

Der «natürliche» Tritiumhaushalt der Erde und die Frage seiner zeitlichen Variation *

Von F. BEGEMANN

Max-Planck-Institut für Chemie (Otto-Hahn-Institut), Mainz

Im Jahre 1932 entdeckten UREY, BRICKWEDDE und MURPHY (*Physic. Rev.* 40 [1932] 1), daß in der Natur neben dem normalen Wasserstoff ein schwererer Wasserstoff, das Deuterium, vorkommt. Dieses Deuterium war so lange unbekannt geblieben, weil es relativ zum gewöhnlichen Wasserstoff nur eine Häufigkeit von etwa $1,5 \cdot 10^{-4}$ besitzt. Erst etwa zwei Jahrzehnte später wurde von FALTINGS und HARTECK und v. GROSSE, JOHNSTON, WOLFGANG und LIBBY ein weiteres, noch schwereres Isotop des Wasserstoffs in der Natur entdeckt. Dieser überschwere Wasserstoff, ^3H , wird Tritium genannt und findet sich im irdischen Wasser in den äußerst geringen Konzentrationen von 10^{-17} und darunter. Im Gegensatz zum Deuterium, das ein stabiles Isotop des Wasserstoffs ist, ist Tritium radioaktiv mit einer Halbwertszeit von 12,3 Jahren. Sein Vorhandensein in der Natur ist nur dadurch möglich, daß es durch die kosmische Strahlung in der Atmosphäre dauernd nachgebildet wird. Neuerdings, seit etwa 1954, trägt auch die künstliche Produktion von Tritium durch Wasserstoffbomben zum Haushalt des Tritiums auf der Erde erheblich bei. Als Isotope sind Deuterium und Tritium in ihren chemischen und physiko-chemischen Eigenschaften dem gewöhnlichen Wasserstoff sehr ähnlich. Bedingt durch ihre relativ großen Gewichtsunterschiede zeigen die Isotope des Wasserstoffs jedoch wesentlich größere Unterschiede in ihrem Verhalten als die Isotope schwererer Elemente.

Im letzten Jahrzehnt haben ausgedehnte Deuterium- und Tritiummessungen zu einer umfassenden Kenntnis der Geochemie des Wassers geführt, wobei das Tritium als radioaktiver Tracer Verwendung findet.

Die vorliegende Arbeit befaßt sich mit der Produktion des Tritiums in der Atmosphäre und seiner Verteilung auf die verschiedenen irdischen wasserstoffhaltigen Reservoirs.

Redaktion

I. Einleitung

Die Messungen von ALVAREZ und CORNOG¹ im Jahre 1939 bewiesen nicht nur das natürliche Vorkommen des Heliumisotops der Masse 3, sondern sie zeigten außerdem, daß das $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis im atmosphärischen Helium etwa zehnmal größer ist, als es im allgemeinen im Helium aus Erdgasquellen gefunden wird. Da die Hauptmenge des atmosphärischen ^4He wegen seiner im Vergleich zum Alter der Erde kurzen Entweichzeit nicht der Rest einer irdischen Uratmosphäre sein kann, sondern sekundären Ursprungs sein muß, lag es nahe, auch für das ^3He sekundären Ursprung anzunehmen. Das Problem war dann, einen dem α -Zerfall der Elemente der Uran- und Thoriumreihe entsprechenden Prozeß zu finden, der ^3He in beträchtlichen Mengen heute noch auf der Erde erzeugt. Während HILL² vorschlug, das ^3He als Zerfallsprodukt des Tritiums (^3H) aufzufassen, das durch die Reaktion $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ in der Lithosphäre entsteht, wies LIBBY³ 1946 darauf hin, daß die durch die kosmische Strahlung

in der Atmosphäre erzeugten Neutronen nicht nur Radiokohlenstoff (^{14}C), sondern auch Tritium erzeugen können, und zwar durch die Reaktion $^{14}\text{N}(n,^3\text{H})^{12}\text{C}$ mit einem Q -Wert von 4,0 MeV.

Seit es dann FALTINGS und HARTECK⁴ gelang, erstmalig Tritium im freien Wasserstoff der Atmosphäre nachzuweisen, und etwa gleichzeitig v. GROSSE, JOHNSTON, WOLFGANG und LIBBY⁵ sein Vorkommen in stark angereichertem Wasser sicherstellen konnten, sind zahlreiche Arbeiten erschienen, die sich mit der natürlichen Tritiumproduktionsrate sowie mit Messungen der insgesamt auf der Erde vorhandenen natürlichen Tritiummenge beschäftigen. (Der Zusatz «natürlich» ist notwendig geworden, seit 1954 die erste große Versuchsserie mit thermonuclearen Waffen das Tritiumgleichgewicht auf der Erde empfindlich störte.)

Während die ersten Arbeiten eine gute Übereinstimmung ergaben zwischen der Tritiumproduktionsrate und

* Eingegangen am 30. Oktober 1961.

¹ L. W. ALVAREZ und R. CORNOG, *Physic. Rev.* 56 (1939) 379, 613.

² R. D. HILL, *Physic. Rev.* 59 (1941) 103.

³ W. F. LIBBY, *Physic. Rev.* 69 (1946) 671.

⁴ V. FALTINGS und P. HARTECK, *Z. Naturforsch.* 5a (1950) 438; *Nature* (London) 166 (1950) 1109.

⁵ A. v. GROSSE, W. H. JOHNSTON, R. L. WOLFGANG und W. F. LIBBY, *Science* 113 (1951) 1.

der Zahl der auf der Erde zerfallenden Tritiumatome, schien es später, daß die Menge des auf der Erde vorhandenen natürlichen Tritiums etwa zehnmal größer sei, als aus der Produktionsrate durch die galaktische kosmische Strahlung zu erwarten war. Dieses Ergebnis führte zu einer lebhaften Diskussion der verschiedenen Möglichkeiten, die Diskrepanz zu erklären. Die für eine zusätzliche Tritiumerzeugung vorgeschlagenen Mechanismen waren im wesentlichen

1. Einfang von solarem Tritium durch die Erde und
2. Tritiumproduktion durch den solaren Anteil der kosmischen Strahlung.

Da sowohl der Teilchenfluß solarer Materie zur Erde als auch die Intensität der solaren Komponente der kosmischen Strahlung eine ausgeprägte Korrelation mit dem elfjährigen Sonnenfleckenzyklus zeigen, ist eine zeitliche Variation der Tritiumproduktionsrate zu erwarten, wenn einer dieser Mechanismen eine wesentliche Rolle spielt. Der Nachweis einer solchen zeitlichen Variation würde also nicht nur die Verfeinerung eines wohlbekanntes Ergebnisses bedeuten, sondern wesentliche Information geben über die Herkunft des Tritiums überhaupt.

Die Ergebnisse der bisher durchgeführten systematischen Messungen mit dem Ziel, die eventuelle Existenz einer zeitlich variablen Tritiumproduktionsrate nachzuprüfen, zeigen nicht den erwarteten Effekt. Sie erlauben aber noch nicht den eindeutigen Schluß, daß einer der erwähnten Prozesse nicht wesentlich zur Tritiumerzeugung beiträgt.

II. Verteilung des Tritiums auf der Erde

Im Jahre 1950 konnten FALTINGS und HARTECK⁴ die von LIBBY³ vorhergesagte Existenz von natürlichem Tritium auf der Erde beweisen. Sie maßen den Tritiumgehalt des molekularen Wasserstoffs der Atmosphäre und fanden ein Atomzahlenverhältnis $T/H = (3,8 \pm 1,2) \cdot 10^{-15}$. Kurze Zeit darauf bestimmten W. F. LIBBY *et al.*⁵ den Tritiumgehalt von schwerem Wasser aus Norwegen, in dem außer dem Deuterium auch das Tritium elektrolytisch angereichert war. Da die elektrolytischen Trennfaktoren der beiden Isotope relativ zum Protium bekannt waren, konnte aus dem bekannten Deuteriumanreicherungsfaktor der Anreicherungsfaktor für das Tritium berechnet werden. Zusammen mit der gemessenen Tritiumkonzentration ergab sich, daß das als Ausgangsmaterial für die Elektrolyse benutzte Wasser ein Verhältnis $T/H = (0,8 \pm 0,1) \cdot 10^{-18}$ gehabt haben mußte.

