

Emanometrische Messungen von Radon und Thoron in Bodenluft

H. ISRAEL — S. BJÖRNSSON — S. STILLER (*)

Ricevuto il 12 Marzo 1962

I. EINLEITUNG.

Die direkte messtechnische Trennung von Radon und Thoron in Luft ist bisher nur dann sicher möglich, wenn die zu untersuchende Luft ausser den beiden radioaktiven Edelgasen weder Induktionen noch (geladene und ungeladene) Suspensionen enthält. Da dies nur selten — so z.B. bei Luftproben, die aus den Bodenkapillaren abgesaugt werden — der Fall ist, ist die unmittelbare emanometrische Trennung von Radon und Thoron bisher nur bei Bodenluft in einfacher Weise möglich geworden.

Bei der Methode von J. Satterly⁽¹⁾ wird die zu untersuchende Luftprobe zu einem definierten Zeitpunkt möglichst rasch in ein Ionisationsgefäss eingesaugt. Während der ersten Minuten setzt sich dann der Ionisationsstrom zusammen aus dem durch Radon bedingten langsam ansteigenden Strom (Kurve 1 in Abb. 1 oben) und dem mit der Halbwertszeit von 54,5 sec abklingenden Anteil, der durch Thoron bedingt wird (Kurve 2 in Abb. 1 oben).

J. C. Sanderson⁽²⁾ saugt einen Bodenluftstrom bestimmter Geschwindigkeit durch einen Kondensator. Der Strom steigt ebenso wie im normalem Ionisationsgefäss in dem Masse an, wie sich die Induktionen RaA und RaC in ihm ablagern. Wird zu einem bestimmten Zeitpunkt der Luftstrom gestoppt, so klingt der im Apparat enthaltene Thoron-Anteil mit 54,5 sec Halbwertszeit ab; der Strom sinkt also in der in Abb. 1 unten skizzierten Weise und steigt bei erneutem Durchsaugen in gleicher Weise wieder an.

(*) Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule — Aachen.

In der Literatur finden sich ausser den Messungen von J. Satterly ⁽¹⁾ und J. C. Sanderson ⁽²⁾ bisher nur vereinzelt Angaben über den Thoron-Gehalt in Bodenluft. So berichten H. Israel und F. Becker ⁽³⁾ über Messungen in Bad Nauheim, die nach den genannten Methoden von Satterly und Sanderson in Tiefen von 0,5 m, 1 m und 2 m ausgeführt wurden. H. Norinder, A. Metnieks und R. Siksna ⁽⁴⁾ ⁽⁵⁾ haben nach der Methode von Satterly in Uppsala Messungen in 90 cm Tiefe durchgeführt.

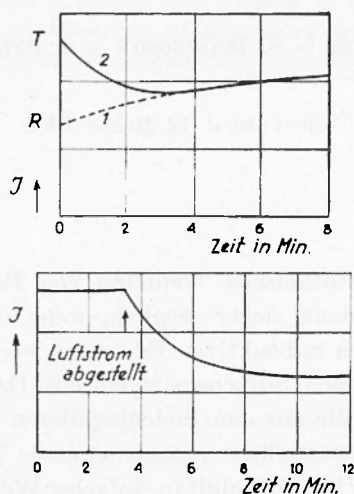


Abb. 1. - Schematische Darstellung der messtechnischen Trennung von Radon und Thoron nach J. Satterly (oben) und J. C. Sanderson (unten).

Im folgenden soll über eine Verfeinerung und messtechnische Erweiterung der Satterly-Methode und einige bisher damit erzielte Ergebnisse berichtet werden.

II. MESSMETHODE.

Die Darstellung der Satterly-Methode in Abb. 1 oben ist idealisiert und entspricht nicht ganz der Wirklichkeit. Denn es ist dabei angenommen, dass das Ionisationsgefäss zum Zeitpunkt $t = 0$ so rasch mit der zu untersuchenden Luft gefüllt werden kann, dass in dieser Zeit kein Zerfall des Thorons stattfindet. Dies ist eine praktisch unerfüllbare Forderung. Bei der kurzen Lebensdauer des Thorons wird während der

Füllzeit immer ein gewisser Verlust eintreten, dem Rechnung getragen werden muss.

