

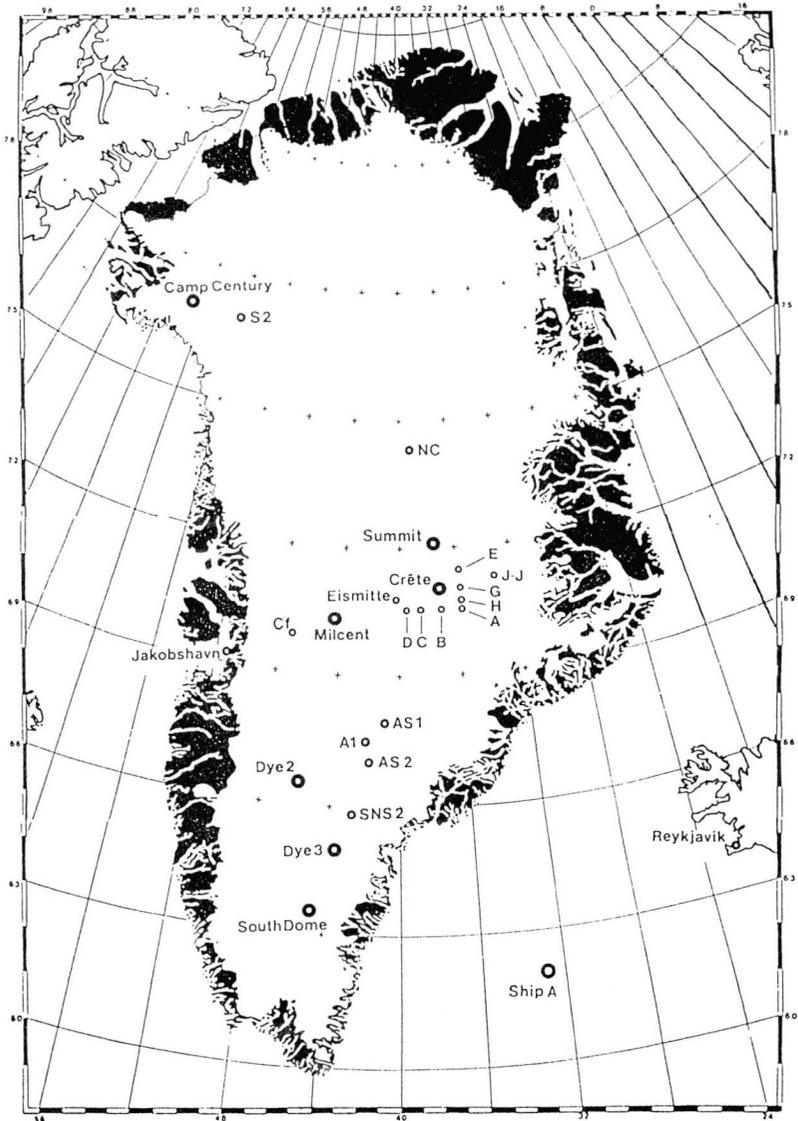
^{36}Cl im Grönlandeis

ABHANDLUNG

zur Erlangung des Titels
DOKTOR DER NATURWISSENSCHAFTEN
der
EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE
ZÜRICH

vorgelegt von
Christian Emil Lukasczyk
Dipl. Natw. ETH
geboren am 26. Februar 1963
von Buchs (AG)

Angenommen auf Antrag von
Prof. Dr. D. M. Imboden, Referent
Prof. Dr. A. Waldvogel, Korreferent
Dr. J. Beer, Korreferent



Bohrstationen in Grönland (aus Johnsen et al. 1989)

Inhaltsverzeichnis

Grönlandkarte mit den Bohrstationen	i
Inhaltsverzeichnis	ii
Zusammenfassung	vi
Abstract	viii
1. Einführung	1
Ziele dieser Arbeit	5
2. Probenahme und Aufbereitung der Proben	7
2.1 Einführung und Ueberblick	7
2.2 Eisprobenaufbereitung	11
2.2.1 Einleitung	11
2.2.2 Reinigung der Bohrkerne	12
2.2.3 Aufbereitungsmethoden	14
2.3 Reinigen und Pressen von ³⁶ Cl-Proben	17
2.3.1 Beschreibung der Reinigungsmethode	17
2.3.2 Bemerkungen zum Bromieren	20
2.3.3 Die Wiederaufbereitung bereits gemessener Proben	21
2.3.4 Kontaminationsquellen im Labor	21
2.3.5 Pressen von ³⁶ Cl-Proben	24
2.4 Zur Dokumentation und Arbeitstechnik	25
3. Versuche zur Verarbeitung	27
3.1 Versuche zur AgCl-Konsistenz	27
3.1.1 Problemstellung	27
3.1.2 Tests	27
3.1.3 Zusammenfassung der Empfehlungen aus den Versuchen	31
3.2 Versuche zur Herkunft von Schwefelverunreinigungen	32
3.2.1 Zusammenfassung	32
3.2.2 Problemstellung	33
3.2.3 Testmessungen	34
3.2.4 Herkunft des Schwefels nach der Proben-Reinigung	37
3.2.5 Verbesserungen aufgrund der Tests	39

4. Messmethode und Auswertung	42
4.1 Die Messmethode: Beschleunigermassenspektrometrie (AMS)	42
4.2 Messablauf und Standardauswertung	49
4.3 Störungen der Messungen durch Schwefel	51
4.4 Auswertungsmöglichkeiten einer durch Schwefel beeinträchtigten Messung	53
4.5 Verbesserungsmöglichkeiten	60
5. Resultate	61
5.1 Einführung: Anforderungen an neue Eiskerne aufgrund früherer ^{36}Cl -Messungen im Eis	61
5.2 Die neuen ^{36}Cl -Zeitreihen	64
5.2.1 Der Eiskern von Milcent, Grönland	64
Frequenzanalyse	70
5.2.2 Der Eiskern von Dye 3, Grönland	74
Frequenzanalyse	80
5.3 Die Eiskerne im Vergleich	88
5.3.1 Camp Century - Milcent	88
5.3.2 Camp Century - Dye 3	91
5.3.3 Milcent - Dye 3	91
5.3.4 Die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Zeitreihen in den verschiedenen Kernen	93
5.3.5 Die Isotopenflüsse	95
5.3.6 Die Mittelwerte der Konzentrationen und Flüsse	97
5.4 ^{10}Be und ^{36}Cl in Gewitterniederschlägen - 2 Fallstudien in Dübendorf, Schweiz	101
5.4.1 Ziele der Experiments	101
5.4.2 Aufbau und Durchführung des Experiments	102
5.4.3 Messung	102
5.4.4 Die Datensätze	103
5.4.5 Resultate	104
Zusammenfassung der wichtigsten Erkenntnisse	110
6. Diskussion	112
6.1 Einführung	112
6.1.1 Der Aufbau der Sonne und ihrer Atmosphäre	113
6.1.2 Die Auswirkungen des Sonnenwindes in der Erd- atmosphäre	116
6.1.3 Die ^{10}Be - und ^{36}Cl -Produktion in der Erdatmosphäre	118

6.1.4 Die Sonnenaktivität und ihre Proxis	122
6.2 Ausschluss einer zusätzlichen ^{36}Cl -Quelle als Ursache für die Schwankungen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis	125
6.2.1 ^{36}Cl -Eintrag durch Methylchlorid (CH_3Cl)	126
6.2.2 Neutronenaktivierung von ^{35}Cl im Meerwasser	129
6.2.3 Abschätzungen zu Modulationen durch Vulkane	129
6.2.4 Erosion und Verfrachtung von ^{36}Cl im Oberflächengestein	133
6.2.5 ^{36}Cl -Eintrag durch Mikrometeoriten	134
6.3 Die solare Modulation der Isotopenproduktion	135
6.3.1 Der Vergleich von ^{10}Be , ^{36}Cl und ihrem Verhältnis mit $\Delta^{14}\text{C}$ und den Aurorae	135
6.3.2 Die Fragen von Newkirk (1984) zu den Sonnenphänomenen	144
6.3.3 Das Signal des Schwabezyklus im ^{10}Be und ^{36}Cl von Dye 3	144
6.3.3.1 Der Schwabezyklus in den Spektren der Isotope	145
6.3.3.2 Die Bestimmung der Schwabe-Minima in den ^{10}Be - und ^{36}Cl -Reihen	147
6.3.3.3 Phasen- und Amplitudenmodulationen des Schwabezyklus als Proxis	157
6.3.3.4 Das langfristige Phasenverhalten des Schwabezyklus als Diskriminator für solare Modelle	160
6.3.3.5 Der Schwabezyklus im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis	162
6.3.4 Langperiodische Oszillationen	167
6.3.5 Zusätzliche Isotopenproduktion durch niederenergetische Teilchen in der Atmosphäre	169
6.3.5.1 ^{10}Be -Produktion durch sekundäre Neutronen des Spallationsprozesses	169
6.3.5.2 ^{36}Cl -Produktion durch niederenergetische Protonen aus grossen solaren Flares	169
6.3.5.3 Konsequenzen für das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis	171
6.3.5.5 Konsequenzen für die Breitenabhängigkeit des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses	174
6.3.6 Zusammenfassung	175
6.4 ^{10}Be , ^{36}Cl und Klima	178
6.4.1 Diskussion klimatischer Schwankungen als mögliche Ursache für die Variationen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis	178

6.4.1.1 Die Korrelationen auf verschiedenen Zeitskalen	178
6.4.1.2 Die Aehnlichkeit der Verläufe von Isotopenfluss und -konzentration	183
6.4.1.3 ^{10}Be , ^{36}Cl , $\delta^{18}\text{O}$ und die nordhemisphärische Temperatur	188
6.4.2 Das Variabilitätspotential im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis durch Auswaschungsprozesse	195
6.5 ^{10}Be und ^{36}Cl als Indikatoren solar-terrestrischer Beziehungen	205
6.5.1 Einführung	205
6.5.2 Ein kurzer Ueberblick über verschiedene Ansätze zur Detektion solarer Einflüsse auf das Wetter und Klima	206
6.5.3 ^{10}Be und ^{36}Cl als Tracer solarer Einflüsse auf die Erd- atmosphäre in der Vergangenheit	208
6.5.4 Drei Szenarien zur Modulation des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ - Verhältnisses	213
Anregungen für weitere Untersuchungen	219
Zusammenfassung der Ergebnisse und Schlussfolgerungen	222
Bedeutung von ^{10}Be und ^{36}Cl für die Untersuchung solar- terrestrischer Beziehungen	226
Anhang	228
A.1 ^{10}Be - und ^{36}Cl -Daten von Milcent und Dye 3	228
A.1.1 Die Daten von Milcent, Grönland	228
A.1.2 Die Daten von Dye 3, Grönland	232
A.2 Summit: Die Säulenmethode im Feld	247
A.2.1 Einführung	247
A.2.2 Arbeitseinteilung	249
A.2.3 Vergleich von Organisation und Kosten der beiden Methoden	251
A.2.4 Gegenüberstellung der beiden Methoden	252
Bibliografie	255
Figurenverzeichnis	265
Tabellenverzeichnis	269
Danksagung	270
Lebenslauf	274

Zusammenfassung

In den Eiskernen von Milcent und Dye 3 in Grönland wurden die Konzentrationen von ^{36}Cl gemessen. Der Datensatz von Dye 3 hat eine Auflösung von etwa einem Jahr und umfasst die Zeitspanne von 1567 - 1890 AD, der Datensatz von Milcent reicht von 1181 bis 1821 AD bei einer Auflösung von 3 - 7 Jahren.

Diese Zeitreihen wurden mit den ^{10}Be -Messungen an denselben Proben sowie mit den ^{36}Cl -Messungen in Camp Century in Nordgrönland (Conard et al. 1989) verglichen. Die ^{36}Cl - wie auch die ^{10}Be -Produktion werden durch die Sonne moduliert. Die Übereinstimmung zwischen der ^{10}Be - und der ^{36}Cl -Konzentration und deren Ähnlichkeit zum $\Delta^{14}\text{C}$ -Verlauf in Baumringen (Stuiver und Quay 1980) zeigen, dass das Spallationssignal in den beiden Isotopenreihen im Eis auf Zeitskalen von mehr als einem Jahr dominiert. Zum einen sind alle vier Sonnenminima (Wolf (1280 - 1350 AD), Spörer (1420 - 1540 AD), Maunder (1645 - 1715 AD) und Dalton (1790 - 1830 AD)) in den Konzentrationsverläufen beider Isotope sichtbar, besonders deutlich das Maunder-Minimum. Zum anderen konnte im Kern von Dye 3 zum ersten Mal der Schwabezyklus in der ^{36}Cl -Konzentration nachgewiesen werden. Er zieht sich auch über das Maunder-Minimum hin, obwohl damals kaum Sonnenflecken zu beobachten waren.

In den Zeitreihen von ^{10}Be und ^{36}Cl sind neben dem Schwabezyklus auch dessen Harmonische sowie langperiodische Oszillationen von 60 und 87 Jahren (Gleissbergzyklus) sichtbar. Es werden Hinweise gefunden, dass zwischen starken Phasenverschiebungen im Schwabezyklus und den langperiodischen Schwingungen ein Zusammenhang besteht.

Trotz der Übereinstimmungen zwischen ^{10}Be und ^{36}Cl weist das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis im Eis in unregelmässigen Abständen hohe Maxima auf und schwankt um bis zu einen Faktor 3, was auch schon in früheren Messungen festgestellt worden war (Suter et al. 1987; Elmore et al. 1987a). Zudem ist der beobachtete Mittelwert des globalen ^{36}Cl -Flusses verglichen

Zusammenfassung

mit Produktionsrechnungen zu hoch. Deshalb liegt derjenige des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses um etwa einen Faktor 2 - 10 unter dem berechneten Wert. Abschätzungen zeigen, dass keine zusätzliche ^{36}Cl -Quelle die Ursache für die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Variationen und den zu hohen ^{36}Cl -Mittelwert sein kann.

Die hohen $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima treten vorwiegend an Uebergängen zu solaren Minimumsperioden auf, wo sich die Zahl der auftretenden Sonnenflecken stark ändert. Im Dalton-Minimum stehen meteorologische Daten zur Verfügung, aus denen geschlossen werden kann, dass gleichzeitig mit den $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima klimatische Störungen auftreten. Da die hohen Verhältnismaxima nicht allein durch Produktionseffekte erklärt werden können, legt dies den Schluss nahe, dass auf ^{10}Be und ^{36}Cl auch Transporteffekte in der Atmosphäre wirken, die wahrscheinlich teilweise selber durch die Schwankungen der Sonnenaktivität moduliert werden. $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen während eines Gewitterniederschlages bestätigen, dass ^{10}Be und ^{36}Cl von atmosphärischen Prozessen unterschiedlich beeinflusst werden können.

Abstract

Polar ice cores are known to be excellent archives for various climatic parameters. They allow the reconstruction of many aspects of the climate back to more than 200'000 years with high resolution. This work has focussed on the radioactive isotopes ^{36}Cl and ^{10}Be , which are produced in the atmosphere by cosmic rays and finally deposited in the ice.

The ^{36}Cl -concentrations in the ice cores from Milcent and Dye 3 in Greenland have been measured. The Dye 3 data set has a resolution of one year throughout almost the whole measured core section from 1567 to 1890 AD. The Milcent core covers the period from 1181 to 1821 AD and has a resolution of 3 to 7 years. These records were compared to the ^{10}Be -concentrations measured in the same samples and to the ^{36}Cl -concentrations in the Camp Century ice core from northern Greenland measured by Conard et al. (1989). As previously found for the ^{10}Be -concentrations, the ^{36}Cl -concentrations are also modulated by the solar activity, which can be seen mainly in two effects. First, all four solar minimum periods (Wolf (1280 - 1350 AD), Spörer (1420 - 1540 AD), Maunder (1645 - 1715 AD) and Dalton (1790 - 1830 AD)) can be seen. The Maunder Minimum is the most clearly visible. Second, as could be shown in the Dye 3 ice core for the first time, the Schwabe cycle appears not only in ^{10}Be -, but also in the ^{36}Cl -concentration. It was also present during the Maunder Minimum, when hardly any sunspots could be observed.

In addition to the Schwabe signal, the time series of ^{10}Be and ^{36}Cl also exhibit the harmonics of the Schwabe cycle and oscillations with longer periods of 60 and 87 years (Gleissberg cycle). There are indications that strong phase shifts in the Schwabe signal occur in connection with the minima of these low frequency oscillations.

Despite of all this conformity between ^{10}Be and ^{36}Cl , the $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -ratio in the ice irregularly shows high maxima and varies by up to a factor of three, as has been found earlier (Suter et al. 1987; Elmore et al. 1987a).

Abstract

Moreover, the observed global ^{36}Cl -flux exceeds the calculations. Therefore, the observed global mean of the $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -ratio is 2 - 10 times too low. It can be estimated, that no additional source of ^{36}Cl is responsible neither for the ^{36}Cl excess nor for the variations of the ratio in the Greenland ice.

The high $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -maxima which cannot be explained solely by production effects in the atmosphere, occur predominantly at the edges of solar minimum periods, where the observed number of sunspots changes rapidly. During the Dalton Minimum meteorological data exist which show unusual climatological behavior occurring together with the $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -maxima. One can conclude therefore that ^{10}Be and ^{36}Cl are also modulated by atmospheric transport effects which themselves may be partly influenced by the variations of solar activity. $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -variations observed during a precipitation event in a thunderstorm confirm indeed that ^{10}Be and ^{36}Cl can be treated differently by atmospheric processes.

1. Kapitel

Einführung

Die klimatischen Verhältnisse spielen für die Menschheit eine zentrale Rolle. Während früher vor allem die Unbill des Wettergeschehens und die Bedrohung der Lebensgrundlage durch ungünstige lokale Klima-
veränderungen im Mittelpunkt standen, rückt heute mehr und mehr die Gefahr anthropogener Klimabeeinflussungen in den Vordergrund. Versuche zur Abschätzung dieser Gefahr zeigten immer wieder die Notwendigkeit auf, die Klimageschichte und die sie bestimmenden Faktoren in der Zeit vor dem menschlichen Einfluss zu kennen. Lückenlose Aufzeichnungen der wichtigsten Parameter wie zum Beispiel der Temperatur, der Niederschlagsmenge und der Windverhältnisse existieren aber höchstens während der letzten zwei Jahrhunderte.

In verschiedenen Archiven konnten Proxis¹ für die weiter zurückliegende Klimageschichte gefunden werden, die sich gegenseitig zu einem bruchstückhaften Bild ergänzten. Beiträge zu diesem Klimabild der Vergangenheit kamen zum Beispiel von der Auswertung geologischer Spuren von Gletschern, Vulkanen oder Sedimenten, von Pollen- und Isotopenuntersuchungen an Sedimentkernen aus Seen und Meeren und von Spurenanalysen in Eiskernen. Von diesen Proxis, die sowohl in ihrer Art als auch in ihrer zeitlichen Auflösungen sehr unterschiedlich sind, wurde auf das umgebende Klima der betreffenden Regionen geschlossen. Dieser Schluss ist mit einigen Interpretationen und Unsicherheiten verbunden, da diese Proxis noch von anderen Parametern abhängen. Ein zentrales Problem, welches damit zusammenhängt, ist die Schwierigkeit, Klima-
veränderungen an verschiedenen Orten der Erde zu synchronisieren.

¹ Unter einem 'Proxi' für die Größe X verstehen wir hier einen Parameter, dessen Verlauf mit demjenigen von X stark korreliert ist. Vom Verlauf des Proxis kann auf die wichtigsten Merkmale des Verlaufs von X geschlossen werden.

1. Kapitel: Einführung

Dadurch wird die Unterscheidung von Ursache und Wirkung oft unmöglich.

Neben der Rekonstruktion der Vorgänge während grosser Klima-
veränderungen in der Vergangenheit stellte sich vor allem auch die
zentrale Frage nach den Ursachen solch globaler Aenderungen in der
Atmosphäre. Erst das Wissen über die natürlichen Schwankungen des
Klimasystems in der Vergangenheit ermöglicht eine Beurteilung des
Ausmasses der heutigen und zukünftigen menschlichen Klima-
beeinflussung.