Beide Ergebnisse wurden durch spätere Messungen bestätigt; vor allem ergab sich, daß die Tritiumkonzentration im atmosphärischen Wasserstoff tatsächlich etwa drei bis vier Zehnerpotenzen höher ist als in Niederschlägen. HARTECK⁶ hat 1954 dieses Ergebnis durch eine Betrachtung aller für die Bildung von HT und HTO

wichtigen, in der Atmosphäre ablaufenden chemischen und photochemischen Reaktionen zu erklären versucht. Durch geeignete Wahl der Parameter konnte er auch den experimentellen Befund erklären. Die von HARTECK gemachte Annahme, daß die zum Teil mit beträchtlicher kinetischer Energie erzeugten Tritonen zunächst bis auf thermische Energie abgebremst werden und erst dann reagieren können, braucht jedoch nicht richtig zu sein. ROWLAND⁷ wies z. B. darauf hin, daß die Reaktion $T + H_2O \rightarrow HT + OH$ mit epithermischen Tritonen ($E > 0,7$ eV) zumindest einen Teil des in der Atmosphäre vorhandenen HT erzeugen könne.

Außer am molekularen Wasserstoff der Atmosphäre und an verschiedensten Wässern sind bisher keine Tritiumbestimmungen durchgeführt worden. Atmosphärisches Methan z. B. wurde bisher nicht auf seinen Tritiumgehalt untersucht*. Obwohl nicht zu erwarten ist, daß dieser ähnlich hoch ist wie der des atmosphärischen Wasserstoffs, könnten solche Messungen doch interessante Aufschlüsse über photochemische und Austauschreaktionen in der Atmosphäre geben.

Aus den bisherigen Messungen ergibt sich für die Verteilung des Tritiums auf die verschiedenen Reservoirs, daß sich mehr als 99% des gesamten natürlichen Tritiums in der Hydrosphäre befindet – mit T/H-Verhältnissen von $20 \cdot 10^{-18}$ bis zu mehr als hundertmal kleineren Werten – und der Rest im Wasserdampf sowie im molekularen Wasserstoff der Atmosphäre (Tabelle 1).

Tabelle 1: Die Verteilung des natürlichen Tritium auf die verschiedenen terrestrischen Reservoirs

	Häufigkeit (Vol.-%)	T/H · 10 ¹⁸	Tritiumgehalt (in % der Gesamtmenge)
<i>Hydrosphäre</i>			
Meere		~ 1	~ 99
Grundwasser		~ 5	
Seen, Flüsse		~ 5	
<i>Atmosphäre</i>			
H ₂	5 · 10 ⁻⁵	10 ⁴	~ 0,12
CH ₄	1,5 · 10 ⁻⁴	?	?
Wasserdampf	~ 10 ⁻¹	1-20	~ 0,1

III. Tritiumproduktionsrate und Tritiumzerfallsrate

Die Frage nach der insgesamt auf der Erde vorhandenen Menge natürlichen Tritiums kann im wesentlichen auf zwei verschiedene Weisen beantwortet werden.

* Nach Abschluß des Manuskripts wurden die Ergebnisse einer Reihe von Tritiumbestimmungen am atmosphärischen Methan bekannt⁸. Die einzige in diesem Zusammenhang interessierende Probe aus dem Jahre 1953 stammt aus Neuseeland und zeigte ein Verhältnis $T/H = (0,87 \pm 0,15) \cdot 10^{-15}$.

⁷ F. S. ROWLAND, *J. Chem. Physics* 30 (1959) 1098.

⁸ K. F. BISHOP, H. J. DELAFIELD, A. E. J. EGGLETON, C. O. PEABODY und B. T. TAYLOR, *Symposium on the Detection and Use of Tritium in the Physical and Biological Sciences*, Paper No. TTS/79, IAEA, Wien, Mai 1961.

⁶ P. HARTECK, *J. Chem. Physics* 22 (1954) 1746.

1. Wenn die Wirkungsquerschnitte aller für die Tritium-erzeugung in Frage kommenden Kernreaktionen sowie die Intensitäten der diese Kernreaktionen hervorruhenden Komponenten der kosmischen Strahlung bekannt sind, kann daraus die Tritiumproduktionsrate (\bar{Q}) berechnet werden. Diese ist definiert als die Anzahl der Tritiumatome, die pro sec und cm^2 – gemittelt über die Erdoberfläche – entstehen. Eine eventuelle Zufuhr von Tritium aus extraterrestrischen Quellen ist dabei inbegriffen. Multipliziert mit der mittleren Lebensdauer des Tritiums ($\tau_\beta = 17,9$ Jahre) ergibt sich daraus die im radioaktiven Gleichgewicht auf der Erde vorhandene Tritiummenge.
2. Wenn die Verteilung des Tritiums auf die verschiedenen Reservoirs sowie die den Austausch zwischen diesen Reservoirs bestimmenden Größen bekannt sind, kann deren Tritiumgehalt gemessen werden und unter Zugrundelegung eines geeigneten Modells die Tritiumzerfallsrate (\bar{Z}) berechnet werden.

Da im radioaktiven Gleichgewicht *per definitionem* die Produktionsrate gleich der Zerfallsrate sein muß, sollen beide Methoden zum selben Ergebnis führen.

Im folgenden soll zunächst versucht werden, beide Methoden kurz zu skizzieren, die Ergebnisse zu vergleichen und zu diskutieren.

A. Ermittlung der Tritiumproduktionsrate \bar{Q} aus Höhenstrahlungsdaten

Von den zahlreichen Reaktionen, die prinzipiell zur Bildung von Tritium auf der Erde führen können, liefern nur die Spallationsreaktionen am Stickstoff und Sauerstoff der Atmosphäre – hervorgerufen durch Protonen und Neutronen mit $E \gtrsim 40$ MeV – sowie die Reaktion $^{14}\text{N}(n, ^3\text{H})^{12}\text{C}$ einen nennenswerten Beitrag zur natürlichen Tritiumproduktion. Alle anderen Prozesse, wie $(\mu, ^3\text{H})$, $(\gamma, ^3\text{H})$, $^4\text{He}(\gamma, p)^3\text{He}$ und $^{16}\text{O}(n, ^3\text{H})^{14}\text{N}$ in der Atmosphäre oder (n, α) -Reaktionen am Lithium der Lithosphäre und in den Meeren oder die Spaltung von Uran unter gleichzeitiger Emission eines Tritons liefern Beiträge, die mindestens zwei Größenordnungen kleiner sind.

Verschiedene Autoren⁹⁻¹⁴ haben im Laufe der Jahre die Tritiumproduktionsrate berechnet und fanden Werte zwischen 0,14 und 1,8 T-Atome/sec cm^2 . Die wohl zuverlässigste Berechnung jedoch wurde von LAL und PETERS¹⁵ sowie CRAIG und LAL¹⁶ durchgeführt. Folgende Methode wurde von ihnen angewandt: Aus ausgedehnten

Meßreihen mit Kernemulsionsplatten und Wilson-Kammern ist die Erzeugungsrate von kosmischen Strahlungs-«Sternen» bekannt. Für solche «Sterne», die durch Nucleonen mit $E < 400$ MeV erzeugt werden, wurde für alle Breiten und bis zu Höhen von $d = 200$ g/cm^2 gefunden, daß die Höhen- und Breitenabhängigkeit der «Stern»-Erzeugungsrate dieselbe ist wie die der Neutronen mit $E < 30$ MeV. Die Ergebnisse von LORD¹⁷ über die Höhenabhängigkeit der Erzeugungsrate von «Sternen» wurde daher mit Hilfe der Kurven für die Breitenabhängigkeit des Neutronenflusses dazu benutzt, die relative «Stern»-Erzeugungsrate für alle atmosphärischen Höhen und geomagnetischen Breiten zu berechnen¹⁸. Aus dem ebenfalls mit Hilfe von Kernemulsionsplatten gemessenen Verhältnis der Häufigkeit von «kleinen Sternen» – erzeugt durch Nucleonen mit $E < 400$ MeV – zu «großen Sternen» – erzeugt durch Nucleonen mit $E > 400$ MeV – läßt sich weiterhin der Beitrag der Nucleonen mit $E > 400$ MeV zur totalen «Stern»-Erzeugungsrate berechnen. Um aus der so berechneten Höhen- und Breitenabhängigkeit der totalen «Stern»-Erzeugungsrate zu absoluten Werten zu kommen, muß noch an einer beliebigen Stelle geeicht werden. Dazu können die von BROWN¹⁹ durchgeführten Messungen mit einer stickstoffgefüllten Hochdruck-Wilson-Kammer bei 680 g/cm^2 und $\lambda = 50^\circ$ benutzt werden. Als letzte Größe bleibt schließlich das Verhältnis $\sigma_{\text{Tritium}}/\sigma_{\text{Total}}$ für diese «Sterne» zu bestimmen. Dieses wurde mit Hilfe der gemessenen Tritiumerzeugungsquerschnitte, die für Protonen von 225 MeV bis 6 BeV bekannt sind^{10, 11, 13, 20} von LAL und PETERS zu 15% und von CRAIG und LAL zu 13% abgeschätzt. Zusammen mit dem Wert für die mittlere «Stern»-Erzeugungsrate von 1,7 «Sternen» pro sec und cm^2 ergibt sich dann eine Tritiumproduktionsrate von $\bar{Q} = (0,25 \pm 0,05)$ T-Atome/sec cm^2 .

