960].

<sup>6</sup> B. GONSIOR, Dissertation, Heidelberg 1960.

<sup>7</sup> A. E. BAINBRIDGE, H. F. SUSS, I. FRIEDMAN, K. F. BISHOP, B. T. TAYLOR u. A. F. J. EGGLETON, Nature, Lond. **192**, 648 [1961].

<sup>8</sup> 1 T.U. = eine Tritiumkonzentration von  $[T]/[H] = 10^{-18}$ .



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

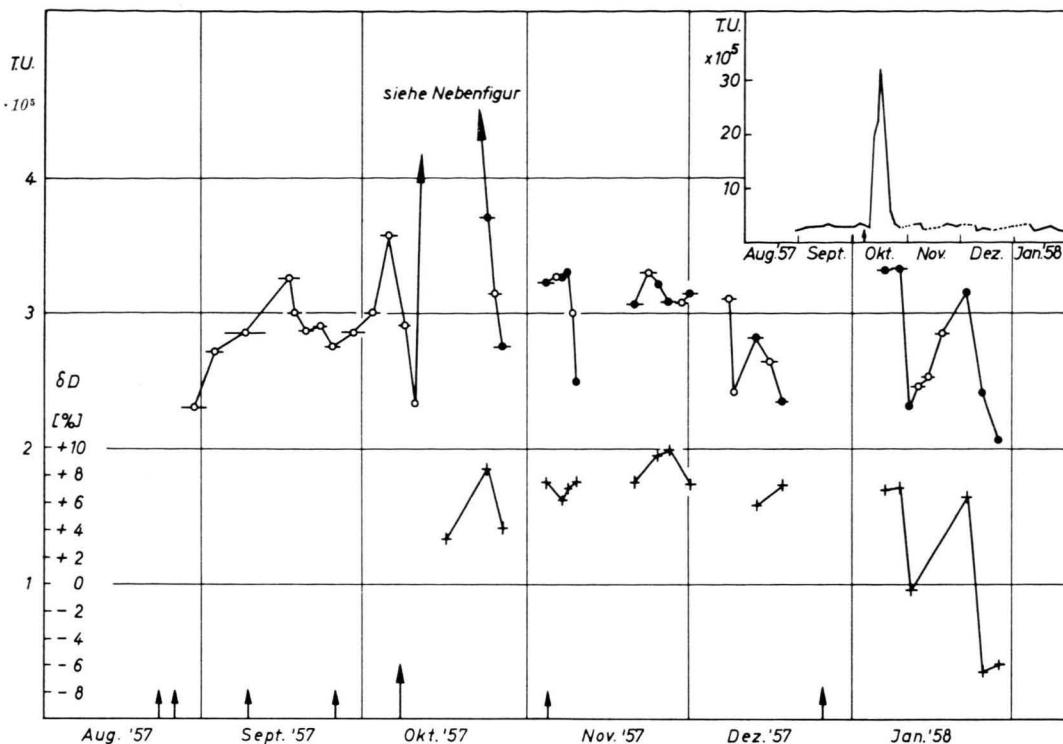


Abb. 1. Tritium- und Deuteriumkonzentration von August 1957 bis Januar 1958. Die Pfeile an der Abszisse bezeichnen Zeitpunkte sowjetischer Kernwaffenexperimente. Davon ist eine wegen ihrer Stärke besonders hervorgehoben. Zwei Meßpunkte sind immer dann miteinander verbunden, wenn zwischen ihnen nicht mehr als zwei Tage liegen. Tritiumkonzentration in  $10^5$  T.U. (1 T.U. bedeutet  $[T]/[H] = 10^{-18}$ ). Deuteriumkonzentration  $\delta D$  in %-Abweichung vom Standard-Wasser vom Michigan-See. ○ Tritium-Konzentration, ● Tritium-Messungen mit gleichzeitig gemessener Deuterium-Konzentration, + Deuterium-Konzentration.

