

## Bestimmung atmosphärischer Austauschgrößen aus Konzentrationsmessungen von Spallationsprodukten

S. HARTWIG \* und A. SITTKUS

Max-Planck-Institut für Kernphysik Heidelberg

(Z. Naturforsch. 27 a, 1413—1417 [1972]; eingegangen am 18. Mai 1972)

*An Evaluation of Eddy Diffusion Coefficients by the Measurement of Spallation Products*

By measuring the isotopes  $P^{32}$ ,  $P^{33}$  and  $Be^7$  in rain samples for several years in Freiburg, it was possible to determine two tropospheric eddy diffusion coefficients. The results of the calculations for the summerperiod are:

$$K_{zz} \text{ (vertical coefficient)} = 3 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{sec}, \\ K_{\varphi\varphi} \text{ (horizontal coefficient)} = 4 \cdot 10^9 \text{ cm}^2/\text{sec},$$

and for the winterperiod:

$$K_{zz} = 1.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{sec}, \\ K_{\varphi\varphi} = 2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^2/\text{sec}.$$

$K_{\varphi\varphi}$  is valid as well for the stratosphere.

In den letzten Jahren sind zahlreiche Arbeiten publiziert worden, die sich mit Messungen der durch die kosmische Strahlung in der Atmosphäre erzeugten Spallationsprodukte beschäftigen. Das Hauptinteresse gilt dabei den radioaktiven Isotopen, deren Halbwertszeit vergleichbar mit den Ablaufzeiten der Transportvorgänge in der Atmosphäre ist, also

Na <sup>22</sup>	2,6 Jahre	Halbwertszeit
S <sup>35</sup>	87 Tage	"
Be <sup>7</sup>	53 Tage	"
P <sup>33</sup>	25 Tage	"
P <sup>32</sup>	14 Tage	"

Die beiden ersten Isotope entstehen auch bei kerntechnischen Versuchen in größerer Menge, so daß sie für Austauschuntersuchungen oft unbrauchbar sind. Mit den letzteren wurde bisher, den Überlegungen LAL's<sup>1</sup> folgend, der Luftmassenaustausch zwischen Strato- und Troposphäre untersucht, entweder mit Hilfe des Atomzahlverhältnisses zweier Isotope oder der absoluten Konzentration eines Isotopes (z. B. <sup>2-5</sup>). Nach Lal ergeben sich z. B. für das Atomzahlverhältnis  $Be^7/P^{32}$ -Werte zwischen 100 (Verhältnis der Produktionsraten) und 370 (Sättigungsverhältnis), wenn eine Luftmasse mit konstanter Intensität bestrahlt wird. Bei rein troposphärischer Luft und einer mittleren Verweildauer von 30 Tagen sind Werte zwischen 150 und 200 zu erwarten. Das Sättigungsverhältnis 370 kann nur dann bis zum Wert 960 überschritten werden, wenn strato-

sphärische Luft mit hoher Isotopenkonzentration in die Troposphäre übertritt<sup>2</sup>. Die Bedingung eines 370 überschreitenden Atomzahlverhältnisses ist für den Nachweis stratosphärischer Luft in der Troposphäre hinreichend aber nicht notwendig, da Bestrahlungsvorgeschichte, die Durchmischung und die Bestrahlungsdauer in der Troposphäre eine Rolle spielen.

Wird der Wert 370 nicht überschritten, so kann aus hohen Absolutintensitäten auf Beimischung stratosphärischer Luft geschlossen werden<sup>2</sup>. Das ist nicht in allen publizierten Arbeiten berücksichtigt worden<sup>3</sup>. In Abb. 1 ist die monatliche Abscheidung von  $Be^7$  und das  $Be^7/P^{32}$ -Verhältnis über 5 Jahre dargestellt. Das Maximum der monatlichen Abscheidungsrate ist nicht mit einem maximalen  $Be^7/P^{32}$ -Verhältnis korreliert, obwohl es sicher ist, daß der Maximalwert von Spallationsprodukten oder Spaltprodukten im Jahresverlauf durch verstärkte stratosphärische Einschübe erzeugt wird. Sehr hohe Konzentrationen verbunden mit kleinen  $Be^7/P^{32}$ -Werten bedeuten einen schnellen Transport von der Stratosphäre zur Troposphäre. 370 wesentlich übersteigende Verhältniszahlen können durch langsamem Vertikal-Transport in der Troposphäre und/oder durch schnellen horizontalen Transport, dann aber über großen Entfernung, entstehen.