Die Abhängigkeit der troposphärischen und totalen Tritiumproduktionsrate von der geomagnetischen Breite zeigt Abb. 1. Als Höhe der Tropopause, der imaginären Grenzschicht zwischen Troposphäre und Stratosphäre, wurde der Mittelwert der für Sommer und Winter gemessenen Höhen gewählt. Während die totale Produktionsrate zu den Polen hin sehr stark ansteigt, bleibt der troposphärische Anteil etwa konstant. Der höhere Nucleonenfluß in der Nähe der Pole wird durch die niedrigere Tropopause in etwa kompensiert. Eine Integration der Kurven ergibt, daß etwa 66% des gesamten Tritiums in der Stratosphäre erzeugt werden und 34% in der Troposphäre.

Es sei noch darauf hingewiesen, daß diese Produktionsraten berechnet wurden unter der Annahme, daß die Intensität der kosmischen Strahlung zeitlich konstant ist, zumindest für Zeiten, die lang sind, verglichen

⁹ E. L. FIREMAN, *Physic. Rev.* 91 (1953) 922.

¹⁰ E. L. FIREMAN und F. S. ROWLAND, *Physic. Rev.* 97 (1955) 780.

¹¹ L. A. CURRIE, W. F. LIBBY und R. L. WOLFGANG, *Physic. Rev.* 101 (1956) 1557.

¹² P. A. BENIOFF, *Proceedings of Conference on Recent Research in Climatology*, Editor: H. CRAIG, La Jolla 1957.

¹³ L. A. CURRIE, *Physic. Rev.* 114 (1959) 878.

¹⁴ A. T. WILSON und G. J. FERGUSON, *Geochim. Cosmochim. Acta* 18 (1960) 273.

¹⁵ D. LAL und B. PETERS, *Progress in Cosmic Ray Physics*, im Druck.

¹⁶ H. CRAIG und D. LAL, Manuskript, August 1960.

¹⁷ J. J. LORD, *Physic. Rev.* 81 (1951) 901.

¹⁸ D. LAL, P. K. MALHOTRA und B. PETERS, *J. Atm. Terr. Physics* 12 (1958) 306.

¹⁹ W. W. BROWN, *Physic. Rev.* 93 (1954) 528.

²⁰ M. HONDA und D. LAL, *Physic. Rev.* 118 (1960) 1618.

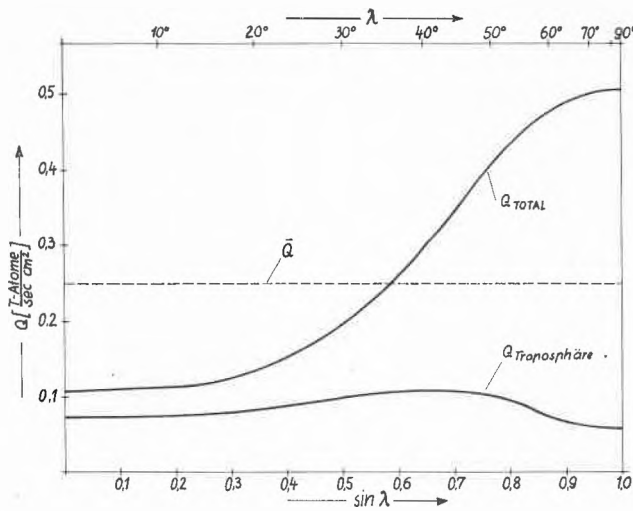


Abb. 1. Die über die gesamte Tiefe der Troposphäre bzw. Atmosphäre integrierte troposphärische und totale Tritiumproduktionsrate als Funktion der geomagnetischen Breite λ . Ebenfalls eingezeichnet ist die über die Erde gemittelte Produktionsrate \bar{Q}

mit der mittleren Lebensdauer des Tritiums. Seit den Arbeiten von FORBUSH²¹ ist aber bekannt, daß die kosmische Strahlung nicht nur kurzzeitige Schwankungen mit sehr kleiner Amplitude zeigt, sondern auch eine solche mit einer Periode von elf Jahren, und zwar in Antiphasse mit dem Sonnenfleckenzyklus. Diese Änderungen der Primärintensität sind nicht auf einen zeitlich variablen Beitrag der Sonne zur kosmischen Strahlung zurückzuführen, sondern sie werden – wie man heute glaubt – durch von der Sonne emittierte Plasmawolken hervorgerufen, deren magnetisches Feld die galaktische kosmische Strahlung beeinflusst. Wegen des kausalen Zusammenhangs zwischen Sonnenflecken und der Emission solcher Plasmawolken besteht die Antikorrelation mit dem Sonnenfleckenzyklus. Die Intensitätsschwankungen sind im wesentlichen – jedoch nicht ausschließlich – auf die Komponente mit geringer magnetischer Steifigkeit beschränkt (Abb. 2).

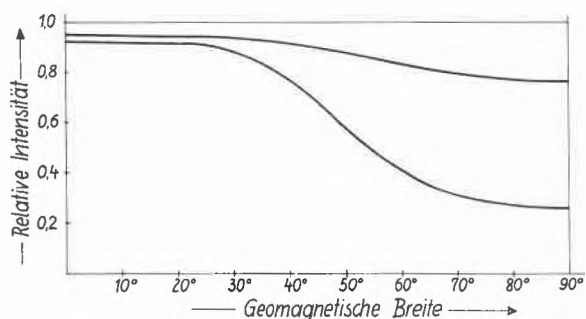


Abb. 2. Die Primärintensität der galaktischen kosmischen Strahlung als Funktion der geomagnetischen Breite während 1956 (obere Kurve) und 1958 (Sonnenfleckenmaximum, untere Kurve). Die Intensität 1954 (Sonnenfleckenmaximum) wurde für alle Breiten gleich 1,0 gesetzt¹⁵

²¹ S. E. FORBUSH, *J. Geophysic. Res.* 59 (1954) 534.

Da genügend experimentelle Daten über die Änderungen des primären Nucleonenflusses zumindest für den letzten Sonnenfleckenzyklus vorliegen, ist es möglich, die zeitliche Variation der Tritiumproduktionsrate zu berechnen. LAL und PETERS¹⁵ fanden z. B., daß zur Zeit des letzten Sonnenfleckenmaximums (1958) die Produktionsrate etwa 25% kleiner war als bei ruhiger Sonne. Allerdings war das Maximum 1958 das höchste seit etwa zweihundert Jahren, d. h. seit überhaupt regelmäßige Beobachtungen durchgeführt werden. Für einen mittleren Zyklus dürfte die Differenz zwischen maximaler und minimaler Tritiumproduktion etwa 10% sein.

B. Ermittlung der Tritiumzerfallsrate \bar{Z} aus gemessenen Tritiumkonzentrationen

Mit den Berechnungen der Tritiumzerfallsrate sind prinzipielle Schwierigkeiten verbunden, über die zunächst einiges gesagt sei.

