

sich bei Annahme von *LS*-Kopplung unter Zurückführung auf die *a*-Faktoren der Einzelektronen berechnen<sup>10</sup>:

$$A(5s5p^2\ ^2D_{3/2}) = -\frac{1}{5}a_{5s} + \frac{6}{5}a_{5p},$$

$$A(5s6s\ (^3S_1)\ 5d\ ^2D_{3/2}) = -\frac{9}{15}(a_{5s} + a_{6s}) + \frac{8}{7}a_{5d}.$$

Die Größenordnung der  $a_{5s}$ -,  $a_{6s}$ - und  $a_{5p}$ -Faktoren kann aus den gemessenen Hyperfeinstruktur-Daten<sup>11</sup> der  $5s5p^2\ ^4P$ -Terme und des  $6s\ ^2S_{1/2}$ -Terms abgeschätzt werden. So erhält man beispielsweise für den *A*-Faktor eines  $5s5p^2\ ^2D_{3/2}$ -Terms einen theoretischen Wert von ca.  $-80$  mK. Auf Grund eines so großen negativen Wertes ist es möglich, daß schon geringe Zumischungen die *A*-Faktoren reiner  $5s^25d$ - bzw.  $5s^26d$ -Konfigurationen um das Mehrfache ihres Betrages verändern können. Eine solche Zumischung könnte beispielsweise durch den Coulomb-Operator

<sup>10</sup> A. GALLAGHER u. A. LURIO, Phys. Rev. **A136**, 87 [1964].

$e^2/r_{ik}$  bewirkt werden. Zumischungen aus den energetisch benachbarten  $^4P$ -Termen der  $5s5p^2$ -Konfiguration können durch den Coulomb-Operator nur dann auftreten, wenn diese Abweichungen von reiner *LS*-Kopplung zeigen, worauf beispielsweise das Auftreten von Interkombinationslinien zu den  $^2P$ -Termen des Grundzustandes hinweist. Eine Diagonalisierung der Spinbahn-Matrix der  $5s5p^2$ -Konfiguration zeigt, daß für den  $^4P_{3/2}$ -Term die Zumischungsamplitude des  $^2D_{3/2}$ -Terms jedoch klein (ca.  $3 \cdot 10^{-2}$ ) ist. Eine genauere Analyse sollte die Feinstrukturanomalie und die Hyperfeinstruktur in gleicher Weise erklären.

Die Deutsche Forschungsgemeinschaft stellte in dankenswerter Weise mehrere Forschungsgeräte zur Verfügung.

<sup>11</sup> F. PASCHEN, Ann. Phys. **32**, 148 [1938].

## Radioaktive Isotope als Luftmassenindikatoren

### II. Die Produktion von $P^{33}$

S. HARTWIG und A. SITTKUS

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

(Z. Naturforsch. **24 a**, 908–911 [1969]; eingegangen am 6. März 1969)

Discussions on concentration measurements of the isotopes  $Be^7$ ,  $P^{32}$  and  $P^{33}$  in ground level air give rise to false conclusions about air mass exchange in the atmosphere if the measured  $P^{33}$  data are used as a means of characterisation. The reason for this lies in too low a production rate for  $P^{33}$ .

The analysis gives a yield of  $5.1 \cdot 10^{-2}$  ( $\pm 10\%$ ) per star. Within the accuracy in measurement the yields for  $P^{33}$  and  $P^{32}$  are equal.

Die kosmische Ultrastrahlung erzeugt in der Atmosphäre die radioaktiven Isotope  $Be^7$ ,  $P^{32}$  und  $P^{33}$ . Wird ein abgeschlossenes, bei Beginn vollständig gereinigtes Luftvolumen mit konstanter Intensität bestrahlt, so gilt für den Quotienten der Konzentration zweier Isotope die Ungleichung

$$Y_1/Y_2|_{t=0} \leq c_1/c_2 \leq Y_1 \tau_1/Y_2 \tau_2|_{t \rightarrow \infty}$$

(*Y* Produktionsrate, *c* Konzentration,  $\tau$  radioaktive Lebensdauer und *t* Zeit). Nach LAL und PETERS<sup>1</sup> ergaben sich für das Verhältnis von  $Be^7$  zu  $P^{32}$  die Grenzwerte 100 und 370, für  $Be^7$  zu  $P^{33}$  die Werte 122 und 257 und für  $P^{33}$  zu  $P^{32}$  die Werte 0,82 und 1,44. Aus der Konzentration zweier beliebiger Isotope läßt sich das Bestrahlungsalter der Probe bestimmen.

