

BEITRÄGE ZUR GEOLOGIE DER SCHWEIZ
GEOTECHNISCHE SERIE - KLEINERE MITTEILUNGEN

Nr. 22

Untersuchungen über radioaktive Mineralien
und Gesteine in der Schweiz

Radiometrische Untersuchungen in der
Misoxermulde

von

L. RYBACH

**Vorwort der Schweizerischen Geotechnischen Kommission und
des Arbeitsausschusses für die Untersuchung
schweizerischer Mineralien und Gesteine auf Atombrennstoffe
und seltene Elemente**

Die Schweizerische Geotechnische Kommission und der ihr nahestehende Arbeitsausschuss kamen überein, dass die Forschungsergebnisse des Letzteren in den Serien der Geotechnischen Kommission unter dem gemeinsamen Titel „Untersuchungen über radioaktive Mineralien und Gesteine in der Schweiz“ erscheinen sollen.

Im Herbst 1960 legte Herr dipl. ing. geol. L. Rybach den beiden Organen ein Manuskript „Radiometrische Untersuchungen in der Misoxermulde“ vor. Die Untersuchung ging aus einer Diplomarbeit am Geologischen Institut und am Institut für Geophysik an der ETH im Zusammenhang mit Feldaufnahmen für den Arbeitsausschuss hervor. Sie wurde für die Reihe „Kleinere Mitteilungen“ angenommen. Es sei Herrn Rybach bestens für seinen interessanten Beitrag zur Radioaktivität der schweizerischen Gesteine gedankt.

Für den Inhalt ist der Autor allein verantwortlich.

Zürich, den 29. April 1961

Der Präsident der
Schweiz. Geotechnischen Kommission
und des Arbeitsausschusses:

Prof. Dr. F. DE QUERVAIN

Erscheint gleichzeitig in „Schweizerische Mineralogische und Petrographische Mitteilungen“, Band 41, Heft 1, 1961

Radiometrische Untersuchungen in der Misoxer Muldenzone¹⁾

Von *Ladislav Rybach* (Zürich)

Mit 10 Textfiguren

Summary

Problems of γ -measurement on rocks (especially such of instruments, field methods for radioactivity determination „in situ“) are discussed in this paper. An inexpensive counting apparatus is described, with which small quantities of any rock sample may be measured exactly for their radioactivity. A new concentration unit (equ. K) is proposed. Surface measurements in the „Misoxer-Zone“ (Ct. Graubünden, Switzerland) were examined for their reliability.

Zusammenfassung

Probleme der γ -Messungen an Gesteinen (besonders über Instrumente und Messmethoden für Radioaktivitätsbestimmungen „in situ“) werden in dieser Arbeit behandelt. Eine einfache Zählvorrichtung wird beschrieben, mit welcher auch kleine Mengen beliebiger Gesteinsproben auf ihre Radioaktivität exakt untersucht werden können. Eine neue Konzentrationseinheit (K-Äquivalent) wird vorgeschlagen. Oberflächenmessungen in der „Misoxer-Zone“ (Kt. Graubünden) werden auf ihre Zuverlässigkeit hin untersucht.

Inhalt

1. Einführung, Problemstellung	86
2. Allgemeines über die Geologie und Petrographie der Misoxer-Zone . . .	87
3. Aktivitätsmessungen im Feld	88
a) Beschreibung des Messinstrumentes	88
b) Aktivitätsmessungen in Stollen und an der Oberfläche	91
4. Quantitative Aktivitätsmessungen im Labor	95
Messung, Bestimmung der spezifischen Aktivität	97
Messgenauigkeit	97
Eichung, quantitative Aktivitätswerte.	98
5. Resultate	99
Literaturverzeichnis	102

¹⁾ Erscheint gleichzeitig als „Beiträge zur Geologie der Schweiz, Geotechnische Serie, Kleinere Mitteilungen Nr. 22“.

1. Einführung, Problemstellung

Die vorliegenden Untersuchungen, welche im Sommer 1958 auf Anregung der Herren Prof. Gansser und Prof. Gassmann in Angriff genommen wurden, standen unter dem Patronat des „Arbeitsausschusses für die Untersuchung schweizerischer Mineralien und Gesteine auf Atombrennstoffe und seltene Elemente“ (Prof. F. de Quervain und Prof. Th. Hügi), welche dem Verfasser während der ganzen Arbeit ihre volle Unterstützung entgegenbrachten. Allen diesen Herren möchte ich hier meinen herzlichsten Dank aussprechen. Ferner bin ich den folgenden Herren für verschiedentliche Hilfe zu Dank verpflichtet: R. Berger, Dr. J. Bürgin, Dr. H. Faul, H. Frick, Dr. M. Grünenfelder, Dr. St. Hafner, Prof. Dr. F. G. Houtermans und Mitarbeiter, E. Hugentobler, Prof. Dr. E. Joyet, PD. Dr. M. Weber und Dr. R. U. Winterhalter.

Abzuklären sind die Zusammenhänge zwischen Gesteins-Radioaktivität und Geologie in einem eng umrissenen Gebiet mittels gleichzeitig geführten radiometrischen und geologisch-petrographischen Aufnahmen. Für die Untersuchung der Gesteinsaktivität erschien uns eine γ -Vermessung am vorteilhaftesten. Aus diesem Grunde haben wir uns mit den allgemeinen Fragen der Radioaktivitätsmessung in Stollen und an der Oberfläche auseinandergesetzt. Die Literatur über Radiometrie entwickelte sich zwar in den letzten 10 Jahren gewaltig — vielleicht die schönste Zusammenstellung finden wir in FAUL (1954) —, doch die Untersuchungen über Messmethoden und instrumentelle Fragen beschränken sich auf die Erzprospektion.

Wir konnten aber nicht nach den üblichen Methoden der Erzprospektion vorgehen, da wir in unserm Fall mit etwa tausendmal kleineren radioaktiven Konzentrationen zu tun hatten. Ausserdem hatten wir für unsere speziellen Zwecke kein Instrument zur Verfügung. Deswegen mussten wir aus einem „Lagerstättensuchgerät, Typ Berthold“, welches für die Prospektion von Uranerzen konstruiert wurde, mit Zusatzgeräten eine unsern speziellen Bedingungen entsprechende Apparatur aufbauen, welche gestattet, reproduzierbare Radioaktivitätsbestimmungen an beliebigen Gesteinen vorzunehmen. Nach radiometrischen und geologisch-petrographischen Feldaufnahmen wurden dann mit Hilfe dieser Apparatur Labormessungen an den im Feld entnommenen (etwa 60) Gesteinsproben angestellt. Ein Teil dieser Gesteine wurde noch mikroskopisch-petrographisch untersucht.

Auf diese Art erhalten wir Auskünfte über die *gesamte* γ -Aktivität. Zu untersuchen wäre noch: Trennung der U-, Th- und K-Anteile (zum Beispiel mit Hilfe von γ -Spektrometrie), Untersuchung der Verteilung der Radioaktivität im Gefüge mit Hilfe von Kernemulsionen oder Mine-

ralseparation. Wir hoffen, diese Fragen beantworten zu können, wenn uns einmal die nötigen Apparaturen zur Verfügung stehen werden.