Auf der Suche nach natürlichen Quellen für Klimaveränderungen stellt
sich sofort die Frage nach der Rolle der Sonne, die offensichtlich einen
fundamentalen Einfluss auf das irdische Klima hat. Das Standard-
Sonnenmodell (z. B. Stix 1991) postuliert während der letzten viereinhalb
Milliarden Jahren eine Zunahme des Strahlungsflusses der Sonne um
zirka 35%. Für Zeitskalen von Tausenden bis Hunderttausenden von
Jahren kann der Strahlungsfluss der Sonne demnach als konstant
angesehen werden. Natürliche Klimaänderungen auf der Erde während
des Quartärs wurden deshalb vor allem im Zusammenhang mit
Variationen in den Erdbahnparametern (Theorie von Milankovic),
Aenderungen des atmosphärischen Strahlungshaushaltes durch Treib-
hausgase oder erhöhter Strahlungsabsorption in der Atmosphäre nach
Vulkanausbrüchen oder nach dem Absturz grosser Himmelskörper auf
die Erde diskutiert. Die Entdeckung der Sonnenflecken zeigte jedoch, dass
auf der Sonne eine kurzzeitige Dynamik existiert. Es wurde beobachtet,
dass die Sonnenflecken sowohl zyklische Veränderungen - bekannt als
"11-Jahreszyklus" oder nach ihrem Entdecker als Schwabezyklus - als
auch azyklische Veränderungen durchlaufen. Das bekannteste Beispiel
für letztere ist das sogenannte Maunder-Minimum der Sonne von 1645 -
1715 AD, welches sich durch das zeitweise fast vollständige Fehlen von
Sonnenflecken auszeichnet (Eddy 1976).

Parallel zu diesen solaren Erscheinungen wurden direkt und indirekt
Auswirkungen in der Erdatmosphäre beobachtet. Historische Quellen

1. Kapitel: Einführung

berichteten über einen deutlichen Rückgang der Anzahl von Nordlichtern und eine Verschlechterung des Klimas auf gewissen Teilen der Erde während der solaren Minima dieses Jahrtausends. Die mit dem Alter immer spärlicheren und qualitativ stark unterschiedlichen Quellen führten jedoch zu Diskussionen über die Verlässlichkeit der Rekonstruktionen dieser Beobachtungsreihen. $\Delta^{14}\text{C}$ -Messungen in Baumringen (Stuiver und Quay 1980) und ^{10}Be -Messungen in Eiskernen (Beer et al. 1988), denen die Mängel der historischen Beobachtungen nicht anhaften, deuteten allerdings ebenfalls auf eine schwächere Sonnenaktivität während der Sonnenfleckenminima hin (siehe Kap. 6.3).

Erst durch Satellitenmessungen seit 1978 konnte zweifelsfrei bestätigt werden, was sich in den Beobachtungen der letzten Jahrhunderte abzeichnete: Der Strahlungsfluss der Sonne ist keineswegs konstant. Vielmehr schwankt die Solarkonstante mit der Sonnenaktivität in verschiedenem Umfang und auf verschiedenen Zeitskalen (Lean 1991). Zur Erklärungen der Schwankungen der solaren Abstrahlung und der Phänomene auf der Sonne existieren verschiedene Hypothesen und Modelle, die aber mangels langer Beobachtungsreihen nicht verifiziert werden können (Newkirk 1984).

In neuerer Zeit wurde verschiedentlich versucht, Zusammenhänge zwischen der Sonnenaktivität und dem Wettergeschehen oder klimatischen Schwankungen der letzten Jahrzehnte nachzuweisen. Ein signifikanter Nachweis dieser subtilen Effekte erwies sich unter anderem wegen der kurzen, punktuellen Beobachtungsreihen und der grossen klimatischen Variabilität als sehr schwierig und gelang nur in einzelnen Fällen (siehe Kap. 6.5).

Die obigen Ausführungen zeigen, dass sowohl für das Verständnis der Sonne als auch für die Klimaforschung ein grosser Bedarf an Parametern besteht, die zuverlässige, lange Beobachtungsreihen für die Sonnenaktivität oder den Klimaverlauf der Vergangenheit liefern. Im folgenden werden die Zeitreihen von ^{10}Be und ^{36}Cl im Eis als Parameter

1. Kapitel: Einführung

für diesen Themenkomplex vorgestellt und die bisherigen Erfahrungen kurz zusammengefasst.

Die Konzentration von ^{10}Be in Eisproben kann heute mit Hilfe der Beschleunigermassenspektrometrie in Proben von einem Kilogramm Eis gemessen werden (siehe auch Kap. 4). Verschiedene Untersuchungen zeigen, dass ^{10}Be in Eiskernen einen wichtigen Beitrag zur Rekonstruktion der Sonnenaktivität leistet. So konnten in der Zeitreihe der ^{10}Be -Konzentration von Dye 3 nicht nur Konzentrationserhöhungen während der solaren Minimumperioden, sondern auch das Signal des Schwabezyklus nachgewiesen werden (Beer 1988; Beer et al., eingereicht). ^{10}Be erweitert somit die Informationen gegenüber dem $\Delta^{14}\text{C}$ nicht nur in weiter als 50'000 Jahre zurückreichenden Archiven (wegen seiner längeren Halbwertszeit), sondern auch auf Zeitskalen von wenigen Jahren wegen der kleineren Dämpfung der kurzperiodischen solaren Signale infolge der wesentlich kürzeren Aufenthaltszeit von ^{10}Be in der Atmosphäre und durch sein unterschiedliches Verhalten während des Transports. Dieses lässt Rückschlüsse auf den Anteil von Produktion und Transport an den Signalen in den Isotopenzeitreihen zu.

Zu Beginn wurden die Produktion und das Verhalten von ^{36}Cl und ^{10}Be in der Atmosphäre als sehr ähnlich angesehen. Man nahm an, dass sich durch Verhältnisbildung die gemeinsamen Variabilitäten eliminierten und deshalb das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis im Eis nur aufgrund der unterschiedlichen Halbwertszeiten von ^{10}Be (1.51 Mio. Jahre) und ^{36}Cl (301'000 Jahre) mit einer "Halbwertszeit" von 376'000 Jahren zunehme. Das Ziel der ersten Vergleichsmessungen von ^{10}Be und ^{36}Cl an den gleichen Eisproben von Grönland war denn auch, die Eignung des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses als Datierungsmethode für sehr altes Eis zu testen. Ueberraschenderweise fand man aber sehr starke $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen von bis zu einem Faktor 4 (Elmore et al. 1987a; Suter et al. 1987). Diese unerklärlichen Schwankungen verunmöglichten eine Datierung. Man wurde sich jedoch gewahr, dass offensichtlich Unterschiede im Verhalten von ^{10}Be und ^{36}Cl existierten, die möglicherweise

1. Kapitel: Einführung

Informationen über atmosphärische Prozesse oder Produktionsunterschiede enthalten.

Bisher existierte nur eine einzige lange ^{36}Cl -Zeitreihe von Camp Century in Grönland (Conard et al. 1989, siehe auch Kap. 5 und Fig. 5.1.1). Trotz der abschnittsweise unsicheren Datierung dieses Kerns und der Auflösung von maximal vier bis zehn Jahren sind langfristige Phänomene, wie die ^{36}Cl -Konzentrationserhöhung während des Maunder-Minimums, sichtbar, was darauf hinwies, dass die beobachtete ^{36}Cl -Produktion in der Atmosphäre ungefähr der von Blinov (1988) berechneten entsprach. Andererseits fand man einen mittleren globalen ^{36}Cl -Fluss, der bis zu einem Faktor 10 höher war als erwartet. Eine Idee zur Lösung der Ungereimtheiten war eine zusätzliche, nicht an die Spallation gebundene ^{36}Cl -Quelle, die aber bisher nicht identifiziert werden konnte.

Ziele dieser Arbeit

Die Ziele dieser Arbeit werden aus den bisher gemachten Erfahrungen mit ^{10}Be und ^{36}Cl und durch die Bedürfnisse der Sonnen- und Klimaforschung vorgegeben.

Bisher wurden nur sehr wenige ^{36}Cl -Proben gemessen. Deshalb geht es zunächst darum, die Aufbereitungsmethode auf grosse Probenserien anzuwenden und sicherzustellen, dass eine routinemässige Messung von ^{36}Cl mit gleichbleibender Qualität möglich ist.

Die Werte der ^{10}Be -Konzentrationen der Eisproben der Kerne von Milcent und Dye 3 in Grönland liegen bereits vor. Diese Kerne umfassen eine ähnliche Zeitspanne wie die ^{36}Cl -Reihe von Camp Century, weisen aber eine feinere Auflösung auf. An denselben Proben sollen die ^{36}Cl -Konzentrationen bestimmt werden. Damit sollen die ersten ^{36}Cl -Messungen bestätigt und erweitert werden. Durch den Vergleich

1. Kapitel: Einführung

verschiedener Kerne will man verifizieren, dass es sich bei den oben beschriebenen Beobachtungen weder um stark lokal geprägte Vorkommnisse, noch um Artefakte der Probenahme oder der Messung handelt.

Die gängigen Produktionsvorstellungen von ^{36}Cl sollen durch den Nachweis der erwarteten solaren Signale in den ^{36}Cl -Zeitreihen beider Eiskernen überprüft werden. Eine wichtige Frage ist, wie ähnlich sich die Verläufe von ^{10}Be und ^{36}Cl sind. Die Art und das Auftreten der Unterschiede zwischen ^{10}Be und ^{36}Cl lassen möglicherweise Rückschlüsse auf eventuelle zusätzliche ^{36}Cl -Quellen zu.

Das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis im Eis soll auf seinen Informationsgehalt für atmosphärische Prozesse untersucht und der Informationsgewinn durch die zusätzlichen ^{36}Cl -Messungen abgeschätzt werden. Zum besseren Verständnis der Eisdaten werden diese nach Möglichkeit durch ^{10}Be - und ^{36}Cl -Messungen in Niederschlägen oder in der Atmosphäre ergänzt.

2. Kapitel

Probenahme und Aufbereitung der Proben

2.1 Einführung und Ueberblick

Bemerkung: Mit $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ ist immer das Verhältnis von ^{36}Cl zur Summe aller Chlorisotope gemeint.

^{36}Cl -Messungen werden an sehr unterschiedlichen Proben durchgeführt. So wurden schon Schnee, Eis, Regenwasser, Grundwasser, verschiedene Gesteine und Luftfilter verarbeitet. Aus welchem Archiv man auch ^{36}Cl messen will, der Aufschluss des Materials endet bei unserer Messmethode immer in der Bindung aller Chlorisotope in festem Silberchlorid (AgCl). Die Vorarbeit dazu erfordert bei verschiedenen Proben individuell angepasste Schritte. Diese Verfahren werden noch optimiert und sind eine ganze Arbeit für sich. Grundsätzlich ist es das Ziel, alles Chlorid in einer Probe in Lösung zu bringen. Je nach erwartetem Chlorgehalt und $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis wird der Probe zusätzlich eine genau bekannte Chlormenge, die kein messbares ^{36}Cl enthält, beigegeben, um genügend AgCl -Niederschlag zu erhalten (sog. "Carrier"). Nach Beigabe von Silber in der Form von AgNO_3 -Lösung wird das Chlor als Silberchlorid ausgefällt. Dieses muss nachher noch gereinigt und in ein Trägerplättchen eingepresst werden.

Die Beschleunigermassenspektrometrie ist keine absolute Messmethode. Mit dem Beschleunigermassenspektrometer wird das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis gemessen (siehe Kapitel 4). Ein wesentlicher Vorteil dieser Methode besteht darin, dass nach der homogenen Vermischung von Carrier und

2. Kapitel: Probenahme und Aufbereitung der Proben

dem ^{36}Cl der Probe das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis fest ist. Damit entfällt die Notwendigkeit, die genaue Ausbeute bei der Probenherstellung zu kennen. Die Normierung der Messung erfolgt durch periodisches Messen eines Standards mit bekanntem $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis.

Die Qualität der Probenaufbereitung wird periodisch durch sogenannte Blanks überprüft. Dabei wird eine Probe aus deionisiertem Wasser zusammen mit einer Serie echter Proben aufbereitet und analysiert. Damit können Kontaminationen im Labor erkannt werden.

Hier werden nur die Aufbereitung, die für das Eis angewendet wurde, sowie die Reinigungsschritte für das AgCl beschrieben. Im Eis ist sehr wenig natürliches Chlor und extrem wenig ^{36}Cl (nur ca. 10^6 ^{36}Cl -Atome pro kg) vorhanden. Deshalb ist die Zugabe von Carrier unerlässlich. Falls selbst die normale Carriermenge nicht genügt, so kann das Volumen der Probe zusätzlich vergrößert werden, indem man NaBr zugibt und eine Mischung von AgCl/AgBr ausfällt. Damit wird die Pulvermenge vergrößert, ohne zusätzliche Reduktion des $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisses.

^{36}Cl hat ein Isobar, ^{36}S , welches im Detektor um einen Faktor 12'000 unterdrückt werden kann (Synal 1989). Das natürliche $^{36}\text{S}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis liegt aber um Größenordnungen über diesem Wert. Daher muss der Schwefel auf chemischem Wege möglichst vollständig entfernt werden. Dies geschieht durch Ausfällung in Form von BaSO_4 . Probleme mit dieser Methode werden später besprochen (vgl. Kapitel 3.2). Erwähnt sei hier lediglich, dass nicht nur im Labor, sondern auch bei der Auswertung der Messergebnisse ein gewisser Schwefeluntergrund korrigiert werden kann, wenn die Probe nicht zu knapp über dem Blank liegt (siehe Kapitel 4). Deshalb ist es wichtig, das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis nicht durch Zugabe von zuviel Carrier zu klein werden zu lassen. Nach der Trocknung werden die Proben in ein Tantalplättchen gepresst, das wiederum in ein Kupferplättchen eingelassen ist. Das ganze wird "Target" genannt (vgl. Figur 2.3.1).

2. Kapitel: Probenahme und Aufbereitung der Proben

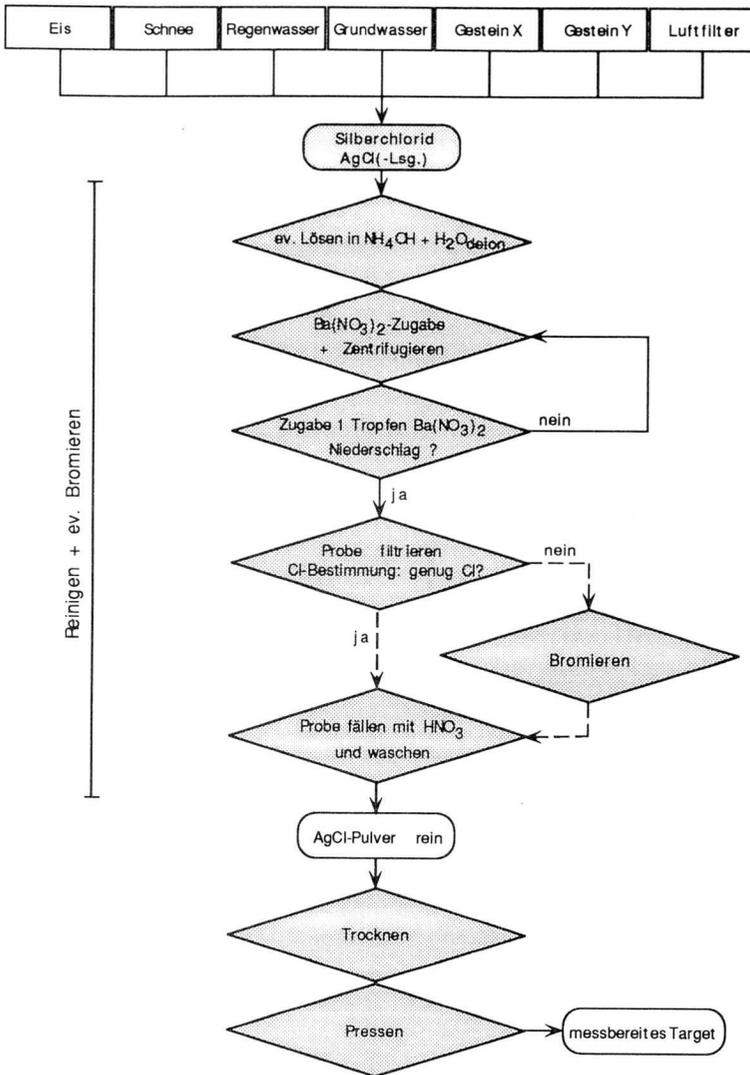
Die folgenden Ansprüche werden an eine Probenahme gestellt:

1. Vom wissenschaftlichen Standpunkt aus möchte man eine möglichst gute Auflösung, d. h. Proben in möglichst kleinen Intervallen nehmen und gleichzeitig so wenig Probenmaterial als möglich nach Hause tragen.
2. Bei der Probenaufbereitung und der Messung möchte man möglichst viel Probenmaterial (AgCl) haben. Dazu braucht es entweder viel natürliches Chlorid, oder man muss entsprechend viel Carrier zugeben.
3. Die Messung ist umso einfacher, je grösser das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis ist (der Fehler ist proportional zur Wurzel aus der Anzahl der Ereignisse).

Diese Forderungen widersprechen sich natürlich. Ueblicherweise werden für eine Probe 1-2 kg Eis und 3.8 mg Cl-Carrier verwendet. Die $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse betragen dann typischerweise 5×10^{-14} , während der Blank-Wert im Bereich von 10^{-15} liegt. Bei einer guten zeitlichen Auflösung kommt man also relativ nahe an die Messgrenze, da 5×10^{-14} bei Eisproben ein mittlerer Wert ist. Diese Tatsache stellt hohe Anforderungen an die Probenherstellung, da bereits Spuren von Schwefel zu einem störenden Untergrund führen können.

Zusammenfassend ergibt sich das in Figur 2.1.1 dargestellte Verarbeitungs-Flussdiagramm.

2. Kapitel: Probenahme und Aufbereitung der Proben



Figur 2.1.1 Flussdiagramm der ^{36}Cl -Probenverarbeitung

2.2 Eisprobenaufbereitung

2.2.1 Einleitung

Das Verfahren zum Bohren im Eis unterscheidet sich von dem bei Öl- oder Gesteinsbohrungen. Während bei letzteren das Bohrloch mit Rohren ausgekleidet wird, finden bei neueren Eisbohrungen (Dye 3, Summit)

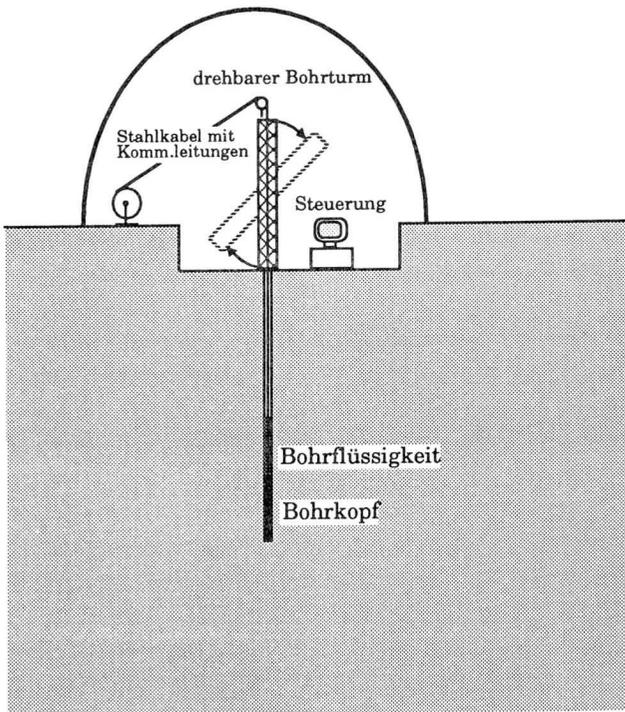


Fig. 2.2.1 Schematischer Querschnitt durch die Bohrkuppel bei einer Eisbohrung.

freihängende Bohrer Verwendung (siehe Figur 2.2.1 und Gundestrup und Johnsen (1985)). Dabei wird ein Bohrkopf, der den Antrieb und die Energieversorgung enthält, an einem Stahlkabel freihängend in das Bohrloch gesenkt. Bei der Bohrung wird dieser Kopf gegen das Eis verspannt und ein etwa 2.3 m langes Eisstück erbohrt. Danach wird der Kopf mitsamt inkorporiertem Eisstück an die Oberfläche gehievt, das Eis entnommen und der Bohrer für einen weiteren Bohrgang vorbereitet. Die Steuerung findet von der Oberfläche aus über Kabel statt.