Ferner muss beim Einsaugen der Luftprobe in das vorher teilweise evakuierte Ionisationsgefäß die Abhängigkeit der Ionenbildung vom Druck Berücksichtigung finden.

Beides zusammen bedingt einen Stromverlauf im Ionisationsgefäß, der von dem Schemabild der Abb. 1 oben erheblich abweicht.

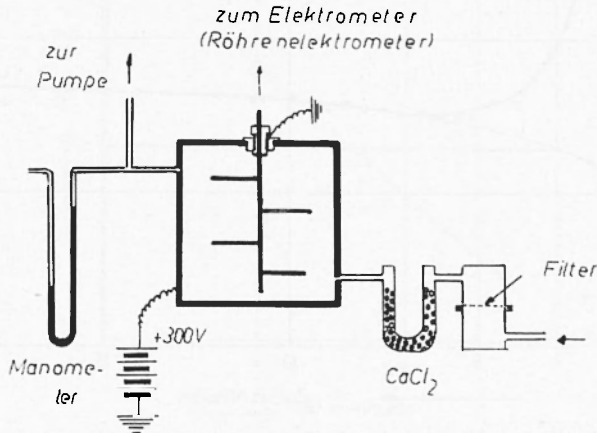


Abb. 2. - Messanordnung (schematisch)

Abb. 2 zeigt die Versuchsanordnung: Für die Messungen wurde ein Emanometer nach H. Israel ⁽⁶⁾^(*) mit zwei Ionisationskammern von je etwa 20 l Inhalt verwandt. Die Aufnahme der Bodenluft erfolgte nach der soe. «Sondenmethode» ⁽⁷⁾ durch Ansaugen der Luft durch ein bis in die gewünschte Tiefe in den Boden eingeschlagenes dünnes Rohr. Zur Trocknung und Befreiung von Ionen, Staub und Induktionen wurde die Luft durch ein CaCl_2 -Rohr und ein Watten-, Glas- oder Schwebstoff-Filter geleitet.

Abb. 3 zeigt eine mit dieser Anordnung am 9.5.1959 in Aachen gewonnene Messung. Dargestellt ist der zeitliche Verlauf des Ionisationsstromes während der ersten 15 Minuten vom Beginn des Lufteinströmens an. Der Druckausgleich des vorher auf 400 mm Hg evakuierten Gefäßes erfolgte dabei mit etwa 20 sec Halbwertszeit. Das Gefäß war also nach etwa 100 sec wieder zu 98,5% gefüllt. — Der Strom steigt

(*) Hersteller Firma Spindler & Hoyer, Göttingen.

während der ersten $1\frac{1}{2}$ Minuten rasch an. Dieses Ansteigen ist bedingt durch die Zunahme des Radons und Thorons im Gefäss und durch die Zunahme des Ionisierungsvermögens der α -Strahlung bei der Druckzunahme im Gefäss.