2. Allgemeines über die Geologie und Petrographie der Misoxer-Zone

Die Misoxer-Zone tritt in unserem Untersuchungsgebiet als ein etwa N-S streichender, axial mit ca. 40° nach E einfallender Synklinalzug zutage, welcher tektonisch die Trennung zwischen Tief- und Mittelpenninikum (bzw. zwischen Adula- und Tambo-Decke) darstellt. Die Geologie und Petrographie dieses Gebietes, bzw. dieser Gesteine wurde schon mehrmals untersucht: HEYDWEILER (1918), ROTHAAAN (1919), GRENOUILLET (1921), FRISCHKNECHT (1923), KÜNDIG (1926), MÜHLEMANN (1928). Besonders die nördliche Fortsetzung dieser Zone hat in neuerer Zeit eine eingehende Bearbeitung erfahren: GANSER (1937), NABHOLZ (1945).

Wir haben im Rahmen dieser Arbeit mit Radioaktivitätsmessungen verknüpfte geologische Stollenaufnahmen und Oberflächenkartierung

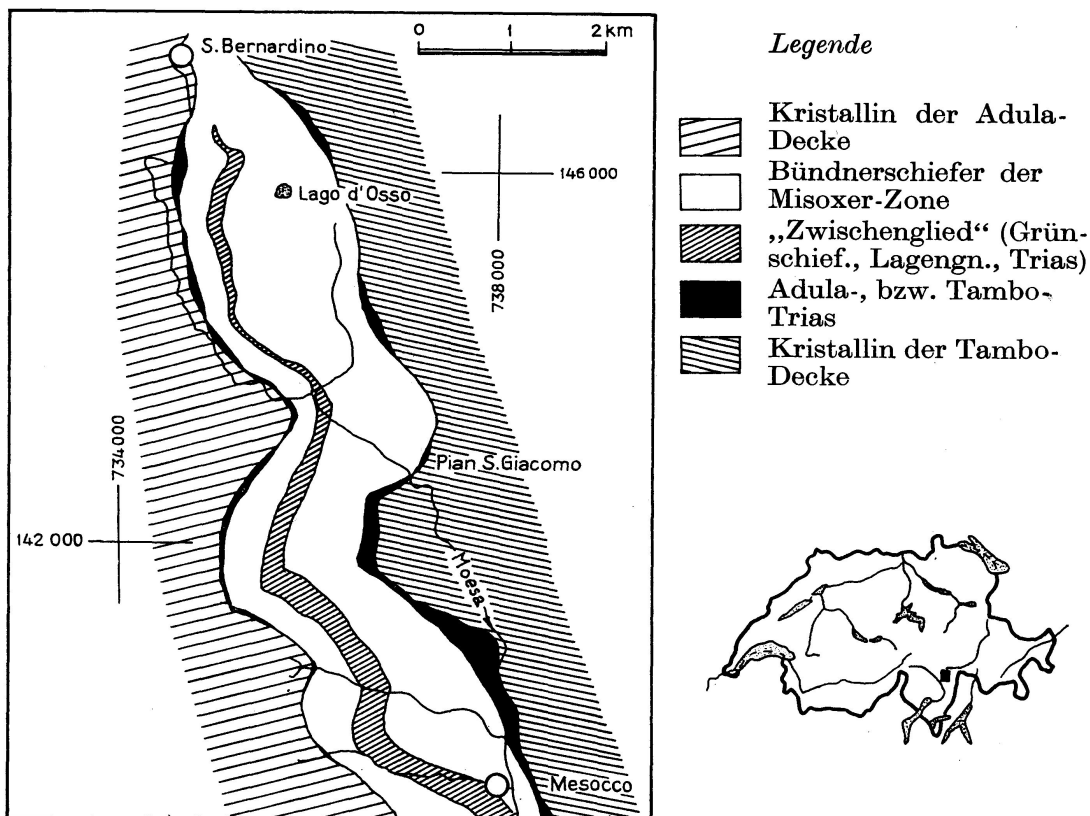


Fig. 1. Geologische Kartenskizze der Misoxer-Zone zwischen Mesocco und San Bernardino.

ausgeführt. Anhand dieser Aufnahmen können wir eine (recht schematische) Gesteinsfolge für die Misoxer-Zone aufstellen. Diese Reihenfolge ist wegen starker Verschuppung dieser Zone viel mehr tektonisch als primärstratigraphisch bedingt. Der Darstellung der Resultate auf S. 101 liegt diese Gesteinsklassifizierung zugrunde.

Die Gesteinsserie von oben nach unten:

<i>Tambo-Kristallin:</i>	In diesem Gebiet (an die Tambo-Trias grenzend): Muskovit-Paraschiefer.
<i>Tambo-Trias:</i>	Führt im Unterschied zur Adula-Trias Rauh- wacke und Gips, z. T. brekziös.
„Zwischenglied“ FRISCHKNECHT (1923):	Bestehend aus Grünschiefer, Lagengneis, Zwischen- schiefer.
<i>Komplexe Grünschiefer- einlagerungen:</i>	Von petrographisch mannigfaltiger Ausbildung, z. T. eng verknüpft mit
<i>Lagengneisen,</i>	welche in dieser Bündnerschieferzone Mächtig- keiten bis 100 m und eine Längserstreckung über mehrere km erreichen können.
<i>Bündnerschiefer:</i>	Kalkreiche bis kalkarme Bündnerschiefer, wo- bei im tieferen Teil der Zone die kalkreicheren, im höheren dagegen die mehr sandigen, tonigen Varietäten dominieren.
<i>Adula-Trias:</i>	Gelbliche Marmore, Dolomite, quartenschiefer- ähnlicher Serizitphyllit.
<i>Adula-Gneis:</i>	Oberste Glieder der Adula-Decke, hier meistens als Zweiglimmergneis (z. T. phengitführend) mit lagiger Textur ausgebildet.

Die Gesamtmächtigkeit der Misoxer-Zone (inkl. Adula- und Tambo-Trias) beträgt in diesem Gebiet 500—900 m.

3. Aktivitätsmessungen im Feld

a) Beschreibung des Messinstrumentes

In jüngster Zeit werden für γ -Messungen Szintillometer eingesetzt, weil sie gegenüber den üblichen Geiger-Zählern mehrere Vorteile aufweisen, wie z. B.: wesentlich höhere γ -Empfindlichkeit, relativ niedriger

Nulleffekt; die Impulshöhe ist mit der Energie der einfallenden γ -Quanten proportional, kürzere Auflösungszeit (etwa 10^{-6} sec) usw.

Für unsere Messungen stand ein transportables „Feld-Szintillometer“ LgS/B (Typ Berthold) zur Verfügung. Im Messkopf befindet sich — neben dem Elektronenvervielfacher und Vorverstärker — das strahlungsempfindliche Element der Apparatur: ein 30×30 mm grosser, zylindrischer NaJ- ($\frac{1}{2}\%$ Tl) Kristall in einem Aluminiumbehälter, dessen Dicke so gewählt wurde, dass man nur γ -Strahlen registriert; die β -Teilchen werden absorbiert.

