

Bestimmung des Radiumgehaltes in unaufgeschlossenen Gesteinen mit dem Geiger- Müller-Zählrohr.

Von

M. Pahl.

Mit 3 Abbildungen.

Nach Entdeckung der Radioaktivität erkannte man bald, daß radioaktive Stoffe, wenn auch nur in sehr geringen Mengen, weit verbreitet sind. Alle Gesteine erwiesen sich als aktiv. Man war deshalb schon frühzeitig bemüht in den Gesteinen die Menge der aktiven Substanzen, insbesondere des Radiums zu bestimmen. Da es sich in den allermeisten Fällen um unwägbare Mengen handelte, kamen Methoden der chemischen Analyse nicht in Betracht, sondern man konnte lediglich aus der Intensität der Strahlung auf die Menge und die Art der vorhandenen radioaktiven Stoffe schließen. Die einfachste Methode ist die γ -Methode (1), die für kleine Mengen bisher nicht in Betracht kam, weil die γ -Strahlung zu wenig intensiv ist bzw. die Elektroskope zu unempfindlich sind für sie.

Dieser Schwierigkeit versuchten ELSTER und GEITEL (2) dadurch zu begegnen, daß sie die vielmal intensivere α -Strahlung dünner Substanzschichten maßen; ihre Messungen leiden jedoch unter der überaus starken Absorption der α -Strahlen in der Substanz selbst. Auch war es so nicht ohne weiteres möglich, den vom Radium kommenden Teil der Strahlung zu isolieren.

Dies gelang erst bei den sogenannten Emanationsmethoden. Von verschiedenen Forschern etwas unterschiedlich gehandhabt, beruhen sie im Prinzip darauf, daß das betreffende Gestein chemisch aufgeschlossen und in Lösung gebracht wird. Dies ist meist schon recht schwierig und zeitraubend. Die Lösungen werden dann in

verschlossenen Gefäßen aufbewahrt, bis die Emanation, die bei diesen Operationen zum Teil verloren gegangen ist, sich wieder angereichert hat; erst nach einem Monat stellt sich das radioaktive Gleichgewicht wieder ein. Die Emanation wird auf verschiedene Weise in eine Ionisationskammer zur Messung gebracht. Aktinium- und Thorium-Emanation sind kurzlebig, so daß praktisch im Elektroskop nur die Strahlung der Ra-Emanation und ihrer Folgeprodukte beobachtet wird. Diese Verfahren, besonders in der Ausführung nach MACHE und BAMBERGER (3), geben gute Resultate; sie leiden jedoch unter der Umständlichkeit des Aufschließens und der langen Versuchsdauer.

Man versuchte deshalb das Aufschließen zu umgehen. HOLT-HUSEN (4) schmolz feste, gepulverte Substanzen und entfernte so die Emanationen. Bei hochschmelzenden Präparaten verwendete er Zusätze wie z. B. Li_2CO_3 . Die abgetrennte Emanation wurde dann ebenfalls im Emanationselektroskop gemessen.

C. RAMSAUER (5) gibt ein anderes Prinzip an, welches gestattet, den Radium-, Thorium- und Aktiniumgehalt in Gesteinen nebeneinander zu bestimmen. Die aktiven Gesteine werden fein gepulvert und in Schiffchen aus Platinfolie auf 1150° erhitzt. Dabei sublimieren die aktiven Niederschläge der Emanation und werden auf einer gekühlten Fläche kondensiert. Der Abfall der Aktivität der Niederschläge wird zeitlich verfolgt und aus dem Verlauf der Abfallskurve der Gehalt an Radium, Thorium und Aktinium ermittelt. RAMSAUER stellte fest, daß zum Austreiben der Emanation nur eine Temperatur von 800° notwendig sei. Mit dieser Methode wurde Sinter der Kreuznacher Solquellen untersucht, die einen Radiumgehalt von $1,7 \times 10^{-9}$ g Ra pro 1 g Substanz aufwiesen¹⁾.