Da normalerweise das T/H-Verhältnis in den zu untersuchenden Wasserproben 10^{-17} bis 10^{-18} ist und die Zerfallsenergie des Tritiums nur etwa 18 keV beträgt, muß das Tritium in diesen Wasserproben etwa tausendfach angereichert werden, damit seine Konzentration überhaupt mit hinreichender Genauigkeit gemessen werden kann. Die Anreicherung geschieht im allgemeinen durch Elektrolysieren der Wasserproben von einem Anfangsvolumen V_0 (einige Liter) bis auf ein Endvolumen V von einem cm^3 oder weniger. Der bei dieser Elektrolyse für die Anreicherung des Tritiums entscheidende Separationsfaktor β , der definiert ist als das T/H-Verhältnis im Wasser zu dem des entwickelten Wasserstoffs

$$\beta = \frac{(T/H)_{H_2O}}{(T/H)_{H_2}}, \quad (1)$$

ist zwar sehr groß (etwa 15), hängt jedoch von Temperatur, Elektrodenmaterial, Elektrodenoberfläche und Stromdichte in einer Weise ab, die noch keineswegs restlos geklärt ist. Vor allem ist es bisher nicht möglich, Variationen des Separationsfaktors zu vermeiden, was eine exakte Berechnung des Tritiumanreicherungsfaktors aus dem Volumenanreicherungsfaktor unmöglich macht. Praktisch geht man so vor, daß man das in den Wasserproben vorhandene natürliche Deuterium als Indikator benutzt. Allerdings schwankt auch dessen Separationsfaktor α , das Verhältnis β/α ist jedoch bemerkenswert konstant (etwa 2). Aus dem gemessenen Volumenanreicherungsfaktor V_0/V und dem des Deuteriums D/D_0 läßt sich dann der Tritiumanreicherungsfaktor berechnen nach

$$T/T_0 = \frac{V_0}{V} \left(\frac{D}{D_0} \cdot \frac{V}{V_0} \right)^{\alpha/\beta} \approx \left(\frac{V_0}{V} \cdot \frac{D}{D_0} \right)^{1/2}. \quad (2)$$

Die Genauigkeit ist im allgemeinen etwa 10%.

Außerdem liegt zwar etwa 99% alles auf der Erde vorhandenen natürlichen Tritiums als HTO vor (Tabelle 1); die Tritiumkonzentrationen in den individuellen Was-

serproben jedoch hängen ab von der Herkunft der Proben (Tabelle 2).

Tabelle 2: Der mittlere natürliche Tritiumgehalt von Wasserproben verschiedener Herkunft. Die Werte sind den Arbeiten²²⁻²⁸ entnommen

Herkunft der Wasserproben	T/H · 10 ¹⁸
Atlantik-Oberfläche	0,2 bis 1,0
Niederschläge über dem Meer	~ 1,0
Lake Michigan (USA)	1,6
Niederschläge und Flüsse in Westeuropa und im Westen der USA	2,4
Mississippi-Wasser	6,0
Niederschläge in Chicago (USA)	7,8
Schnee aus Grönland	12,6
Schnee aus der Antarktis	16,0
Niederschläge in Ottawa (Kanada)	26,6

Es muß daher stets ein geeignetes Modell herangezogen werden, um aus den gemessenen Tritiumkonzentrationen die Menge des auf der Erde vorhandenen Tritiums zu berechnen. Ein solches Modell aber setzt voraus, daß die den Austausch zwischen den einzelnen Wasserreservoirs (atmosphärischer Wasserdampf, Meeresoberfläche, Tiefsee, Grundwasser usw.) bestimmenden Größen bekannt sind. Außerdem muß bekannt sein, wie sowohl das in der Troposphäre als auch das in der Stratosphäre produzierte Tritium zur Erde herabgebracht und dort deponiert wird, d. h. die Breitenabhängigkeit der Depositionsrate D muß bekannt sein. Erst eine Kenntnis dieser meteorologischen Daten erlaubt, aus der in einer bestimmten geographischen (oder geomagnetischen) Breite bestimmten Tritiumzerfallsrate Z_λ die über die gesamte Erdoberfläche gemittelte Zerfallsrate \bar{Z} zu berechnen. Gerade die Unkenntnis dieser entscheidenden meteorologischen Daten, die den Austausch des Tritiums zwischen Stratosphäre und Troposphäre sowie die Breitenabhängigkeit der Depositionsrate bestimmen, hat lange Zeit eine beträchtliche Unsicherheit in den Bestimmungen der Zerfallsrate zur Folge gehabt, eine Tatsache, die erst in allerjüngster Zeit klar erkannt wurde.

Es soll hier nicht auf die Einzelheiten der verschiedenen mehr oder weniger realistischen Modelle eingegangen werden, die zur Berechnung der Tritiumdepositionsrate herangezogen worden sind. Legt man das von BOLIN²⁹ vorgeschlagene zugrunde, so ergibt sich für die

Breite von Chicago – aus der fast alle durch H-Bomben-Tritium nicht verseuchten Proben⁹ stammen – der Wert $D_{CH} = (0,9 \pm 0,2)$ T-Atome/sec cm². Um die über die gesamte Erdoberfläche gemittelte Zerfallsrate \bar{Z} zu erhalten, muß jetzt einmal berücksichtigt werden, daß ein Teil des in der Stratosphäre produzierten Tritiums bereits dort zerfallen wird und nicht in die Troposphäre gelangt. Der Korrekturfaktor K , der diesen Zerfall in Betracht zieht, berechnet sich zu

$$K = 1 + \frac{Q_{str}}{Q_{total}} \left(e^{\lambda_\beta \tau_{str}} - 1 \right), \quad (3)$$

wobei Q_{str} und Q_{total} die stratosphärische bzw. totale Tritiumproduktionsrate ist, λ_β die Zerfallskonstante des Tritiums und τ_{str} die mittlere Verweilzeit des Tritiums in der Stratosphäre.

Zum anderen aber muß – wie schon erwähnt – die Breitenabhängigkeit der Depositionsrate bekannt sein.

Beide Korrekturen lassen sich nur dann exakt anbringen, wenn die für den Austausch von Gasen zwischen der Stratosphäre und der Troposphäre entscheidenden meteorologischen Vorgänge mit hinreichender Genauigkeit bekannt sind. Gerade auf diesem Gebiet sind aber in jüngster Zeit so entscheidende Fortschritte gemacht worden, daß es jetzt möglich erscheint, die Tritiumzerfallsrate mit wesentlich größerer Genauigkeit zu bestimmen, als es bisher möglich war.

Die inzwischen zahlreicher und genauer gewordenen Messungen an radioaktiven Spaltprodukten (besonders ⁸⁹Sr, ⁹⁰Sr, ¹⁴⁰Ba) sowie induzierten Aktivitäten (¹⁸⁵W) haben ergeben, daß die anfänglichen Vorstellungen über das Verhalten dieser Spaltprodukte zum Teil erheblich revidiert werden müssen. Es wurde festgestellt³⁰⁻³³:

1. Unabhängig vom Ort, an dem die Spaltprodukte in die Stratosphäre injiziert werden, zeigt die Depositionsrate eine charakteristische Breitenabhängigkeit (Abb. 3).
2. Die mittlere Verweilzeit der Spaltprodukte in der Stratosphäre hängt davon ab, wann und wo sie in die Stratosphäre gebracht werden. Während für solche Spaltprodukte, die in die hohe äquatoriale Stratosphäre gebracht werden ($h \gtrsim 20$ km) die mittlere Verweilzeit fünf bis zehn Jahre ist, ist sie für die untere äquatoriale Stratosphäre (Tropopause bis etwa 20 km Höhe) nur zwei bis drei Jahre.
3. Für die Stratosphäre in mittleren Breiten schließlich und besonders die in der Nähe der Pole kann man bei einmaliger Injektion überhaupt nicht von einer mittleren Verweilzeit sprechen. Die dort befindlichen Spaltprodukte werden während der Monate Februar

²² S. KAUFMAN und W. F. LIBBY, *Physic. Rev.* 93 (1954) 1337.

²³ H. v. BUTLAR und W. F. LIBBY, *J. Inorg. Nucl. Chem.* 1 (1955) 75.

²⁴ R. M. BROWN und W. E. GRUMMIT, *Can. J. Chem.* 34 (1956) 220.

²⁵ F. BEGEMANN und W. F. LIBBY, *Geochim. Cosmochim. Acta* 12 (1957) 277.

²⁶ F. BEGEMANN, *Final Report, Contr. No. A. F. 18 (600)-564*, The University of Chicago, Chicago (USA) 1957.