MÜH<sup>2</sup> hat gezeigt, daß in Freiburg mehr  $Be^7$  pro Flächeneinheit abgeschieden wird als die darüber liegende Luftsäule produziert. Es muß also ein seitlicher Zustrom vorhanden sein. Da in Freiburg seit Anfang 1965 kontinuierlich  $P^{32}$ ,  $P^{33}$  und  $Be^7$  im

\* Present address: Fakultät für Physik der Universität, D-7800 Freiburg i. Br., Hermann-Herder-Straße 3,



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.

Niederschlag gemessen werden<sup>6</sup>, liegt statistisch vernünftig abgesichertes Material vor. Bei bekannten Quellen und Senken ist es möglich, einige Transportgrößen zu berechnen. Folgende Voraussetzungen wurden dazu benutzt:

HOLOPAINEN<sup>7</sup> und PALMEN<sup>8</sup> haben den turbulenten und konvektiven Energiezufluß in der Atmosphäre abgeschätzt. Sie fanden, daß in erster Näherung zwischen 28° und 66° nördlicher Breite turbulente Diffusion den konvektiven Fluß bei weitem übersteigt. Unter Vernachlässigung der konvektiven Terme wurde dann die Gleichung

$$\frac{dW_i}{dt} = \frac{1}{\varrho} \nabla (K \varrho \nabla W_i) - \frac{W_i}{\tau_i} + W_{0i} \quad (1)$$

für einen Meridionalschnitt von 28° bis 66° N und 0–25 km Höhe gelöst.

Es bedeuten:  $W_i$  = Atome i/g Luft,  $\varrho$  = Luftdichte,  $\tau_i$  = Lebensdauer des Isotopes i,  $W_{0i}$  = Produktionsterm in Atome/g Luft sec,  $K$  = symmetrischer Diffusionstensor, unterschiedlich für Stratosphäre und Troposphäre.

Auf Schwächen bei der mathematischen Behandlung der Turbulenz als Diffusionsprozeß ist schon öfters hingewiesen worden, z. B. ASSAF<sup>9</sup>. Die hier diskutierten Isotope haben gegenüber Radon, einigen seiner Folgeprodukte und anderen kurzlebigen Isotopen den Vorteil, daß die radioaktive Halbwertszeit größer als die Lebensdauer der Turbulenzen ist.

Gleichung (1) kann zweidimensional gelöst werden, da der Transport längs des Breitenkreises um Größenordnungen stärker ist als in der Nord-Südrichtung<sup>10</sup>. Die von Höhe und Breite abhängige Produktionsfunktion ist einer Arbeit LAL's<sup>11</sup> entnommen. Nur für  $P^{33}$  ist die Ausbeute nach HARTWIG<sup>12</sup> geändert. Die Tropopausenkonfiguration wurde aus Radiosondenaufstiegen von 30 europäischen Stationen für die Sommer- (Mai, Juni, Juli, August) und die Winterperiode (November, Dezember, Januar, Februar) getrennt ermittelt. Gleiches gilt für die Mächtigkeit des Kondensationsniveaus und die Regenhäufigkeit. Unter Benutzung der von MÖLLER<sup>13</sup> publizierten Vierteljahreskarten des Niederschlages für die ganze Erde trugen breitenabhängige Ausrechnungskoeffizienten dem von der geographischen Breite abhängigen Niederschlag, unter Berücksichtigung der Jahreszeit, Rechnung.

Die in Polarkoordinaten formulierte Gl. (1) wurde numerisch durch eine explizite Differenzengleichung gelöst und der Stabilitätsbereich vorher durch ein

gesondertes Programm für jeden Koeffizientensatz ermittelt. Ziel der Rechnung war es, den Koeffizientensatz zu erhalten, der die in Freiburg gemessenen Isotopenkonzentrationen reproduzierte.