Bei der hier vorliegenden Untersuchung sollte versucht werden, ob man den Radiumgehalt von Gesteinen bestimmen kann, ohne sie chemisch aufzuschließen. Im Vordergrund des Interesses stehen Granite, Phonolithe und Basalte, die einen Radiumgehalt von $5 - 0,5 \times 10^{-12}$ g Ra pro Gramm Gestein besitzen. Das ist nur der tausendste Teil des Gehaltes des von RAMSAUER untersuchten Sinters. Außerdem kam nur eine γ -Strahlmeßmethode als einfachste in Frage.

¹⁾ Soeben berichtet VOGT (6) über die Bestimmung der Radioaktivität von Gesteinen durch Messungen der von diesen ausgesandten γ -Strahlen mit dem Geiger-Müller-Zählrohr. Er verwendet die oben besprochene Methode von RUTHERFORD und vergleicht die γ -Strahlung der Gesteinsprobe mit der Testsubstanz.

Es mußte deshalb eine äußerst empfindliche Apparatur wie das GEIGER-MÜLLER-Zählrohr zur Messung der Aktivität benutzt werden (7). Die verwendeten Zählrohre waren 90 mm lang, der Durchmesser war 11,5 mm und die Wandstärke 0,1—0,2 mm. Dicke des Zählrahtes 0,2 mm. Als Füllgas diente trockene Luft von 5—6 cm Hg-Druck. Registriert wurde mit Verstärker, der ein mechanisches Zählwerk betrieb (8).

Zur Meßmethode.

Zur Aufgabe war gestellt, den Radiumgehalt von Gesteinen, insbesondere von Basalten, Phonolithen u. ä. zu bestimmen, ohne dieselben chemisch aufzuschließen, d. h. ein einfacheres Verfahren zu erproben, als die bisher gebräuchlichen. Die Lösung dieser Frage ist nach folgendem Prinzip möglich:

Als Maß für den Radiumgehalt einer Gesteinsprobe gilt die in derselben sich befindende Radium-Emanationsmenge. Letztere wird durch eine geeignete, einfache Methode entfernt und die Abnahme der Aktivität gemessen. Thorium- und Aktinium-Emanation sind so kurzlebig, daß sie die Messung nicht wesentlich beeinflussen. Dasselbe wird mit einem Vergleichspräparat von bekanntem Radiumgehalt vorgenommen. Die Aktivitäten der beiden Proben werden vor und nach dem Entfernen der Emanation gemessen. Aus dem Verhältnis der Aktivitätsabnahmen läßt sich dann der gesuchte Ra-Gehalt berechnen. Als Vergleichssubstanz wählt man entweder eine bereits untersuchte Gesteinsprobe oder man stellt sich selbst ein Standardpräparat her. Bei diesen Messungen diene als Standard ein Gemisch, das zu 88,8 % aus Glimmer und zu 11,2 % aus Koppit bestand. Sein Ra-Gehalt wurde (nach Messungen von LEDEBER (9) an reinem Koppit) zu $25,5 \times 10^{-12}$ g Ra pro 1 g Gemisch berechnet.

Entfernung der Emanation.

Hierzu bewährte sich folgende Methode: Das fein gepulverte Gestein wurde in Mengen von 10—15 g in ein Porzellanschiffchen getan, letzteres in ein Quarzrohr gestellt, mit der Quecksilberpumpe evakuiert und 1—2 Stunden im elektrischen Ofen bei 900° geglüht. Längeres Glühen bei etwa 1000° lieferte innerhalb $\pm 10\%$ keine wesentliche Zunahme des Effektes, so daß angenommen werden kann, daß auf diese Weise die Emanation vollständig entfernt wird.

Die Meßpräparate.

Um vergleichende Messungen anzustellen, mußten die verschiedenen aktiven Gesteine mit gleich großer Oberfläche in dieselbe, genau reproduzierbare Lage zum Zählrohr gebracht werden. Zu dem Zwecke wurde das Gestein fein pulverisiert, mit 20 Gewichts-% heißen Paraffins übergossen und die entstandene Masse in Pastillen von der Form eines Hohlzylinders in einen vernickelten Messingmantel gepreßt, in welchen das Zählrohr axial hineinragt. Durch das Einbetten des Gesteinpulvers in Paraffin wurde neben einer haltbaren, sauberen Pastille vor allem erreicht, daß die Emanation, die beim Pulvern zum Teil verloren geht, sich wieder anreichern kann, ohne zu entweichen. Zu diesem Zwecke ließ man die Präparate vor der Messung einen Monat liegen bis zur Wiederherstellung des radioaktiven Gleichgewichts.