Die einfallenden γ -Quanten werden im Kristall unter Bildung von Sekundärelektronen (durch Photo-, Compton-Effekt oder Paarbildung) absorbiert. Diese Elektronen geben dann Anlass zu Szintillationen, welche sich im Elektronenvervielfacher (Typ FSA-9) zu Stromimpulsen umwandeln. Diese Impulse werden elektronisch verstärkt, geformt (gleiche Impulshöhe und Zeitdauer), in einem RC-Glied integriert (zeitlicher Mittelwert) und auf einen μ A-Meter gebracht, wo man die Strahlungsintensität in Imp/sec-Einheiten²⁾ ablesen kann.

Das Instrument besitzt zwei Schaltknöpfe für die Einstellung des gewünschten Messbereiches (30—10 000 Imp/sec) und für die Zeitkonstante (RC) des Integriertkreises (2; 5 bzw. 15 sec) sowie eine Einrichtung für die Kontrolle und Einstellung der Arbeitsspannung. Diese soll konstant 1000 V betragen.

Betrachten wir die Vorgänge in diesem RC-Glied (Fig. 2a). Nehmen wir an, n gleichförmige, statistisch verteilte Impulse von Impulshöhe u_i , Zeitdauer t_i (wobei $t_i > 5 R_1 C_1$ sein muss) gelangen pro Zeiteinheit durch das $R_1 C_1$ -Glied in den Integriertkreis, wo jeder Impuls der Kapazität C eine Ladung $q = C_1 u_i$ zuführt³⁾. Während der Zeitspanne dt nimmt also die Ladung auf C um $dQ = q n dt = C_1 u_i n dt$ zu. Da sich die Ladung einer Kapazität, welche mit einem Widerstand R gekoppelt ist, im Laufe der Zeit gemäss der Exponentialfunktion ändert, befindet sich im Zeitpunkt t_0 noch $dQ_{t_0} = C_1 u_i n \{ \exp [- (t_0 - t) / RC] \} dt$ auf der Kapazität C . Die Standardabweichung δ über dQ beträgt $q / \sqrt{n dt}$. Im Zeitpunkt t_0 :

$$\delta (dQ_{t_0}) = q / \sqrt{n dt} \cdot e^{-(t_0 - t) / RC},$$

²⁾ Da die Angabe der Aktivität in Imp/sec-Einheiten sinnlos ist (Instrumente mit verschiedenen Empfindlichkeitscharakteristiken registrieren bei gleicher Aktivität verschiedene Impulsdichten), ist eine Eichung in μ r/h-Einheiten notwendig. Für unser „Berthold“-Szintillometer gilt: 30 Imp/sec entsprechen 10 μ r/h.

³⁾ Sowohl C_1 und R_1 als auch C und R sind umschaltbar ausgebildet für die Einstellung des gewünschten Messbereiches, bzw. der Zeitkonstante (RC). Dabei wurden C_1 und R_1 für jeden Messbereich so gewählt, dass die mittlere Impulsdichte mal $C_1 R_1$ in jedem Gebiet konstant ist.

die Quadratsumme der Abweichungen bis zu der Zeit t_0 :

$$\delta_t^2 = \sum \delta^2 = \int_{-\infty}^{t_0} q^2 n e^{-2(t_0-t)/RC} dt = \frac{1}{2} q^2 n RC = \frac{1}{2} C_1^2 u_i^2 n RC \quad (1)$$

und die Gesamtladung der Kapazität im Zeitpunkt t_0 :

$$Q(t_0) = \int_0^{t_0} C_1 u_i n e^{-(t_0-t)/RC} dt = C_1 u_i n RC (1 - e^{-t_0/RC}).$$

Nach unendlich langer Zeit beträgt die Gesamtladung

$$Q_\infty = C_1 u_i n RC. \quad (2)$$

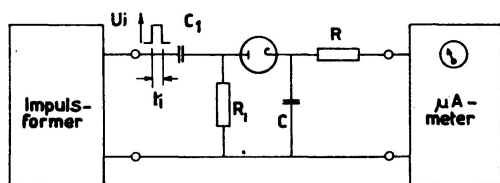


Fig. 2a. Schematische Schaltung eines „rate-meter“.

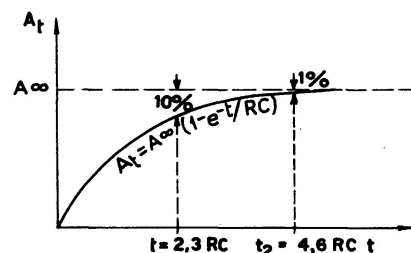


Fig. 2b. Die Anzeige eines „rate-meter“ als Funktion der Zeit.

Die Anzeige des μA -Meters (da man den Strom $i = Q/RC$ misst) in der Funktion der Zeit t : $A_t = A_\infty (1 - e^{-t/RC})$; wo $A_\infty = C_1 u_i n = \text{prop. } n$ ist. Aus (1) und (2) erhält man für den relativen statistischen Fehler

$$\sigma\% = \pm 100 \frac{\delta t}{Q_\infty} = \pm \frac{100}{\sqrt{2nRC}}.$$

Daneben ist noch folgendes zu beachten: Beim Anzeigeinstrument (μA -Meter) hat man im Bereich des Endausschlages die maximale Ablesegenauigkeit, hingegen kann eine Anzeige nahe beim 0-Punkt um $\pm 60\%$ falsch sein. Deswegen sollte man sich des Messbereichschalters stets so bedienen, dass die Anzeige nie im ersten Drittel der Skala erfolgt.

Da mit der zu registrierenden Impulsdichte n A_∞ proportional ist, das Gerät aber A_t anzeigt, ist eine gewisse Zeit („Einstelldauer“, t_n) notwendig, bis die Anzeige (A_t) bloss um ein Fehlerprozent vom richtigen Wert (A_∞) abweicht (siehe Fig. 2b).

Nach EVANS (1955):

$$t_n = RC (0,394 + \frac{1}{2} \ln 2nRC).$$

Die meisten Feldszintillometer haben drei wählbare „Trägheiten“: 2; 5 und 15 sec. Für diese Werte haben wir $\sigma\%$ und t_n als Funktion der gemessenen Impulsdichten berechnet und im nebenstehenden Diagramm dargestellt (Fig. 3).