<sup>1</sup> D. LAL u. B. PETERS, Handbuch der Physik, Verlag Springer, Berlin 1967, Bd. 46/2.

Vollständig abgeschlossene Luftpakete gibt es in der Atmosphäre nicht. Die untersuchten Luftmengen enthalten Anteile mit verschiedenen Bestrahlungsaltern und ungleicher Bestrahlungsintensität. Wenn die verschiedenen Anteile immer in der Troposphäre verblieben sind, so kann wegen der relativ guten Durchmischung dieses Luftkörpers<sup>1</sup> in erster Näherung gleiche Bestrahlungsintensität für alle Anteile angenommen werden. Aus dem Konzentrationsverhältnis läßt sich dann ein „Äquivalent“-Alter ermitteln. Dieses Alter ist von dem zur Bestimmung benutzten Isotopenpaar abhängig. Modellrechnungen für Luftmassenmischungen mit wahren Alter zwischen 20 und 180 Tagen zeigen aber, daß die berechneten Äquivalentalter nur wenig differieren.

Werden bei der Messung Luftmassen erfaßt, die Beimengungen aus Schichten höherer Produktion, z. B. aus der Stratosphäre, enthalten, in der die Ver-



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 digitalized 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.

weilzeit viel länger ist als in der unteren Atmosphäre und in der die Produktion etwa 10-mal größer ist als die mittlere troposphärische Erzeugung, so kann der obere Wert des von Lal und Peters angegebenen Verhältnisses überschritten werden. Ein Vergleich der Konzentrationen der 3 Isotope ist dann ohne zusätzliche Kenntnisse nicht möglich.

In den Jahren 1966 und 1967 wurden auf dem Schauinsland bei Freiburg (1200 m über N.N., 47,9° N, 7,8° O) simultane Messungen der Konzentration der Isotope  $\text{Be}^7$ ,  $\text{P}^{32}$  und  $\text{P}^{33}$  in der Bodenluft durchgeführt<sup>2,3</sup>. Für etwa 200 Proben wurde das  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$ - und das  $\text{P}^{32}/\text{P}^{33}$ -Verhältnis gebildet (Abb. 1 a und 1 b). Das  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$ -Verhältnis übersteigt nur selten den Wert 370, während für  $\text{P}^{33}/\text{P}^{32}$  der Wert 1,44 in der überwiegenden Zahl der Proben überschritten wird. Je nachdem welches Isotopenverhältnis zur Interpretation benutzt wird, ergeben sich unterschiedliche Aussagen über die Ge-

schichte der erfaßten Luftmassen. Die genauere Diskussion der Meßergebnisse führt zu dem Schluß, daß die Diskrepanz nur durch eine zu hoch gemessene  $\text{P}^{33}$ -Konzentration oder durch eine zu klein angesetzte  $\text{P}^{33}$ -Produktionsrate erklärt werden kann. Zu dem gleichen Ergebnis führt auch die Analyse von Niederschlagsproben aus den Jahren 1965 bis 1967<sup>3-5</sup>. Andere Autoren haben ebenfalls zu hohe  $\text{P}^{33}$ -Werte festgestellt<sup>6</sup>.

Zu hohe  $\text{P}^{33}$ -Konzentrationen können durch Anteile, die nicht von der kosmischen Strahlung erzeugt wurden, verursacht sein, oder durch Verunreinigung der Proben mit energiearmen  $\beta$ -Strahlern bzw. Fehlern bei der Eichung und in der Meßtechnik vorgetäuscht werden.

Im Analysenzeitraum wurden in China Atom-bombenerprobungen am 9. 5., 20. 10. und 28. 12. 1966 (kleine Kaliber) und am 17. 6. 1967 (H-Bombe) durchgeführt. Spaltproduktschwaden dieser Versuche wurden in Freiburg nachgewiesen. Die Messung der Be- und P-Isotope zeigte keine Anomalie, welche die Annahme der Erzeugung bei den Explosionen rechtfertigt. Dagegen wurden Beobachtungen des  $\text{S}^{35}$ - und  $\text{Na}^{22}$ -Gehaltes der Atmosphäre durch die Produktion bei den Versuchen empfindlich und anhaltend gestört<sup>7,8</sup>. Verunreinigungen der Luft durch Abgase aus atomtechnischen Fertigungsstätten, wie sie z. B. für  $\text{Kr}^{85}$  wesentlich sind<sup>9</sup>, scheiden als Quelle von Überschuß- $\text{P}^{33}$  ebenfalls aus, da die Erzeugungsprozesse, die erhebliche Mengen  $\text{P}^{33}$  liefern könnten, gleichzeitig etwa 50-mal mehr  $\text{P}^{32}$  freisetzen.