Bei Flachbohrungen bis maximal 400 m Tiefe wird trocken gebohrt. Bei Tiefbohrungen muss hingegen das Bohrloch mit einer Flüssigkeit gefüllt werden, die ungefähr die Dichte des umgebenden Eises hat. Damit wird verhindert, dass sich das Bohrloch infolge des Eisflusses mit der Zeit schliesst. Bei der europäischen Bohrung auf Summit (GRIP) wurde als Bohrflüssigkeit ein Gemisch aus Dieselöl und Freonen verwendet.

2.2.2 Reinigung der Bohrkerne

Die Bohrflüssigkeit muss vor der Analyse von der Kernoberfläche entfernt werden. Sobald nämlich das Eis aus dem Bohrer entnommen wird, haftet ein Teil der Flüssigkeit an der Oberfläche an. Wenn der Kern zerbrochen ist, sind sämtliche Teile verschmutzt. Die Dieselölszusammensetzung schwankt je nach Herkunft und Reinheitsgrad erheblich. Jedoch enthält Dieselöl kaum Bor, praktisch kein Beryllium und höchstens Spuren von Chlor. Deshalb sind die Mengen dieser Substanzen gegenüber dem Carrier vernachlässigbar. Der Schwefelanteil in der Bohrflüssigkeit würde hingegen die Messung stören, obwohl skandinavisches Dieselöl auch schwefelarm sein dürfte (Angaben des Eidgenössischen Treibstofflabors an der EMPA in Dübendorf). Der Schwefel kann aber mit unseren Reinigungsmethoden eliminiert werden.

2. Kapitel: Probenahme und Aufbereitung der Eisproben

Um möglichst saubere Kerne zu verarbeiten, kann deren Oberfläche auf drei Arten gereinigt werden:

- 1) Abkratzen respektive Abschleifen der obersten Schicht mit Schabern oder Schleifpapier
- 2) Anschmelzen und Abwischen der obersten Schicht mit Fön und Krepppapier auf einem Drahtgitter
- 3) Eiskern unter fliessendem deionisiertem Wasser abwaschen (Engl. sog. "Rinsing").

Diskussion der 3 Methoden:

Die dritte Methode ist wegen ihres grossen Reinwasserbedarfs kaum feldtauglich. Sie bewährt sich vor allem, wenn Eis im Labor aufbereitet wird. Sie wurde bei den Dye 3 Proben angewendet. Methode 2 ist stromabhängig. Wir haben sie im Feld ausprobiert. Eine vollständige Entfernung des Dieselöls ist damit nicht möglich. Das abgeschmolzene Flüssigkeitsgemisch rinnt am Eis herunter und haftet leicht wieder an, wenn man es nicht rechtzeitig abwischt. Das Dieselöl schwimmt als dünne Schicht obenauf, wird aber durch das Krepppapier nicht, wie ursprünglich erhofft, vollständig aufgenommen. Trotzdem sind die ersten Messungen an so präparierten Proben vom Summit-Kern erfolgreich verlaufen. Kleine Dieselölrückstände scheinen also erwartungsgemäss nichts auszumachen. Mit der Methode 1 haben wir keine eigenen Erfahrungen. An der Universität Bern wurden Kerne mit sehr scharfen Klingen (sog. Mikrotomen), wie sie in der Medizin Verwendung finden, abgeschabt (Beer, pers. Komm.). Allerdings ist diese Methode nur bei unzerbrochenen Eisstücken anwendbar. Sie hat den Vorteil, dass sie ohne Strom- und Reinstwasser auskommt.

Alle Methoden sind schwierig anzuwenden, wenn man brüchiges Eis in kleinen Stücken hat. Bei der zweiten Methode springt das Eis durch die

Wärmeeinwirkung vermehrt. Eine Reinigung ist dann nur unter grossen Probenverlusten möglich (Methode 2).

2.2.3 Aufbereitungsmethoden

1. Herkömmliche Aufbereitungsmethode

Nachdem das Eis vom Feld ins Labor transportiert worden ist, wird es dort geschmolzen und die Wassermenge hernach mit Hilfe eines Eindampfsystems reduziert. Dieses besteht aus einem Gefäss auf einer Waage als Niveauregler. Das Eindampfen mit Hilfe einer Wärmelampe geschieht in 3 Schritten (2000 - 200 ml, 200 - 20 ml, 20 - 5 ml), von denen jeder 8-12 Stunden dauert. Der Niveauregler schaltet nach jedem Schritt die Wärmelampe aus und verhindert, dass die Probe vollständig eingedampft wird, da sonst das Chlorid in die Gasphase geht und verloren ist. Das Probenvolumen nach dem Eindampfen beträgt 5 - 8 ml.

2. Eisproben auf Ionentauscher-Säulen

Die oben beschriebene herkömmliche Aufbereitungsmethode ist nicht felddauglich, so dass man das Eis über grosse Strecken transportieren muss, was mit einigem Aufwand an Zeit und Kosten verbunden ist. Aus diesem Grund hat man nach einer einfacheren und schnelleren Lösung gesucht.

Bei der Säulenmethode (Fig. 2.2.2) wird das Eis geschmolzen. Die darin enthaltenen Spurenstoffe werden getrennt nach Anionen und Kationen auf Ionentauscherharze geladen. Somit brauchen nachher nur noch diese Säulen transportiert und gelagert zu werden.

2. Kapitel: Probenahme und Aufbereitung der Eisproben

Hier wird nur der Aufbau der Beladungslinie kurz beschrieben. Ausführlichere Angaben über andere Erfahrungen mit dieser Methode im Feld sowie über Kosten und Organisation befinden sich im Anhang 2.

Das Design des Systems wird durch die beschränkten Ressourcen im Feld bestimmt. In Summit standen uns ein zwei Meter hohes Polarzelt und eine Energieversorgung von etwa 3 Kilowatt, jedoch nur wenig Reinstwasser zur Verfügung. Deshalb wurden die Eiskerne mit Hilfe eines Heissluftföns gereinigt und in Mikrowellenöfen geschmolzen. Bis zu zwanzig Vorratsbeutel mit den geschmolzenen Proben wurden auf ein in etwa 1.5 Metern über den Säulen hängendes Brett gesetzt (vgl. Fig. 2.2.2). Dieses hydrostatische Druckgefälle genügte, um eine 1 Liter-Probe in etwa 3 Stunden durch einen 40 μ m-Polyamid-Filter, der zur Ausfilterung kleiner Partikel im Eis dient, und das Säulensystem laufen zu lassen.

Wegen der grossen Zeitersparnis wird heute auch im Labor ausschliesslich die Säulenmethode verwendet.

Eluieren der Säulen

Die Säulen werden im Labor eluiert. Das Cl⁻ (oder die Chlorisotope) werden mit 90 ml (9 Säulenvolumina) HNO₃ (1 molar) eluiert. In Tests konnte mittels 10 ml-Fractionen festgestellt werden, dass nach 9 Säulenvolumina alles Chlorid eluiert ist (Bollhalder, pers. Komm.). Durch Zugabe eines dreifachen Silbernitrat-Ueberschusses wird AgCl in 100 ml Tuben gefällt. Danach wird die Probe 1 bis 5 Stunden stehengelassen, hernach zentrifugiert und abdekantiert. Die Probe wird nun mit NH₄OH_{konz} (25%) und H₂O_{deion} aufgelöst und in 10 ml Tuben transferiert. Diese haben eine kleinere Oberfläche und eine geeignetere Form, wodurch der Probenverlust minimal bleibt.

Wichtige Bemerkung

Das angegebene Eluationsverfahren gilt, wenn man nur an Chlor interessiert ist. Unser Ziel war es, von der Kationensäule Beryllium und Aluminium und von der Anionensäule Chlorid zu eluieren. Durch geeignete Wahl des pH-Wertes der Eluationslösung können die verschiedenen Stoffe nacheinander von der Säulenmatrix gelöst und damit getrennt werden. Dieses Verfahren wird im Fall von Beryllium und Aluminium verwendet.

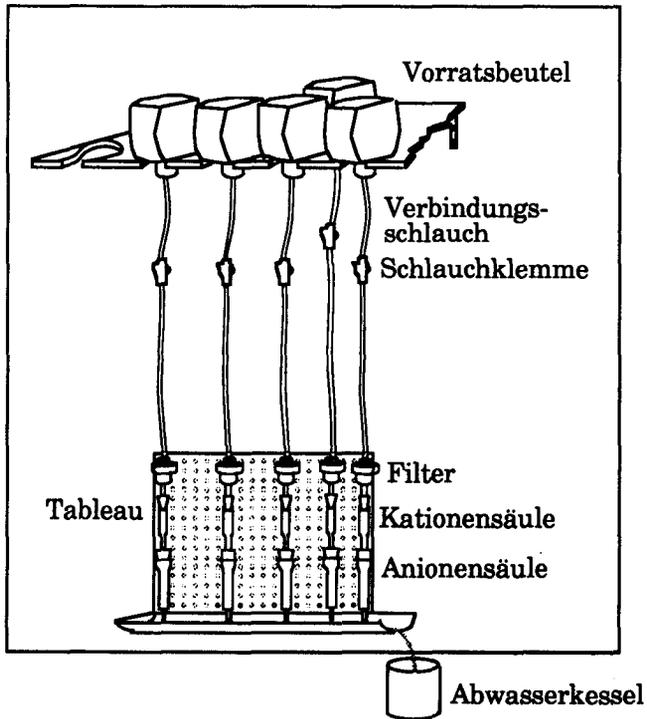


Fig. 2.2.2 Skizze des Säulenbeladungsplatzes, wie er in Summit eingerichtet wurde.

2.3 Reinigen und Pressen von ^{36}Cl -Proben

2.3.1 Beschreibung der Reinigungsmethode

Die hier beschriebene Reinigungsmethode wurde schon von verschiedenen Gruppen in ähnlicher Weise angewendet (zum Beispiel Suter et al. 1987). Für diese Arbeit wurde sie in unserem Labor zum ersten Mal für umfangreiche Probenserien aus Eisbohrkernen eingesetzt. Es war das Ziel, auch bei grossen Probendurchsätzen eine gleichbleibende Verarbeitungsqualität zu erreichen. Die anfänglichen Schwankungen der Probenmenge und der Targetqualität konnten durch Optimierung der einzelnen Schritte bei der Reinigung und beim Pressen fast vollständig eliminiert werden. Diese Reinigungsmethode gewährleistet also, dass die Proben im Labor nicht kontaminiert werden. Durch die Carrierzugabe wird das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis durch kleine Probenverluste nicht verfälscht. Nachmessungen einzelner Proben zeigen, dass die Resultate innerhalb des Messfehlers reproduzierbar sind.

Zu Beginn der Reinigung muss das Silberchlorid in $\text{NH}_4\text{OH} + \text{H}_2\text{O}_{\text{deion}}$ gelöst vorliegen. Das Probenvolumen beträgt wenige Milliliter. Diese Lösung ist bei über mehrere Jahre aufbewahrten Proben oft braun. Das hat aber auf die späteren Messergebnisse keinen Einfluss. In einem ersten Schritt wird der Schwefel durch Zugabe von gesättigter Bariumnitratlösung aus der Probe entfernt. Der Schwefel fällt in Form von weissem Bariumsulfat aus. Nach der Bariumnitrat-Zugabe muss die Probe für wenige Stunden zugedeckt stengelassen werden, damit sich genügend grosse Kristalle bilden können. Andernfalls besteht die Gefahr, dass bei der anschliessenden Filtrierung nicht aller Niederschlag vom $0.45\mu\text{m}$ -Filter zurückgehalten wird. Die Bariumnitrat-Zugabe und das Abfiltrieren werden so lange wiederholt, bis kein BaSO_4 -Niederschlag mehr sichtbar ist.

Die Fällung der Probe kann auf zwei Arten geschehen. Bei Proben, die 4 mg und mehr Chlorid enthalten, wird das AgCl direkt durch Zugabe von

2. Kapitel: Probenahme und Aufbereitung der Proben

konzentrierter Salpetersäure ausgefällt. Der pH der Lösung sollte danach kleiner als zwei sein. Dann fällt das weisse AgCl flockig aus. Bei kleineren Probenmengen wird Bromid zur Lösung zugegeben und wiederum durch Zugabe von HNO₃ (65%) eine Mischung von AgCl und AgBr ausgefällt. Dieses Pulver hat meist eine gelb-grünliche Färbung.

Nach der Fällung wird die Probe zweimal gewaschen, das heisst mit H₂O_{deion} aufgeschlämmt, zentrifugiert und abdekantiert. Anschliessend wird sie im Trockenschrank bei 80°C während 12 Stunden getrocknet. Die fertigen Proben müssen vor Licht geschützt aufbewahrt werden.

Kommentare zum Reinigungsvorgang:

In der Regel funktioniert diese Reinigungs- und Fällungsmethode von AgCl einwandfrei. Als sehr wichtig hat sich das Stehenlassen nach den Fällungen erwiesen. Folgende Probleme konnten hingegen noch nicht befriedigend gelöst werden:

- Ab und zu wies eine Eisprobe aus einer Serie nach der AgCl-Fällung eine andere Konsistenz auf als die anderen. Mehrmals fielen solche Proben als hartes weisses Salz aus, das mit dem AMS nicht messbar war. Bei diesen Proben waren weder besondere Vorkommnisse vermerkt noch irgendwelche Schritte anders ausgeführt worden.
- Die Carriermenge von 3.8 bis 4 mg Cl/Probe genügt erfahrungsgemäss, um die Probe fest genug zu pressen und das Tantal in der Umgebung des Mittel Lochs des Probenhalters (Fig. 2.3.1) abzudecken. Ab und zu stellen wir aber kleine Unterschiede in der Menge von gefällttem AgCl fest. Deshalb wurde die Ausbeute bei der Säulenaufbereitungsmethode bestimmt. Sie betrug regelmässig nahezu 100%. Die Verluste traten in diesen Fällen also bei der Reinigung auf. Die folgenden Ursachen kommen dafür in Frage:

2. Kapitel: Probenahme und Aufbereitung der Proben

- 1) Kolloidale Ausfällungen. Das sehr feine Pulver setzt sich beim Zentrifugieren nicht genügend und wird beim Abdekantieren teilweise weggeschüttet, ohne dass man es bemerkt. Diese Möglichkeit ist nach stundenlangem Stehenlassen allerdings unwahrscheinlich.

Eine weitere Möglichkeit ist, dass dieser kolloidale Niederschlag nach dem Trocknen als feiner Ueberzug an den Tubenwänden haftet und nicht mehr verwertbar ist.

- 2) Unregelmässige Ausfällungen. Oft wird bei gleichen Umgebungsbedingungen eine sehr unterschiedliche Konsistenz des Niederschlags beobachtet. Manchmal fällt der Niederschlag unmittelbar nach der Säurezugabe sehr flockig und dick aus, manchmal aber nur zögernd und als feines Pulver. Falls überhaupt kein Niederschlag beobachtet wird, so muss angenommen werden, dass im Feld kein Carrier zugegeben worden ist.

Die beobachteten Unterschiede sind gerade bei Eisproben erstaunlich. Im Eis hat es nämlich praktisch keine Verunreinigungen, die die AgCl-Fällung hemmen könnten oder die mitgefällt werden. Bei Gesteinsproben, wo solche Verunreinigungen vorkommen, findet man dann Farbveränderungen, die bei Eisproben nie beobachtet werden. Auch signifikante natürliche Chloridgehalte sind selten. Es bleibt offen, ob im Feld bei einzelnen Proben die Carriermenge nicht korrekt zugegeben wurde (z. B. durch unsauberes Pipettieren) oder ob die Unterschiede im Fällungsvorgang selber begründet liegen.

Gemäss dem "Lehrbuch der anorganischen Chemie" S. 1015 (Holleman 1985) kann die überstehende Lösung nach der AgCl-Fällung noch trübe sein. Dies rührt von kolloidalem AgCl her, das durch überschüssige Cl⁻- oder Ag⁺-Ionen in der Lösung stabilisiert wird. Bei der Klärung der überstehenden Lösung sind keine überschüssigen Cl⁻- oder Ag⁺-Ionen mehr vorhanden, worauf auch

das kolloidale AgCl flockig ausfällt. Die in der Lösung enthaltene Cl⁻-Menge wurde nie bestimmt, da die Lösung nach dem Zentrifugieren immer klar war. Wenn aber die Kolloide gravitativ aus der Lösung entfernt werden, dann haften sie vielleicht an den Tubenwänden, und es ist auch möglich, dass noch ein Teil der Cl⁻-Ionen in der Lösung ist, da die Klärung nicht durch Titration erfolgt.

2.3.2 Bemerkungen zum Bromieren

Durch die Zugabe von Bromid zur Probe und die Fällung einer Pulvermischung AgCl-AgBr im Verhältnis von ca. 1:1 wird das Pulvervolumen verdoppelt. Dadurch kann man bei sehr kleinen Proben das zum Pressen notwendige Volumen oder bei Proben mit knapper Probenmenge eine sattere Pressung erreichen. Je satter die Probe gepresst ist, desto härter wird das Probenmaterial. Somit dauert es während der Messung länger, bis der Cäsium-Strahl auf das Trägermetall trifft (Durchbrennen). Die längere Messzeit erhöht die Zahl der detektierten ³⁶Cl-Ereignisse, was den Messfehler verkleinert. Durch die sattere Pressung haftet die Probe aber auch besser auf dem Trägermetall. Deshalb ist die Gefahr kleiner, dass sie sich während der Messung ablöst oder dass sie gar verdampft. Man erreicht durch die bessere Haftung wiederum eine längere Messzeit, da die Messung einer Probe nach beiden Ereignissen abgebrochen werden muss. Diesen Vorteilen stehen folgende Nachteile gegenüber: Erstens wird der Ionenstrom von ³⁵Cl und ³⁷Cl reduziert, was den Fehler vergrößert; zweitens wird das fertige Target etwas spröder (vgl. Kapitel 3.1 "Versuche zur AgCl-Konsistenz"), was die Vorteile der besseren Pressung wieder etwas aufhebt, und drittens löst sich das AgBr bei einer allfälligen zweiten Aufbereitung sehr schlecht in NH₄OH (siehe Abschnitt 2.3.3). Für eine vollständige Auflösung braucht man KCN, was man aber vermeiden möchte, da es sehr giftig ist.

2. Kapitel: Probenahme und Aufbereitung der Proben

Diese Nachteile spielen aber eine untergeordnete Rolle. Deshalb wird das Bromieren bei Wiederaufbereitungen und bei Proben mit einem Gehalt von weniger als 4 mg Chlorid angewendet.

2.3.3 Die Wiederaufbereitung bereits gemessener Proben

Der Hauptgrund für eine Wiederaufbereitung ist eine Schwefelverunreinigung bei der ersten Messung. Die Probe wurde also bereits gepresst und erfuhr einen gewissen Materialverlust durch das Beschiessen mit dem Cäsium-Strahl in der Ionenquelle. Wenn die Probe nur aus AgCl besteht, lässt sie sich leicht aus dem Plättchen herausdrücken, wiederauflösen und nachreinigen. Wurde sie bereits mit AgBr "gestreckt", so empfiehlt es sich, das AgBr in $\text{NH}_4\text{OH} + \text{H}_2\text{O}_{\text{deion}}$ mit Hilfe eines Stabes und eines Ultraschallbades fein zu mahlen. Das AgCl löst sich dann heraus. Auf eine Behandlung mit KCN kann deshalb verzichtet werden.