Meßwerte von drei Isotopen stehen zur Verfügung. Ein Isotop mußte zur Normierung der Größe des Ausrechnungskoeffizienten benutzt werden. Es konnten also noch zwei Diffusionskoeffizienten mit den anderen Daten festgelegt werden. Einer Arbeit DAVIDSONS<sup>14</sup> entsprechend wird angenommen, daß der horizontale Koeffizient  $K_{\varphi\varphi}$  in Stratosphäre und Troposphäre gleich ist. Für den stratosphärischen vertikalen Koeffizienten  $K_{zz}$  wird der Wert  $10^3 \text{ cm}^2 \text{ pro sec}$ <sup>14, 15</sup> übernommen und weiterhin die bei der Entwicklung von (1) auftretenden Größen  $K_{z\varphi}$ ,  $K_{\varphi z}$  nach DAVIDSON<sup>14</sup> durch  $K_{z\varphi} = K_{\varphi z} = \alpha K_{\varphi\varphi}$  ersetzt, wobei  $\alpha$  die Tropopausenneigung bedeutet. Die noch verbleibenden  $K_{\varphi\varphi}$  und  $K_{zz}$  der Troposphäre, jeweils für die Winter- und die Sommerperiode, ergeben sich durch die Rechnung.

Tabelle 1 enthält die für die Rechnung benötigten monatlichen Mittelwerte der Isotopenkonzentration und des Niederschlages der Jahre 1965–1969 in Freiburg. Sie sind<sup>6</sup> entnommen:

Die daraus resultierenden ungewichteten viermonatigen gleitenden Mittel, hier auf  $P^{32}$  bezogen, da mit Hilfe der  $P^{32}$ -Daten die Ausrechnungskoeffizienten festgelegt wurden, sind nachstehend angegeben.

Das numerische Verfahren besteht darin, daß von den Anfangsbedingungen (entweder radioaktives Gleichgewicht oder Nullkonzentration) so lange fortschreitend in der Zeit gerechnet wird, bis sich ein stationärer Zustand, der vom  $K$ -Tensor abhängt, eingestellt hat. Kurzzeitige Störungen und Konzentrationsschwankungen können so natürlich nicht berücksichtigt werden. Das ist der Grund, warum für die Rechnung auch keine Einzelmessungen oder Monatswerte verwendbar sind, dort fehlt die ausgleichende Mittelung. Mit den statistisch besser abgesicherten 5-Jahresmittelwerten wird allerdings der Nachteil in Kauf genommen, daß für das Meßintervall nicht in jedem Jahr die gleichen atmosphärischen Bedingungen vorliegen.

Abbildung 2 und 3 zeigen das Resultat der Rechnung für Sommer und Winter getrennt. Als Parameter sind die normierten und auf  $P^{32}$  bezogenen  $B^{7-}$ - und  $P^{33}$ -Werte gegen  $K_{\varphi\varphi}$  und  $K_{zz}$  (trop.) aufgetragen. Mit den Sommer- und Winterwerten der Tab. 2, nämlich:

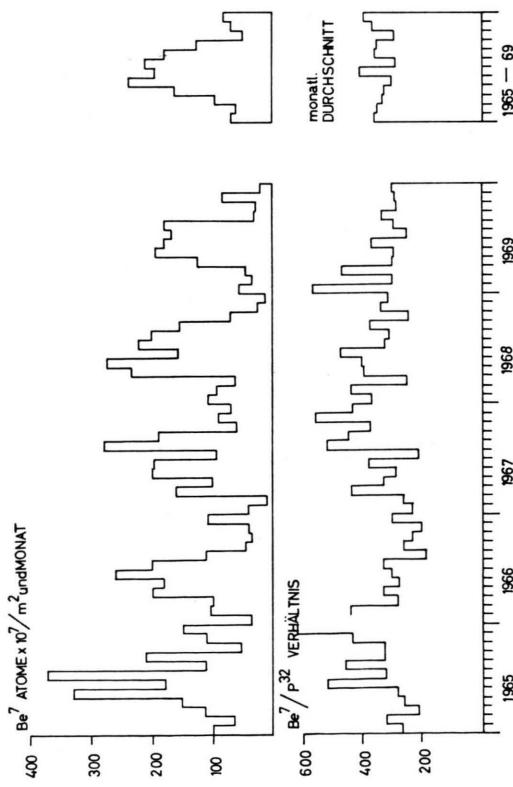
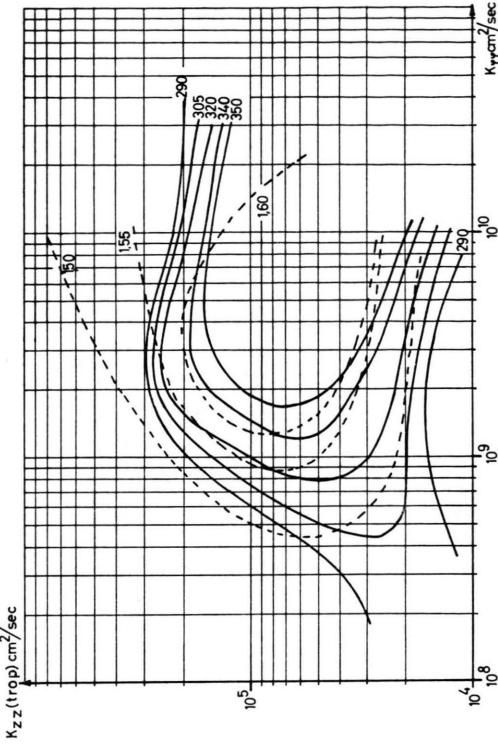