Der Einfluß möglicher Verunreinigungen durch bombenproduzierte  $\beta$ -Strahler wurde dadurch geprüft, daß der chemische Trennungsgang mit stark radioaktiven Proben der in Frage kommenden Isotope beschickt wurde. Die von Spaltproduktschwaden zu erwartenden Konzentrationen dieser Isotope sind ohne Einfluß auf die Messung. Außerdem wurden die Abfallskurven stärkerer Präparate kontrolliert (Abb. 2). Merkliche Beimengungen anderer Isotope waren nicht beobachtbar.

Der Eichfaktor der Meßanordnung wurde mit Standardlösungen ermittelt. Für  $\text{P}^{33}$  ist keine Eichlösung verfügbar, als Ersatzisotop wurde  $\text{Ca}^{45}$

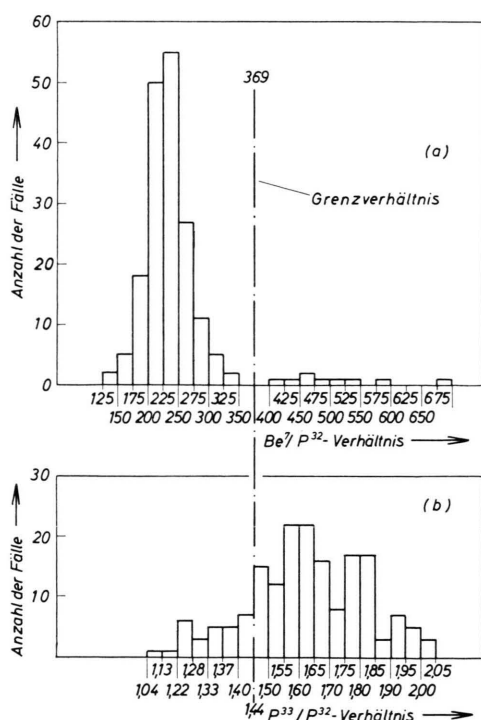


Abb. 1. Häufigkeitsverteilung der während der Jahre 1966/67 gemessenen  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$ - (Abb. 1 a) und  $\text{P}^{33}/\text{P}^{32}$ - (Abb. 1 b) Verhältnisse in Bodenluftproben.

<sup>2</sup> U. FISCHER, Diplomarbeit Freiburg 1968.

<sup>3</sup> H. MÜH, Dissertation, Freiburg 1966.

<sup>4</sup> H. MÜH, A. SITTKUS, G. ALBRECHT u. S. HARTWIG, Z. Naturforsch. **21 a**, 1121 [1966].

<sup>5</sup> S. HARTWIG, Diplomarbeit, Freiburg 1966.

<sup>6</sup> D. LAL, R. ARNOLD u. M. MONDA, Phys. Rev. **118**, 1626 [1966].

<sup>7</sup> H. KOCH, Diplomarbeit, Freiburg 1968.

<sup>8</sup> H. MÜH, im Druck.

<sup>9</sup> O. GRIESSER u. A. SITTKUS, Z. Naturforsch. **16 a**, 620 [1961].

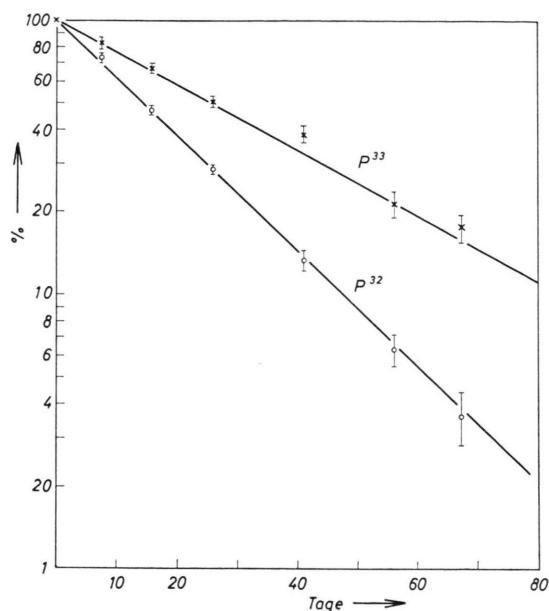


Abb. 2. Abfallkurve einer Phosphorprobe. Die durchgezogene Geraden sind aus den Halbwertszeiten der Phosphorisotope errechnet.