Wegen des Materialverlustes bei der Messung muss beim Wiederaufbereiten noch mehr Bromid zugefügt werden. Dabei ist zu beachten, dass bei einem Verhältnis von Br:Cl > 2:1 die Zählstatistik schlecht wird, wenn nicht sehr viel ^{36}Cl vorhanden ist.

2.3.4 Kontaminationsquellen im Labor

Die Kontamination der Proben im Labor kann wegen der geringen Substanzmengen unmerklich geschehen. Deshalb sind vorbeugende Massnahmen und die Kenntnis von möglichen Kontaminationsquellen sehr wichtig. In Tabelle 2.3.A sind die häufigsten Quellen im Labor zusammengestellt. Schwefel und Chlor finden sich wegen ihrer guten Löslichkeit hauptsächlich im Wasser, aber auch an ungewaschenen Utensilien im Labor und an der Haut. ^{36}Cl kann in genügender Menge praktisch nur durch Neutronenquellen aus ^{35}Cl erzeugt und nachher

Spezies	Wirkung	Herkunft	Vorsichtsmaßnahmen
^{35}Cl , ^{36}Cl , Neutronen	Neutronenaktivierung von ^{35}Cl	Neutronenquellen finden hauptsächlich in der Kernphysik Verwendung	<p>Labor möglichst nicht in einem Gebäude, in dem mit Neutronenquellen oder neutronenaktivierten Materialien gearbeitet wird oder wurde (Übertragung durch Staub, Gefässe,...), vgl. dazu auch Bascom Purdy (1991)</p> <ul style="list-style-type: none"> - in der Clean-bench arbeiten - Rauchverbot - keine Zugluft - keine Salzsäure oder andere chlorhaltige Chemikalien im gleichen Labor - klinisch saubere Arbeitsweise - alle Gefässe, Filter, etc. vor Gebrauch mit H_2O deion spülen, mehrfach verwendete Utensilien auch nach jeder Probe, nichts mit der Hand anfassen
Alle Chlorisotope (35,36,37)	verfälschen das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ - Verhältnis	aus der Luft (z.B. HCl-Dämpfe), aus Zigarettenrauch, Staub, ...), Kreuzkontamination mit anderen Proben (ungewaschenes Werkzeug oder schmutzige Filter), von Salzen auf der Haut	
^{36}S	Verunreinigung (gleiche Masse wie ^{36}Cl , stört die Messung)	ungenügend deionisiertes Wasser	Ionentauscher regelmässig kontrollieren und rechtzeitig auswechseln. In Gebieten mit schwefelhaltigem Wasser eventuell H_2O bidest verwenden

Spezies	Wirkung	Herkunft	Vorsichtsmaßnahmen
³⁶ S	Verunreinigung	fast allgegenwärtig, in Rauch, Staub, Flüssigkeiten, auf Haut und Haaren, in der Luft (Heizungen)	<ul style="list-style-type: none"> - separates Labor - separater Trockenofen - in der Clean-bench arbeiten - Proben nicht offen stehen lassen. - Rauchverbot - keine Zugluft - keine Fremdkörper in der Probe - Vorsicht vor verschmutzten Chemikalien, Wasser und Labormaterialien - Nichts von Hand anfassen, was mit der Probe in Kontakt kommt - Alles, was mit der Probe in Kontakt kommt, vorher mit H₂O deion waschen (Schwefel löst sich gut im Wasser)
Aluminium	bildet Aluminiumchlorid, welches sehr stark hygroskopisch ist	am ehesten Alufolie, die als Lichtschutz und beim Pressen verwendet wurde (nicht mehr klar	keine Fremdkörper in Kontakt mit dem Pulver
Licht	reduziert Ag ⁺ zu Ag ⁰ , wobei sich ev. Cl ⁻ -Gas bildet		Proben nicht lange am direkten Licht verarbeiten oder stehenlassen. Aufbewahren nur in speziellen Kartonschachteln für Zentrifugentuben

Tab. 2.3.A: Kontaminationsquellen im Labor

durch Staub ins Labor eingetragen werden. Standardlösungen mit hohen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnissen sollten nicht im Labor aufbewahrt werden.

2.3.5 Pressen von ^{36}Cl -Proben

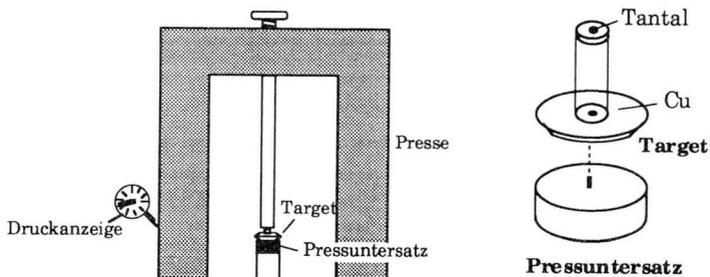


Fig. 2.3.1 Skizze des Targets mit Pressuntersatz und der Presseinrichtung

Das Target besteht aus einem Kupferplättchen mit Mittelloch, auf dessen Rückseite ein Stahlring eingelassen ist. Durch diesen wird das Target während der Messung in der Quelle durch einen Magneten in Position gehalten (Figur 4.1.2). Auf der Vorderseite wird für die ^{36}Cl -Messung ein Tantalplättchen mit einer Vertiefung in der Mitte eingelassen (Fig. 2.3.1). Vor dem Beginn des Pressens wird das Tantal mit einer Mischung aus Fluss- und Salpetersäure angeätzt, um dessen Oberfläche zu reinigen. Ins Mittelloch der so präparierten Plättchen wird die AgCl -Probe eingepresst. Da das Tantal sehr duktil ist, wird das Plättchen beim Pressen durch den Mitteldocht der Unterlage aus gehärtetem Stahl gestützt. Der Pressdruck beträgt $3.5 \text{ Tonnen}/\text{cm}^2$. Das Tantal um das Mittelloch wird in einem Radius von drei Millimetern mit Probenmaterial oder Silberbromid

abgedeckt, um die Extraktion von Schwefel aus dem Trägermetall während der Messung zu unterdrücken. Das Pressen einer Probe mit knapper Pulvermenge dauert ungefähr zehn Minuten. Das fertige Target muss vor Licht geschützt werden. Es sollte nicht länger als ein Jahr aufbewahrt werden, da sich das AgCl auf der Oberfläche des Tantal mit der Zeit umzuwandeln scheint, worauf die Probe nicht mehr richtig auf dem Trägermetall haftet.

2.4 Zur Dokumentation und Arbeitstechnik

Bemerkung

Die folgende "Vorschrift" mag in dieser Arbeit etwas seltsam anmuten. Jede Arbeitsgruppe wird ihre eigene Lösung dieses Problems finden. Mit diesem Beispiel soll einfach darauf hingewiesen werden, dass eine sorgfältige Dokumentation unerlässlich ist. Erfahrungsgemäss weiss das zwar jeder, in der Praxis geht es dann aber doch oft unter.

In unserem Labor wurden folgende Dokumente angelegt:

1. Ein Eingangskatalog, in dem das Eingangsdatum, die Probenbezeichnung des Senders, die zugegebene Carriermenge, das Probengewicht, die Beschaffenheit der Probe und charakteristische Grössen festgehalten werden. Es ist von Vorteil, diesen Katalog als Heft zu führen.
2. Eine Datenbank auf dem PC, wo sämtliche Daten einer Probe inkl. Messergebnisse jederzeit abgerufen werden können. Daraus werden auch die Inputdaten für das Messprogramm zusammengestellt. Der Eintrag in diese Datenbank erfolgt bei Beginn der Verarbeitung. Es ist dienlich, die wichtigsten Probedaten nur in *einer* Datenbank (rsp.

2. Kapitel: Probenahme und Aufbereitung der Proben

einer Datenbank pro Archiv) zu speichern. Das erleichtert ein späteres Abfragen der Daten.

3. Ein Laborordner pro untersuchtes Isotop, in dem jede Probe eine eindeutige Nummer erhält, wenn die Verarbeitung beginnt. Wird die Probe ein zweites Mal im Labor behandelt, erhält sie eine neue Nummer.
4. Ein Laborjournal, in dem die Verarbeitungsschritte und eventuelle Besonderheiten exakt festgehalten werden. Alle schreiben in dasselbe Journal.
5. Ein Katalog, in dem festgehalten wird, wenn von einer Probe nach vollendeter Messung noch Reste oder Pulverreste vorhanden sind.
6. Messprotokolle und Auswertungsprotokolle, die Auskunft über Verlauf und Qualität der Messung geben.

3. Kapitel

Versuche zur Verarbeitung

3.1 Versuche zur AgCl-Konsistenz

3.1.1 Problemstellung

Immer wieder stellten wir Unterschiede zwischen der Konsistenz unserer AgCl-Proben und derjenigen des Blanks (kommerziell) fest. Nach dem Pressen wurde der letztere rötlich-schwarz durchscheinend und hatte eine wachsartige Konsistenz, während unsere Proben ab und zu schwarz und undurchsichtig blieben und oft spröde respektive plattig wurden. Das AgCl von Gesteinsproben wies hin und wieder sogar eine braune oder inhomogene Farbe auf. Einige unserer Proben lösten sich vom Trägermetall Tantal ab. Dies stört die Messung erheblich, da dadurch das elektrische Feld verzerrt wird, was zu Schwankungen in der Transmission führt. Gleichzeitig trifft der Cäsium-Strahl auf das Tantal und löst grosse Mengen Schwefel heraus.

3.1.2 Tests

Folgende Parameter der Aufbereitung wurden als Gründe für diese Probleme vermutet und zu Testzwecken variiert:

- Trocknungstemperatur
- Trocknungsdauer
- Zentrifugierdauer

3. Kapitel: Versuche zur Verarbeitung

- Umdrehungsgeschwindigkeit beim Zentrifugieren
- Restfeuchtigkeit des AgCl-Pulvers
- Verunreinigungen im AgCl-Pulver
- Bromierung zur Pulvervolumenvergrößerung
- Probenmenge
- Presstechnik (Druck, verwendete Metalle, Sandstrahlen)

Bemerkung

Der Hersteller des AgCl-Blanks wollte keine Angaben zum Herstellungsverfahren machen.

Für die Tests wurden grosse Mengen AgCl (jedesmal um 50 mg) hergestellt, zum Teil vermischt mit AgBr oder AgI (vermischte Ausfällung). Es wurde nach der Laborvorschrift "Reinigen" vorgegangen, wobei das Bromieren zum Teil versuchsweise weggelassen oder durch eine AgI-Zugabe ersetzt wurde.

1. Trocknungsdauer und -temperatur, Zentrifugierdauer und -geschwindigkeit, Restfeuchtigkeit:

Variationen

Trocknungsdauer: 0, 3, 6, 12, 24 Stunden

Trocknungstemp.: 60° C - 100° C

Zentrifugierzeit: 5 Min. - 20 Min.

Zentrifugiergeschw. und -zeit: 3300 Touren/Min., 10 Min.

5100 Touren/Min., 20 Min.

3. Kapitel: Versuche zur Verarbeitung

Ergebnis:

Das Pressresultat ist kaum abhängig von diesen Parametern.

Allerdings fiel auf, dass die mit 5100 Touren/Min., 20 Min. zentrifugierten Pillen wesentlich härter waren. Das erschwerte das Arbeiten bei gleichem Resultat. Umgekehrt zerfielen die mit 3300 Touren/Min., 10 Min. und nur 3 Stunden getrockneten Proben leichter in feines Pulver, was auch nicht angenehm zum Arbeiten war. Sogar völlig nasse Proben ergaben gute Press- und Messresultate. Anscheinend wird das Wasser beim Pressen herausgedrückt, so dass kein Wasserdampf bei der Messung entsteht. Nasse Proben waren aber schwierig handzuhaben. Zudem hatten frühere Versuche, feuchte Proben zu messen, keinen Erfolg (Synal, pers. Komm).

Empfehlung

Zentrifugieren der Probe während 10 Min. auf 4500 Touren/Min, Trocknung während 12 Stunden bei 80° C.

2. Bromierung, Pulvermenge:

Es werden mindestens 12 mg AgCl-Pulver benötigt, um eine satte (d.h. schwarze) Pressung zu erhalten. Dies wird mit einer Zugabe von 3.8 mg Cl/ml Carrier gerade gewährleistet. Hat die Probe nach dem Pressen noch ein helles Zentrum, so wird sie beim Messen verdampft oder sie löst sich ab, worauf der Schwefel aus dem Trägermetall die Messung stört. Deshalb wurde bei zu kleinen Proben Bromid zugegeben, um das Pulvervolumen zu erhöhen.

3. Kapitel: Versuche zur Verarbeitung

Frage

Wie verhält sich die Pulverkonsistenz, wenn man

- a) nicht bromiert
- b) bromiert
- c) statt Bromid Iodid zugibt?

Ergebnis:

AgCl ist am wachsartigsten, AgCl-AgI am sprödesten. Die Unterschiede waren vor der Messung gering, verstärkten sich aber durch die Erwärmung bei der Messung. AgCl-AgI wurde dabei gelbkörnig und spröde und löste sich manchmal vom Trägermetall ab.

Grosse Pulvermengen (d. h. deutlich über der Minimalmenge) ergaben guthaftende, wachsartige Pressungen. Bei der Minimalmenge wurde das AgCl, welches das Trägermetall in der Umgebung des Zentrums abdeckte (Schutz vor Schwefel), gerne plattig und löste sich bei Erhitzung ab.

Mischen von KBr (harte Salzkörner) und AgCl-Pulver im Mörser erwies sich als umständlich und inhomogen.

Man muss also einen Kompromiss eingehen zwischen den drei Forderungen:

1. Maximale Pulvermenge
2. möglichst nur AgCl ohne Zusätze
3. möglichst kleine Probenmengen (bei möglichst guter Auflösung).

Empfehlung

Bei knapper Probenmenge (wie bei Eisproben) vorsichtshalber bromieren, weil sonst die Probe bei der Messung fast sicher verdampft. Mehr Probe ergibt eine bessere Konsistenz.

3. Presstechnik

Durch Sandstrahlen der Tantal-Einsätze wurde versucht, die Haftung des Pulvers zu verbessern. Nach dem Sandstrahlen wurden die Plättchen auf die herkömmliche Art geätzt. Befürchtungen, durch die rauhere Oberfläche könnte mehr Schwefel aus dem Metall austreten, konnten nicht bestätigt werden.

Nach dem Sandstrahlen haftete das Pulver tendenziell etwas besser. Bei feinem Pulver wurde das Aufbringen und das Einfüllen ins Loch etwas umständlicher. Fazit: Sandstrahlen ist empfehlenswert.

Der Pressdruck wurde von 2 bis 5 Tonnen pro cm^2 variiert. Bei präzise gearbeitetem Kupferträger hat er keinen grossen Einfluss. 3.5 Tonnen/ cm^2 haben sich bewährt. Der Tantaleinsatz muss allerdings sehr präzise ins Kupferplättchen eingepasst werden. Bei Abweichungen von mehreren 1/100 Millimetern wird das Tantal unter Druck verbogen. Dadurch wird das Pulver entweder nicht mehr fest genug gepresst oder der Einsatz zu weit ins Kupfer hineingedrückt, worauf der Cäsium-Strahl neben die Probe trifft (Einfall unter grossem Winkel, siehe Fig. 4.1.2).

3.1.3 Zusammenfassung der Empfehlungen aus den Versuchen

- 1) Zentrifugieren der Probe während 10 Minuten auf 4500 Touren, Trocknung während 12 Stunden auf 80°C .
- 2) Ist die Probenmenge zu klein, soll bromiert werden.
- 3) Sandstrahlen des Tantal-Plättchens verbessert die Haftung. Als Pressdruck wählt man 3.5 Tonnen/cm^2 .

3.2 Versuche zur Herkunft von Schwefelverunreinigungen

Mögliche Schwefelkorrekturen beim Auswerten der Resultate sind im 4. Kapitel "Messung und Auswertung" beschrieben.

3.2.1 Zusammenfassung

^{36}S ist ein Isobar von ^{36}Cl und kommt in der Natur fast überall vor. Trotz einer relativ guten Unterdrückung im Beschleunigermassenspektrometer stört es die ^{36}Cl -Messung, wenn die Proben nicht gereinigt werden. Deshalb fällt man den Schwefel als BaSO_4 aus. Trotzdem wurden nach der Reinigung immer wieder verschmutzte Proben gefunden. Durch Testmessungen konnten einige Ursachen eruiert und behoben werden, teils durch Modifikationen des Reinigungsverfahrens, teils durch Erneuerung von Apparaten und Labors.

Immer noch stellen wir in einzelnen Proben erhöhte Schwefelwerte fest. Diese Fälle treten sporadisch inmitten ganzer Serien auf und lassen keine Systematik erkennen. Als Hauptgrund vermuten wir Unregelmässigkeiten in der BaSO_4 -Fällung, sei es durch kolloidale Ausfällungen, die durch den Filter nicht zurückgehalten werden, oder sei es durch Hemmung der Fällung durch Fremdatome. Nie auszuschliessen ist natürlich auch eine Verschmutzung durch die ausführende Person; aber das ist kaum nachweisbar. Schwefel aus dem Tantal ist bei guter Pressung und Abdeckung des Trägermetalls durch AgCl oder AgBr praktisch auszuschliessen. Trotzdem wäre ein schwefelärmeres Trägermaterial auf jeden Fall wünschenswert.

3.2.2 Problemstellung

Schwefel ist ein verbreitetes Element mit vier stabilen Isotopen. Die Anteile am gesamten Schwefel betragen für ^{32}S 95.02%, für ^{33}S 0.75%, für ^{34}S 4.21% und für ^{36}S 0.015%. Schwefel kommt in der Natur in verschiedenen Oxidationsstufen vor. Für die ^{36}Cl -Messung ist das von Bedeutung, denn das ^{36}S -Isotop ist ein Isobar. Es kann um Grössenordnungen häufiger sein als ^{36}Cl und lässt sich dann mit apparativen Massnahmen im Beschleunigermassenspektrometer nicht vollständig eliminieren. Der Unterdrückungsfaktor ist in der Grössenordnung von 12'000. Das bedeutet, dass eines von 12'000 ^{36}S -Atomen fälschlicherweise als ^{36}Cl gezählt wird. Da an den meisten Proben sowohl ^{10}Be als auch ^{36}Cl gemessen wird, enthalten sie neben dem natürlichen Schwefel auch Sulfat aus dem Berylliumcarrier (BeSO_4). Deshalb müssen sie gereinigt werden. Dies geschieht bei allen Proben auf dieselbe Weise durch Ausfällen von BaSO_4 . Das setzt voraus, dass der Schwefel als freies Sulfation in der Lösung vorliegt. Diese Fällung sollte dann kaum pH-abhängig und quantitativ sein, vorausgesetzt natürlich, das Löslichkeitsprodukt werde überschritten. Ist die Schwefel-Konzentration nach der Fällung dann unterhalb des ppb-Bereichs, kann das Schwefel-Signal im Detektor unterdrückt werden (siehe Kapitel 4.1). Wegen der viel höheren Empfindlichkeit des Beschleunigermassenspektrometers gegenüber herkömmlichen Methoden, können diese nicht zur routinemässigen Ueberwachung des Schwefelgehalts der Proben eingesetzt werden.

Bei den Messungen mit dem Beschleunigermassenspektrometer trafen wir nun ab und zu auf sehr hohe oder erhöhte Schwefelkonzentrationen. Deren Systematik war nur in wenigen Fällen einfach durchschaubar. Primär stellten wir fest, dass es verschiedene Gründe für Schwefelkontaminationen gab.

Schwefel trat während der Messung auf verschiedene Arten in Erscheinung. Offensichtlich trat er immer dann auf, wenn der Cäsium-Strahl auf das Trägermetall traf (Durchbrennen der Probe). Der messbare

3. Kapitel: Versuche zur Verarbeitung

Schwefelgehalt von Metallen war zum Teil schon bekannt. Um den Schwefeluntergrund zu reduzieren, wurden deshalb neue Metalle als Träger ausprobiert. Zudem wurde versucht (Kap. 3.1), die Menge und die Qualität des gepressten AgCl-Pulvers zu verbessern, um ein Durchbrennen der Probe möglichst lange hinauszuzögern.