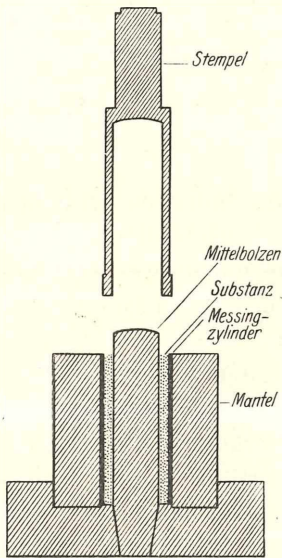


Abb. 1.

In Abb. 1 ist die zum Pressen ver-

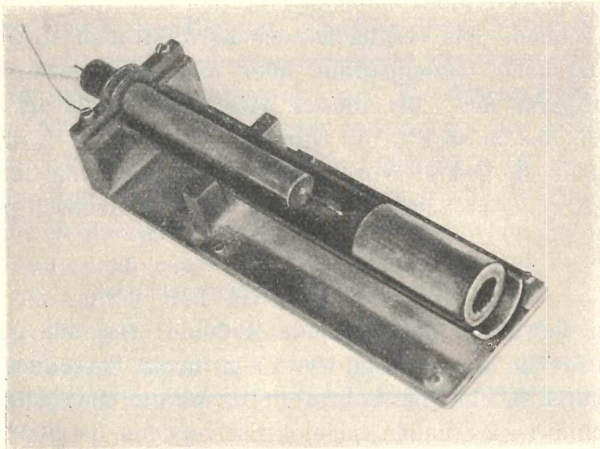


Abb. 2.

wendete Matrize im Querschnitt aufgezeichnet. Der Mantel der Pastille wurde in die Matrize gesteckt, die Substanz zwischen ersteren

und den Mittelbolzen gefüllt und mit dem Stempel gepreßt. Sämtliche Teile der Matrize waren vernickelt. Die Substanz wurde in abgewogenen Mengen eingefüllt und jedesmal mit einem Druck von 570 kg/cm^2 gepreßt. War die Pastille fertig, so wurde die Matrize umgekehrt auf einen passenden Hohlzylinder gestellt und der Mittelbolzen herausgepreßt. Abb. 2 zeigt eine Art Schlittenrinne, die es ermöglichte, die Pastillen auszuwechseln, ohne das Zählrohr zu bewegen. Auf dem Bilde ist links das eingespannte Zählrohr über der Rinne zu sehen, rechts die Pastille, die zur Messung über das Zählrohr geschoben wird.

Messungen.

Um von eventuellen Empfindlichkeitsschwankungen eines Zählrohres oder den Empfindlichkeitsunterschieden mehrerer verwendeter Zählrohre unabhängig zu sein, sind die Messungen auf ein konstantes Vergleichspräparat bezogen, dessen Aktivität jedesmal mitgemessen wurde. Als solches diente eine Pastille aus pulverisiertem, ungeglühtem, mit Paraffin zusammengepreßtem Koppit. Seine mit den beschriebenen Zählrohren gemessene Aktivität betrug im Mittel 58 Ausschläge pro Minute. Die natürliche Zahl der Zählrohre war im Mittel 18 Ausschläge pro Minute. Sie rührt her von der radioaktiven Strahlung des Gemäuers, des Zählrohrmaterials und von der durchdringenden Höhenstrahlung. Die natürliche Zahl ist von der oben angegebenen Bruttoaktivität abzuziehen, so daß auf die Aktivität der Koppitpastille ca. 40 Ausschläge pro Minute kommen. Diese Zahl ist nicht für alle Zählrohre gleich. Um eine sicher definierte Maßeinheit zu haben, wurde das Vergleichspräparat jedesmal mitgemessen und die Aktivitäten der untersuchten Substanzen in Prozenten der Aktivität dieses Testpräparates ausgedrückt. In dieser willkürlichen Einheit sind im folgenden alle Versuchsergebnisse angegeben.