Die Proben atmosphärischen Wasserstoffs, von der Firma Lindé AG., Höllriegelskreuth, aus der Helium-Neon-Fraktion einer Luftverflüssigungsanlage gewonnen, standen als Wasser zur Verfügung. Zur Messung der Tritiumaktivität einer Mischung aus dem wieder-gewonnenen Wasserstoff und inaktivem  $\text{CO}_2$  diente eine Zählapparatur mit Proportionalzählrohr. Die Meßanordnung ist an anderer Stelle beschrieben<sup>6</sup>.

Abb. 1 zeigt die Ergebnisse der Tritiumkonzentrationsmessungen. In Tab. 1 sind außer diesen alle übrigen Messungen an Proben aus den Jahren 1958, 1959 und 1960 angeführt. Mehrere Meßpunkte sind nur dann zu einem durchgehenden Kurvenzug zusammengefaßt, wenn zwischen zwei aufeinanderfolgenden Proben nicht mehr als drei Tage liegen. Auf diese Weise ist durch die geradlinige Verbindung zweier Meßpunkte eine hinreichende Näherung des wahren Verlaufs der Tritiumkonzentration gewährleistet. Offenbar verlaufen die Konzentrationsänderungen so schnell, daß bei größerem zeitlichem Ab-

stand der Proben diese Forderung nicht zu erfüllen ist.

An einem Teil der Proben wurden auch Deuteriummessungen ausgeführt (unterer Teil von Abb. 1), es kann daher durch eine Korrelationsrechnung nach BEGEMANN und FRIEDMAN<sup>4</sup> geprüft werden, inwie weit die beobachteten Schwankungen auf wechselnde Zumischung von vergleichsweise T-freiem Wasserstoff, der sich wohl vor allem aus der industriell vorgenommenen Zerlegung von Wasser (bei der Wassergas-Reaktion oder durch Elektrolyse) herleitet und infolge der dabei auftretenden Deuterium-abreicherung „leicht“ ist, zurückgeführt werden können. Dabei wurde die Korrelationsrechnung nicht nur für alle Messungen in ihrer Gesamtheit, sondern auch für die einzelnen Kurvenzüge getrennt durchgeführt, da die beobachteten Schwankungen offensichtlich verschiedene Ursachen haben.

Für die Werte von Januar 1958 ergibt sich tatsächlich eine deutliche Parallelität von Tritium und