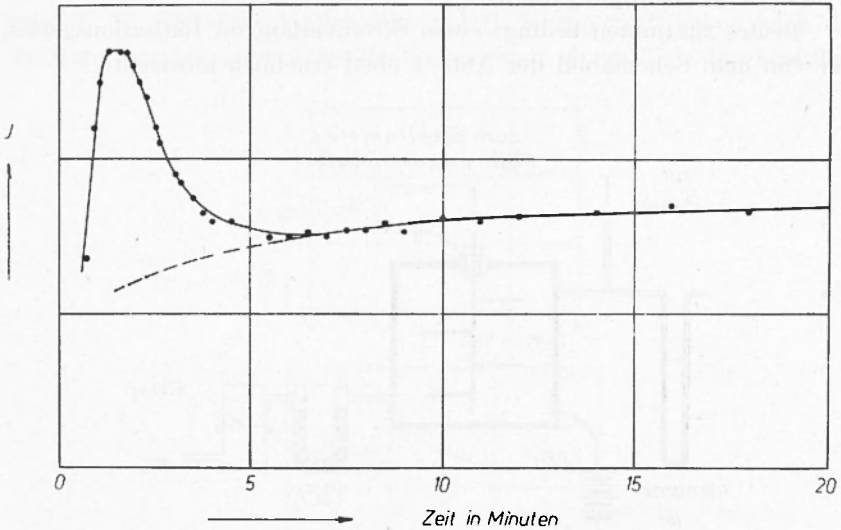


Abb. 3. - Zeitlicher Verlauf des Ionisationsstromes während der ersten 20 Minuten (Messung am 9.5.1959).

Erst nach beendetem Einströmen zeigt dann der Stromverlauf das nach Abb. 1 oben zu erwartende Verhalten.

III. ANALYSE.

Die analytische Zerlegung des gemessenen Stromverlaufes in den von Radon und den von Thoron herrührenden Anteil erfolgt entweder in Näherung unter alleiniger Benutzung der nach der Gefässfüllung gewonnenen Messwerte, Anwendung der Satterly-Analyse gemäss Abb. 1 oben auf diese und Zurückextrapolation auf den Zeitpunkt $t = 0$ (vergl. Abb. 4) oder exakter unter genauer rechnerischer Behandlung des Einströmungsvorganges und der dabei dem Gefäss zugeführten Thoron-Mengen. Der Näherungswert ist, wie man sich leicht überzeugt, grosser als der wahre Wert und übertrifft diesen umso mehr, je langsamer das Einströmen erfolgt.

Bei der Umrechnung der Stromwerte des Thoron-Anteiles in Curie ist zunächst zu beachten, dass das erste Umwandlungsprodukt ThA sehr kurzlebig ist (0,16 sec Halbwertszeit), während der nächste α -Strahler (ThC) nur sehr langsam über das langlebige ThB (10,6 h Halbwertszeit) entsteht. Man braucht deshalb zur Umrechnung nur die α -Ionisation von Thoron und ThA zu berücksichtigen.

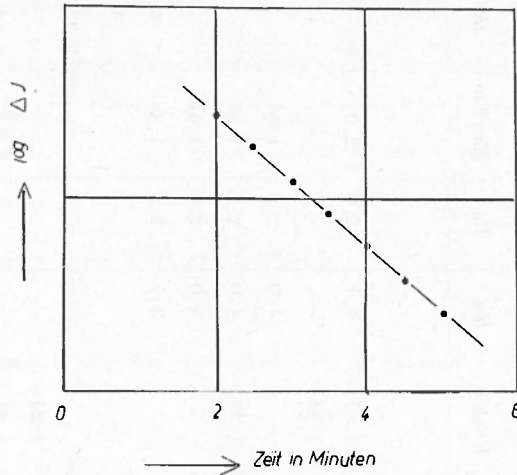


Abb. 4. - Thoron-Stromanteil bei der in Abb. 3 dargestellten Messung.

Der rasche Zerfall des ThA hat weiter zur Folge, dass den im Ionisationsgefäß entstehenden ThA-Atomen keine Zeit bleibt, sich ihrer positiven Ladung entsprechend (*) zur negativen Elektrode hin zu bewegen. Sie zerfallen vielmehr praktisch an der gleichen Stelle, wie ihre Mutteratome. Wir können also für jeden Thoron-Zerfall 2 α -Strahlen annehmen.