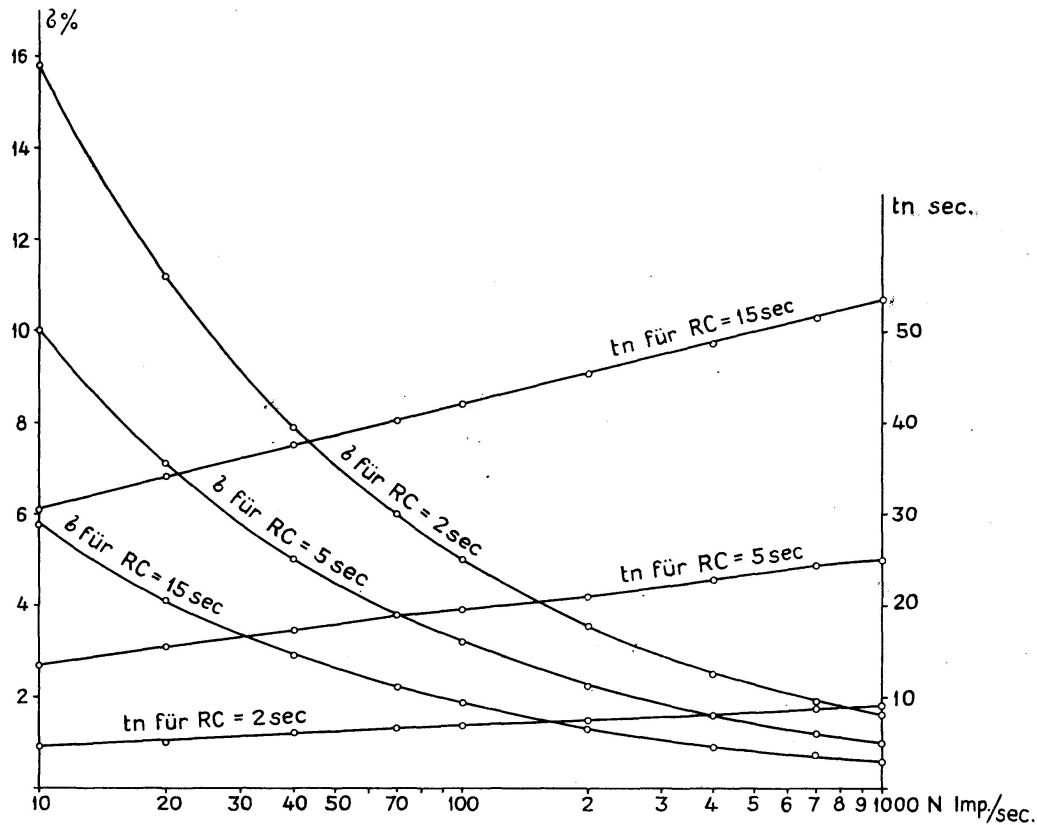


Fig. 3. Genauigkeit einer „rate-meter“-Ablesung (σ %) und die „Einstelldauer“ (t_n) als Funktionen der gemessenen Impulsdichte und Zeitkonstante.

Daraus ist die Bedeutung der jeweils eingestellten Trägheit ersichtlich: bei kleineren Zeitkonstanten (RC) reagiert das Instrument auf Aktivitätsänderungen zwar schneller, dafür werden aber die Schwankungen des Zeigers grösser.

b) Aktivitätsmessungen in Stollen und an der Oberfläche

Das Instrument misst eine Summe (I), zusammengesetzt aus

- a) Strahlung, von den Gesteinen herrührend (I_g),
- b) Nulleffekt (I_0).

- a) setzt sich seinerseits aus U-, Th-Folgeproduktanteilen und K^{40} zusammen;
- b) besteht an der Oberfläche hauptsächlich aus der kosmischen Strahlung (einen kleinen Anteil machen noch der Emanationsgehalt der Luft und die Eigenimpulse des Gerätes aus).

Die Bestimmung des Nulleffektes (I_0) an der Oberfläche kann durch Messungen auf einem See erfolgen. In unserem Falle haben wir, um I_g zu eliminieren, auf dem Lago d'Osso (735,7/145,7) mehrere Messungen durchgeführt. Das Seelein liegt auf 1651 m (eine mittlere Höhe bezüglich auf die vertikale Erstreckung unseres Untersuchungsgebietes auf dem flachen Rundhöckerrücken östlich der Moesa). Für die Absorption der Bodenstrahlung (I_g) sorgt das Wasser. Machen wir eine Schätzung über diese Absorption.

Zum voraus weiss man natürlich nichts über die energiespektrale Zusammensetzung der γ -Strahlung des Bodens. Nach EVANS (1955) (S. 714, Diagramm 1. 3) ist aber der Massenabschwächungskoeffizient μ/ρ auf jeden Fall grösser als 0,010 cm^2/g . Mit diesem Wert und einer mittleren Wassertiefe von $x = 5,0$ m gerechnet:

$$\frac{I_g'}{I_g} = e^{-\mu x} = e^{-\frac{\mu}{\rho} \rho \cdot x} = e^{-0,01 \cdot 1,00 \cdot 5,0 \cdot 10^3} = e^{-5} \sim 0,01,$$

d. h. man kann mindestens mit einer hundertfachen Schwächung rechnen, und das Instrument auf dem See wird nicht reagieren auf kleinere Schwankungen der Wassertiefe.

Messresultate (Messdatum 5. 9. 1958):

Messung	Wassertiefe m	I Imp/sec	v		vv	I_m
			+	-		
1	3,8	16,2	0,6		0,36	16,8 (0)
2	6,2	16,2	0,6		0,36	
3	—	18,8		2,0	4,00	
4	4,8	16,5	0,3		0,09	
5	8,0	17,8		1,0	1,00	
6	—	17,6		0,8	0,64	
7	—	17,0		0,2	0,04	
8	6,0	15,7	1,1		1,21	
9	3,0	16,8	—	—	—	
10	—	15,4	1,4		1,96	
			+ 4,0	- 4,0	9,66	

$$\mu_{I_m} = \pm \sqrt{\frac{\sum vv}{n(n-1)}} = \pm \sqrt{\frac{9,66}{10 \cdot 9}} = \pm 0,104 \text{ Imp/sec.}$$

Nulleffekt: $(16,8 \pm 0,1) \text{ Imp/sec}$, oder etwa $5,6 \mu\text{r/h}$

Es wäre noch die zeitliche und räumliche Variation (d. h. mit der Meereshöhe) auszumessen.

Steht im Untersuchungsgebiet kein geeigneter See zur Verfügung, so schlagen wir die folgende Methode vor: Der Messkopf wird mit einer Bleiabschirmung von etwa 1—2 cm Wandstärke (d) umgeben. Dann misst man anstatt

$$I = I_g + I_0 \text{ bloss } I' = k \cdot I_g + I_0, \text{ wobei } k = e^{-a \cdot d}$$

(a ist der mittlere Massenabschwächungskoeffizient für die Gesteinsstrahlung; die kosmische Strahlung wird durch 1—2 cm Blei nur unwesentlich geschwächt).

Nach Elimination von I_g gilt: $I' = k \cdot I + (1 - k) I_0$. Bestimmt man über eine Anzahl I -Werte die zugehörigen I' -Werte mit Hilfe der obenerwähnten Abschirmung, wird I' gegen I aufgetragen, und es ergibt sich aus dieser Darstellung

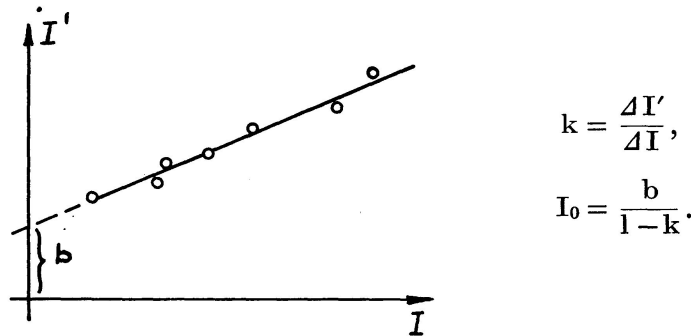


Fig. 4.

In Stollen wird die kosmische Strahlung von der Überdeckung sozusagen vollständig absorbiert. Hier bilden die Emanation ($^{222}\text{Rn}^*$) und ihre (festen) Folgeprodukte den Nulleffekt. Diese letzteren setzen sich an die Stollenwände und erschweren die Nulleffektbestimmung ausserordentlich.