Meßresultate: Untersucht wurden ein Dysanalyt von Badloch am Kaiserstuhl bei Freiburg, zwei Phonolithe vom Kirchberg (ebenfalls Kaiserstuhl), und ein Gemisch von 133 Granitproben variskisch-zentraleuropäischen Ursprungs, die von Herrn Prof. Dr. H. SCHNEIDERHÖHN dem physikal. chem. Institut gütigst überlassen worden sind.

Mit diesen Gesteinen wurden folgende Messungen angestellt:

1. Aktivitätsbestimmung der emanationshaltigen Gesteine.
2. Aktivitätsbestimmung nach Austreiben der Emanation.

Die Ergebnisse zeigt

Tabelle I.

	Koppit	Dysanalyt	Phonolith braune Art	Phonolith grüne Art	Granit
Mit Emanat.	100	66,5	17,5	7,5	6,4
Nach Entfern. d. Emanat.	78,5	41,0	13,9	5,2	5,4
Differenz	21,5	25,5	3,6	2,3	1,0
Ra-Gehalt g Ra/1 g Gestein	25,6·10 ⁻¹²	30,9·10 ⁻¹²	4,3·10 ⁻¹²	2,8·10 ⁻¹²	1,2·10 ⁻¹²

Ein Vergleich dieser Resultate mit früheren Messungen von LEDERER (9) und SEITH (10) zeigt, daß sie innerhalb der Fehlergrenzen von etwa $\pm 20\%$ mit jenen übereinstimmen.

Die Genauigkeit der beschriebenen Methode kann, falls es erwünscht sein sollte, erhöht werden durch Vergrößern der wirksamen

Zählfläche, d. h. durch die Verwendung größerer Zählrohre und entsprechend mehr Substanz (etwa 100 g anstatt 10—12 g).

Zu berücksichtigen wäre vielleicht noch der Einfluß der Dichte der Probe auf die Absorption der γ -Strahlen. Doch ist dieser nur gering, wie aus

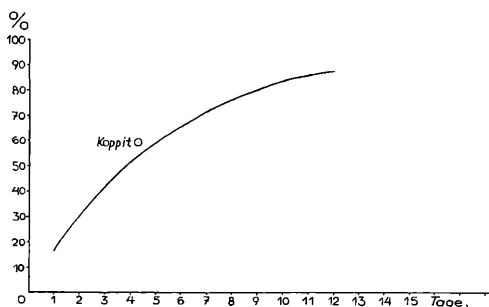


Abb. 3.

der folgenden Überlegung hervorgeht: Für Fehler ist lediglich die Dichtedifferenz zweier Pastillen ausschlaggebend, die kaum größer als 1 sein dürfte. Nun ist die Substanzdicke von 3,25 mm klein gegen die Halbwertsdicke der γ -Strahlung in einer Substanz von der Dichte 1. Man arbeitet also mit nahezu unendlich dünnen Schichten, so daß die Absorption der γ -Strahlen in der Substanz praktisch keine Rolle spielt.

Der Wiederanstieg der Aktivität: Vier Tage nach dem Glühen wurde die als Standard verwendete Koppitpastille wieder gemessen. Ihre Aktivität betrug jetzt 91,2 willkürliche Einheiten. Diese Messung wurde angestellt, um erstens zu zeigen, daß die wiederentstehende Emanation nicht aus der Pastille entweicht, und daß zweitens die anfangs gefundene Aktivitätsdifferenz zwischen geglühtem und ungeglühtem Koppit sowie der Wiederanstieg allein