benutzt, das die gleiche Grenzenergie hat. Zur Kontrolle, ob Unterschiede im  $\beta$ -Spektrum den Eichfaktor beeinflussen, wurden die unter gleichen Bedingungen für Rückstreuung, Selbstabsorption, Absorption und Geometrie aufgenommenen Absorptionskurven verglichen (Abb. 3). Die  $P^{33}$ -Probe dazu wurde aus einer alten trägerfreien  $P^{32}$ -Lösung gewonnen. Für die Herstellung solcher Präparate wird  $S^{32}$  (Hauptisotop des Schwefels, 95%) mit schnellen Neutronen bestrahlt, wobei in einer (n,p)-Reaktion  $P^{32}$  entsteht und chemisch getrennt wird. Als Nebenprodukt entsteht dabei aus  $S^{33}$  (Isotopenhäufigkeit 0,8%) auch  $P^{33}^{10}$ , der wegen seiner längeren Halbwertszeit schließlich in der Lösung dominiert. Die Absorptionskurven der Isotope  $Ca^{45}$  und  $P^{33}$  sind bei unseren Meßbedingungen identisch, die Verwen-

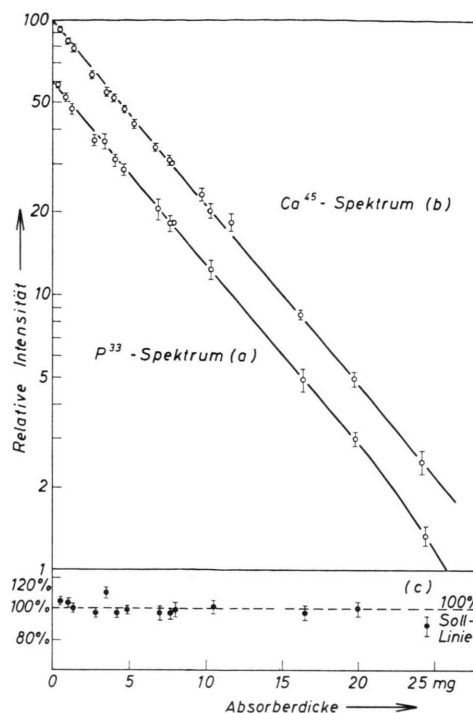


Abb. 3. Absorptionskurven für gleichartige Phosphor-33- (a) und Calcium-45- (b) Proben und Quotientenkurve (c).

dung von  $Ca^{45}$  als Ersatzisotop ist daher berechtigt. Außer mit  $Ca^{45}$  wurde die Apparatur noch mit den Isotopen  $Pm^{147}$  und  $Tc^{99}$  geeicht. Die Ergebnisse der Ausbeutemessung sind zusammen mit einigen Angaben über die verwendeten Strahler in Tab. 1 zusammengestellt. Auch diese Messungen zeigen, daß die verwendete  $Ca^{45}$ -Eichlösung unbedenklich zur Bestimmung der  $P^{33}$ -Zählausbeute benutzt werden kann.

Da sich die zu hohe  $P^{33}$ -Konzentration weder durch künstliche Erzeugung noch durch apparative Einflüsse erklären läßt, muß geschlossen werden, daß der bisher verwendete Wert für die Produktionsrate dieses Isotops zu niedrig angesetzt ist. Es wurde

Isotop	Ausbeute der Anordnung	Energie	Halbwertszeit	log $ft$ -Wert	Fehler der Eichlösung
$^{61}_{86}Pm^{147}$	$(21,9 \pm 1)\%$	0,225 MeV	2,5 Jahre	7,4	2,5%
$^{20}_{45}Ca^{45}$	$(27,2 \pm 1)\%$	0,252 MeV	165 Tage	5,95	2,4%
$^{13}_{18}P^{33}$	—	0,25 MeV	25 Tage	5,05	—
$^{43}_{56}Tc^{99}$	$(38 \pm 1,3)\%$	0,295 MeV	$2,2 \cdot 10^5$ Jahre	12,27	2,5%
$^{13}_{17}P^{32}$	$(42,3 \pm 2,1)\%$	1,7 MeV	14,2 Tage	7,9	1,8%

Tab. 1. Ergebnisse der Ausbeutemessungen.