Abb. 1. Monatliche Abscheidungsrate von  $Be^7$  und das monatliche  $Be^7/P^{32}$ -Verhältnis im Regen in Freiburg von 1965–1969.



Tab. 2.

	JFMA	FMAM	MAMJ	AMJJ	MJJA	JJAS
(P <sup>33</sup> /P <sup>32</sup> )	1,61	1,61	1,61	1,59	1,55	1,52
(Be <sup>7</sup> /P <sup>32</sup> )	314	300	309	315	305	317
JASO	ASON	SOND	ONDJ	NDJF	PJFM	
(P <sup>33</sup> /P <sup>32</sup> )	1,57	1,64	1,70	1,72	1,66	1,62
(Be <sup>7</sup> /P <sup>32</sup> )	304	302	328	329	333	330
		Be <sup>7</sup> /P <sup>32</sup>		P <sup>33</sup> /P <sup>32</sup>		
Sommer		305		1,55		
Winter		333		1,66		

ergeben sich aus den Abbildungen die gesuchten Koeffizienten zu:

	$K_{\varphi\varphi}$	$K_{zz}$ (trop.)
Sommer	$0,4 \cdot 10^{10}$	$3 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{sec}$
Winter	$2 \cdot 10^{10}$	$1,5 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{sec}$

Zur Abschätzung der Streubreite der oben aufgeführten aus einem Fünfjahresmittel errechneten Austauschkoeffizienten wurde die Rechnung für ein einjähriges Meßintervall mit maximalen und minimalen Niederschlagsmengen für den Winter wiederholt. Es ergeben sich folgende Werte:

	$K_{\varphi\varphi}$	$K_{zz}$ (trop.)
Minimaler Niederschlag	$0,7 \cdot 10^{10}$	$3 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{sec}$
Mittlerer Niederschlag	$2 \cdot 10^{10}$	$1,5 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{sec}$
Maximaler Niederschlag	$3 \cdot 10^{10}$	$1,5 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{sec}$

Wie vorher angegeben, wurde der konvektive Teil der Transportgleichung (1) vernachlässigt. Aus den Arbeiten 7, 8 war zu entnehmen, daß dieser konvektive Anteil weniger als 20% des Gesamttransports ausmacht. Wegen dieser Vernachlässigung werden also die ermittelten Koeffizienten etwa zu groß sein. Bis jetzt fehlen Meßwerte, um eine entsprechende Korrektur anbringen zu können. Soweit den Autoren bekannt, sind Diffusionsrechnungen der hier dargestellten Art mit langjährigen Mittelwerten von Spallationsprodukten noch nicht durchgeführt worden. Trotzdem sollen einige, auf andere Art gewonnene, Koeffizienten zum Vergleich angeführt werden. ROEDEL<sup>16</sup> hat in eindimensionaler Diffusionsrechnung an einzelnen Na<sup>24</sup>-Meßwerten vertikale Diffusionskoeffizienten bestimmt. Er fand bei 5 Tagesmessungen Werte von  $1,7 \cdot 10^5$  bis  $9,5 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{sec}$ .

BOLIN<sup>17</sup> ermittelte aus langjährigen CO<sub>2</sub>-Messungen und eindimensionaler Rechnung für die Schicht von 1 km Höhe bis zur Tropopause einen durchschnittlichen vertikalen Koeffizienten von  $2 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{sec}$  pro sec und für die Schicht von 6 – 10 km einen sol-

chen von  $6 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{sec}$ , während EHHALT<sup>18</sup> für die ersten Kilometer der Troposphäre mit  $10^5 \text{ cm}^2/\text{sec}$  rechnet, was aber von ihm eher als zu groß angesehen wird.