Setzen wir nun für die α -Strahlung des Thorons den Wert von 6,4 MeV und für ThA den Wert von 6,9 MeV an (*) und berechnen daraus unter der Annahme, dass zur Bildung eines Ionenpaares 35 eV benötigt werden, ihre Ionisationswirkung zu $1,83 \cdot 10^5$ für Thoron bzw. $1,97 \cdot 10^5$ Ionenpaare je α -Strahl für ThA, so errechnet sich das Stromäquivalent S_{Tn} für 1 Curie Thoron (Tn) zu

$$\begin{aligned}
 S_{Tn} &= 3,7 \cdot 10^{10} \cdot (1,83 + 1,97) \cdot 10^5 \cdot 4,8 \cdot 10^{-10} \\
 &= 6,75 \cdot 10^6 \text{ Aes (**)} \\
 &= (2,25 \cdot 10^{-3} \text{ A})
 \end{aligned}
 \tag{1}$$

(*) Wir nehmen diese für das RaA bekannte Erfahrung auch für ThA an.

(**) Elektrostatische Stromeinheiten.

Tabelle 1 - GLEICHZEITIGE RADON- UND THORON-BESTIMMUNGEN IN BODENLUFT IN VERSCHIEDENEN TIEFEN IM GARTEN DES HAUSES CHLODWIGSTR. 8 in Aachen. (1961). WERTE IN 10⁻¹³ CURIE/cm³.

Datum	0,5 m			1,0 m			1,55 m			2,0 m		
	R _n	T _h	R _n /T _h	R _n	T _h	R _n /T _h	R _n	T _h	R _n /T _h	R _n	T _h	R _n /T _h
1961												
3. 6	—	—	—	2,9	2,7	1,07	4,1	2,0	2,05	—	—	—
5. 6	—	—	—	3,5	1,9	1,84	—	—	—	—	—	—
10. 7	—	—	—	—	—	—	4,0	2,6	1,54	—	—	—
11. 7	1,3	3,0	0,43	4,0	3,2	1,25	4,0	2,4	1,87	—	—	—
12. 7	1,7	3,2	0,53	—	—	—	4,0	2,6	1,54	—	—	—
14. 7	1,6	2,7	0,59	—	—	—	3,7	2,5	1,48	4,2	1,3	3,24
18. 7	1,3	3,3	0,39	—	—	—	—	—	—	4,3	1,6	2,68
19. 7	—	—	—	—	—	—	—	—	—	4,2	1,6	2,62
24. 7	—	—	—	4,2	3,4	1,24	—	—	—	—	—	—
26. 7	—	—	—	4,3	3,2	1,35	—	—	—	4,5	1,6	2,81
Mittel	1,5	3,1	0,49	3,8	2,9	1,35	4,0	2,4	1,70	4,3	1,5	2,84

Tabelle 2 - GLEICHZEITIGE RADON- UND THORON-BESTIMMUNGEN IN BODENLUFT IN VERSCHIEDENEN TIEFEN IM GARTEN DES METEOROLOGISCHEN OBSERVATORIUMS AACHEN, PIPINSTRASSE 12. (1961). WERTE IN 10^{-13} CURIE/cm³ (UNSICHERE WERTE IN KLAMMERN).

Datum	0,5 m			1,0 m			1,5 m			2,3 m			4,0 m		
	<i>Rn</i>	<i>Tn</i>	<i>Rn/Tn</i>	<i>Rn</i>	<i>Tn</i>	<i>Rn/Tn</i>	<i>Rn</i>	<i>Tn</i>	<i>Rn/Tn</i>	<i>Rn</i>	<i>Tn</i>	<i>Rn/Tn</i>	<i>Rn</i>	<i>Tn</i>	<i>Rn/Tn</i>
1961															
31. 7	0,9	2,2	0,41	1,1	(0,7)	---	2,7	2,3	1,18	6,2	4,2	1,47	8,8	4,4	2,00
1. 8	0,8	2,9	0,27	1,0	1,2	0,83	2,5	2,5	1,00	6,2	3,8	1,64	8,3	5,1	1,63
2. 8	1,0	2,3	0,44	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---
3. 8	1,0	2,5	0,40	1,1	1,2	0,84	---	---	---	6,0	(6,1)	---	---	---	---
4. 8	0,8	2,4	0,33	1,0	1,2	0,83	2,5	2,2	1,14	6,3	3,5	1,80	8,7	3,9	2,22
7. 8	0,7	2,1	0,33	1,0	1,2	0,83	2,5	2,4	1,04	5,9	3,8	1,55	8,1	4,7	1,73
8. 8	0,6	2,3	0,26	1,0	(0,9)	---	---	---	---	5,9	3,9	1,51	8,9	3,7	2,31
Mittel (*)	0,8	2,4	0,35	1,0	1,2	0,83	2,6	2,4	1,09	6,1	3,9	1,60	8,6	4,4	1,98