²⁷ B. J. GILETTI, F. BAZAN und J. L. KULP, *Trans. Amer. Geophys. U.* 39 (1958) 807.

²⁸ F. BEGEMANN, *Z. Naturforsch.* 14a (1959) 334.

²⁹ B. BOLIN, *Proceedings of the Second Conference of Peaceful Uses of Atomic Energy* 18 (1958) 336.

³⁰ L. MACHTA und R. J. LIST, *Open Hearings of the Joint Committee on Atomic Energy on «Fallout from Nuclear Weapons Tests», 5 to 8 May 1959*, U. S. Government Printing Office, Washington (D.C.).

³¹ W. F. LIBBY, *Proc. Nat. Acad. Sci.* (Washington) 45 (1959) 959.

³² E. A. MARTELL, *Science* 129 (1959) 1197.

³³ E. A. MARTELL, persönliche Mitteilung.

bis Mai in die Troposphäre herabgebracht, unabhängig davon, wann sie injiziert wurden. Bei kontinuierlicher Injektion – bzw. Produktion, wie im Falle des natürlichen Tritiums – ist die mittlere Verweilzeit somit sechs bis neun Monate.

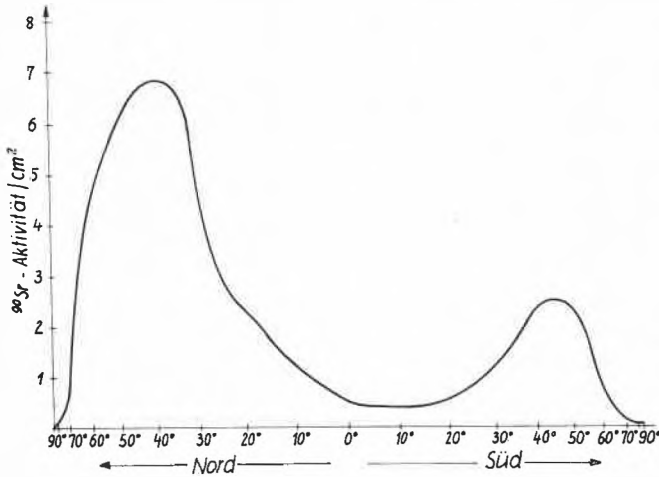


Abb. 3. Die Verteilung von ⁹⁰Sr (in willkürlichen Einheiten) auf der Erde in Abhängigkeit von der geographischen Breite. Da der überwiegende Teil des ⁹⁰Sr stratosphärischen Ursprungs ist und durch Luftzirkulation aus der Stratosphäre in die Troposphäre gebracht wird, kann für die Depositionsrate des stratosphärischen Tritium dieselbe Breitenabhängigkeit angenommen werden

Nimmt man an, daß sich das stratosphärische Tritium in gleicher Weise verhält, so läßt sich aus der berechneten Abhängigkeit der stratosphärischen Tritiumproduktionsrate von der geomagnetischen Breite (Abb. 1) sowie der Breitenabhängigkeit der mittleren Verweilzeit von Gasen in der Stratosphäre die mittlere Verweilzeit τ_{str} dieses Tritiums berechnen. Mit den in Tabelle 3 angeführten Werten ergibt sich $\tau_{str} = (2,4 \pm 1,2)$ Jahre [CRAIG und LAL¹⁶ berechneten unter ähnlichen Annahmen ein $\tau_{str} = (1,6 \pm 0,5)$ Jahre].

Tabelle 3: Die mittlere Verweilzeit von Gasen in der Stratosphäre für verschiedene Breitenintervalle sowie der auf diese Intervalle entfallende Beitrag der stratosphärischen Tritiumproduktion

Intervallbreite	Mittlere Verweilzeit	Beitrag zu Q_{str}
0 bis 40°	4 ± 2 a	26 %
40 bis 60°	2 ± 1 a	39 %
60 bis 90°	$1,5 \pm 1$ a	35 %

Aus Gleichung (3) folgt damit $k = (1,08 \pm 0,04)$, d.h. die mittlere Zerfallsrate \bar{Z} ist nur (8 ± 4) % höher als die Depositionsrate D .*

Da aber außerdem jetzt bekannt ist, wie sich das stratosphärische Tritium auf der Erde verteilt, läßt sich

* Dabei ist für das Verhältnis der stratosphärischen zur totalen Produktionsrate $Q_{str}/Q_{total} = 0,66$ angenommen. Selbst wenn alles Tritium in der Stratosphäre erzeugt würde, wäre der Korrekturfaktor nur $k = 1,12$.

die Breitenabhängigkeit der totalen Tritiumdepositionsrate berechnen. Dazu wird in Übereinstimmung mit dem für Spaltprodukte gefundenen Ergebnis angenommen, daß das troposphärische Tritium lokal bzw. in etwa gleicher geographischer Breite mit dem Entstehungsort deponiert wird. Für den stratosphärischen Anteil wird die in Abb. 3 gezeigte Breitenabhängigkeit zugrunde gelegt. Resultierend ergibt sich dann für die Verteilung des gesamten natürlichen Tritiums die in Abb. 4 dargestellte Breitenabhängigkeit. (Hier ist wegen der immer noch vorhandenen Unsicherheit nicht mehr zwischen geomagnetischer und geographischer Breite unterschieden. Außerdem zeigt die Kurve zwischen etwa 30° und 50° – dem Breitengürtel, aus dem fast alle für die Berechnung von \bar{Z} herangezogenen Proben stammen – ein breites Maximum, so daß durch diese Vernachlässigung kein ernsthafter Fehler entstehen dürfte.) Ein Vergleich von Abb. 1 und 4 zeigt, daß das in der Nähe der Pole produzierte stratosphärische Tritium vorzugsweise in mittleren Breiten deponiert wird, während in der Nähe des Äquators die Menge des deponierten Tritium etwa gleich der dort produzierten ist. Graphische Integration der Kurve ergibt, daß die Depositionsrate im Intervall von 30° bis 60° etwa 1,6mal höher ist als die über die Erde gemittelte. Damit aber folgt für die über die Erde gemittelte Depositionsrate $\bar{D} = (0,56 \pm 0,15)$ T-Atome/sec cm² und unter Berücksichtigung des Zerfalls von Tritium in der Stratosphäre für die mittlere Tritiumzerfallsrate $\bar{Z} = (0,61 \pm 0,2)$ T-Atome/sec cm².

Es wurde schon verschiedentlich darauf hingewiesen, daß diesen Berechnungen nur die Tritiumkonzentrationen solcher Proben zugrunde gelegt wurden, die aus der Zeit von vor 1954 stammen. Für diese Proben wurde jedoch angenommen, daß sie ausschließlich natürliches Tritium enthalten. Die von KAUFMAN und LIBBY²² ge-

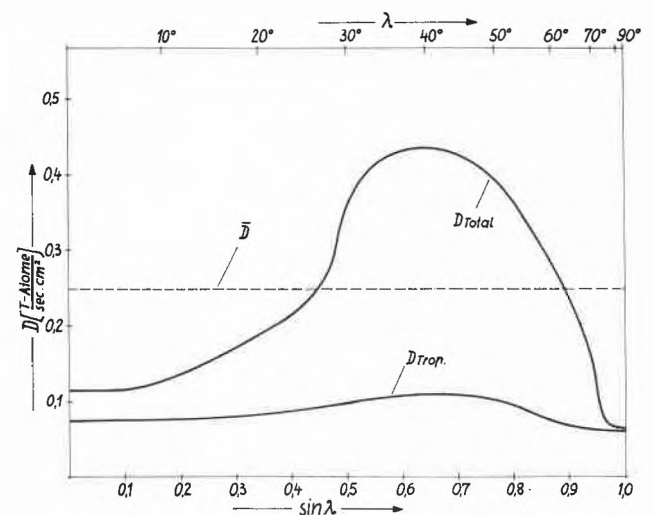


Abb. 4. Die Breitenabhängigkeit der troposphärischen und totalen Tritiumdepositionsrate (in T-Atomen/sec cm²). Für das troposphärische Tritium wurde angenommen, daß es in etwa gleicher Breite mit dem Entstehungsort deponiert wird

messenen Proben aus dem Jahre 1952 zeigen aber andererseits einen leichten, kurzzeitigen Anstieg der Tritiumkonzentration in Niederschlägen aus Chicago (Abb. 5),