Die Hauptquelle des Schwefels wurde allerdings im Labor vermutet, sei es, dass die Proben kontaminiert wurden oder sei es, dass der Schwefel bei der Reinigung nicht gut genug eliminiert werden konnte. Der Verdacht auf letzteres wurde gestützt durch Erfahrungen mit Gesteinsproben, wo die vorschriftsgemäss durchgeführte Reinigung wirkungslos blieb. Bei Eisproben trat das Problem nicht so gehäuft auf. Allerdings fanden sich immer wieder einzelne Proben aus ganzen Serien, die hohe Schwefelkonzentrationen zeigten, ohne dass es dafür einen erkennbaren Grund gegeben hätte. Natürlich ist nicht auszuschliessen, dass diese Proben im Verlauf der weiteren Aufbereitung unbemerkt kontaminiert wurden. Ein Erfahrungsaustausch mit anderen Gruppen (Gäggeler et al., pers. Komm.) zeigt allerdings auch, dass die Bariumfällung nicht ganz unproblematisch ist. Darauf wird in der Diskussion der Resultate in Kapitel 3.2.4 eingegangen.

3.2.3 Testmessungen

Test des Labor-Verfahrens

Um den Kontaminationsquellen im Labor auf die Spur zu kommen, wurde ^{36}Cl -freies AgCl ausgefällt und einzelne Portionen davon unterschiedlich verarbeitet. In Tabelle 3.2.A sind die siebzehn Labor-Testproben mit den variierten Arbeitsgängen aufgelistet.

An den meisten Eisproben wird sowohl ^{10}Be als auch ^{36}Cl gemessen. Eine Frage war, ob sich das Sulfat, welches mit dem Berylliumcarrier als BeSO_4 zugegeben wird, bei den späteren Schritten der Reinigung wieder vollständig eliminieren lässt. Bei der Verarbeitung der Proben S13a und

3. Kapitel: Versuche zur Verarbeitung

Messmethode	Probenbezeichnung	Bemerkung	Carrier	Bariumzugabe	AgNO ₃ Zugabe	NH ₄ Zugabe	Millipore-Filtergröße (Durchm.)	HNO ₃ Zugabe	H ₂ O	Trockenschrank	S-Gehalt ³⁶ S/ ³⁶ Cl x 10 ⁻¹⁰ (entspr. ca. 10 ⁻⁶ x Stoy/Cl _{tot})
AMS	S1		3Cl	*					*	alt	36
AMS	S2		3Cl	*					*	Reinlabor	0.2
AMS	S3		3Cl	*					*	IMP	0.2
AMS	S4		3Cl	*					*	Ofen von Klaus	1.0
AMS	S5		3Cl	*					*	Reinlabor	5.5
AMS	S6		3Cl	*					*	IMP	0.4
AMS	S7	Faden gefunden	3Cl	*		*		*	*	Reinlabor	0.5
AMS	S8		3Cl	*		*		*	*	IMP	0.4
AMS	S9		3Cl	*		*	25 mm	*	*	Reinlabor	0.4
AMS	S10		3Cl	*		*	50 mm	*	*	Reinlabor	4.8
AMS	S11		3Cl	*		*	25 mm	*	*	IMP	0.3
AMS	S12		3Cl	*		*	50 mm	*	*	IMP	1.7
AMS	S13a		3Cl+2Be	*		*	25 mm	*	*	Reinlabor	0.4
AMS	S13		3Cl+2Be	*		*	25 mm	*	*	IMP	0.5
AMS	S14		3Cl+2Be	*		*	25 mm	*	*	Reinlabor	0.4
AMS	S15		3Cl+2Be	*		*	25 mm	*	*	IMP	1.9
AMS	S16, analog S15	Meerwasser-Blank Norwegen I	3Cl+2Be	*		*	25 mm	*	*	IMP	0.2
AMS	S17, analog S16	Meerwasser-Blank Norwegen II	3Cl+2Be	*		*	25 mm	*	*	IMP	0.5

Legende: * : ausgeführt
 IMP : Institut für Mittelenergiephysik
 3Cl: Zugabe von 3mal 3.8 mg Chlorcarrier
 2Be: Zugabe von 2mal 0.275 mg Berylliumcarrier

Tabelle 3.2.A: Testprobenaufstellung

S13 wurde die Bariumnitratzugabe zur Schwefelfällung zur Kontrolle weggelassen. Im weiteren wurde ausgetestet, ob eine der Chemikalien, das Wasser, die Filter oder einer der Oefen kontaminiert war. Parallel zur Verarbeitung des Laborblankmaterials wurden auch zwei Meerwasserproben aufgearbeitet, um zu sehen, ob die verwendete Methode auch bei natürlichen Proben funktioniert.

Test der Trägermetalle

Tantal ist relativ teuer, nur stanzbar und sehr duktil. Es wird verwendet, weil es das schwefelärmste Metall ist, das bisher gefunden wurde. Folgende Trägermetalle oder -Legierungen wurden getestet: Gold, Messing, rostfreier Stahl, Aluminium, Kupfer.

Bemerkung:

Ein guter Blank hatte zur Zeit der Testmessungen ein $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis von ca. 5- max 10×10^{-15} . Dank technischen Verbesserungen werden heute Blankwerte unter 10^{-15} erreicht. Bei Proben mit einem $^{36}\text{S}/^{35}\text{Cl}$ -Verhältnis $< 10^{-12}$ (Tab. 3.2.A) kann der Schwefeluntergrund dank einer Schwefelunterdrückung von ca. 1.2×10^4 im Detektor soweit reduziert werden, dass die maximale Empfindlichkeit des Beschleunigermassenspektrometers an der ETH Zürich erreicht wird. In den Testmessungen lag der gemessene $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Wert von Testprobe S1 (aufgrund irrtümlich als ^{36}Cl gemessener ^{36}S) vierzig mal über dem Blankwert von $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 5 \times 10^{-15}$, der von Testprobe S10 war zehnmal höher.

3.2.4 Herkunft des Schwefels nach der Proben-Reinigung

Aus den Labortestproben in Tabelle 3.2.A ist ersichtlich, dass keine der Laborchemikalien als Schwefelquelle in Frage kommt. Man kann auf folgende Quellen schliessen, die erst nach dem Abschluss des Reinigungsvorgangs auf die Probe wirken:

- 1) Der alte Trockenschrank war kontaminiert. Darin wurden Sedimente getrocknet, die schwefelhaltige Verbindungen abgaben.
- 2) Der Milliporefilter mit Durchmesser 50 mm zeigt gegenüber demjenigen mit Durchmesser 25 mm leicht erhöhte Schwefelwerte. Die Porengrösse ist bei beiden gleich. Man erwartet, dass der Schwefelgehalt der Filter aufgrund einer Oberflächenverschmutzung proportional zu ihrer Fläche ist. Diese Art von Verschmutzung lässt sich trotz sorgfältig verschlossener Verpackungen nicht vollständig vermeiden. Der Vergleich der Werte der Filter mit 25 und 50 mm Durchmesser in Tabelle 3.2.A zeigt aber, dass die grössere Fläche nicht der einzige Grund für den höheren Schwefelgehalt in diesen Proben ist. Die Schwefelstossrate (d. h. die Anzahl der Schwefelereignisse pro Sekunde bei der Messung im Detektor, vgl. auch Kapitel 4) ist nämlich um mehr als einen Faktor 4 erhöht.
- 3) Textilfasern scheinen den Schwefelgehalt nicht zu erhöhen.
- 4) Schwefel kommt aus der Laborluft. Langes offenes Stehenlassen über mehrere Stunden erhöht die Verunreinigung. Diese Tests sind in Tabelle 3.2.A nicht aufgeführt.
- 5) Sämtliche geprüften Trägermetalle (Gold, Messing, Kupfer, Aluminium, rostfreier Stahl, Tantal) enthalten Schwefel im ppm-Bereich. Tantal ist das schwefelärmste Trägermetall. Leider ist Tantal teuer, ziemlich weich und schwierig zu bearbeiten. Aluminium fällt wegen der Bildung von hygroskopischem Aluminiumchlorid völlig aus dem Rennen.

3. Kapitel: Versuche zur Verarbeitung

6) Oberflächenkontamination: Die Proben werden nach dem Pressen in einer speziellen Plastischachtel aufbewahrt, die aber nicht luftdicht ist. Dabei wird die Oberfläche verschmutzt. Solange die Probe fest gepresst ist, stört dies nicht, da höchstens die ersten paar Mess-Zyklen beeinträchtigt sind. Danach geht der Schwefel auf tiefe Werte zurück.

Diskussion

Mit den Tests konnten einzelne Schwefelquellen identifiziert werden. Nach der Behebung der Ursachen fanden sich bei Eisproben aber noch immer einzelne, bei anderen Proben, zum Beispiel Gesteinen und Regenwasser, serienweise Fälle mit hohen Schwefelstossraten. Die Gesteinsproben waren nach der Fällung und vor allem nach dem Pressen oft farbig. Diese Farben deuten auf Fremdatome im AgCl-Pulver hin. Aufgrund der Tests interpretieren wir dies wie folgt.

Die Bariumsulfat-Fällung schien bei einzelnen Eisproben nicht zu funktionieren. Einige Proben waren verschmutzt, obwohl sie keinen Filtrerrückstand aufwiesen und das Löslichkeitsprodukt mit der zugegebenen Menge $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ gemäss Berechnungen überschritten wurde. Es ist nicht auszuschliessen, dass die Bariumsulfat-Fällung bei Schwefelkonzentrationen im ppm-Bereich schlecht reproduzierbar ist. Bei unseren Eisproben spielt das aber in der Regel keine Rolle, da 0.275 mg Be als Carrier zugegeben werden. Deshalb wurde die Ursache der Schwefelverunreinigungen bei den Fällungsbedingungen selbst vermutet. Von BaSO_4 ist bekannt, dass es je nach Bedingungen während der Fällung als Kolloid ausfallen kann. Ob das BaSO_4 nicht ausfällt oder ob es nur kolloidal ausfällt und nachher durch den Filter nicht zurückgehalten wird, kann man von Auge nicht entscheiden. Nach den anfänglichen Schwierigkeiten wurden die Proben deshalb nach der Fällung länger (über Nacht) stehengelassen, um möglichst grossflockigen Niederschlag zu erhalten. Nach dieser Zeit darf man auch annehmen, dass aller Schwefel in Form von Sulfat vorliegt (Bollhalder, pers. Komm.). Diese Umwandlung ist wichtig, da man die Lösung nicht so behandeln kann,

3. Kapitel: Versuche zur Verarbeitung

dass alle Oxidationsstufen des Schwefels durchlaufen werden, ohne Chlorid über die Gasphase zu verlieren (Gäggeler, pers. Komm.). Nach dem Stehenlassen wurde die Probe zentrifugiert und zur Kontrolle nochmals ein paar Tropfen Bariumnitrat-Lösung zupipettiert. Schliesslich wurde über einen 0.45 μm -Millipore Filter filtriert. Nachdem dieses Verfahren angewandt wurde, waren die Eisproben fast ausnahmslos schwefelfrei.

Langes Stehenlassen ist also unerlässlich für eine durchgehend zuverlässige Schwefelreinigung aller Eisproben. Bei den einzelnen Proben kann der Aufwand dafür allerdings erheblich verschieden sein. An den Proben S13 und S13a sieht man, dass Proben ohne Verunreinigungen auch ohne die Bariumsulfat-Fällung schwefelfrei sein können. Bei diesen Proben wurde BeSO_4 zugegeben, aber keine Bariumsulfat-Fällung durchgeführt. Trotzdem ist der Schwefelgehalt des Silberchlorids im erlaubten Bereich. Der Schwefel bleibt als Sulfation in der überstehenden Lösung zurück und wird abgeschüttet. Hingegen genügt selbst langes Stehenlassen nicht unbedingt, wenn eine Probe Fremdatome enthält. Die Fremdatome in der Lösung vermögen die Ausfällung von BaSO_4 und auch AgCl bei sonst gleichen Umgebungsbedingungen unter Umständen zu hemmen. Glücklicherweise sind Eisproben durchwegs rein, so dass solche Effekte vor allem bei Gesteins-, Regen- oder Grundwasserproben zu berücksichtigen sind.

3.2.5 Verbesserungen aufgrund der Tests

Aufgrund der Tests wurden folgende Änderungen an der Verarbeitung vorgenommen:

- 1) Die Reinigung und das Pressen fand in einem Reinluftlabor statt, das nur für die Aufbereitung von ^{36}Cl , ^{10}Be und ^{26}Al verwendet wird. Die Aufbereitung selber wurde zusätzlich in einer Kapelle ausgeführt. Der Trockenschrank, die Gefässe und die Chemikalien werden nur für diesen Zweck verwendet. Die Proben wurden nur zugedeckt

3. Kapitel: Versuche zur Verarbeitung

stehengelassen. Selbstverständlich werden keine radioaktiven Substanzen oder konzentrierten ^{36}Cl -Lösung im Labor aufbewahrt, also auch keine Standardlösungen.

- 2) Nach jeder Fällung wurden die Proben über Nacht stehengelassen, damit grosse Kristalle entstehen konnten. Das Waschen des AgCl-Pulvers wurde mit $\text{H}_2\text{O}_{\text{deion}}$ durchgeführt. Je grösser die Wassermenge ist, aus der AgCl gefällt wird, desto feiner ist der Niederschlag. Bei grossen Flüssigkeitsvolumina ist also das lange Stehenlassen besonders wichtig. Damit wird verhindert, dass ein Teil des Materials nach dem Zentrifugieren beim Abgiessen des überstehenden Waschwassers verloren geht.
- 3) Die Proben wurden mit 4000 Touren/Min. während 10 Minuten zentrifugiert und bei 80°C 12 Stunden lang direkt in Polypropylen-Zentrifugentuben im Wärmeschrank getrocknet.
- 4) Die Tantalplättchen wurden sandgestrahlt. Ihr Sitz im Kupferplättchen muss genau sein (Toleranz wenige $1/100$ mm). Beim Pressen wurde eine Unterlage mit Mitteldocht verwendet, die ein Verformen des Tantals unter Druck verhindert, sodass die Lochgeometrie erhalten bleibt (Fig. 2.3.1).
- 5) Gepresste, in einer Plastiksachtel aufbewahrte und vor Licht geschützte Proben scheinen auf Umwelteinflüsse etwas weniger empfindlich zu sein. Trotzdem sollten sie nicht länger als 1 Jahr aufbewahrt werden. Nach längerer Aufbewahrung wurden bei einigen Proben Schuppen an der Oberfläche beobachtet. Ausserdem fanden sich bei herausgedrückten Proben Spuren von Reaktionen an der Tantaloberfläche, die zu einer "Verwitterung" des Pulvers führten. Insbesondere ist darauf zu achten, dass AgCl nicht mit Kupfer in Berührung kommt, da sich sonst innerhalb von Monaten grüspanfarbige Verbindungen bilden.

3. Kapitel: Versuche zur Verarbeitung

Eine weitere wünschbare Verbesserung wäre der Ersatz von Tantal durch ein schwefelärmeres Trägermaterial, dass sich zusätzlich leichter bearbeiten liesse. Einige Ideen dafür wurden schon abgeklärt:

- Eine Bedampfung des Kupferplättchens. Diese Schicht wäre aber so dünn, dass bei der Erwärmung des Kupfers während der Messung der Schwefel durch die Bedampfung diffundieren würde.
- Kunststoffe leiten die Wärme in der Regel zu schlecht ab oder sie sind nicht hitzebeständig.
- Die Gruppe in Rochester, welche ebenfalls mit einem Beschleuniger-massenspektrometer ^{36}Cl misst, presst das AgCl in eine AgBr -Umgebung (P. Kubik, pers. Komm.). Diese Lösung ist sicher auch bei unserem System einen Versuch wert. Man muss allerdings sicherstellen, dass der Einsatz nicht herausspringt und in die Quelle fällt.

Welches auch immer die neue Lösung ist, sie muss folgenden Anforderungen genügen:

- Die anfallende Wärme muss gut abgeleitet werden.
- Das Material muss hitzebeständig sein.
- Die Herstellung sollte möglichst einfach (im Hinblick auf grosse Probenmengen) und billig sein.
- Die Handhabung soll unkompliziert sein (konstantes Pressergebnis).

4. Kapitel

Messmethode und Auswertung

4.1 Die Messmethode: Beschleunigermassenspektrometrie (AMS)

In Proben, die aus dem Eis der Arktis stammen, sind die ^{36}Cl -Konzentrationen mit ca. 10^6 ^{36}Cl Atome/ kg Eis extrem tief. Wegen der langen Halbwertszeit von ^{36}Cl (301'000 Jahre) finden in 1 kg Eis nur ca. 2 β -Zerfälle von ^{36}Cl pro Jahr statt. Herkömmliche Methoden, die auf dem Nachweis des radioaktiven Zerfalls von ^{36}Cl beruhen, können daher nur bei sehr grossen Probenmengen eingesetzt werden, was extrem aufwendig ist. Viele interessante Proben wie zum Beispiel Eisproben aus grosser Tiefe, von denen nur wenig Probenmaterial zur Verfügung steht, können damit gar nicht gemessen werden. Die Messung des $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisses in kleinen Proben ist mit einem gewöhnlichen Massenspektrometer nach Zugabe von Chlorcarrier (^{36}Cl -freies Chlor) zur Vergrösserung des Probenvolumens im Prinzip möglich, da heute eine genügende Auftrennung der Chlorisotope erreicht werden kann. Allerdings scheitert diese Methode an der zu geringen Empfindlichkeit, da eine ausreichende Trennung zwischen ^{36}Cl und seinem Untergrund, bestehend aus dem Isobar ^{36}S und verschiedenen Molekülen mit der Masse 36 (z.B. H^{35}Cl), nur mit einer sehr stark eingeschränkten Transmission erreicht werden kann. Deshalb wurde eine neue Messmethode entwickelt. Die Beschleunigermassenspektrometrie (abgekürzt AMS, nach der englischen Bezeichnung "Accelerator Mass Spectrometry"), die Ende der Siebziger Jahre speziell für den Nachweis extrem kleiner Isotopenkonzentrationen (^{14}C , ^{10}Be , ...) entwickelt wurde, ermöglicht auch die Bestimmung von ^{36}Cl in kleinen Proben über die Messung des $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisses.

Bei der AMS-Methode werden mehrere Filtersysteme hintereinandergeschaltet, die auf unterschiedlichen Trennmechanismen beruhen (Impuls, Energie, Ionenart). Damit kann ein ^{36}Cl -Ion auf 10^{15} Chlorionen identifiziert werden. Hierbei ist es wichtig, dass diese Systeme eine möglichst hohe Transmission für das nachzuweisende Radioisotop haben. Der entscheidende Vorteil gegenüber konventionellen Massenspektrometern besteht darin, dass durch die Beschleunigung der Ionen auf hohe Energien im MeV-Bereich die Anwendung von kernphysikalischen Messmethoden möglich wird, mit denen einzelne Ionen nachgewiesen und identifiziert werden können.

Prinzip der Beschleunigermassenspektrometrie

Man kann die AMS-Anlage an der ETH in Zürich grob in drei Abschnitte gliedern (Fig. 4.1.1):

- 1) den Niederenergieteil, wo die Ionen aus der Probe extrahiert werden und wo eine erste Filterung der Ionen bei niedrigen Energien (40 keV) stattfindet,
- 2) den eigentlichen Beschleuniger,
- 3) den Hochenergieteil, wo eine weitere Filterung des Strahls auf ähnliche Weise wie im Niederenergieteil stattfindet, diesmal aber bei hohen Ionen-Energien (ca. 48 MeV). Am Schluss werden die verbliebenen Ionen detektiert.

Die ^{36}Cl -Kenngrößen der AMS-Anlage in Zürich sind in Tabelle 4.1.A aufgeführt.