In einer Messung sind ausser der Gesteinsaktivität und dem Nulleffekt noch andere Faktoren enthalten. Nach BARANOV (1955) gilt für I_g :

$$I_g = k \frac{\Omega \cdot c}{a},$$

wo c den Gehalt des Gesteins an γ -strahlender Substanz (in U-, Th- oder K-Äquivalent), Ω den Raumwinkel der Messanordnung, a den Massenabsorptionskoeffizienten und schliesslich k den Umrechnungsfaktor zwischen I_g (z. B. in $\mu\text{r/h}$) und c (z. B. in U-Äquivalent) bedeuten.

Für eine kleine Aktivitätsänderung:

$$\Delta I_g = \frac{\partial I_g}{\partial \Omega} \Delta \Omega + \frac{\partial I_g}{\partial c} \Delta c + \frac{\partial I_g}{\partial a} \Delta a = \frac{k \cdot c}{a} \Delta \Omega + k \frac{\Omega}{a} \Delta c - k \frac{\Omega \cdot c}{a^2} \Delta a.$$

Nach DAVISSON, EVANS (1952) variiert a über verschiedene γ -Energiewerte nicht stark, so dass in unserem Fall $\Delta a = 0$ gesetzt

werden kann. Dafür verdient das erste Glied unsere Aufmerksamkeit: die Auswirkungen von „Geometrieänderungen“ ($\Delta\Omega$) auf I_g (nebst Δc natürlich) sind klar ersichtlich.

Ω beträgt in Stollen annähernd 4π , falls nicht eine Wechsellagerung von Gesteinen mit stark verschiedenen Aktivitäten vorliegt. In diesem Fall kann man eine zylindrische Bleiabschirmung verwenden, damit der Kristall nur auf frontale Strahlen anspricht. So wird die Geometrie ähnlich wie an der Oberfläche, wo man sehr annähernd 2π hat. Die Abweichungen ($\Delta\Omega$) kann man im Feld nur grob abschätzen.

Ein Zahlenbeispiel für einen idealisierten Fall: Es wird eine senkrechte, zylindrische Öffnung in einer ausgedehnten Gesteinsfläche angenommen (Durchmesser der Öffnung: $2r = 10$ cm). Führt man den Messkopf in diese Öffnung hinein, so nimmt die Anzeige zu. (Das strahlungsempfindliche Element [NaJ-Kristall] wird zunächst als Punkt betrachtet.) Mit L wollen wir den jeweiligen Abstand dieses Punktes von der Gesteinsoberfläche — der Zylinderachse entlang gemessen — bezeichnen. Der Raumwinkel Ω' beträgt in einem Kegel:

$$\Omega' = \int_0^{\alpha_0} \int_0^{2\pi} \sin \alpha \, d\alpha \, d\varphi = 2\pi \int_0^{\alpha_0} \sin \alpha \, d\alpha = 2\pi (1 - \cos \alpha_0),$$

wo α_0 den halben Öffnungswinkel bedeutet. In der untenstehenden Tabelle haben wir Ω für verschiedene L -Werte (bei $r = 5$ cm) berechnet:

L_{cm}	$\alpha_0 = \arctg(r/L)$	$\cos \alpha_0$	$1 - \cos \alpha_0$	Ω'	$\Omega = 4\pi - \Omega'$	$\Delta\Omega = \Omega - 2\pi$
0	90,0°	0,000	1,000	2,00	2,00	0,00
5	45,0°	0,708	0,292	0,584	3,42	1,42
10	26,6°	0,894	0,106	0,212	3,79	1,79
20	14,0°	0,970	0,030	0,060	3,94	1,94

Die Werte der letzten Kolonne zeigen deutlich, dass Änderungen in der Geometrie Aktivitätsänderungen vortäuschen können.

Aus diesen Überlegungen ist es leicht ersichtlich, dass man im Feld im allgemeinen keine Messungen anstellen kann, die eine quantitative Bedeutung hätten. Wir können aber nur *quantitative* Werte für *qualitative* Aussagen (Aktivitätsunterschiede für geologische Korrelation) verwenden, so dass es nötig ist, c im Labor zu bestimmen und nachher die Resultate mit den Feldmessungen an den gleichen Gesteinen zu vergleichen und zu diskutieren.

4. Quantitative Aktivitätsbestimmungen im Labor (Bestimmung von c)

Es ist schon zum vornherein anzunehmen, dass man es mit schwachen bis sehr schwachen Aktivitäten zu tun haben wird. Dazu steht jeweils nur eine beschränkte Quantität von den Gesteinsproben (durchschnittlich 350 g des zu untersuchenden Materials) zur Verfügung.

Diese Tatsachen erfordern eine besondere Methodik. Daher gingen wir wie folgt vor:

1. Man muss alle Proben in der gleichen Geometrie messen. Um dies zu erreichen, pulverisiert man die Handstücke — was an der Aufbereitungsanlage der Silikatchemischen Abteilung der EMPA vorgenommen wurde (Korngrösse $< 0,2$ mm) — und füllt damit einen zylindrischen Behälter. Diesen Topf haben wir unter Berücksichtigung des durchschnittlichen Probengewichtes, der Schüttdichte, der optimalen Raumwinkelverhältnisse, der Abmessung des NaJ-Kristalls, der inneren Abmessung des (normierten) Abschirmungsgehäuses dimensioniert und aus Anticorodal anfertigen lassen (siehe Fig. 5a).

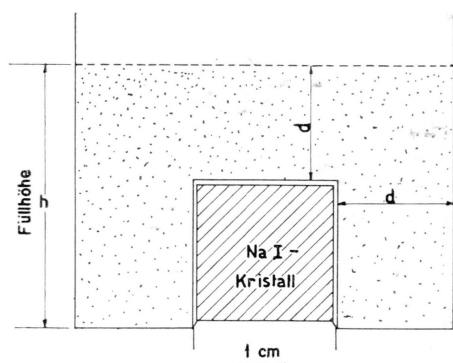


Fig. 5a. Querschnitt durch den Messtopf.

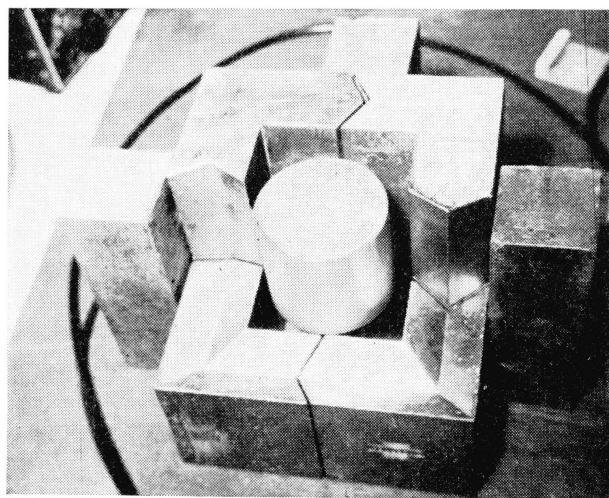


Fig. 5b. Abschirmungsgehäuse (offen) mit Messtopf.