(*) Ohne die eingeklammerten Werte.

IV. ERGEBNISSE.

Nach den beschriebenen Messverfahren wurden in Aachen eine Reihe von Thoron-Bestimmungen in Bodenluft durchgeführt. Gemessen wurde in verschiedenen Bodentiefen in den Sandböden im Garten des Hauses Chlodwigstrasse 8 (Diensträume des Lehrgebietes Geophysik und

Tabelle 3 - RADON- UND THORON-WERTE IN BODENLUFT IN VERSCHIEDENEN TIEFEN IN BAD NAUHEIM (3). WERTE IN 10^{-13} CURIE/cm.

Datum	0,5 m			1,0 m			2,0 m		
	<i>Rn</i>	<i>Tn</i>	<i>Rn/Tn</i>	<i>Rn</i>	<i>Tn</i>	<i>Rn/Tn</i>	<i>Rn</i>	<i>Tn</i>	<i>Rn/Tn</i>
1934									
16. 10	—	—	—	—	4,7 6,6	—	—	—	—
18. 10	—	1,3(*)	—	—	—	—	—	4,5	—
19. 10	—	3,0(*)	—	—	—	—	—	—	—
25. 10	—	—	—	—	10,6	—	—	—	—
26. 10	—	—	—	—	—	—	—	4,8	—
30. 10	—	4,7	—	—	—	—	—	—	—
Mittel	28(**)	3,0	9,3	57**	7,3	7,8	107**	4,7	22,8
(*) 0,4 m Tiefe. (**) Mittelwerte aus einer grösseren Zahl von Einzelmessungen, die zu anderer Zeit ausgeführt wurden.									

Meteorologie der Technischen Hochschule) und in der Nähe des Meteorologischen Observatoriums Aachen auf dem Wingertsberg im Stadtpark Aachen. Die Auswertung erfolgte in der Regel nach dem Verfahren der genauen rechnerischen Berücksichtigung der Einstromungsverhältnisse. Weiter wurden die bei der Radon-Emanometrie üblichen Korrekturen für das verwandte Emanometer (9) auch auf die Thoron-Messung mit diesem übertragen. Die Ergebnisse sind in den obigen Tabellen 1 und 2 zusammengestellt. Die 1. Kolonne enthält jeweils den Radon-Gehalt, die 2. den Thoron-Gehalt, die 3. das Verhältnis Radon/Thoron

für die betreffende Tiefe. Man erkennt, dass sich die einzelnen Grössen an den beiden Messstellen verschieden verhalten. Der Radon-Gehalt steigt an beiden Orten rasch mit der Tiefe an. Der Thoron-Gehalt nimmt einmal (Tabelle 1) mit der Tiefe ab, im anderen Fall (Tabelle 2) dagegen zu. Das Verhältnis zwischen Radon und Thoron steigt in beiden Fällen mit der Tiefe an, wenn auch in verschiedenem Masse.

In der weiteren Tabelle 3 sind zum Vergleich die in Bad Nauheim gewonnenen Werte (*) angegeben. Die Werte sind aus der seinerzeit verwandten Einheit in Curie umgerechnet. (*). Die Radon- und Thoron-Werte sind dabei nicht gleichzeitig bestimmt, die ersten sind Mittelwerte aus einer grösseren Zahl von einzelnen Messungen an der gleichen Messstelle.