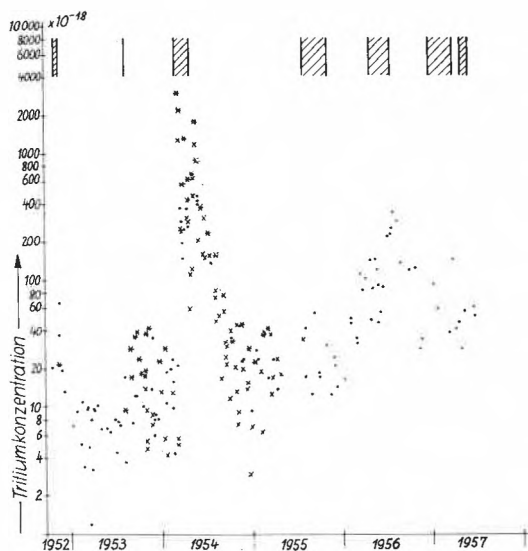


Abb. 5. Die Tritiumkonzentration in Niederschlägen aus Chicago (·), New York (×) und Ottawa (*). Die Zeiten der verschiedenen Versuchsserien mit thermonuclearen Waffen sind angedeutet

der darauf hindeutet, daß bereits die ersten kleinen Versuchsserien mit thermonuclearen Waffen während der Jahre 1952 und 1953 das natürliche Tritiumgleichgewicht in merklicher Weise störten. Es bleibt also diese Möglichkeit zu diskutieren.

Ein Vergleich der Flächen unter den Maxima im Jahre 1952 und 1954 zeigt, daß die Störung durch die Versuchsserie 1952 nur eine relativ geringe Rolle spielte*. GILETTI *et al.*²⁷ schätzten z. B. ab, daß 1952 höchstens 2% der 1954 produzierten Menge Tritium künstlich erzeugt worden sind. Diese Menge ist aber auch gegenüber der natürlich vorhandenen Tritiummenge zu vernachlässigen oder doch zumindest nicht mit Sicherheit nachzuweisen. LAL und PETERS¹⁵ sowie CRAIG und LAL¹⁶ glauben jedoch, daß weitere Versuche mit thermonuclearen Waffen im Jahre 1953 zusammen mit der Versuchsserie 1952 eine Erhöhung der mittleren Tritiumkonzentration von Niederschlägen über dem nordamerikanischen Kontinent um den Faktor 1,75 bzw. 1,68 zur Folge hatten. In diesem Falle würde die Tritiumproduktionsrate gerade mit der Zerfallsrate übereinstimmen. Die Möglichkeit eines solchen Anstiegs zwischen 1952 und 1954 ist zwar nicht auszuschließen, die

bisher vorgebrachten Argumente sind jedoch nicht überzeugend. Sie beruhen teilweise auf einer selektiven Benutzung nur solcher Proben, die die Argumente unterstützen, teilweise auf der Anwendung falscher Korrekturfaktoren.

Die im Augenblick besten Werte für die natürliche Tritiumproduktionsrate und Tritiumzerfallsrate dürften somit

$$\bar{Q} = (0,25 \pm 0,05) \text{ T-Atome/sec cm}^2$$

$$\text{und } \bar{Z} = (0,61 \pm 0,2) \text{ T-Atome/sec cm}^2$$

sein.

IV. Mögliche Ursachen einer höheren Tritiumproduktion und deren zeitlicher Variation

Obwohl durchaus möglich ist, daß alles auf der Erde vorhandene natürliche Tritium durch die galaktische kosmische Strahlung erzeugt wird, sind doch verschiedene andere Entstehungsmechanismen diskutiert worden, vor allem zu der Zeit, als die Zerfallsrate etwa zehnmal höher zu sein schien als die Produktionsrate.

FELD, ARNOLD und CRAIG schlugen unabhängig voneinander vor, die Differenz zwischen Produktionsrate und Zerfallsrate durch den Einfang von solarem Tritium durch die Erde zu erklären³⁵. Aus verschiedenen Anhaltspunkten (erdmagnetische Störungen, Verformung von Kometenschweifen usw.) weiß man, daß die Erde ständig von einem intensiven Strom korpuscularer Teilchen geringer Energie getroffen wird. Aus der Erscheinung der *aurora borealis*, die heute ebenfalls allgemein auf den Einfluß einer ionisierten Korpuskularstrahlung zurückgeführt wird³⁶, berechnet sich ein Teilchenfluß von etwa 10^7 bis 10^8 Protonen/cm² sec. Die Höhen, in der *aurorae* auftreten, sowie die beobachtete Doppler-Verschiebung mancher Spektrallinien erlauben, die Mindestenergie der Teilchen abzuschätzen. Die am häufigsten beobachteten Höhen sind etwa 110 km; damit Protonen bis in diese Höhe vordringen können, müssen sie eine Energie von etwa 25 keV haben. Gelegentlich jedoch sind *aurorae* bis herab zu 70 km beobachtet worden, was einer Mindestenergie von etwa 5 MeV entspricht. Um das Eindringen ionisierter Teilchen mit so geringer Energie in diese Höhen zu erklären, sind verschiedene Mechanismen vorgeschlagen worden³⁷⁻³⁹.

Über die Zusammensetzung der Korpuskularstrahlung solaren Ursprungs ist nur sehr wenig bekannt. Zwar ist beobachtet worden, daß gelegentlich Ca von der Sonne mit Geschwindigkeiten größer als der Entweichgeschwindigkeit emittiert wird⁴⁰, quantitative Daten liegen je-

* Der Tritiumgehalt des molekularen Wasserstoffs der Atmosphäre stieg dagegen zwischen 1952 und 1954 um etwa einen Faktor 10 an, im Anschluß an die Versuchsserie 1954 jedoch nicht merklich. Eine Erklärung für den vollkommen verschiedenen Anstieg der Tritiumkonzentrationen im molekularen Wasserstoff und in Niederschlägen im Anschluß an die beiden verschiedenen Versuchsserien dürfte in der Art der detonierten Bomben zu suchen sein³⁴.

³⁴ F. BEGEMANN und I. FRIEDMAN, *Z. Naturforsch.* 14a (1959) 1024.

³⁵ H. CRAIG, *Physic. Rev.* 105 (1957) 1125.

³⁶ J. W. CHAMBERLAIN und A. B. MEINEL, *The Earth as a Planet*, Herausgeber: G. P. KUIPER, The University of Chicago Press, Chicago 1954.

³⁷ S. CHAPMAN und V. C. A. FERRARO, *Terr. Magn.* 45 (1940) 245.

³⁸ D. F. MARTIN, *Nature (London)* 167 (1951) 92.

³⁹ W. H. BENNET und E. O. HULBERT, *Physic. Rev.* 95 (1954) 315.

⁴⁰ H. W. DODSON, E. R. HEDEMANN und J. W. CHAMBERLAIN, *Astro-Physic. J.* 117 (1953) 66.

doch nicht vor. Man ist also auch bei der Diskussion der Möglichkeit, ob Tritium mit einer Häufigkeit von 10^{-8} oder weniger in diesem Partikelstrom enthalten sein könnte, mehr oder weniger auf Vermutungen angewiesen, zumal keinerlei experimentelle oder theoretische Daten über das Vorhandensein von Tritium auf der Sonne vorliegen.