| Entnahmestadt           | Datum                 | [T]/[H]<br>10 <sup>6</sup> T.U. | $\delta D$<br>[D]/[H]<br>% | Entnahmestadt             | Datum        | [T]/[H]<br>10 <sup>6</sup> T.U. | $\delta D$<br>[D]/[H]<br>% |
|-------------------------|-----------------------|---------------------------------|----------------------------|---------------------------|--------------|---------------------------------|----------------------------|
| 1. Hamburg-Wilhelmsburg | 27. 8. — 1. 9. 1957   | 2,30                            |                            | 63. Hamburg-Wilhelmsburg  | 22. 8. 1958  | 2,63                            |                            |
| 2. „                    | 2.—4. 9. 1957         | 2,70                            |                            | 64. „                     | 26. 8. 1958  | 2,10                            |                            |
| 3. „                    | 5.—9. 9. 1957         | 2,85                            |                            | 65. „                     | 13. 4. 1959  | 4,11                            |                            |
| 4. „                    | 10.—12. 9. 1957       | 2,85                            |                            | 66. München-Höllriegelsk. | 21. 7. 1959  | 3,83                            |                            |
| 5. „                    | 15.—18. 9. 1957       | 3,26                            |                            | 67. „                     | 25. 9. 1959  | 2,84                            |                            |
| 6. „                    | 17.—18. 9. 1957       | 3,00                            |                            | 68. Witten                | 12. 9. 1959  | 3,04*                           |                            |
| 7. „                    | 19.—21. 9. 1957       | 2,87                            |                            | 69. Oberhausen            | 1. 12. 1959  | 2,67*                           |                            |
| 8. „                    | 22.—23. 9. 1957       | 2,89                            |                            | 70. „                     | 22. 12. 1959 | 3,6 *                           |                            |
| 9. „                    | 24.—26. 9. 1957       | 2,75                            |                            | 71. „                     | 27. 1. 1960  | 2,26*                           |                            |
| 10. „                   | 27.—30. 9. 1957       | 2,85                            |                            | 72. „                     | 14. 2. 1960  | 2,23*                           |                            |
| 11. „                   | 1.—3. 10. 1957        | 3,00                            |                            | 73. Nürnberg              | 19. 2. 1960  | 2,15                            |                            |
| 12. „                   | 4.—6. 10. 1957        | 3,57                            |                            | 74. München-Höllriegelsk. | 9. 3. 1960   | 7,47*                           |                            |
| 13. „                   | 8. 10. 1957           | 2,91                            |                            | 75. „                     | 8. 7. 1960   | 3,14*                           |                            |
| 14. „                   | 10. 10. 1957          | 2,32                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 15. „                   | 12. 10. 1957          | 19,4                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 16. „                   | 14. 10. 1957          | 22,0                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 17. „                   | 16. 10. 1957          | 32,1                            | + 3,4                      |                           |              |                                 |                            |
| 18. „                   | 18. 10. 1957          | 17,4                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 19. „                   | 21. 10. 1957          | 5,72                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 20. „                   | 22. 10. 1957          | 4,60                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 21. „                   | 22.—24. 10. 1957      | 3,70                            | + 8,5                      |                           |              |                                 |                            |
| 22. „                   | 24.—25. 10. 1957      | 3,15                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 23. „                   | 25.—27. 10. 1957      | 2,75                            | + 4,2                      |                           |              |                                 |                            |
| 24. „                   | 3.—5. 11. 1957        | 3,22                            | + 7,6                      |                           |              |                                 |                            |
| 25. „                   | 5.—6. 11. 1957        | 3,26                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 26. „                   | 6.—7. 11. 1957        | 3,26                            | + 6,2                      |                           |              |                                 |                            |
| 27. „                   | 7.—8. 11. 1957        | 3,30                            | + 7,1                      |                           |              |                                 |                            |
| 28. „                   | 8.—9. 11. 1957        | 3,00                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 29. „                   | 9.—10. 11. 1957       | 2,49                            | + 7,6                      |                           |              |                                 |                            |
| 30. „                   | 20.—22. 11. 1957      | 3,06                            | + 7,5                      |                           |              |                                 |                            |
| 31. „                   | 22.—24. 11. 1957      | 3,30                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 32. „                   | 24.—26. 11. 1957      | 3,21                            | + 9,5                      |                           |              |                                 |                            |
| 33. „                   | 26.—28. 11. 1957      | 3,08                            | + 9,9                      |                           |              |                                 |                            |
| 34. „                   | 28.—30. 11. 1957      | 3,07                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 35. „                   | 30. 11. — 2. 12. 1957 | 3,14                            | + 7,4                      |                           |              |                                 |                            |
| 36. „                   | 7.—9. 12. 1957        | 3,10                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 37. „                   | 9. 12. 1957           | 2,41                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 38. „                   | 12.—14. 12. 1957      | 2,82                            | + 5,8                      |                           |              |                                 |                            |
| 39. „                   | 14.—17. 12. 1957      | 2,64                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 40. „                   | 17.—19. 12. 1957      | 2,34                            | + 7,2                      |                           |              |                                 |                            |
| 41. „                   | 6.—8. 1. 1958         | 3,31                            | + 6,9                      |                           |              |                                 |                            |
| 42. „                   | 8.—11. 1. 1958        | 3,32                            | + 7,1                      |                           |              |                                 |                            |
| 43. „                   | 11.—12. 1. 1958       | 2,31                            | - 0,4                      |                           |              |                                 |                            |
| 44. „                   | 12.—14. 1. 1958       | 2,45                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 45. „                   | 14.—16. 1. 1958       | 2,52                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 46. „                   | 17.—18. 1. 1958       | 2,84                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 47. „                   | 22. 1. 1958           | 3,14                            | + 6,4                      |                           |              |                                 |                            |
| 48. „                   | 25. 1. 1958           | 2,40                            | - 6,5                      |                           |              |                                 |                            |
| 49. „                   | 28. 1. 1958           | 2,05                            | - 6,0                      |                           |              |                                 |                            |
| 50. „                   | 5. 3. 1958            | 3,51                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 51. „                   | 9. 3. 1958            | 2,95                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 52. „                   | 13. 3. 1958           | 2,72                            | - 4,7                      |                           |              |                                 |                            |
| 53. „                   | 16. 3. 1958           | 2,94                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 54. „                   | 17. 3. 1958           | 3,48                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 55. „                   | 18. 3. 1958           | 3,72                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 56. „                   | 30. 3. 1958           | 2,98                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 57. „                   | 2. 4. 1958            | 2,96                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 58. „                   | 18. 5. 1958           | 3,13                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 59. „                   | 24. 5. 1958           | 2,11                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 60. „                   | 30. 6. 1958           | 2,07                            | - 7,3                      |                           |              |                                 |                            |
| 61. „                   | 17. 7. 1958           | 2,48                            |                            |                           |              |                                 |                            |
| 62. „                   | 16. 8. 1958           | 2,43                            |                            |                           |              |                                 |                            |