4. Kapitel: Messmethode und Auswertung

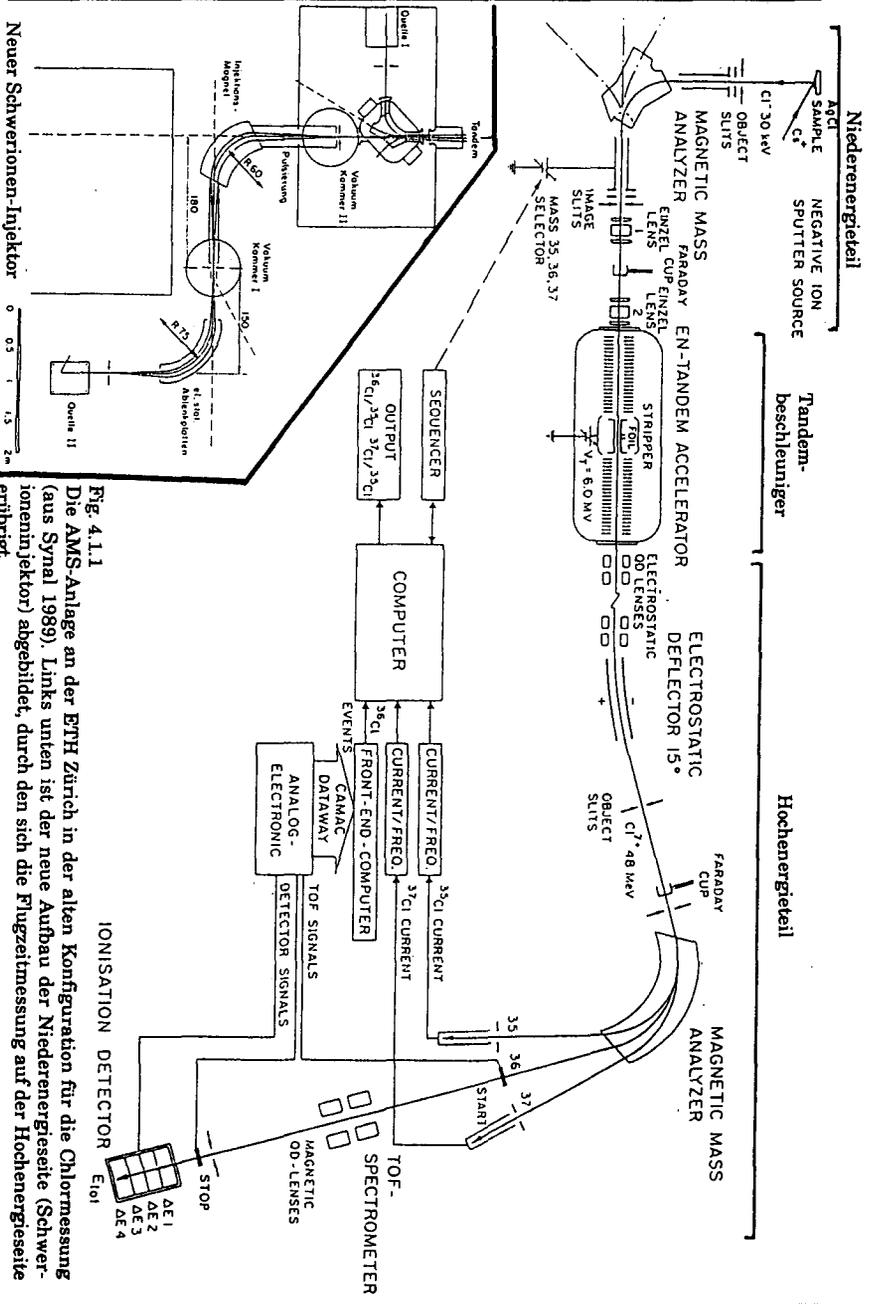


Fig. 4.1.1 Die AMS-Anlage an der ETH Zürich in der alten Konfiguration für die Chlormessung (aus Synal 1989). Links unten ist der neue Aufbau der Niederenergieseite (Schwerioninjektor) abgebildet, durch den sich die Flugzeitmessung auf der Hochenergieseite erübrigt.

4. Kapitel: Messmethode und Auswertung

Kenngrösse	
Benötigte AgCl-Menge	12-15 mg/Probe
übliche Messzeit/Probe	3 x 10 Zyklen = total ca. 20 Min.
Anzahl Proben/Kassette	20 + 2 Blanks + 3 Standards
Probendurchsatz/Tag	ca. 9 h/Kassette
verwendeter PSI-Standard (K380/4)	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 15.1 \times 10^{-12}$
Blank	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 1 \times 10^{-15}$
erreichb. Fehler bei Std.-Messbetrieb	< 5% für $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 5 \times 10^{-13}$
Schwefelunterdrück. faktor (gem.)	$^{36}\text{Cl}/^{36}\text{S} \approx 12'000$

Tab. 4.1.A: ^{36}Cl -Kenngrössen des ETH/PSI-Tandembeschleunigers in Zürich

Der Niederenergieteil

In der Caesium-Kanone werden Caesium-Ionen produziert und im Winkel von 60° zur Strahlachse auf das Target geschossen (vgl. Figur 4.1.2). Dabei wird Probenmaterial zerstäubt (Sputteringprozess) und teilweise ionisiert. Die negativen Ionen werden mit Hilfe einer positiven Beschleunigungsspannung entlang der Strahlachse aus der Ionenquelle extrahiert und mittels Linsen zu einem Strahl geformt (Fig. 4.1.1). Der anschliessende Niederenergieteil wurde in neuerer Zeit umgebaut. Folgte früher nur eine magnetische Filterung des Strahls mit einem 90° -Spektrometer, so verwendet man heute zwischen Quelle und Beschleuniger einen sogenannten Schwerioneninjektor (Fig. 4.1.1). Die Filterung der Ionen findet beim Schwerioneninjektor durch eine Kombination eines elektrostatischen Energiefilters (sphärische Ablenkplatten) mit einem magnetischen Impulsfilter (90° -Spektrometer) statt. Hierdurch wird ein hohes Massentrennvermögen erreicht, was eine saubere Trennung der Cl-Isotope im primären Ionenstrahl ermöglicht.

Massengleiche Moleküle und das Isobar ^{36}S können jedoch nicht getrennt werden.

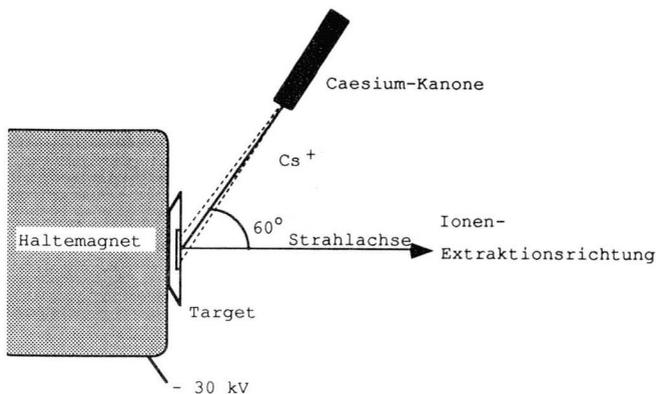


Fig. 4.1.2 Schematische Figur der Situation in der Quelle: Extraktion der Ionen aus dem Target während der Messung. Bei dieser Figur handelt es sich um eine schematische Vergrößerung der mit "Negative Ion Sputter Source" bezeichneten Quelle in Fig. 4.1.1.

Der Beschleuniger

Der zentrale Teil des AMS-Systems stellt der EN-Tandem-Beschleuniger mit einer maximalen Terminalspannung von 6 MV dar. Von dieser Spannung wird zweifacher Gebrauch gemacht. Zuerst werden die negativ geladenen Cl-Ionen beschleunigt. Im Terminal durchqueren sie eine Kohlenstoffolie ($3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$), wo ein Teil der Hüllenelektronen der Ionen "gestrippt" wird und Ionen mit verschiedenen positiven Ladungszuständen entstehen. Diese Ionen werden nochmals mit derselben Spannung beschleunigt. 33% der Ionen haben nach dem

"Stripping" einen Ladungszustand von 7+. Diese Ionen treten mit einer Energie von 48 MeV aus dem Beschleuniger aus. Durch das Entfernen der Hüllenelektronen werden die Bindungen von Molekülionen (z.B. H^{35}Cl) aufgebrochen und so die Moleküle zerstört. Die Molekülfragmente können im folgenden Teil der Anlage aus dem Ionenstrahl entfernt werden.

Der Hochenergieteil

Im Hochenergieteil werden die Ionen mit dem Ladungszustand 7+ durch ein Energiefilter (elektrostatische Ablenkplatten) ausgewählt. Danach wird der Strahl durch ein weiteres magnetisches Massenspektrometer geschickt. Vor der Einführung des Schwerioneninjektors auf der Niederenergieseite liessen sich die stabilen Chlorisotope maximal um einen Faktor 10^{-12} unterdrücken (Messgrenze $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis von ca. 10^{-12}). Die Verhältnisse in Eisproben bewegen sich aber im Bereich von 10^{-14} . Deshalb war in dieser Konfiguration eine zusätzliche massenselektive Filterstufe, ein sogenanntes Flugzeitspektrometer (TOF) nötig, um den Untergrund zu unterdrücken, der durch die stabilen Cl-Isotope verursacht wird (Synal 1989). Damit war eine weitere Unterdrückung um 3 Grössenordnungen möglich. Mit dem oben erwähnten Schwerioneninjektor, der seit Mitte 1990 an der Züricher Anlage in Betrieb ist, konnte das Massentrennvermögen auf der Niederenergieseite soweit verbessert werden, dass heute auf den Einsatz des Flugzeitspektrometers verzichtet werden kann.

Schliesslich muss noch das Isobarenproblem gelöst werden. Durch die Extraktion negativer Ionen aus der Probe werden Isobare, die nur positive Ionen bilden (z. B. ^{36}Ar), von Anfang an ausgeschlossen. Bei ^{36}S , das einen Anteil von 0.015% am gesamten Schwefel hat, ist das nicht der Fall. Die herkömmlichen chemischen Reinigungsverfahren können den Gesamt-Schwefelgehalt der Proben im besten Fall auf 0.1 - 1 ppm reduzieren. Das entspricht einem ^{36}S -Isobarenuntergrund von $^{36}\text{S}/^{35}\text{Cl}$ von $0.15 - 1.5 \times 10^{-10}$, was für die Messung einer Probe mit natürlicher ^{36}Cl -Konzentration viel zu hoch ist. Die Isobarentrennung erfolgt in der

ETH-Anlage mit Hilfe kernphysikalischer Messmethoden. Zur Identifikation der Radionuklide wird der spezifische Energieverlust der Ionen, $(dE/dx) \cdot E$, in einem Gasionisationsdetektor (Shapira et al. 1975) gemessen. Das Gas besteht aus einem CH_4/Ar -Gemisch. Nach dem Eintritt eines Ions in den Detektor wird es durch Ionisationsprozesse gebremst. Der Energieverlust pro Wegstrecke (dE/dx) , ist für ^{36}Cl und ^{36}S unterschiedlich. 4 Plattenelektroden (in Figur 4.1.1 beim "Ionisation Detector" rechts unten mit $\Delta E1$ bis $\Delta E4$ bezeichnet) messen den spezifischen Energieverlust und ermöglichen damit die Identifikation von ^{36}Cl . In naher Zukunft sind durch das Vorschalten eines halbkreisförmigen, gasgefüllten Magneten weitere Verbesserungen möglich. Beim Durchgang durch den Magneten werden ^{36}S und ^{36}Cl vom Füllgas ionisiert. Durch den unterschiedlichen mittleren Ladungszustand findet im Magneten eine Aufspaltung der Ionenbahnen der beiden Isobare statt. Das ermöglicht eine Ausblendung des ^{36}S -Strahls beim Austritt aus dem Magneten. Dies bringt speziell bei Proben mit hohem Schwefelgehalt wesentliche Vorteile. Allerdings wird die Auftrennung der Isobare im Detektor etwas verkleinert. Ausserdem muss man einen gewissen Transmissionsverlust hinnehmen.

AMS ist keine absolute Messmethode. Man misst das $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$ -Verhältnis und normalisiert dieses auf das $^{36}\text{Cl}/(^{35}\text{Cl}+^{37}\text{Cl})$ -Verhältnis einer Standardprobe. Deshalb wurde der Niederenergie teil der AMS-Anlage der ETH so konzipiert, dass auch ^{35}Cl und ^{37}Cl in den Beschleuniger eingeschossen werden können. Das geschieht mit Hilfe eines sogenannten "schnellen Pulsiersystems" (Suter et al. 1984). Damit wird auf der Niederenergieseite durch Anlegen eines geeigneten elektrischen Feldes kurzzeitig die Energie der Ionen so geändert, dass eines der stabilen Nachbarisotope (^{35}Cl , ^{37}Cl) in den Beschleuniger eingeschossen wird. Im Massenspektrometer auf der Hochenergieseite (in Fig. 4.1.1 rechts oben mit "Magnetic Mass Analyzer" bezeichnet) werden die stabilen Chlorisotope in die entsprechenden Faraday-Cups abgelenkt, wo sie direkt als Strom gemessen werden. Die Messzeit jedes Isotops ist proportional seiner relativen Häufigkeit.

4.2 Messablauf und Standard-Auswertung

Zu Beginn einer Kassette mit 25 Proben wird ein Standard gemessen. Danach folgt immer im Abstand von fünf Proben einer der drei Standards. Heute wird ausschliesslich das Standardmaterial "K380/4" verwendet, welches am Paul Scherrer Institut in Villigen (Schweiz) hergestellt wurde und ein bekanntes $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis von 15.24×10^{-12} besitzt. Die Standards liefern die Information für die Normalisierung der Proben und erlauben auch die Bestimmung allfälliger Drifts während der Messung. Wegen ihres hohen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisses wird die dafür notwendige Genauigkeit bereits nach 5 Zyklen erreicht. Eine Kassette enthält neben den Proben und den Standards auch zwei Blanks: einen Laborkontrollblank und einen Blank aus kommerziellem AgCl . Sie werden wie die normalen Proben gemessen und zur Bestimmung des Untergrundes verwendet.

Jede Kassette durchläuft in der Regel drei Durchgänge. Bei Bedarf kann diese Zahl für jede Probe individuell modifiziert werden. Jede Probe wird also mindestens 3 mal 10 Zyklen à 40 Sekunden gemessen. Je 10 Zyklen werden zu einem Mittelwert (1 Durchgang) zusammengefasst. Der Messfehler setzt sich aus dem statistischen Fehler (Wurzel aus der Anzahl Ereignisse) und den Fehlern aus Untergrunds- und Standardkorrektur zusammen. Der Gesamtmessfehler einer Probe sollte bei einer guten Korrektur etwa der Streuung der drei Messwerte aus den einzelnen Durchgängen um ihren Mittelwert entsprechen. Der erreichbare Messfehler hängt vom $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis ab. Für ein $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis von 10^{-12} liegt der erreichbare Fehler etwa bei 1%. Bei Eisproben erreicht man etwa eine Messgenauigkeit um 5%. Eine gut gemessene Probe erkennt man vor allem durch Kontrolle folgender Grössen: Ströme der stabilen Isotope und deren Verhältnis, Schwefelstossrate, Transmission und Schwankungen des $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ von Durchgang zu Durchgang. Zur Berechnung des definitiven Resultats werden immer folgende Schritte durchgeführt:

4. Kapitel: Messmethode und Auswertung

- 1) Der Blank-Wert wird abgezogen.
- 2) Die zeitliche Aenderung des Standardmesswertes wird bei der Auswertung berücksichtigt.
- 3) Schlechte Durchgänge (kein ^{35}Cl -Strom, viel Schwefel, etc.) werden gestrichen.
- 4) Die 3 (ev. 2 oder 4) Mittelwerte einer Probe werden aufgrund ihres Fehlers gewichtet und zu einem Schlusswert zusammengefasst.

4.3 Störungen der Messung durch Schwefel

Die am häufigsten auftretenden Probleme sind Störungen durch Schwefel. Dabei treten vor allem drei Situationen (und deren Ueberlagerungen) auf:

- 1) Der Schwefel ist in den ersten Zyklen erhöht und nimmt dann ab.

Dieser Fall weist auf eine Oberflächenkontamination hin, wie sie bei der Lagerung entstehen kann. In der Regel geht die Schwefelstossrate nach 1 bis 2 Zyklen auf normale Werte zurück. Die Messung wird durch diese Schwefelmenge praktisch nicht gestört. Im schlimmsten Fall muss der erste Durchgang gestrichen werden (höchst selten). Wird dieser Verlauf beobachtet, ist der ^{35}Cl -Strom zu kontrollieren. Wenn er nahezu null ist, dann wurde die Probe vielleicht mit AgBr überpresst und dabei unabsichtlich auch das Zentrum des Targets abgedeckt. Das gefährdet die Messung, da der Strahl im AMS mit Hilfe des ^{35}Cl -Strahls stabilisiert wird. Ist dessen Strom zu gering, wird die Messung unterbrochen. Man kann versuchen, die Probe solange zu sputtern, bis die AgBr-Schicht durchbrochen ist und dann die Messung neu beginnen. Ist dies nicht möglich, muss die AgBr-Schicht zuerst entfernt werden.

- 2) Die Schwefelstossrate ist anfangs (1-2 Durchgänge) tief und steigt dann unterschiedlich schnell an.

Wenn auch gleichzeitig der ^{35}Cl -Strom zurückgeht und eventuell das $^{37}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$ -Verhältnis ansteigt, so ist die Probe wahrscheinlich durchgebrannt, das heisst, der Cs-Strahl trifft auf das Tantal und produziert Schwefelionen. Die Messung muss dann abgebrochen werden. Nur die guten Durchgänge werden ausgewertet.

4. Kapitel: Messmethode und Auswertung

Bemerkung Die Änderung des $^{37}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$ -Verhältnisses beobachtet man dann, wenn sich das Probenmaterial vom Trägermetall löst. Dadurch wird die elektrische Feldverteilung in der Ionenquelle gestört, was zu Fraktionierungseffekten führt.

3) Die Schwefelstossrate ist durchwegs hoch, wenn auch vielleicht mit Schwankungen von Durchgang zu Durchgang.

In diesem Fall (wenn alle anderen Messwerte normal sind) muss angenommen werden, dass der Schwefel aus der Probe selber stammt. Was als hohe Schwefelstossrate angesehen werden muss, hängt vom Verhältnis $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ ab. Viel Schwefel bedeutet, dass der Schwefel nicht mehr vollständig unterdrückt werden kann. Die irrtümlich gezählten ^{36}S liegen innerhalb des ^{36}Cl -Peaks. Je weniger ^{36}Cl -Ereignisse gezählt werden, desto eher wird der wahre Wert verfälscht. Als grobe Faustregel kann man sagen, dass das Verhältnis von irrtümlich gezählten ^{36}S zu ^{36}Cl den Wert 1:2 nicht überschreiten sollte, damit eine sinnvolle Korrektur noch möglich ist. Die Korrekturmöglichkeiten werden im nächsten Abschnitt vorgestellt.

4.4 Auswertungsmöglichkeiten einer durch Schwefel beeinträchtigen Messung

Wenn eine Probe eine erhöhte Schwefelstossrate hat, muss sie nicht notwendigerweise verloren sein. In einigen Fällen kann der Wert des Schwefeluntergrundes bestimmt und abgezogen werden. Es wurden verschiedene Korrekturverfahren erarbeitet, die alle zu vergleichbaren Resultaten führten. Gewissheit kommt auch aus Proben, die erst korrigiert und danach noch einmal gereinigt und erfolgreich gemessen wurden. Die Resultate stimmten innerhalb der Messgenauigkeit überein, wenn die Proben die nötigen Kriterien für eine Korrektur erfüllten. Folgendes kann gleich zu Beginn für alle Korrekturmethode festgehalten werden:

- Bei Proben mit geringer Schwefelstossrate führen die Auswertungen mit Schwefelkorrektur und ohne Schwefelkorrektur innerhalb des Messfehlers zu demselben Ergebnis.
- Proben mit sehr hoher Schwefelstossrate (> 2500 ^{36}S -Ereignisse pro Sekunde) können mit keiner Korrektur gerettet werden. Hier hilft nur Wiederaufarbeiten.