Es ist aber 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 zeigen⁴⁰⁻⁴⁵ (siehe auch III, A). Da letztere im Laufe eines Elf-Jahres-Zyklus sehr stark schwankt (Abb. 6), kann man erwarten, daß der von der Sonne

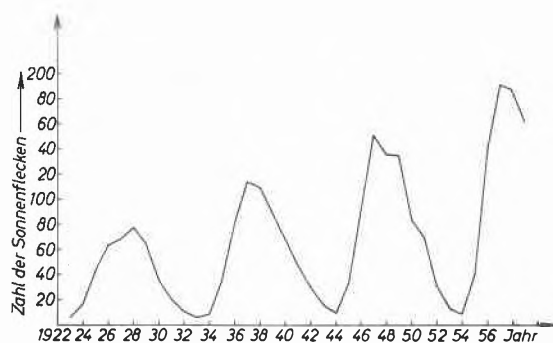


Abb. 6. Die Anzahl der Sonnenflecken für die Zeit von 1922 bis 1959

emittierte Partikelstrom ähnlich starke Schwankungen zeigt, und zwar in Phase mit dem Sonnenfleckenzyklus. BIERMANN⁴⁶ berechnet z. B. die normale Partikelemission bei «ruhiger Sonne» (von fleckenfreien Gebieten) zu 10^{10} bis 10^{11} pro sec und cm^2 (gemessen in Erdnähe), die bei gestörter Sonne (aus der Umgebung von aktiven Fleckengruppen) jedoch zu etwa 10^{13} . Wenn also Tritium in diesem Partikelstrom enthalten ist, sollte diese starke Variation gleichbedeutend sein mit einer zeitlich variablen terrestrischen Tritiumproduktionsrate in Phase mit dem Sonnenfleckenzyklus. (Die Tritiumproduktionsrate schließt *per definitionem* eine Zufuhr von Tritium aus extraterrestrischen Quellen ein, siehe III.) Dasselbe gilt auch für den anderen vorgeschlagenen Entstehungsmechanismus, die Erzeugung von Tritium durch den solaren Anteil der kosmischen Strahlung. Diese Komponente macht sich einmal durch kurzzeitige und nur sehr selten beobachtete Anstiege der Gesamtintensität bemerkbar⁴⁷. Da dieser Anteil Protonen mit Energien bis zu 20 GeV enthält⁴⁸, kann der Anstieg in allen geomagnetischen Breiten beobachtet werden.

⁴¹ R. G. GIOVANELLI, *Astrophysic. J.* 91 (1940) 334.

⁴² S. CHAPMAN und J. BARTELS, *Geomagnetism*, Oxford 1940.

⁴³ H. W. NEWTON, *Monthl. Not. Roy. Astr. Soc.* 102 (1942) 2.

⁴⁴ M. A. ELLISON, *Monthl. Not. Roy. Astr. Soc.* 102 (1942) 11.

⁴⁵ J. BARTELS, *FLAT-Bericht, Geophysics Part I* (1948).

⁴⁶ L. BIERMANN, *Z. Astrophysik* 29 (1951) 274.

⁴⁷ P. MEYER, E. N. PARKER und J. A. SIMPSON, *Physic. Rev.* 104 (1956) 768.

⁴⁸ Siehe z. B.: *Conv. Int. R. Cosm. Nuovo Cimento*, Suppl. Vol. VIII, Serie X, Part I (1958).

Ein wesentlich häufigeres Phänomen aber ist die Emission von Protonen mit Energien bis zu höchstens 1 GeV, die mit den üblichen Detektoren der kosmischen Strahlung in Bodennähe nicht nachgewiesen werden können. Die Existenz einer solchen sehr intensiven Strahlung wurde von REID und LEINBACH⁴⁹ angenommen, um die plötzlichen starken Anstiege der Absorption von kosmischen Radiowellen in der Ionosphäre zu erklären. Der direkte Nachweis dieser Protonen gelang kurze Zeit später⁵⁰⁻⁵²; sie kommen normalerweise bis in Breiten von etwa 65° ; während geomagnetischer Stürme können jedoch auch noch mittlere Breiten erreicht werden. Nach SIMPSON⁵³ ist die Dauer einer jeden solchen Störung 50 Stunden und länger, der mittlere Teilchenfluß während dieser Zeit 10^4 Protonen/sec cm^2 , das differentielle Energiespektrum (im Bereich von 30 bis 400 MeV) $N(E) dE \sim E^{-5}$. Weiterhin schätzt SIMPSON, daß während des letzten Sonnenfleckenzyklus etwa dreißig solcher Ereignisse eintraten. Mit diesen Daten berechnet er dann, daß die Tritiumproduktion durch die solaren Protonen etwa 3,5 mal so hoch ist wie die durch die galaktische kosmische Strahlung. Da diese Protonen aber nicht nur Tritium erzeugen, sondern indirekt auch Radiokohlenstoff, die auf der Erde vorhandene Menge ^{14}C aber in etwa durch die galaktische kosmische Strahlung erklärt werden kann, scheint diese Abschätzung zu hoch zu sein.

Nach LAL und PETERS¹⁵ erzeugen die solaren Protonen im Mittel nur etwa $0,06$ T-Atome/sec cm^2 , wenn man annimmt, daß sie einen «cut-off» bei 40 MeV haben. Außerdem weisen die Autoren darauf hin, daß die Angaben über die Intensität dieser solaren Protonen noch um etwa einen Faktor 20 schwanken, wobei der von SIMPSON gegebene Wert der höchste ist. Wegen dieser Unsicherheiten erscheint es daher verfrüht, anhand der vorliegenden Daten zu entscheiden, einen wie großen Beitrag die solare Komponente der kosmischen Strahlung zur Tritiumproduktion liefert. Wichtig ist dagegen, daß ein solcher Beitrag zeitlich nicht konstant sein, sondern von der Zahl der Sonnenflecken abhängen wird, und zwar muß er ebenfalls in Phase mit dem Sonnenfleckenzyklus variieren.

Damit ist aber eine Möglichkeit gegeben, experimentell nachzuprüfen, ob einer der hier erwähnten Mechanismen für einen wesentlichen Teil der Tritiumproduktion verantwortlich sein kann. Da die Intensität der galaktischen kosmischen Strahlung *in Antiphasse* mit dem Sonnenfleckenzyklus variiert, sollte die Tritiumproduktionsrate ein Maximum haben bei ruhiger Sonne und ein Minimum bei maximaler Sonnenfleckenanzahl,

⁴⁹ G. C. REID und H. LEINBACH, *J. Geophysic. Res.* 64 (1959) 1801.

⁵⁰ K. A. ANDERSON, R. ARNOLDY, R. HOFFMANN, L. PETERSON und J. R. WINCKLER, *J. Geophysic. Res.* 64 (1959) 1133.

⁵¹ E. P. NEY, J. R. WINCKLER und P. S. FREYER, *Physic. Rev. Let.* 3 (1959) 183.

⁵² P. S. FREYER, E. P. NEY und J. R. WINCKLER, *J. Geophysic. Res.* 64 (1959) 685.

⁵³ J. A. SIMPSON, *J. Geophysic. Res.* 65 (1960) 1615.

wenn Tritium nur durch die galaktische kosmische Strahlung erzeugt wird. Kommt aber solares Tritium zur Erde, bzw. wird Tritium durch die solare Komponente der kosmischen Strahlung produziert, sollte die Tritiumproduktion *in Phase* mit dem Sonnenfleckenzyklus schwanken²⁸.

Beschreibt man die stratosphärische Tritiumproduktionsrate durch

$$Q_{str}(t) = \bar{Q}_{str} \left(1 + A \sin \frac{2\pi t}{\tau} \right), \quad (4)$$

wobei τ die Periodendauer des Sonnenfleckenzyklus ist (elf Jahre) und A eine Konstante, die die Amplitude der Schwankungen charakterisiert ($t = \tau/4$ bei Sonnenfleckenmaximum), so ist die Anzahl der in der Troposphäre pro cm^2 vorhandene Zahl neu produzierter Tritiumatome

$$T_{Trop}(t) = \tau_{Trop} \left[Q_{Trop, k. S.} + \lambda_{str} \cdot f \cdot \bar{Q}_{str} \left(\tau_{str}^* + \frac{A}{\sqrt{(1/\tau_{str}^*)^2 + (2\pi/\tau)^2}} \sin \left(\frac{2\pi t}{\tau} - \alpha \right) \right) \right]. \quad (5)$$

τ_{str}^* ist die mittlere Aufenthaltsdauer des Tritiums in der Stratosphäre, die den radioaktiven Zerfall sowie ein eventuelles Entweichen von der Erde einschließt (Abb. 7), α die Phasenverschiebung zwischen dem zeitlichen

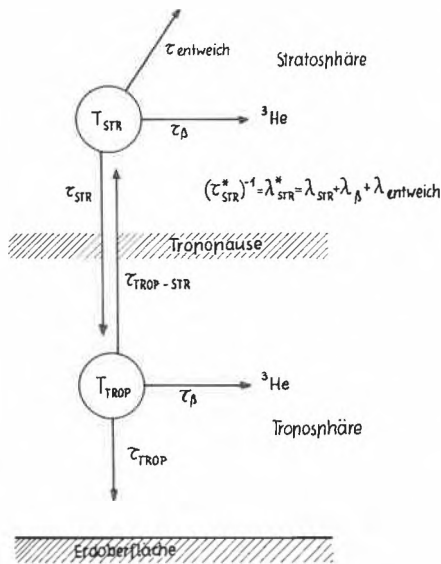


Abb. 7. Modell der irdischen Atmosphäre. Die verschiedenen Prozesse, die die Verweilzeit des Tritiums in der Stratosphäre und der Troposphäre bestimmen, sind angedeutet

Verlauf der Produktionsrate und dem der Tritiummenge in der Stratosphäre, und $\bar{Q}_{Trop, k. S.}$ die als konstant angenommene troposphärische Produktionsrate durch die kosmische Strahlung.