(Tab. 1 Fortsetzung nächste Spalte)

\* G. ISRAEL, private Mitteilung.  
Tab. 1. Messungen der Tritium- und Deuterium-Konzentration 1957—1960. Die Genauigkeit der Tritium-Messungen beträgt 4%.

Deuterium im Sinne von BEGEMANN und FRIEDMAN<sup>4</sup>. Für den extrapolierten Deuteriumgehalt des zugesetzten (industriellen) Wasserstoffs erhält man  $\delta D_{pr} = -30\%$ . Dies ist in guter Übereinstimmung mit dem Befund von BEGEMANN und FRIEDMAN<sup>4</sup>  $\delta D_{pr} = -25\%$  (dort  $\delta_{pr}$ ). Der Beimischungsgrad des industriellen  $H_2$  in den untersuchten Proben beträgt, falls man den höchsten gefundenen Deuteriumgehalt von  $\delta D \approx +10\%$  als den ungestörten betrachtet darf, bis 45%, bei den Buffalo-Proben von BEGEMANN und FRIEDMAN<sup>4</sup> unter entsprechenden Voraussetzungen bis 75%. Läßt man die Möglichkeiten eines eventuell wechselnden Ausmaßes der Isotopen trennung bei der Luftverflüssigung und der Abtrennung des  $H_2$  außer acht — was sicherlich nicht erlaubt ist —, so hieße das, daß die Verunreinigung mit Industriewasserstoff bei den Buffalo-Proben generell größer war als bei den älteren Proben von Hamburg-Wilhelmsburg, in der Tat liegen auch die Tritiumwerte von Buffalo niedriger, soweit sie sich mit denen von Hamburg überschneiden. Ähnlich sind vielleicht auch die hier veröffentlichten relativ niedrigen Tritiumwerte vom Sommer 1958 zu verstehen; die Deuteriumwerte sind, soweit sie vorliegen, viel niedriger als 1957 in Hamburg. Es ist durchaus denkbar, daß eine neue Quelle von T-freiem  $H_2$  hinzukam und die Proben nun stärker verunreinigte<sup>9</sup>. Der Tritiumgehalt im atmosphäri-

<sup>9</sup> Weitere Deuteriummessungen scheinen dies zu bestätigen (D. EHHLALT, private Mitteilung).

schen  $H_2$  scheint übrigens auch weiterhin nach der vorübergehenden Einstellung der Kernwaffenversuche Ende 1958 nicht abgenommen zu haben<sup>10</sup>, dies spricht für eine relativ lange Lebensdauer des atmosphärischen  $H_2$ .