Nachdem schon relativ früh BOLIN<sup>19</sup> horizontale Koeffizienten in der Größenordnung von  $0,5 \cdot 10^{10}$  bis  $10 \cdot 10^{10} \text{ cm}^2/\text{sec}$  vermutete, hat MURGATROYD<sup>20</sup> aus der Variation geostrophischer Trajektorien, entnommen aus Wetterkarten, horizontale Koeffizienten für verschiedene Höhenschichten ermittelt. Seine Werte schwanken je nach Höhe, Breite und Jahreszeit zwischen  $0,2 \cdot 10^{10}$  bis  $6 \cdot 10^{10} \text{ cm}^2/\text{sec}$ . Er erhält z. B. für die 500 mb-Schicht und  $55^\circ \text{N}$ ,  $90^\circ \text{W}$  für den Sommer  $1,8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^2/\text{sec}$  und den Winter  $3,6 \cdot 10^{10} \text{ cm}^2/\text{sec}$ . Im allgemeinen sind in<sup>20</sup> die horizontalen Koeffizienten im Winter größer als im Sommer. Offensichtlich ist ein Vergleich der Resultate bei verschiedener Arbeitsmethode, Fragestellung und Spurengeber schwierig. Trotzdem läßt der Vergleich der Koeffizienten von<sup>20</sup> und dieser Arbeit, die auf zwei so völlig verschiedenen Wegen gewonnen wurden, den Schluß zu, daß sowohl die Abhängigkeit von der Jahreszeit als auch die Größe des Diffusionskoeffizienten recht weitgefaßt gültig und anwendbar sind. Um einen, wenn auch sehr vereinfachenden, Vergleich mit anderen Daten zu ermöglichen, soll außerdem angegeben werden, welche Verweildauern in der Troposphäre sich mit den Koeffizienten abschätzen lassen.

Wird nur der senkrechte Transport zu dieser Abschätzung herangezogen, so ergibt sich für den Sommer 16 Tage und für den Winter 31 Tage troposphärische Verweilzeit. Diese Zeiten sind mit den von JUNGE<sup>21</sup> angegebenen Werten verträglich. Doch sei hier darauf hingewiesen, daß nicht alle in der Literatur angegebenen Verweilzeiten miteinander vergleichbar sind. Sind diese Zeiten mit radioaktiven Isotopen bestimmt, so ist, bei kleiner radioaktiver Halbwertszeit, die atmosphärische Verweildauer eine Funktion eben dieser radioaktiven Halbwertszeit, da kurzlebige Isotope, bei sonst gleichen Bedingungen, von einem kleineren Einzugsbereich im Aufpunkt gemessen werden als langlebige.

Die Untersuchung wurde mit Unterstützung der Schutzkommission beim Bundesministerium des Innern durchgeführt.

- <sup>1</sup> D. LAL u. B. PETERS, Progress in Element, Particle and Cosmic Ray Physics **6**, 3 [1962].  
<sup>2</sup> H. MÜH, A. SITTKUS, A. ALBRECHT u. S. HARTWIG, Z. Naturforsch. **21 a**, 1123 [1966].  
<sup>3</sup> S. AEGERTER, N. BHANDARI, L. RAMA u. S. TAMHANE, Tellus **18**, 212 [1966].  
<sup>4</sup> D. P. FRIEND, HASP-Report Vol. **3** [1961].  
<sup>5</sup> L. RAMA, J. Geophys. Res. **68**, 3881 [1963].  
<sup>6</sup> A. SITTKUS, S. HARTWIG, U. FISCHER u. H. MÜH, Sonderheft MPIH-Heidelberg V 7 [1970].  
<sup>7</sup> E. O. HOLOPAINEN, Tellus **17**, 285 [1965].  
<sup>8</sup> E. PALMEN, in: Atmospheric Circulation Systems, London, New York 1967.  
<sup>9</sup> G. ASSAF, Tellus **21**, 820 [1969].  
<sup>10</sup> P. G. PRUCHNIEWICZ, Mitteil. aus dem MPI f. Aeronomie Nr. 43 [1970].  
<sup>11</sup> D. LAL u. B. PETERS, Handbuch der Physik **46,2**.  
<sup>12</sup> S. HARTWIG u. A. SITTKUS, Z. Naturforsch. **24 a**, 908 [1969].  
<sup>13</sup> F. MÖLLER, Petermanns Georg. Mitt. **95**, 5 [1951].  
<sup>14</sup> B. DAVIDSON, J. FRIEND u. H. SEITZ, Tellus **18**, 301 [1966].  
<sup>15</sup> P. H. GUDIKSEN, D. FAIRHALL u. J. REED, J. Geophys. Res. **73**, 4461 [1968].  
<sup>16</sup> W. ROEDEL, J. Geophys. Res. **75**, 3033 [1970].  
<sup>17</sup> B. BOLIN u. W. BISCHOF, Tellus **22**, 431 [1970].  
<sup>18</sup> D. H. EHHLALT, J. Geophys. Res. **76**, 7351 [1971].  
<sup>19</sup> B. BOLIN, in: Kernstrahlung in der Geophysik, Springer-Verlag, Heidelberg 1962.  
<sup>20</sup> R. J. MURGATROYD, Quart. J. Roy. Meteorol. Soc. **95**, 40 [1969].  
<sup>21</sup> C. E. JUNGE, Air Chemistry and Radioactivity, Academic Press, New York 1963.