2. Ferner ist es notwendig, den Nulleffekt möglichst niedrig zu halten. Deswegen haben wir den Messtopf samt Kristall und Elektronenvervielfacher in einem Blei-Abschirmungsgehäuse von 5 cm Wandstärke und $20 \times 20 \times 18$ cm Lichtmasse untergebracht (die Firma Scherrer & Söhne, Zürich, verwendet dafür reines, sogenanntes „Penaroya“-Blei aus Spanien). Fig. 5 zeigt das Abschirmungsgehäuse mit Messtopf.

3. Aber auch bei dieser Abschirmung vermag das Szintillometer mit „rate-meter“-Ablesung nicht, die Aktivitätsunterschiede bei verschiedenen Gesteinsproben wahrzunehmen. Dazu kommt noch die äusserst geringe Ablesegenauigkeit in diesem Bereiche (siehe S. 90).

Man muss die einzelnen Impulse über eine längere Zeitspanne registrieren. Das kann man mit einem Zählgerät tun. Da wir über kein solches Instrument verfügten, mussten wir selber eines herstellen.

Für die Impulstechnik (elektronische Digital-Rechenmaschinen usw.) dienen unter anderm die *Philips*-Dekadenzählereinheiten. Sie benötigen für die zu registrierenden Impulse eine positive Amplitude von mindestens 25 V. Da die Impulshöhe am Ausgang der letzten Szintillometer-Verstärkerstufe (zwischen dem Kollektor des letzten OC 430-Transistors und Masse) nur 3 V beträgt, war es notwendig, eine Vorverstärkerstufe zwischen Szintillometer-Ausgang und Philips-Einheiten zu schalten. Da die Philips-Einheiten 300 V Anodenspannung und 6,3 V Heizspannung benötigen, wurde auch der Vorverstärker diesen Bedingungen angepasst.

Für die Rückstellung der Leuchtsignale an den Philips-Röhren muss man eine kleine negative Spannung haben; diese wird jeweils durch die für diesen Zweck

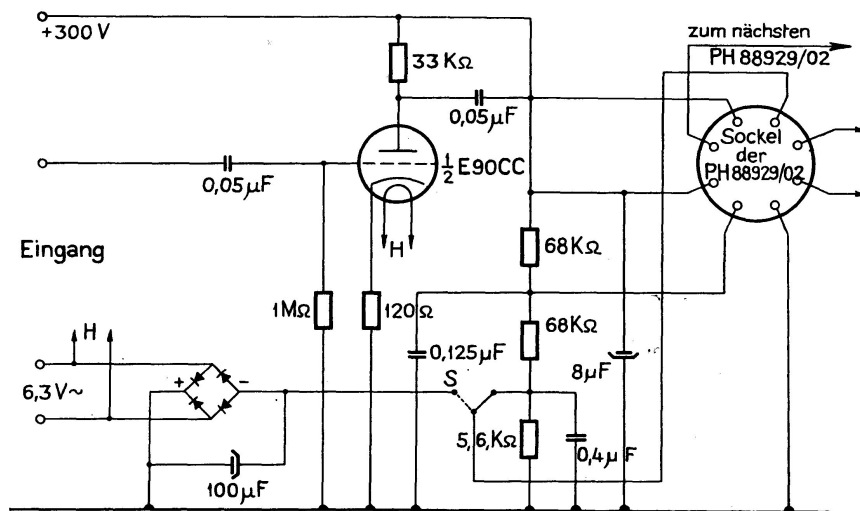


Fig. 6. Schaltschema des Vorverstärkers.

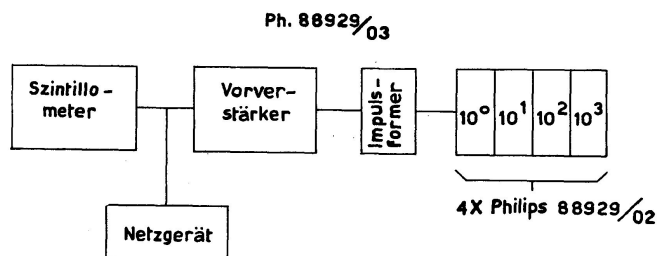


Fig. 7. Blockschaltbild der Apparatur.

gleichgerichtete Heizspannung (6,3 V) geliefert. Die Anoden- und Heizspannung (300 V= und 6,3 V~) stammen aus einem Netzgerät.

Den aus diesen Daten berechneten Vorverstärker zeigt Fig. 6, darunter das Blockschema des Zählgerätes (Fig. 7).

Das auf diese Art und Weise hergestellte Zählgerät funktioniert vollständig befriedigend. Nulleffekt: (93 ± 1) cpm⁴).

Die Bestimmung der Auflösungszeit der gesamten Apparatur (τ) wurde mit der sogenannten „2-Quellenmethode“, siehe z. B. TAYLOR (1957), vorgenommen. Wir fanden für τ einen Wert von $1,6 \cdot 10^{-6}$ sec. Impulsverluste sind also bei unsern Aktivitäten zu vernachlässigen.

Da die Zeitdauer der Impulse am Ausgang des Szintillometers von der Messbereich-Einstellung abhängt, wird immer bei jener Stellung gemessen, bei welcher die Impulsdauer die kleinste ist. Die Philips-Einheit 88929/03 verlangt allerdings eine Impulsdauer von mindestens $1 \mu\text{sec}$, so dass wir die Messbereich-Stellung 5 für unsere Messungen gewählt haben.

Messung, Bestimmung der spezifischen Aktivität (α)

Die pulverisierten Gesteinsproben werden in den Messtopf gefüllt und das eingewogene Gewicht ($G = G_{\text{bto}} - G_{\text{Topf}}$) auf einer Waage mit einer Genauigkeit von $\pm 0,1$ g bestimmt.

Man misst im Abschirmungsgehäuse eine Anzahl Impulse N_T über eine Zeitdauer t_T . Daraus ergibt sich eine Aktivität

$$A_T = \frac{N_T}{t_T} \text{ cpm.}$$

Der Effekt (herrührend von der Radioaktivität der Probe) ist

$$E = (A_T - A_N) \text{ cpm, wo } A_N \text{ den Nulleffekt}$$

$$A_N = \frac{N_N}{t_N} \text{ cpm bedeutet.}$$

Die spezifische Aktivität der Probe ist damit

$$\alpha = \frac{E}{G} \text{ cpm/g.}$$

WENDT (1955) zeigte, dass der Einfluss der Füllhöhe h (siehe Fig. 5a) auf die spezifische Aktivität gering ist.

Messgenauigkeit

Der statistische Fehler einer Messung ist nach LOEVINGER and BERMAN (1951)

⁴) cpm = counts per minute = Impulse per Minute.

$$\Delta\% = f(r, N_T, N_N); \text{ wo } r = \frac{A_T}{A_N}$$

bedeutet und wurde auch in FAUL (1954) auf Seite 25 graphisch dargestellt. Daraus kann man für jede Messung den prozentualen Fehler ablesen oder umgekehrt die für eine gewünschte Genauigkeit erforderlichen Impulszahlen entnehmen.

Eichung, quantitative Aktivitätswerte

Die Konzentration radioaktiver Substanzen in Gesteinen wird meistens in Uran-Äquivalent (äqu. U_3O_8) angegeben, das heisst man nimmt an, die Strahlungsintensität sei die gleiche, wie wenn die gesamte γ -Aktivität nur von den U-Folgeprodukten stammen würde. Dabei muss aber vorausgesetzt werden, dass das Uran mit seinen Folgeprodukten im radioaktiven Gleichgewicht steht, was in der Verwitterungskruste anstehender Gesteine, aber auch beim Stollenmaterial, meistens gar nicht der Fall ist (Radiumemanation).