der Radiumemanation zukommt. In Abb. 3 ist die bekannte Anstiegskurve der Radiumemanation wiedergegeben. Man sieht, daß die Koppitpastille sich um etwas mehr angereichert hat, als der Kurve entspricht. Die Anreicherung sollte nach der Kurve in 4 Tagen 2 Stunden 52 % betragen, gefunden wurden 59,1 %. Zur Deutung dieses Befundes diene Folgendes: C. RAMSAUER fand, daß beim Glühen nicht nur die Emanationen, sondern auch die kurzlebigen Folgeprodukte weggehen. Von letzteren hat das Th-B mit 10,6 Stunden die längste Halbwertszeit, so daß es bei der ersten Messung noch nicht wieder vollständig angereichert und dadurch der erste Wert direkt nach dem Glühen zu klein war. Durch Steigerung der Meßgenauigkeit und der Empfindlichkeit könnte sich wohl die Möglichkeit bieten, aus dieser Abweichung von der Wiederanstiegskurve auf den Thoriumgehalt Schlüsse zu ziehen. Man müßte dann zwei Messungen mit der Pastille aus der geglühten Substanz vornehmen. Eine wie bisher direkt nach dem Glühen, dann aber noch eine zweite etwa 4 Tage nachher, wenn sich das Th-B wieder angereichert hat. Diese zweite Messung müßte für die Radiumbestimmung benützt werden. Der erste Wert nach dem Glühen würde dann etwas unterhalb des Nullpunktes der Ra-Emanationsanstiegskurve liegen und eine Messung dieser Abweichung bei zwei verschiedenen Substanzen würde erlauben, ihre Thoriumgehalte zu vergleichen.

Zusammenfassung: Es wird eine Methode angegeben, um ohne chemischen Aufschluß den Ra-Gehalt von Gesteinen zu bestimmen. Die Emanation wird durch 1–2ständiges Glühen bei 1000° weitgehend entfernt und die Radioaktivität vor und nach dem Glühen mit dem Geiger-Müller-Zählrohr gemessen. Die Messungen werden auf ein Testpräparat von bekanntem Ra-Gehalt bezogen. Die Möglichkeit der Th-Bestimmung auf demselben Wege wird diskutiert.

Herrn Professor Dr. VON HEVESY gilt mein besonderer Dank für sein stetiges und förderndes Interesse an dieser Arbeit. Herrn Privatdozent Dr. SEITH habe ich für mannigfache Unterstützung und wertvolle Ratschläge zu danken.

Freiburg i. B., Juni 1933.

Physikalisch-chemisches Institut der Universität.

Literaturverzeichnis.

1. E. RUTHERFORD, Verh. d. Radiumkongr. Brüssel 1910.
 2. E. ELSTER u. H. GEITEL, Phys. Z. 5, 11, 321, 1904.
 3. MACHE u. BAMBERGER, Ber. Akad. math. naturw. Wien, 123, 325, 1914;
Strutt. Proc. Roy. Soc. A 77, 472, 1906 und 78, 150, 1906; 84, 377, 1910.
 4. HOLTHUSEN, Heidelberger Ber. (A) 1912, 16. Abh.
 5. C. RAMSAUER, Sitz.-Ber. Heidelberg. Akad. d. Wiss. 3. Abh. 1904.
 6. VOGT, Phys. Z. S. 34, 79, 1933.
 7. H. GEIGER u. W. MÜLLER, Phys. Z. S. 29, 839, 1928.
H. GEIGER, Phys. Z. S. 30, 489, 1929.
 8. G. v. HEVESY, W. SEITH u. M. PAHL, Z. f. phys. Chem. Bodenstein-Festband,
309, 1931.
 9. H. LEDERER, Ber. d. Naturf. Ges. Freiburg, XXVII, 2, 1927.
 10. W. SEITH, Ber. d. Naturf. Ges. Freiburg, Bd. XXVII, 2, 1927; vgl. auch
G. MEYER, Ber. d. Naturf. Ges. Freiburg, XX, 1912.
-

ZOBODAT - www.zobodat.at

Zoologisch-Botanische Datenbank/Zoological-Botanical Database

Digitale Literatur/Digital Literature

Zeitschrift/Journal: [Berichte der naturforschenden Gesellschaft zu Freiburg im Breisgau](#)

Jahr/Year: 1933

Band/Volume: [32](#)

Autor(en)/Author(s): Pahl Maximilian Karl Franz

Artikel/Article: [Bestimmung des Radiumgehaltes in unaufgeschlossenen Gesteinen mit dem Geiger-Müller-Zählrohr. 209-216](#)