In (5) ist berücksichtigt, daß $\tau_{Trop} \ll \tau/2\pi$. Der Faktor f berücksichtigt die Breitenabhängigkeit des Tritiumflusses aus der Stratosphäre in die Troposphäre, die

identisch ist mit der der Depositionsrate des stratosphärischen Tritiums (Abb. 3).

Die Variation dieser in der Troposphäre vorhandenen Tritiummenge hängt – bei vorgegebener Schwankungsamplitude der Produktionsrate – einmal ab von der mittleren Verweilzeit des Tritiums in der Stratosphäre und zum anderen davon, wieviel des Tritiums aus der Stratosphäre stammt. Ist z. B. die Schwankungsamplitude der Produktionsrate $A = 0,2$ und die mittlere Verweilzeit des Tritiums in der Stratosphäre zwei Jahre, so variiert (mit $Q_{Trop}/f \cdot \bar{Q}_{str} \sim 0,25$) die in der Troposphäre vorhandene Tritiummenge um $\pm 11\%$.*

Die experimentelle Prüfung, ob die in der Troposphäre vorhandene Tritiummenge tatsächlich zeitliche Schwankungen der hier diskutierten Art zeigt und in welchem Zusammenhang diese mit dem Sonnenfleckenzyklus stehen, kann an Proben geschehen, die die folgenden Bedingungen erfüllen:

1. Das Alter der Proben muß bekannt sein.
2. Sie dürfen seit 1952 oder zumindest seit 1954 nicht mehr im Austausch mit dem Wasserdampf der Atmosphäre gestanden haben.
3. Ihr Tritiumgehalt muß ein möglichst direktes Maß für die in der Troposphäre vorhandene Tritiummenge sein.

Tatsächlich liegen bereits einige solche Messungen vor, und zwar einmal die von KAUFMAN und LIBBY²² sowie von v. BUTLAR und LIBBY²³ durchgeführten Bestimmungen des Tritiumgehaltes von Weinen verschiedener Herkunft und verschiedenen Alters und außerdem die Messungen an Schneeproben aus Grönland^{26,28}.

Die Anzahl der auf ihren Tritiumgehalt untersuchten Weine ist leider zu klein, um eine irgendwie bedeutsame Aussage zu gestatten. Die Schneeproben aus Grönland dagegen repräsentieren fast einen kompletten Sonnenfleckenzyklus und sollten sehr wohl geeignet sein, die Existenz einer zeitlichen Variation der Tritiumproduktionsrate nachzuprüfen.

Unabhängig von dem Absolutwert der Tritiumkonzentration interessiert in diesem Zusammenhang vornehmlich die zeitliche Konstanz der Depositionsrate. Wenn die am Ort der Probenentnahme pro Jahr deponierte Tritiummenge in einem zeitlich konstanten Verhältnis zum Tritiumgehalt der Troposphäre gestanden hat, so ergibt sich aus diesen Proben der in Abb. 8 gezeigte zeitliche Verlauf der in der Troposphäre vorhandenen Tritiummenge (in willkürlichen Einheiten).

In der Abbildung ist einmal der Mittelwert der acht Messungen eingetragen, zum anderen zwei aus Gleichung

* Dabei ist nicht berücksichtigt, daß das von der Erdoberfläche bzw. den Meeren verdampfende Wasser ebenfalls Tritium in die Troposphäre bringt. Dieser Beitrag Q_{EV} kann jedoch in guter Näherung als über lange Zeiten konstant angesehen werden und daher mit der troposphärischen Produktionsrate durch die kosmische Strahlung zusammengefaßt werden. $Q = Q_{Trop, k. S.} + Q_{EV}$. Gleichung (5) bleibt richtig, wenn $\bar{Q}_{Trop, k. S.}$ durch Q ersetzt wird.

(5) berechnete Kurven für verschiedene Werte der mittleren Verweilzeit des Tritiums in der Stratosphäre sowie

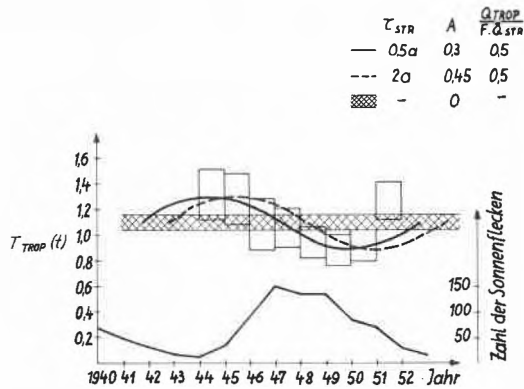


Abb. 8. Die Tritiumdepositionsrate (in willkürlichen Einheiten) für die Zeit von 1944 bis 1952, berechnet aus Messungen an Schneeproben aus Grönland (300 km östlich von Thule, Höhe etwa 2300 m). Eingezeichnet ist einmal der aus den Messungen folgende Mittelwert. Außerdem ist für zwei verschiedene Werte von A und τ_{STR} die nach Gleichung (5) zu erwartende Variation der in der Troposphäre vorhandenen Tritiummengen eingetragen. Die Kurven wurden berechnet unter der Annahme, daß die troposphärische Produktionsrate *in Antiphase* mit dem Sonnenfleckenzyklus variiert. Zum Vergleich ist die Anzahl der Sonnenflecken für die fragliche Zeit angegeben (rechte Ordinate)

verschiedene Amplituden der Variation der stratosphärischen Produktionsrate. Beide Kurven wurden berechnet unter der Annahme, daß die Tritiumproduktion in *Antiphase* mit dem Sonnenfleckenzyklus variiert. (Zum

Vergleich ist die Anzahl der Sonnenflecken für die fragliche Periode ebenfalls eingetragen.)

Die Messungen deuten sicher nicht auf eine Variation des troposphärischen Tritiumgehaltes *in Phase* mit dem Sonnenfleckenzyklus hin. Sie geben somit keinerlei Bestätigung für die Annahme, daß entweder solares Tritium durch die Erde eingefangen oder Tritium in merklichen Mengen durch die solare Komponente der kosmischen Strahlung erzeugt wird. Die beste Übereinstimmung mit den Meßwerten wird vielmehr erzielt, wenn man für die mittlere Verweilzeit des Tritiums in der Stratosphäre 0,5 Jahre, für A den Wert 0,3 und eine Variation *in Antiphase* mit dem Sonnenfleckenzyklus annimmt. Das aber deutet darauf hin, daß alles Tritium durch die galaktische kosmische Strahlung erzeugt wird. In diesem Falle allerdings besteht nach wie vor eine merkliche Diskrepanz zwischen der berechneten Tritiumproduktionsrate und der Tritiumzerfallsrate.

Es ist zu hoffen, daß weitere systematische Messungen eine Klärung der Frage ermöglichen werden.

Die in der vorliegenden Arbeit für eine kritische Diskussion der Tritiumproduktionsrate und Tritiumzerfallsrate herangezogenen eigenen Arbeiten wurden begonnen während eines dreijährigen Aufenthaltes am Enrico Fermi Institute for Nuclear Studies in Chicago. Die Messungen wurden im Laboratorium von Professor W. F. LIBBY durchgeführt, dem ich auch an dieser Stelle sehr herzlich für wertvolle Anregungen und zahlreiche Diskussionen danken möchte.

Die Untersuchungen wurden mit ähnlichen experimentellen Mitteln in der Abteilung von Professor F. A. PANETH F. R. S. am Max-Planck-Institut für Chemie (Otto-Hahn-Institut) in Mainz fortgeführt.