Bei dem von SZALAY (1945) eingeführten Th-Äquivalent — das sich übrigens in der Literatur eingebürgert hat — verhält es sich gleich (Thoriumemanation).

Darum fanden wir es am zweckmässigsten, eine neue Einheit, das Kalium-Äquivalent, einzuführen. Aus dem Zerfallsschema des K^{40} sieht man nämlich, dass der K^{40} -Zerfall einstufig ist. Die Zerfallskonstante des $*A^{40}$ ist grösser als 10^{11} sec^{-1} (Handbook of Physics, New York 1958). Somit haben Gleichgewichtsstörungen keinen Einfluss auf einen K-Äquivalentwert, weil wir darüber gar keine Voraussetzungen machen müssen.

Als Eichsubstanzen haben wir NaCl-KCl-Salzgemische verwendet. Um eine vollständig homogene K-Verteilung zu erhalten, wurden die Salze in einer Platinschale zusammengeschmolzen. Die für eine Konzentrationsreihe von 5%, 10%, 15%, 25%, 50% K gemessenen spezifischen Aktivitäten sind in der folgenden Tabelle dargestellt.

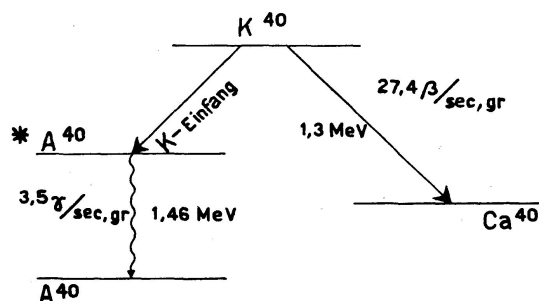


Fig. 8. Zerfallsschema des K^{40} .

% K	α cpm/g	$\frac{\alpha}{\% K}$	Mittel	$v \cdot 10^{-4}$		$vv \cdot 10^{-8}$
				+	-	
5	0,320	0,0640	0,0581		59	3481
10	0,580	0,0580		—	—	—
15	0,849	0,0566		15		225
25	1,374	0,0550		31		961
50	2,840	0,0568		13		169
				+ 59	- 59	4836

$$m = \pm \sqrt{\frac{\sum vv}{n(n-1)}} = \pm 10^{-4} \sqrt{\frac{4836}{5 \cdot 4}} = \pm 0,0016.$$

Eichwert: $(0,0581 \pm 0,0016)$ cpm/g pro 1% K.

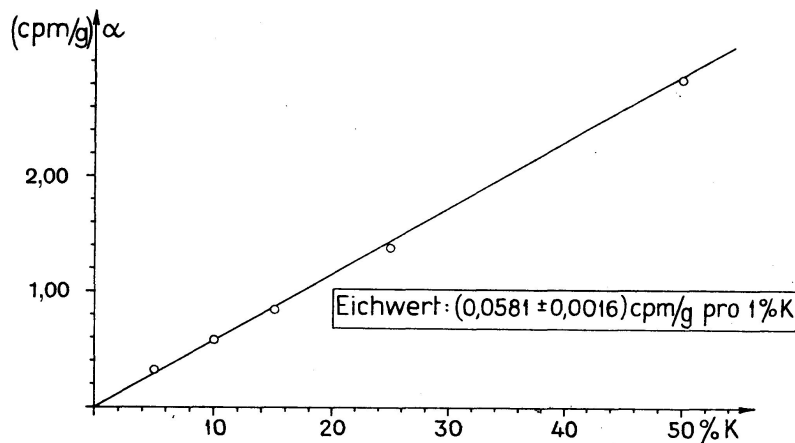


Fig. 9. Eichkurve der Apparatur.

Somit kann die γ -Aktivität der Gesteinsproben in % K-äqu. als Konzentrationseinheit ausgedrückt werden:

$$\text{K-äqu. (\%)} = \frac{\alpha}{0,058} = 17,22 \alpha.$$

5. Resultate

1. Zuerst wurde die laterale Variation von c untersucht (siehe Tabelle). Die Gesteinsproben stammen aus demselben tektonischen Zug⁵⁾. Man sieht, dass die Variation nicht allzu gross ist, das heisst c besitzt auch in dieser metamorphen Zone einen korrelativen Wert.

⁵⁾ Aus dem „Zwischenglied“.

Nr.	Gestein	K-äqu. %
75	Lagengneis	12,40
77	Lagengneis	12,91
91	Lagengneis	11,02
99	Lagengneis	13,39

2. Über die Zuverlässigkeit der Oberflächenmessungen bringen wir einige Daten in der Tabelle auf S. 101. Hätten die Vermessungen einen quantitativen Wert, so sollte das Verhältnis

$$\frac{\text{Feldmessung}}{\text{Labormessung}} = \frac{F - N_0}{K\text{-äqu.}} \quad (F \text{ ist der Bruttowert, } N_0 \text{ der Nulleffekt})$$

mehr oder weniger konstant bleiben.

Diese Berechnung haben wir im Falle eines Oberflächenprofils (siehe Tabelle) durchgeführt⁶⁾. Der relative Fehler der Einzelmessung (μ_e) beträgt etwa 50%. Die Ursachen dafür — bei einem so niedrigen F/N_0 -Verhältnis — sind einerseits in der sehr variablen Geometrie, andererseits in den Streueffekten und der Abschwächung der kosmischen Strahlung zu suchen.

$$\mu_e = \pm \sqrt{\frac{\sum v v}{n-1}} = \pm 10^{-1} \sqrt{\frac{1430,16}{13}} = \pm 1,05 = \pm 51\%.$$

3. Die Ergebnisse unserer quantitativen Aktivitätsbestimmungen haben wir in einem schematischen Radioaktivitätsprofil dargestellt (siehe Fig. 10). Jeder Punkt bedeutet den gemessenen K-äqu.-Wert einer bestimmten Probe, welche in die betreffende Gesteinsgruppe eingeteilt wurde. Der Durchmesser der Kreise entspricht ungefähr den durchschnittlichen Messfehlern. Der vertikale Strich in einer Punktreihe gibt den durchschnittlichen K-äqu.-Wert dieser Gruppe an.

Aus dieser Darstellung ersieht man die Aktivitätsunterschiede zwischen den angeführten Gesteinstypen. Man sieht zum Beispiel, dass die Aktivität der „Lagengneise“ mit derjenigen der Adula- bzw. Tambokristalline verglichen werden kann. Die „Grünschiefer“, ferner die „Trias“

⁶⁾ Für Stollenmessungen konnten wir diese Untersuchung nicht durchführen, weil wir den Nulleffekt nicht kennen. Werte, die vor Stollenportalen gemessen werden, haben mit dem Nulleffekt nichts zu tun. Die Aktivitätswerte im Stollen zeigen im allgemeinen nur den qualitativen Verlauf der Gesteinsaktivität (vgl. S. 93—94).