Bereits während der Messung einer Probe werden die Spektren und andere Kontrollgrößen wie zum Beispiel die Transmission und die Ströme der Isotope kontrolliert. Zu diesem Zeitpunkt kann am einfachsten festgestellt werden, wie stark die Verunreinigung ist und woher sie kommt.

Um zu verstehen, was es heisst, die "Spektren anzuschauen", muss kurz erwähnt werden, welche Ereignisse als ^{36}Cl identifiziert werden. Wie im Abschnitt 4.1 "AMS" beschrieben, haben ^{36}S und ^{36}Cl im Detektor verschiedene, bekannte Energieverlustcharakteristiken (siehe Fig. 4.4.1). Darauf beruht die Unterscheidung von ^{36}S und ^{36}Cl . Damit können die vier Elektrodensignale $\Delta E1$ bis $\Delta E4$ im Detektor sukzessive ausgewertet

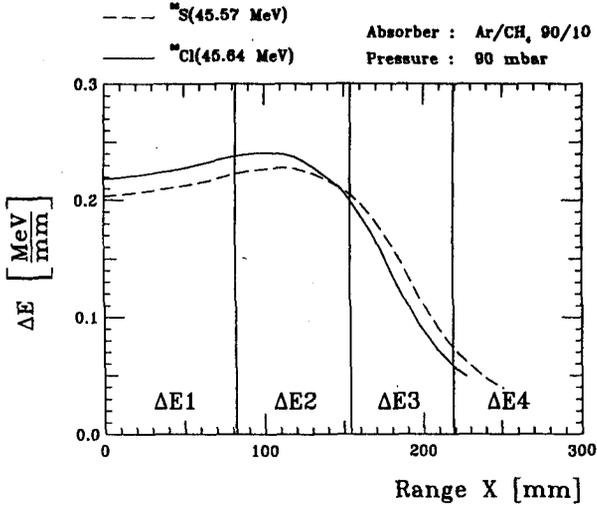


Fig. 4.4.1 (aus Synal 1989) Energieverlust von ^{36}Cl und ^{36}S in Argon/Methan. Zusätzlich eingezeichnet sind die Grenzen der vier im Detektor verwendeten Elektrodenplatten.

werden (vgl. Fig. 4.4.2). $\Delta E1$ gibt zum Beispiel an, wieviel Energie ein eintreffendes Teilchen durch die Abbremsung im Gas über der ersten Elektrodenplatte verloren hat (vgl. Fig. 4.1.1). $\Delta E2$ bis $\Delta E4$ sind analog für die anderen Platten. Zusätzlich zu den vier ΔE der Elektroden wird auch die totale Energie jedes eintreffenden Teilchens registriert. Die Spektren dieser Signale und die berechneten Parameter können auf dem Steuercomputer in zweidimensionalen Diagrammen dargestellt werden (Fig. 4.4.3). Zusätzlich kann man aus den Signalen die Spektrumsbereiche, in denen man ^{36}Cl -Ereignisse erwartet, durch Setzen eines Fensters ausschneiden. Bei der Auswertung werden diese Fensterbedingungen schrittweise geprüft (in Fig. 4.4.2 sichtbar), das

4. Kapitel: Messmethode und Auswertung

gezählten Ereignisse dargestellt, nachher aber sukzessive nur noch die ausgewählten Ereignisse weiterverarbeitet. Die übriggebliebenen Ereignisse werden in einem zweidimensionalen Diagramm $\Delta E1 + \Delta E2$ vs. E_{tot} dargestellt (Fig. 4.4.3). Eine detailliertere Darstellung inklusive Beschreibung der technischen Realisation findet sich in Synal (1989).

Aus dieser letzten Darstellung kann erfahrungsgemäss das Ausmass des Schwefeinflusses rein visuell recht gut beurteilt werden. ^{36}Cl stellt sich nämlich als Peak im Fenster dar, während die ^{36}S -Ereignisse von tieferen Energien her in dieses Fenster hineinlaufen (als Anhaltspunkt in der Form einer auslaufenden Gaußkurve). Wenn diese Form dominant ist, muss die Probe wiederaufbereitet werden. Ein weiteres Kriterium kann im $\Delta E2$ -Spektrum überprüft werden: Proben mit mehr als 2500 ^{36}S -Ereignissen pro Sekunde sind in jedem Fall unbrauchbar, da der Detektor höhere Stossraten nicht verarbeiten kann. Eine etwas feinere Abschätzung liefert das $^{36}\text{S}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis wie oben beschrieben.

1. Korrekturmethode: Die "Plateau-Methode"

Die Methode basiert auf dem Auslaufen der ^{36}S -Verteilung im Bereich des $\Delta E1 + \Delta E2$ vs. E_{tot} -Plots bei stark schwefelhaltigen Proben. Die Idee dieser Methode ist folgende: Bei einer schwefelfreien Probe (z. B. bei der Standardprobe) ändert sich das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis nicht, wenn die Bereichsgrenzen im obigen Plot eingeeengt werden. Bei einer schwefelhaltigen Probe wird der Schwefeinfluss umso geringer, je enger das Fenster um den eigentlichen ^{36}Cl -Peak gesetzt wird. Darüberhinaus nimmt der Schwefeinfluss infolge des Auslaufens der ^{36}S -Verteilung auch gegen grössere Energien ab. Man setzt nun das Fenster um den ^{36}Cl -Peak im Summenspektrum aller (schwefelfreien) Standardproben einer Kassette sukzessive enger und bestimmt die Grenzen, für die 80%, 70% und 50% der ursprünglichen Ereignisse gezählt werden. Diese werden nachher auf alle schwefelhaltigen Proben angewendet. Nach einer Normierung auf 100% der Ereignisse werden in diesen Proben also

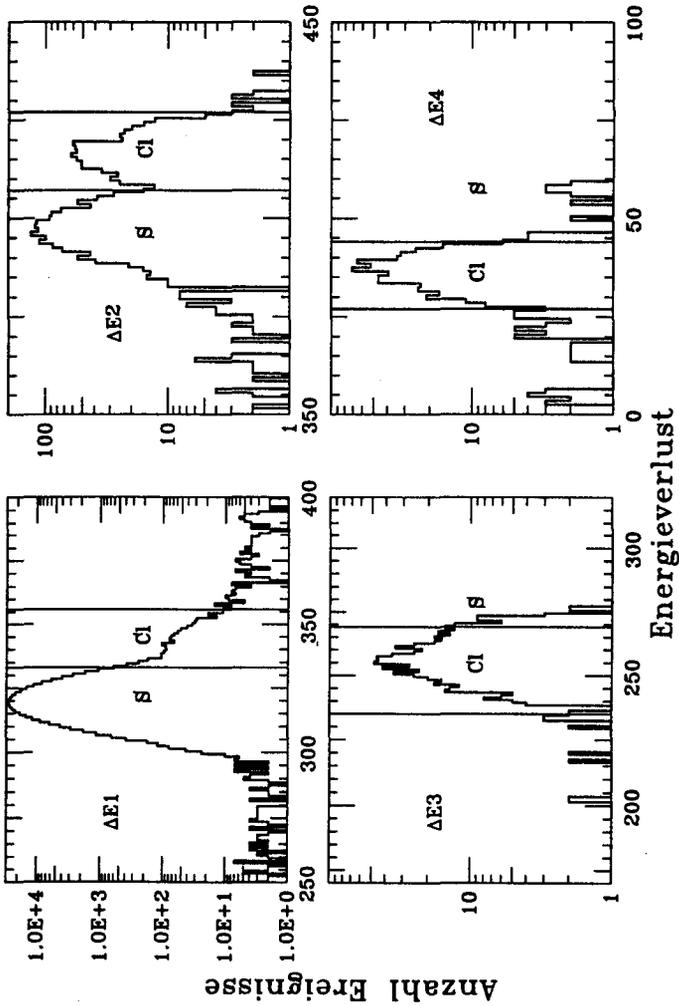


Fig. 4.4.2 Energieverlustspektren einer ^{36}Cl -Probe. Die Einteilung des Energieverlusts auf der x-Achse bezeichnet die Kanalnummern. Die senkrechten Linien in den Figuren markieren Bereiche, in denen ^{36}Cl -Ereignisse erwartet werden. Diese Bereiche wurden bei der Analyse als Fensterbedingungen verwendet.

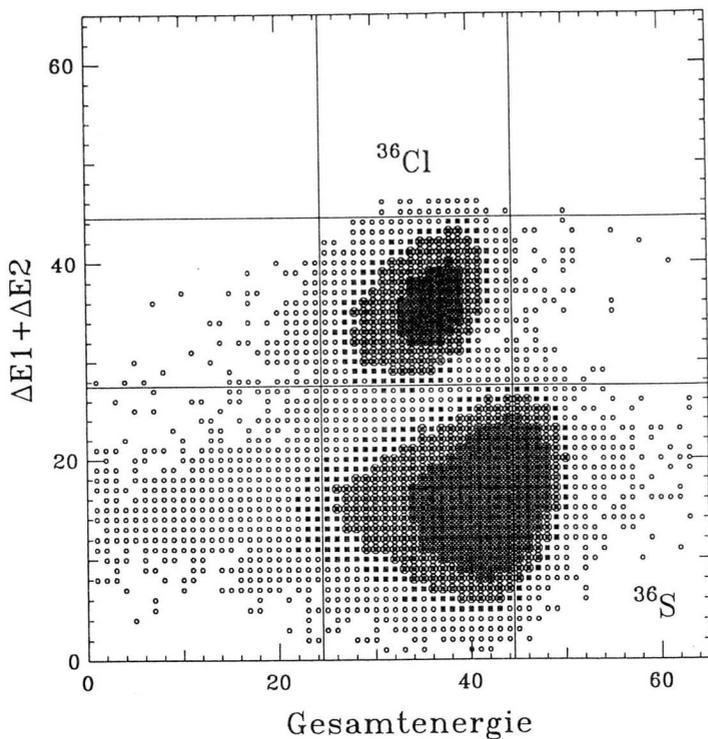


Fig. 4.4.3 Scatter-Plot aus der Summe der Energieverluste auf den ersten beiden Elektrodenplatten gegen die gemessene Gesamtenergie der einfallenden Teilchen. Die Fensterbedingungen bezeichnen den Bereich, wo ^{36}Cl -Ereignisse erwartet werden. Die Spitze der ^{36}S -Ereignisse erscheint in diesem Plot versetzt.

4. Kapitel: Messmethode und Auswertung

mehr echte ^{36}Cl -Ereignisse gezählt. Die Erfahrung zeigt, dass bei korrigierbaren Proben ein Plateauwert im $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis gefunden wird, der sich trotz weiterer Einengung der Grenzen nicht mehr verändert, während zu verschmutzte Proben ständig abfallende oder stark schwankende Messresultate aufweisen. Der Plateauwert entspricht dem $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis dieser Probe bei ungestörter Messung. Mit dieser Methode erhält man auch ein Kriterium für die Notwendigkeit einer Wiederaufbereitung von Proben.

2. Korrekturmethode: 80%-Auswertung

Diese Korrekturmethode wurde aus der Plateaumethode abgeleitet. Es hat sich nämlich gezeigt, dass der $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Wert, der aus 80% der Ereignisse errechnet wird, bei korrigierbaren Proben bereits auf dem Plateau liegt. Eine weitere Einengung der Grenzen zur Berechnung des $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisses ist also nicht sinnvoll, da sich dabei bei gleichbleibendem Messwert der relative statistische Fehler erhöht.

3. Korrekturmethode: Die "Blank"-Methode

Hinter dieser Methode liegt die Annahme, dass alle ^{36}Cl -Ereignisse, die bei einem Blank gezählt werden, vom ^{36}S stammen müssen. Diese Annahme wird gestützt durch die Tatsache, dass der Schwefelgehalt in Blanks und die Zahl der gemessenen Ereignisse gut korreliert sind. Der Schwefelunterdrückungsfaktor lässt sich also am Maschinenblank bestimmen. Er ist nahezu unabhängig von der Schwefelstossrate. Deshalb wird wie folgt korrigiert: Man trägt die Zahl der ^{36}Cl -Ereignisse und die Schwefelstossraten aller Blanks gegeneinander auf und legt eine Regressionsgerade durch diese Punkte. Mit Hilfe dieser Geraden wird auf die Messwerte der Proben extrapoliert. Dadurch ist der Schwefelanteil an den ^{36}Cl -Ereignissen dieser Proben bestimmt und kann abgezogen werden. Vor der Anwendung dieser Methode muss man natürlich sicher sein, dass die Blanks nicht ^{36}Cl -kontaminiert sind. Der Maschinenblank

(kommerzielles AgCl) erfüllt diese Bedingung, bei Laborblanks ist jedoch eine gewisse Vorsicht geboten. Da man normalerweise nur relativ wenige Blank-Messungen pro Kassette hat, muss ein kontaminierter Blank nicht völlig neben der Regressionsgerade liegen. Vielmehr verfälscht er deren Steigung.

Kommentar zu den drei Methoden

Wie bereits erwähnt, liefern alle Methoden im korrigierbaren Fall innerhalb des Messfehlers übereinstimmende Resultate. Bei einer perfekten Korrektur erwartet man, dass die Werte in einem ^{36}Cl vs. ^{36}S -Diagramm aller Proben unkorreliert sind. Mit Hilfe dieses Diagramms kann gezeigt werden, dass die ersten beiden Methoden leicht unterkorrigieren (es ist immer noch ein gewisser ^{36}S -Untergrund vorhanden), während die dritte Methode tendenziell leicht überkorrigiert (die Annahme, alle Ereignisse seien vom Schwefel, gilt natürlich nicht streng).

Die Plateau-Methode wurde aufgrund der beschriebenen Erfahrungen von der 80%-Auswertung abgelöst.

4.5 Verbesserungsmöglichkeiten

Obwohl sich glücklicherweise herausgestellt hat, dass eine gewisse Schwefelmenge in den Proben korrigierbar ist, ist es natürlich am besten, wenn der Schwefel erst gar nicht auftritt. Der weitaus effizienteste Ansatzpunkt dazu ist eine sichere und möglichst vollständige Elimination im Labor respektive eine gleichmässig saubere Arbeitsweise zur Verhinderung von Verschmutzung und Probenverlust (vgl. Kapitel 3). Daneben gibt es aber einen weiteren Wunsch, um das Problem in den Griff zu bekommen:

- Beim Beschuss der Probe mit Caesium-Ionen in der Quelle entstehen sowohl positive wie negative Cl-Ionen. Durch Optimierung des Caesium-Stromes könnte die Ausbeute an negativen Cl-Ionen noch etwas verbessert werden. Ein weiterer Weg, um die Cl-Ausbeute zu steigern, ist eine effizientere Ausnutzung der vorhandenen Probenmenge. Heute wird nur ein kleiner Teil des Probenmaterials zerstäubt, zum einen, damit das umgebende Probenmaterial den Schwefel im Trägermetall abdeckt, zum anderen, weil durch den schiefen Einschuss des Caesium-Strahls nicht die volle Tiefe des Mittellochs ausgenützt werden kann. Hierfür würden eine Quelle, die vertikal auf das Target schiesst (nahe der Fertigstellung) und eine schwefelärmere Umgebung, in die die Probe eingepresst wird, nochmals einigen Gewinn bringen.

5. Kapitel

Resultate

5.1 Einführung: Anforderungen an neue Eiskerne aufgrund früherer ^{36}Cl -Messungen im Eis

Die Messung grösserer Serien von ^{36}Cl -Eisproben ist erst seit wenigen Jahren auf einzelnen AMS-Anlagen möglich geworden (Elmore und Phillips 1987b; Suter et al. 1987; Synal et al. 1987). Aus diesem Grunde gibt es erst sehr wenige ^{36}Cl -Zeitreihen. In Abhängigkeit der verschiedenen Fragestellungen unterscheiden sich diese sowohl in den analysierten Zeitabschnitten als auch in der Auflösung.

Suter et al. (1987) verwendeten Einjahresproben von Dye 3 zwischen 1940 und 1985 AD für die Untersuchung des Depositionsverlaufs des bombenproduzierten ^{36}Cl der fünfziger und sechziger Jahre im Eis von Grönland. Die Konzentrationen lagen bis zu tausend Mal über dem natürlichen Wert, in Übereinstimmung mit früheren Messungen (Elmore et al. 1982). Dieser Depositionsverlauf ("Bombenpeak") diente als Inputfunktion von ^{36}Cl ins Grundwasser während dieser Jahre und wurde als Tracer in Grundwasseraquiferen verwendet (Synal et al. 1990).

Für die Verwendung des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses als Langzeitdatierungsmethode von Eis führten Suter et al. (1987) und Elmore et al. (1987a) Messungen am Eis von Camp Century in Grönland für die Zeit von 1550 - 1750 AD (Suter et al. 1987, 21 Proben) respektive 1550 - 1900 (Elmore et al. 1987a, 35 Proben) durch. An denselben Proben wurde auch die ^{10}Be -Konzentrationen bestimmt. Beide Autoren kamen zum Schluss, dass das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis unerwartet grosse Schwankungen aufweist und deshalb zum Datieren ungeeignet ist. Suter et al. (1987) fanden ähnlich grosse Variationen auch in Monatsproben des Jahres 1978 von Dye 3 in

Grönland. Bei diesen ersten ^{36}Cl -Messungen lag die Detektionsgrenze allerdings nur knapp unter den $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnissen in den Eisproben. Conard et al. (1989) überprüften und erweiterten den Umfang der ^{36}Cl -Zeitreihe von Camp Century später auf zirka 70 Proben zwischen 1265 - 1865 AD (Fig. 5.1.1). Das Auftreten einer Konzentrationserhöhung während des Maunder-Minimums bestätigte die Vermutung, dass ^{36}Cl ebenso wie die Radioisotope ^{10}Be und ^{14}C solarmodulierten Produktionsschwankungen unterliegt. Die abschnittsweise sehr schlechte Eisqualität dieses bereits in den sechziger Jahren gebohrten Kerns, welche eine Datierung gewisser Abschnitte stark erschwerte, und die Auflösung von maximal 4 - 10 Jahren verhinderten jedoch Analysen, die über visuelle Untersuchungen von Phänomenen im Bereich von Dekaden hinausgingen.

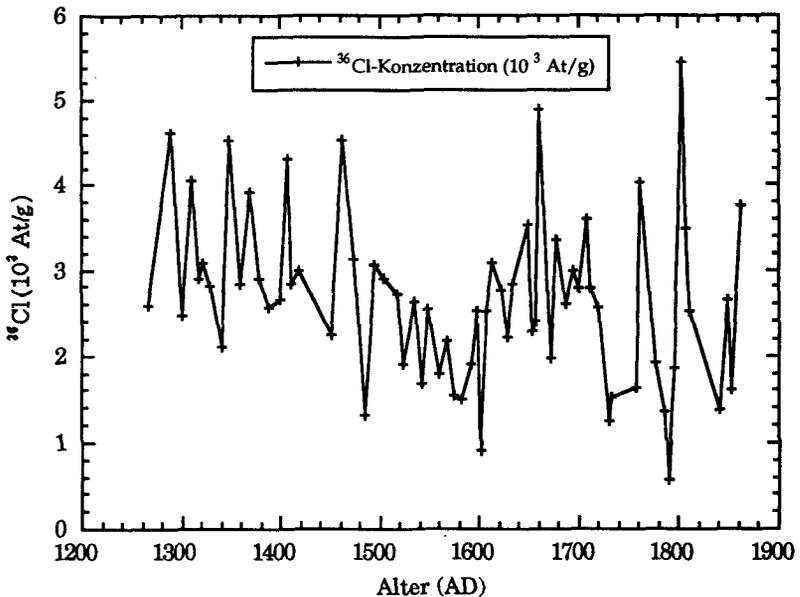


Fig. 5.1.1 ^{36}Cl -Konzentrationen von Camp Century, Grönland (gemessen von Conard et al. 1989 in Rochester).