<sup>10</sup> T. WESTERMARK, Phys. Rev. **88**, 573 [1952].

versucht, einen neuen Wert zu bestimmen, mit dem die aus dem  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$  und  $\text{Be}^7/\text{P}^{33}$  bestimmten Häufigkeitskurven des Äquivalentalters so ähnlich wie möglich werden. Abb. 4 zeigt das Ergebnis. Die beste Übereinstimmung für die Lage des Maximums der beiden Verteilungen ergibt sich, wenn der bisher

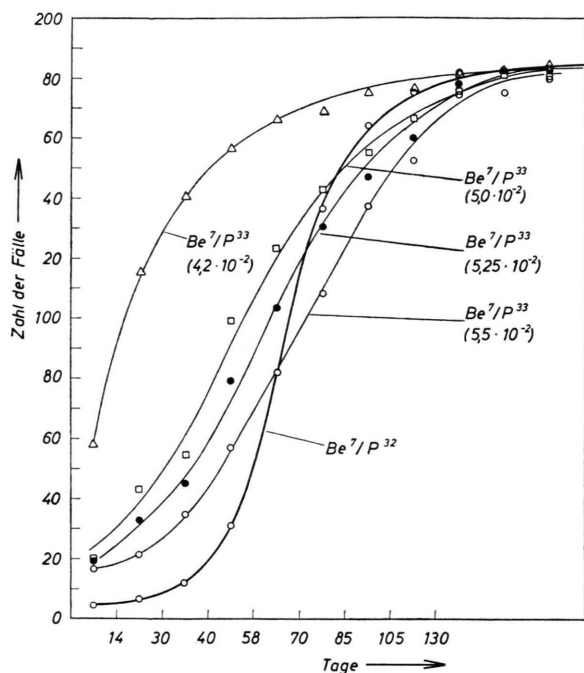


Abb. 4. Integrale Darstellung der Häufigkeitsverteilungen von  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$  und  $\text{Be}^7/\text{P}^{33}$  für verschiedene  $\text{P}^{33}$ -Produktionsraten.

benutzte Ausbeutewert um 25–30% erhöht wird. Der Verlauf des  $\text{Be}^7/\text{P}^{33}$ -Verhältnisses als Funktion der Bestrahlungszeit hat wegen der geringeren Halbwertszeitunterschiede einen flacheren Verlauf als die entsprechenden  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$ -Kurven. Schwankungen wirken sich daher in der  $\text{Be}^7/\text{P}^{33}$ -Verteilung stärker aus und verbreitern die Häufigkeitsverteilung. Innerhalb der Meßunsicherheit sind dann die Ausbeutefaktoren für die Erzeugung der beiden Phosphorisotope gleich und haben den Wert  $5,1 \cdot 10^{-2}$  pro Stern. Die oben angegebenen Grenzwerte für das Verhältnis zweier Isotope unter idealen Bestrahlungsbedingungen ändern sich dann in  $\text{Be}^7/\text{P}^{32}$ : 100 bzw. 370,  $\text{Be}^7/\text{P}^{33}$ : 100 bzw. 210 und  $\text{P}^{33}/\text{P}^{32}$ : 1,0 und 1,76.

Die hier aus den Messungen der atmosphärischen Luft und den Niederschlägen bestimmte Produktionsrate der Phosphorisotope ist nicht im Einklang mit den Wirkungsquerschnittbestimmungen an Protonenbeschleunigern, z. B. <sup>11, 12</sup>. Über einen großen Energie- und Massenzahlenbereich ist die Ausbeute für  $\text{P}^{33}$  immer kleiner als die für  $\text{P}^{32}$ . Bei AUDOUZE und Mitarbeitern <sup>12</sup> wird aber darauf hingewiesen, daß die Wirkungsquerschnitte für Neutronen induzierte Spallation von den Spallationsquerschnitten für Protonen abweichen können. Die beobachtete Gleichheit der Erzeugungsraten der beiden Isotope durch die Ultrastrahlung könnte daher durch zufällige Kompensation des Produktionsbeitrags der verschiedenen Sekundärkomponenten dieser Strahlung erklärt werden.

<sup>11</sup> G. N. SIMONOFF u. C. VIDAL, Phys. Letters **20**, 30 [1966].

<sup>12</sup> J. AUDOUZE, M. EPHERRE u. M. REEVES, Nucl. Phys. A **97**, 144 [1967].