## Über den Fallraum in einer zylindrischen Hohlkathode

H. HELM, F. HOWORKA und M. PAHL

Institut für Atomphysik der Universität Innsbruck, Müllerstr. 23/I, A-6020 Innsbruck, Austria

(Z. Naturforsch. **27 a**, 1417—1425 [1972]; eingegangen am 11. Februar 1972)

*On the Cathode Fall in a Cylindrical Hollow Cathode*

The electric field distribution in the cathode fall and the current-voltage characteristic of a cylindrical hollow cathode are calculated on a purely radial model. The theoretical characteristic is compared with results measured on a H<sub>2</sub>- and Ar-discharge. From the experimental data, the current density ratio of electrons and ions on the cathode can be calculated. This ratio appears in the correct order of magnitude only if the carrier generation in the cathode fall is taken into account.

Comparisons are made with the results of linear theories.

### 1. Einführung

Für lineare Glimmentladungen <sup>1-3</sup> und die ebene Doppelkathodenentladung <sup>4-6</sup> bestehen Theorien und Messungen des Feldverlaufes im Kathodenfallraum sowie Vergleiche von theoretischen mit experimentellen Strom-Spannungscharakteristiken.

Im Fall einer zylindrischen Kathode sind solche Berechnungen bisher nicht angestellt worden. Vielmehr wurden Ergebnisse der linearen Theorie auf den Zylinderfall übertragen und damit weitere Abschätzungen über Hohlkathodenmechanismen gemacht <sup>7</sup>. Wegen der radialen Stromdichtekontraktion mit  $r^{-1}$  im Zylinderfall muß ein derartiger Versuch fragwürdig bleiben.

Das Fehlen von Ähnlichkeitsparametern erschwert den Vergleich von Theorie und Experiment im Fall der Hohlkathode.

### 2. Modell der Hohlkathode

Die Hohlkathode besteht aus einem zylindrischen Rohr mit dem Durchmesser  $2R$  und der Länge  $L$  (siehe

Abb. 1). Symmetrisch dazu sind zwei Anoden so angebracht, daß sich weder ein Anodenfall ausbildet, noch die Entladung behindert wird. Bei  $z=0$  betrachten wir einen Fallraumabschnitt  $dz \ll L$ , in dem wir neben der azimutalen auch axiale Homogenität voraussetzen können. Diese Annahme wird durch folgende experimen-

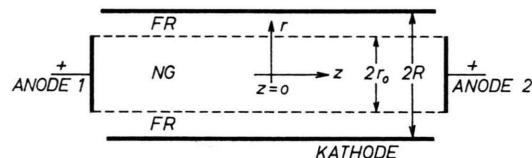


Abb. 1. Schematisches Bild der zylindrischen Hohlkathode. FR = Fallraum, NG = Negatives Glimmlicht,  $R - r_0$  = Fallraumdicke. Experimentelle  $r_0$ -Bestimmung bei  $z=0$ .

telle Befunde gestützt: der axiale Potentialgradient im negativen Glimmlicht beträgt maximal 1,5 V/cm <sup>8,20</sup>. Glimmsaum und Kathode stehen sich wie zwei Äquipotentialflächen gegenüber. Die axiale Komponente der elektrischen Feldstärke muß also verschwindend klein sein gegenüber der starken radialen Komponente. Letztere ist durch die über die Kathodenfallspannung  $U_c$  bestimmte ( $U_c$  liegt in der Größenordnung von einigen hundert Volt).