Hst.- Nr.	Gestein	F - N ₀ Imp/sec	K-äqu. %	F - N ₀ K-aqu.	v · 10 ⁻¹		vv · 10 ⁻²
					+	-	
70	Adula-Gneis	35	13,38	2,47		4,2	17,64
71	Triasmarmor	7	1,40	5,00		29,5	870,25
72	Kalkglimmerschiefer	6	6,40	0,94	11,1		123,21
73	Grünschiefer	1	0,81	1,23	8,2		67,24
74	Kalkglimmerschiefer	13	9,64	1,35	7,0		49,00
75	Lagengneis	33	12,66	2,66		6,1	37,21
76	Kalkglimmerschiefer	8	4,74	1,69	3,6		12,96
77	Lagengneis	25	12,91	1,94	1,1		1,21
78	Kalkmarmor	2	1,95	1,03	10,2		104,04
79	sandiger Kalkphyllit	17	6,69	2,54		4,9	24,01
80	dunkler, toniger Phyllit	24	9,06	2,65		6,0	36,00
81	Amphibolit	3	1,65	1,82	2,3		5,29
82	Kalkschiefer bis Kalkmarmor	6	5,17	1,16	8,9		79,21
83	Tambo-Paraschiefer	31	14,00	2,22		1,7	2,89
Mittel:				2,05	52,4	52,4	1430,16

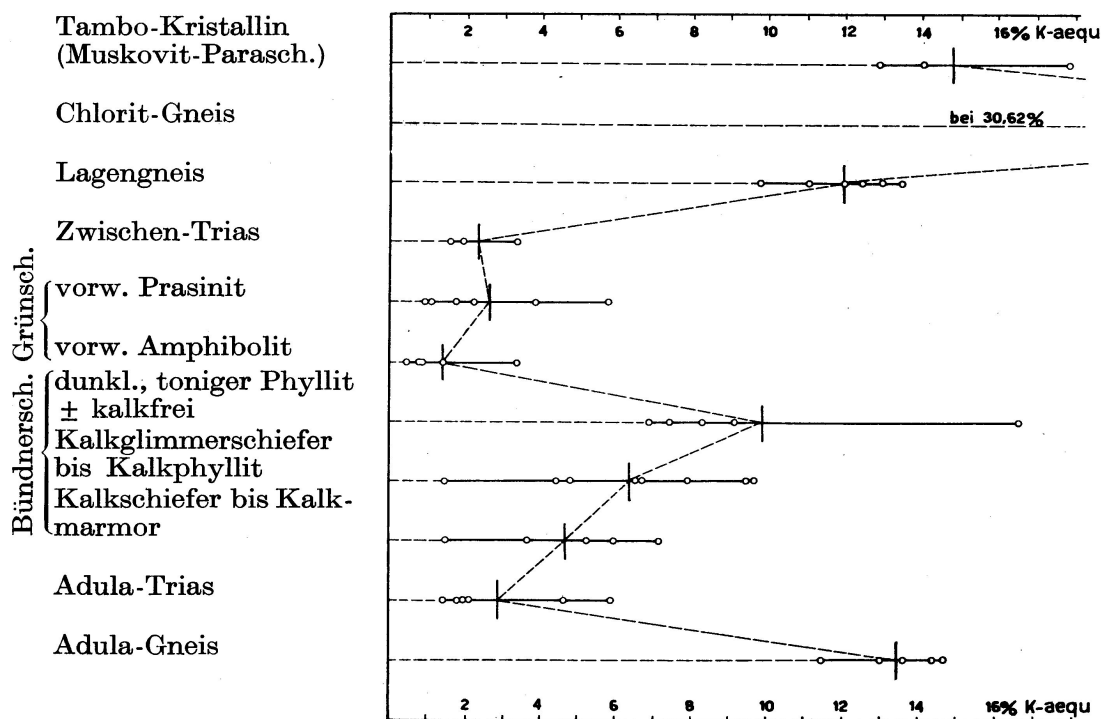


Fig. 10. Schematisches Radioaktivitätsprofil durch die Misoxer Muldenzone.

zeichnen sich durch ihre relativ niedrige Radioaktivität aus. Bei den Bündnerschiefern fällt sofort die Abhängigkeit der Gesamtaktivität vom Kalkgehalt auf. Ferner kann man sich ein Bild von den Streuungen machen. In diesem Diagramm sind Aktivitätswerte für Gesteinsproben, sowohl von der Oberfläche als auch aus Stollen dargestellt. Die Aktivitätsunterschiede zwischen Oberflächen- und Stollenmaterial der gleichen Gesteinsgruppe liegen innerhalb der Streuung.

Literaturverzeichnis

- BARANOV, V. I. (1955): Aeroradiometric Prospecting for Uranium and Thorium Deposits and the Interpretation of Gamma Anomalies. — Proceedings of the Internat. Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol. 6, Geneva.
- DAVISSON, C. M., EVANS, R. D. (1952): Gamma-Ray Absorption Coefficients. *Rev. of Mod. Phys.* 24. 2, S. 79—107.
- EVANS, D. (1955): *The Atomic Nucleus*, New York.
- FAUL, H. (1954): *Nuclear Geology*, New York.
- FRISCHKNECHT, G. (1923): Geologie der östlichen Adula. — *Beitr. z. Geol. Karte d. Schweiz*, N. F. 51.
- GANSSEER, A. (1937): Der Nordrand der Tambodecke. — *Schweiz. Min. Petr. Mitt.*, Bd. XVII.
- GRENOUILLET, W. (1921): Geologische Untersuchungen am Splügenpass und Monte di San Bernardino. — *Jber. d. Natf. Ges. Graubündens*, N. F., Bd. LX, Vereinsjahre 1919/20 und 1920/21, Chur.
- HEYDWEILER, E. (1918): Geologische und morphologische Untersuchungen in der Gegend des St. Bernhardinpasses. — *Eclogae geol. Helv.*, Vol. XV.
- KÜNDIG, E. (1926): Beiträge zur Geologie und Petrographie der Gebirgskette zwischen Val Calanca und Misox. — *Schweiz. Min. Petr. Mitt.*, Bd. VI.
- LOEVINGER, R. and BERMAN, M. (1951): Efficiency criteria in radioactivity counting. *Nucleonics* 9, no. 1, 26—39.
- MÜHLEMANN, R. (1928): Geologische und morphologische Untersuchungen im Gebiete der Tambodecke zwischen Val Mesolcina und Valle S. Giacomo (Italien). *Diss. Univ. Zürich*.
- NABHOLZ, W. (1945): Geologie der Bündnerschiefergebirge zwischen Rheinwald, Valser- und Safiental. — *Eclogae geol. Helv.*, Vol. 38.
- ROOTHAAN, H. PH. (1919): Petrographische Untersuchungen in den Bergen der Umgebung von Vals. — *Jber. d. Natf. Ges. Graubündens*, N. F., Bd. LIX, Vereinsjahr 1918/19, Chur.
- SZALAY, A. (1945): Thorium and Uranium Content of the Velence Mountains, Hungary. *Nature* 162, S. 454—455.
- TAYLOR, D. (1957): *The Measurement of Radio Isotopes*, London.
- WENDT, I. (1955): Bestimmung von Uran, Thorium und Kalium an unaufgeschlossenen Gesteinen mit dem Zählrohr. *Diss. Univ. Göttingen*. (Unveröffentl.)

Inst. für Geophysik an der ETH. Manuskript eingegangen 30. Okt. 1960.