Das Konzept der lokalen Verunreinigung mit industriellem praktisch tritiumfreiem Wasserstoff reicht jedoch nicht aus, um alle an den hier vorgelegten Meßwerten sichtbaren Schwankungen zu erklären. Am augenfälligsten ist dies bei der Aktivitätsspitze Mitte Oktober 1957, wo für einige Tage die 10-fache Tritiumaktivität erreicht wird, der Deuteriumgehalt sich jedoch in keiner Weise auffallend verändert. Zu dieser Zeit muß der Atmosphäre eine große Menge künstlich produzierten Tritiums zugeführt worden sein. Es liegt nahe, einen Zusammenhang mit Atombombenexperimenten zu suchen. Den öffentlichen Verlautbarungen war zu entnehmen, daß am 7. 10. 1957, neun Tage bevor die Tritiumkonzentration ihr Maximum erreicht hatte, als erstes Glied einer neuen Serie ein sowjetisches Kernwaffenexperiment durchgeführt worden ist, dessen Explosion besonders stark war. Fünf Tage danach bereits beginnt die Tritiumkonzentration sprunghaft anzusteigen. Es ist sehr wahrscheinlich, daß hier ein ausgeprägter Zusammenhang mit einem Atombombentest vorliegt.

Man kann annehmen, daß künstlich erzeugtes Tritium auch sonst an den Tritiumkonzentrationsschwankungen beteiligt ist, auch wenn sein Einfluß nicht immer so ausgeprägt sein wird wie in dem oben gezeigten Fall.

Man wird damit rechnen müssen, daß gelegentlich Tritium in Form von Wasserstoff das Explosionszentrum unverbrannt verlassen kann<sup>11</sup>, wobei man beachten muß, daß selbst ein relativ kleiner der Verbrennung entgehender Bruchteil des insgesamt vorhandenen oder erzeugten Tritiums den Tritiumpegel im atmosphärischen Wasserstoff erheblich stören kann, weil die absolute Menge des in der Atmosphäre vorhandenen Wasserstoffs und damit des Tritiums sehr klein ist. Die Erzeugung einer merklichen Aktivitätsspitze in Mitteleuropa ist dabei im Falle russischer Experimente sehr viel wahrscheinlicher als bei solchen der USA oder Englands, weil die russischen Versuchsplätze ziemlich weit nördlich liegen, so daß radioaktive Schwaden längs der Breitenkreise hierher gelangen können, bevor sie sich in meridionaler (südlicher) Richtung ausbreitet haben. Eine vorübergehende Überhöhung der spezifischen Tritiumaktivität im atmosphärischen  $H_2$  um eine Größenordnung ist auf diese Weise durchaus denkbar.

Auf der Abszisse von Abb. 1 sind alle bekannten sowjetischen Kernwaffenexperimente durch Pfeile vermerkt, möglicherweise liegt auch an einigen anderen dieser Stellen ein direkter Atombombeneinfluß vor.

Die Firma Linde AG., Höllriegelskreuth, stellte freundlicherweise die Wasserstoffproben zur Verfügung und ermöglichte diese Messungen. — Der eine von uns (B. G.) dankt Herrn Professor Dr. O. HAXEL für ständige Förderung und Herrn Dr. K. O. MÜNNICH für viele Diskussionen. Die Heidelberger Akademie der Wissenschaften unterstützte die Untersuchungen durch Geldmittel.

<sup>10</sup> G. ISRAËL, private Mitteilung.

<sup>11</sup> R. WOLFGANG, Nature, Lond. **192**, 1279 [1961].