Das Material ist zwar noch viel zu klein, um eingehendere Schlussfolgerungen zuzulassen, immerhin aber kann man ihm einige Hinweise entnehmen:

1. Nach theoretischer Überlegung (9) ist zu erwarten, dass in einem homogenen Boden, der in den hier in Frage kommenden Tiefen von einigen Metern gleiche Zusammensetzung, gleiche Aktivität und gleiche Emanierungsfähigkeit besitzt, der Radon- und Thoron-Gehalt der Bodenluft exponentiell mit der Tiefe zunimmt. Ihre Konzentrationen nähern sich dabei mit einer Halbwertstiefe von 105,5 cm für Radon und 1,35 cm für Thoron ihrem konstanten Tiefenwert. Der Thoron-Gehalt sollte also von etwa 10 cm Tiefe an nach unten konstant bleiben, das Verhältnis Radon/Thoron also von dieser Tiefe an parallel zum Radon-Gehalt ansteigen.

Die Tabellen zeigen in dem raschen Anstieg des Radon-Gehaltes und der im ganzen zu erkennenden Zunahme des Radon/Thoron-Verhältnisses mit der Tiefe ein Verhalten, das qualitativ in der erwarteten Richtung liegt.

(*) Die seinerzeit als Thoron-Einheit gewählte « O. R.-Einheit » (die verallgemeinerte Definition des Curie existierte damals noch nicht) war definiert worden als die Thoronmenge, die mit 1 g Thorium im radioaktiven Gleichgewicht steht. Ihr Stromäquivalent ergab sich zu

$$59,5 \times 10^{-2} \text{ Aes.}$$

Zusammen mit Gleichung 1 folgt daraus die Umrechnung

$$1 \text{ O. R.-Einheit entspricht} \quad [2]$$

$$\frac{59,5 \cdot 10^{-2}}{6,75 \cdot 10^6} = 8,8 \cdot 10^{-8} \text{ Curie .}$$

2. Nach dem mittleren Wert des Uran- und Thorium-Gehaltes von Gesteinen und Böden (¹⁰) von etwa

$$3 \times 10^{-6} \text{ g U pro g Gestein}$$

und

$$10^{-5} \text{ g Th pro g Gestein}$$

folgt unter der Annahme, dass der Radon- und Thoron-Gehalt dem nach diesen Zahlen zu erwartenden Gleichgewichtswert entspricht, für mehrere Meter Tiefe einem Erwartungswert für das Radon/Thoron-Verhältnis von 0,93.

Tatsächlich liegen aber die Werte an allen 3 Messorten durchweg höher. Eine Erklärung könnte vielleicht darin liegen, dass an diesen 3 Messstellen das Verhältnis von Uran/Thorium ein anderes ist, als es dem allgemeinen Erwartungswert entspricht. Auch könnte möglicherweise das Emanierungsvermögen bei den beiden Emanationen Radon und Thoron ein verschiedenes sein.

3. Die Resultate von Bad Nauheim sind trotz ihres geringen Umfangs dadurch interessant, dass bei wesentlich erhöhten Radon-Gehalt der Thoron-Gehalt nicht entsprechend vergrößert ist. Man kann aus dieser Tatsache den Hinweis entnehmen, dass offenbar der für die Bad Nauheimer Verhältnisse anzunehmende Vorgang (¹¹) der Radon-Anreicherung in der Bodenluft, für die ein aus der « Quellenspalte » (Taunusrand-Verwerfung) nach oben dringender CO₂ Strom als Träger verantwortlich gemacht wurde, sich im Thoron-Gehalt wegen des sehr viel rascheren Zerfalls des Thoron nicht auswirken kann.

Die Arbeiten werden fortgesetzt.

ZUSAMMENFASSUNG

Mittels eines Emanometers nach H. Israel wurde im Sommer 1961 der Gehalt der Bodenluft an Rn und Tn an zwei Plätzen in verschiedener Tiefe nach der Satterly-Methode bestimmt. Die Ergebnisse werden mit ähnlichen Messungen von H. Israel und F. Becker in Bad Nauheim verglichen. — Die rasche Zunahme des Rn-Gehaltes und des Verhältnisses von Rn-Gehalt zu Tn-Gehalt mit der Tiefe entspricht der theoretischen Erwartung. Die Ergebnisse werden im einzelnen diskutiert.

RIASSUNTO

Durante l'estate 1961 sono state misurate, in due località e a varie profondità, le concentrazioni di Rn e Tn in terreno aereato. Le misure sono state eseguite con l'emanometro di Israel usando il metodo Satterly.

I risultati sono paragonati a misure analoghe fatte da H. Israel e F. Becker a Bad Nauheim. Il rapido aumento di C_{Rn} e del rapporto C_{Rn}/C_{Tn} rispetto alla profondità in un terreno omogeneo, soddisfa qualitativamente all'aumento esponenziale ottenuto in teoria.

Vengono discussi i risultati.

SUMMARY

The concentrations of Rn and Tn in soil-air were measured at two places and various depths during the summer 1961. The measurements were done with the emanometer of Israel using the Satterly-method.

The results are compared with similar measurements made by H. Israel and F. Becker in Bad Bauheim.

The rapid increase of C_{Rn} and of the ratio C_{Rn}/C_{Tn} does qualitatively agree with the theoretical exponential increase with depth in a homogeneous soil.

The results are discussed.

LITERATUR

- (¹) SATTERLY J., *The quantities of radium and thorium emanations contained in the air of certain soils* « Proc. Cambridge Phil. Soc. » **16**, 514, 1910-1912.
- (²) SANDERSON J. C., *The probable influence of the soil on local atmospheric radioactivity.* « Amer. J. Sci. » **32**, 169-184. (1911). (Deutsche Übersetzung s. « Phys. Z. » **13**, 142 ff., (1912).
- (³) ISRAEL H. und BECKER F., *Die Bodenemanation in der Umgebung der Bad Nauheimer Quellenspalte.* « Gerl. Beitr. Geophys. » **44**, 40-55, (1935).
- (⁴) NORINDER H., METNIEKS A. und SIKSNA R., *Radon content of the air in the soil at Uppsala.* « Arkiv för Geofysik », **1**, 571-579. (1952).
- (⁵) NORINDER H., SIKSNA R. und METNIEKS A., *Radon and thoron content of the soil-air at Almunge.* « Geol. Foren. Stockholm Forh », **74**. H 4, 450-454, (1952).

- (6) ISRAEL H., *Zur Methodik klimatologischer Emanationsmessungen I: Über ein neues Emanometer.* « Balneologe », **1**, 318-327. (1934).
- (7) ISRAEL H., *Radioaktive Messmethoden.* In: « Taschenbuch der angewandten Geophysik » (Herausgegeben von R. Reich und R. v. Zwerger), 373-385, Leipzig, (1943).
- (8) DANIEL H., *Die vier radioaktiven Zerfallsreihen.* « Ergebn. d. exakt. Naturwiss », **32**, 188-197. (1959).
- (9) ISRAEL H., *Die natürliche Radioaktivität in Boden Wasser und Luft.* « Beitr. z. Phys. d. Atmosph. » **30**, 177-188. (1958).
- (10) LANDOLT-BORNSTEIN, *Zahlenwerte und Funktionen*, 6 Aufl., Bd. 3, 307 ff.
- (11) ISRAEL H., *Der Diffusionskoeffizient des Radons in der Bodenluft.* (Bemerkung zu der Arbeit von E. Budde: « Bestimmung des Beweglichkeitskoeffizienten der Radium-Emanation in Lockergesteinen ») « Ztschr. f. Geophys. », **25**, 104-108. (1959). — *Der Diffusionskoeffizient des Radons in Bodenluft.* (Abschliessende Stellungnahme zur Diskussion mit E. Budde). « Zeitschr. f. Geophys. », **27**, 13-17, (1961).
-