Der Mittelwert von 24 Atomen/m² sec der in Camp Century gemessenen ³⁶Cl-Flüsse (Conard et al. 1989) liegt ungefähr einen Faktor 8 über dem nach Lal und Peters (1967) erwarteten Wert (siehe dazu auch Kapitel 5.3). Da der gemessene mittlere ¹⁰Be-Fluss innerhalb eines Faktors 2 mit dem berechneten Wert übereinstimmt (Beer et al. 1984), wurde eine zusätzliche irdische ³⁶Cl-Quelle in Betracht gezogen, die auch für die Variabilität im ¹⁰Be/³⁶Cl-Verhältnis hätte verantwortlich sein können. Diese konnte damals aber nicht identifiziert werden. Wie in Kapitel 6.2 noch gezeigt wird, existiert sie vermutlich gar nicht.

Durch diese Erkenntnisse und die offenen Fragen bezüglich Isotopenverlauf und ³⁶Cl-Budget aus den ersten ³⁶Cl-Zeitreihen waren die Anforderungen an weitere Eiskerne gegeben. Insbesondere galt es, an verschiedenen Orten möglichst lange, gut datierte Kerne zu nehmen und durch eine verbesserte Messtechnik und genügend Probenmaterial eine feine Auflösung zu erreichen. Auf der Suche nach den Ursachen der Isotopenkonzentrationsschwankungen interessierte man sich vor allem für den Beitrag der Variabilität der atmosphärischen Produktion. Zudem erhoffte man sich, genauere Vorstellungen von der Art einer möglichen zusätzlichen ³⁶Cl-Quelle zu bekommen. Durch die feinere Auflösung erwartete man auch Erkenntnisse über mögliche Unterschiede im Transportverhalten von ¹⁰Be und ³⁶Cl, welche ebenfalls als Grund für die ¹⁰Be/³⁶Cl-Schwankungen zur Diskussion standen.

5.2 Die neuen ^{36}Cl -Zeitreihen

In dieser Arbeit werden zwei neue ^{36}Cl -Zeitreihen vorgestellt, die obgenannte Anforderungen weitgehend erfüllen: Die Eiskerne von Milcent und Dye 3 in Grönland. Im Hinblick auf die Prozesse, welche die ^{36}Cl -Konzentrationen beeinflussen, untersuchten wir ferner den ^{36}Cl -Verlauf im Niederschlag eines Gewitters in der Schweiz. Von den meisten Proben liegen ebenfalls die ^{10}Be -Werte vor. Somit verfügt man auch über die ersten langen $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Reihen im Eis. Die neuen Eiskerne weisen gegenüber Camp Century eine feinere Auflösung und eine bessere Eisqualität auf. Damit stehen jetzt drei Eiskerne von verschiedenen Stationen in Grönland zur Verfügung und ermöglichen zum ersten Mal eine Vorstellung über die räumliche und zeitliche Verteilung der ^{36}Cl -Deposition. Die Gewitterfallstudie verfolgt die Entwicklung der Isotopenflüsse und -konzentrationen im Zeitbereich von Stunden während des Durchzugs zweier Gewitter. Dabei konnten erstmals auch Informationen über den $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verlauf während eines Niederschlagsereignisses gewonnen werden.

Nachstehend werden die neuen Zeitreihen einzeln vorgestellt und die statistischen Kenngrößen angegeben. Nach einer Gegenüberstellung der verschiedenen Kerne in Kapitel 5.3 werden alle Resultate in Kapitel 6 aus dem Blickwinkel verschiedener Fragestellungen diskutiert.

5.2.1 Der Eiskern von Milcent, Grönland

Die Milcent-Bohrstation ($70^{\circ}18' \text{ N}$, $44^{\circ}35' \text{ W}$) liegt in einer Höhe 2450 Meter über Meer auf dem grönländischen Eisschild (siehe Karte ganz zu Beginn dieser Arbeit). 1973 wurde im Rahmen des GISP-Projektes ein 398 m langer Kern gebohrt, der bis ins Jahr 1177 AD zurückreicht (Hammer et al. 1978). Die heutige Akkumulationsrate beträgt 0.53 m Eis/Jahr, entsprechend 0.49 m Wasser/Jahr.

Die ^{36}Cl -Konzentrationen wurden an den gleichen Proben bestimmt, an denen Beer et al. (1983) die ^{10}Be -Konzentration gemessen haben (siehe Tabelle A.1.A im Anhang A.1.1 und Figuren 5.2.1 und 5.2.2). Für ^{36}Cl sind das 100 Proben zwischen 1181 und 1822 AD. Die Auflösung der Rohdaten beträgt zwischen 1600 und 1750 AD zirka 3 Jahre und davor um 7 Jahre, abgesehen von einzelnen grösseren Lücken, die wegen Problemen bei der Aufbereitung entstanden. Im jüngeren Teil des Kerns konnte man also kürzere Ereignisse und höherfrequente Variabilitäten auflösen, die in der Zeit davor nicht zu sehen waren. Die Messung erfolgte mit dem Beschleunigermassenspektrometer an der ETH Zürich. Die angegebenen Fehler sind die 1σ -Grenzen der Streuung aller Messungen einer Probe, welche je mit dem Quadrat des statistischen Fehlers der Messung gewichtet wurden. Die Datierung des Kerns wurde von Hammer et al. (1978) vorgenommen. Sie wurde aufgrund von $\delta^{18}\text{O}$ -Jahresvariationen erstellt und mit historisch datierten Vulkanausbrüchen überprüft. Neben den Isotopenmessungen standen uns von denselben Proben auch die Werte der Akkumulationsrate und die $\delta^{18}\text{O}$ -Werte zur Verfügung.

In den ^{36}Cl -Rohdaten (Fig. 5.2.1) fallen sofort die starken Konzentrationsunterschiede von Probe zu Probe auf, die oft weit grösser sind als der Fehler. Die ^{10}Be -Konzentration in Figur 5.2.2 verhält sich vor 1600 AD regelmässiger als ^{36}Cl . In der Zeit vor dem Maunder-Minimum ist die Streuung der auf den Mittelwert normierten ^{36}Cl -Konzentration erheblich grösser als die von ^{10}Be . Dabei wiederum ist zu berücksichtigen, dass der mittlere relative Fehler der ^{10}Be -Konzentration in dieser Zeit 7.5%, derjenige von ^{36}Cl 11.5% beträgt. Die Mittelwerte der Isotope und ihres Verhältnisses sind in Tabelle 5.2.A für die ganze Zeitspanne und für die Zeit des Maunder-Minimums zusammengefasst. Die Streuungen um die Mittelwerte des ganzen Intervalls sind bei beiden Isotopen wegen des prägnanten Maunder-Minimum-Peaks von ^{10}Be vergleichbar (Tab. 5.2.A). Während des Wolf- (1280 - 1350 AD), Spörer- (1420 - 1540 AD) und Maunder-Minimums (1645 - 1715 AD) sind signifikante ^{10}Be -Konzentrationserhöhungen sichtbar, wobei das Maunder-Minimum die höchsten ^{10}Be -Konzentrationen des ganzen Kerns aufweist. Dies ist bei ^{36}Cl nicht der Fall. Wohl sieht man im Maunder-Minimum eine signifikante

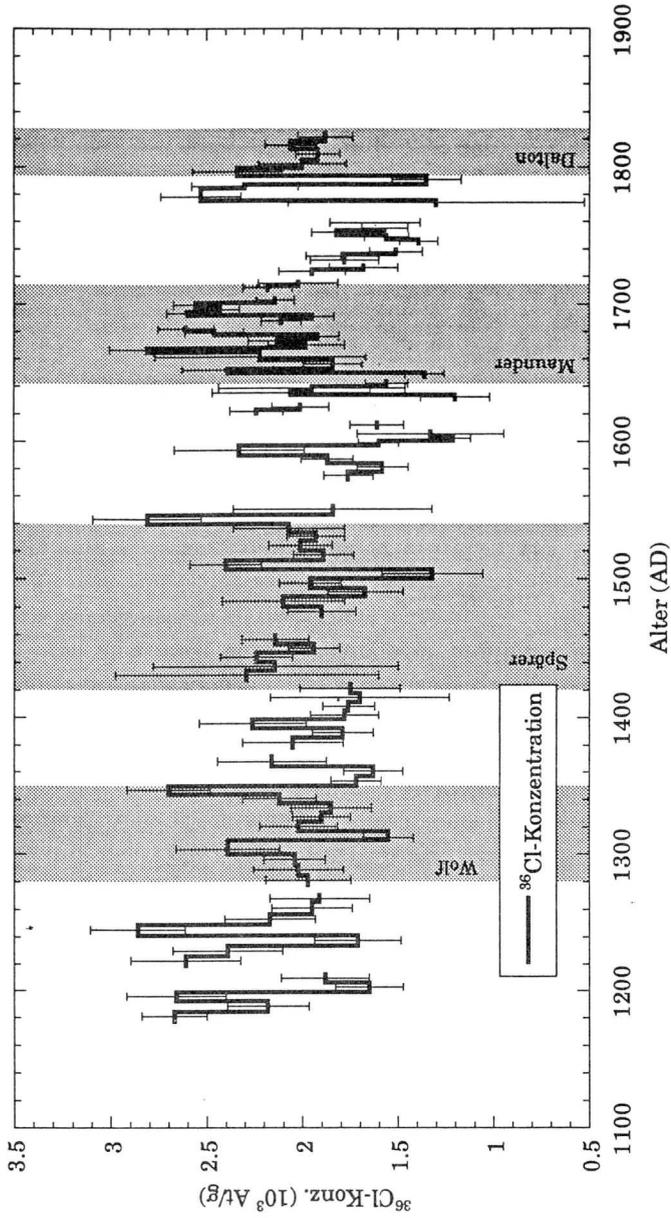


Fig. 5.2.1 ^{36}Cl -Konzentrationen mit absoluten Fehlern (1σ) von Milcent, Grönland, mit eingezeichneten Sonnenminima

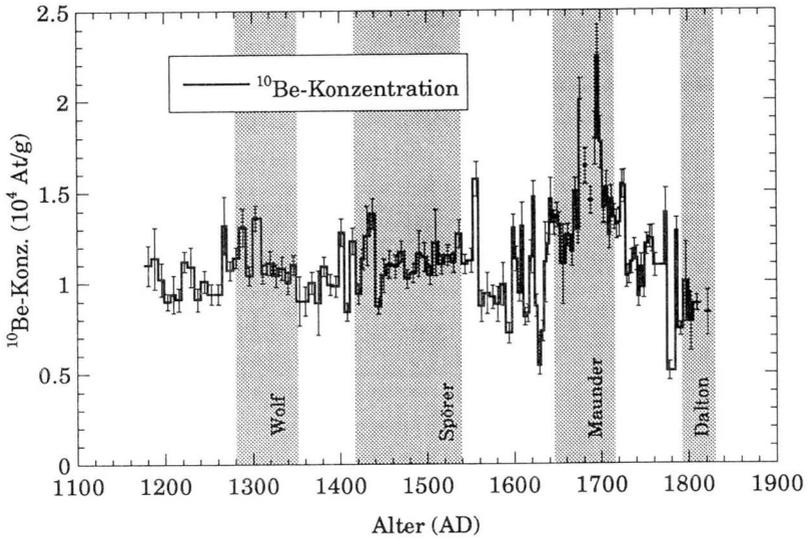


Fig. 5.2.2 ^{10}Be -Konzentrationen mit 1σ -Fehlern von Milcent, Grönland, mit eingezeichneten Sonnenminima

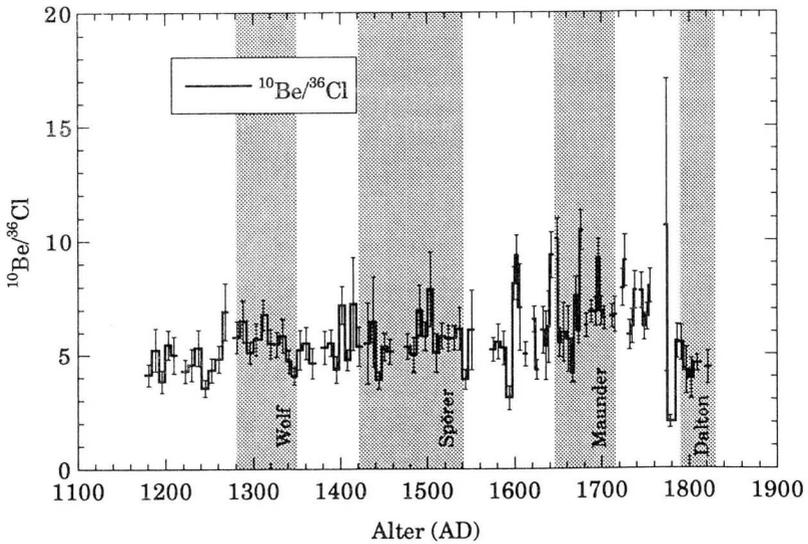


Fig. 5.2.3 $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisse mit 1σ -Fehlern von Milcent, Grönland, mit eingezeichneten Sonnenminima

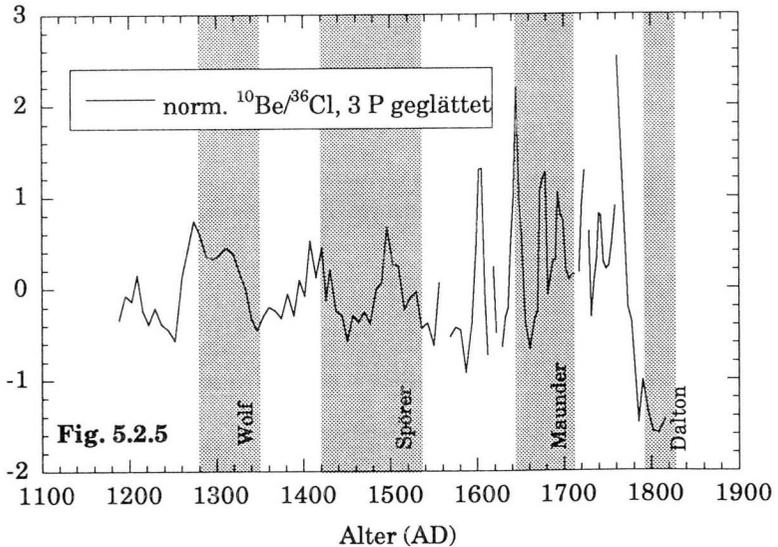
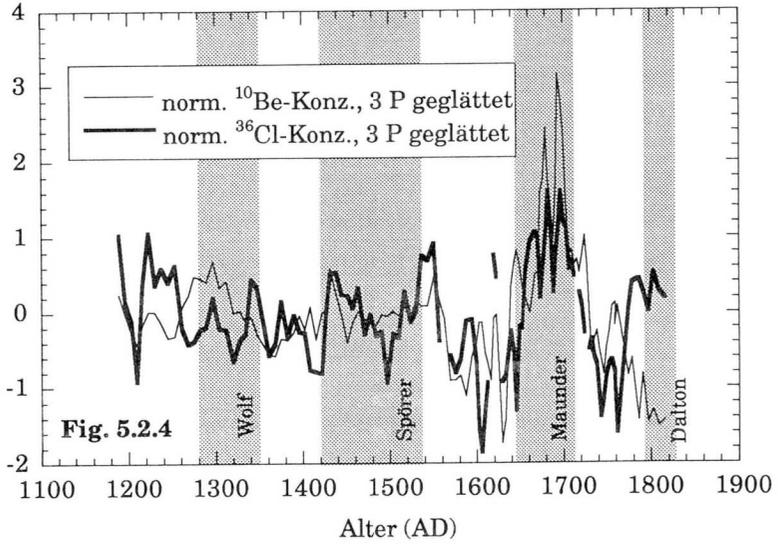
5. Kapitel: Resultate

Konzentrationserhöhung. Ueber die ganze Zeit gesehen finden sich aber auch vor 1600 AD ähnlich hohe Werte, da die ^{36}Cl -Konzentration vor dem Maunder-Minimum einen negativen Trend enthält (Fig. 5.2.1). In der gleichen Zeit weist ^{10}Be eher einen leicht positiven Trend auf. Interessanterweise ist das Spörer-Minimum in den ^{36}Cl -Rohdaten nur ansatzweise und das Wolf-Minimum fast gar nicht sichtbar.

Der Verlauf des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses lässt sich in zwei Teile gliedern (Fig. 5.2.3). Vor 1600 AD ist das Bild ähnlich wie das der Konzentrationen. Zwischen 1600 und 1800 AD hingegen ist die Varianz signifikant höher als in der Zeit davor. Durch Zusammenfassen dieser Proben zu ungefähr 7 Jahres-Mittelwerten lässt sich zeigen, dass diese Schwankungen nur wenig mit der besseren Auflösung zu tun haben. Man beobachtet im Verhältnis Extremwerte zwischen 4 und 12. Der Mittelwert des Verhältnisses über die ganze Zeit beträgt 5.9 ± 1.6 . Betrachtet man fortlaufende Mittelwerte über 10 Punkte, so findet man um 1250 AD eine signifikante Erhöhung des Verhältnisses (Fig. 5.2.3). Langfristig hat das Verhältnis vor 1600 AD jedoch keinen Trend, steigt aber danach zwischen 1600 und 1700 AD tendenziell an. Im 18. Jahrhundert geht es wieder auf durchschnittliche Werte zurück. Allgemein entsteht also der Eindruck, dass sich besondere Epochen im Verlauf der einzelnen Isotope auch im Verlauf des Verhältnisses auffallen.

Zeitreihe	Mittel (1181-1822 AD)	Mittel (1645 - 1715 AD)
^{10}Be (10^3 At/g)	11.4 ± 2.6 ($\pm 23\%$)	14.8 ± 2.9 ($\pm 20\%$)
^{36}Cl (10^3 At/g)	2.0 ± 0.37 ($\pm 19\%$)	2.22 ± 0.37 ($\pm 17\%$)
$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$	5.9 ± 1.6 ($\pm 27\%$)	7.0 ± 1.8 ($\pm 26\%$)

Tab. 5.2.A: *Mittelwerte der Konzentrationen und deren Verhältnis. Die Fehler sind die 1σ -Werte der Streuung der Einzelwerte um den Mittelwert.*



^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen (5.2.4) und $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis (5.2.5) von Milcent, Grönland (Normierung auf Mittelwert 0 und Standardabweichung 1, Kurven über 3 Punkte geglättet, lineare Trends entfernt).

Zum besseren Vergleich der ^{10}Be - und der ^{36}Cl -Kurve wurde der lineare Trend entfernt und eine Normierung auf den Mittelwert 0 und die Standardabweichung 1 vorgenommen. Diese Kurven wurden mit einem gleitenden Mittelwert über drei Punkte geglättet (Fig. 5.2.4). Figur 5.2.5 zeigt die entsprechende Kurve für das Isotopenverhältnis. In diesen Graphen treten die oben erwähnten Konzentrationserhöhungen deutlicher hervor. Oft sind die Verläufe von ^{10}Be und ^{36}Cl ähnlich, weisen aber verschiedene Amplituden auf, was zu Schwankungen im Verhältnis führt. Grössere Abweichungen zwischen dem ^{10}Be - und ^{36}Cl -Verlauf ergeben sich nur um 1800 AD, um 1600, um 1500 AD und vor 1350 AD. Die Diskussion dieser Ergebnisse findet sich in Kap. 6.

Frequenzanalyse

Die Frequenzanalyse wurde mit der Lomb-Scargle-Methode durchgeführt (Haubold und Beer 1992; Lomb 1976; Scargle 1982). Der grosse Vorteil dieser Methode gegenüber der Fouriertransformation ist, dass die Messpunkte nicht äquidistant zu sein brauchen. Wegen der variablen Auflösung des Kerns und der Datenlücken hätte man bei Verwendung der Fourieranalyse relativ viele Punkte interpolieren müssen. Dies birgt aber die Gefahr künstlicher Signale in sich, weshalb auf eine andere Methode ausgewichen wurde.

Die Energiedichte P als Funktion der Frequenz f ist bei der Lomb-Scargle-Methode definiert als

$$P_N(f) = \frac{1}{\sigma^2} \left(\frac{\left[\sum_j (x_j - \bar{x}) \cos 2\pi f(t_j - \tau) \right]^2}{\sum_j \cos^2 2\pi f(t_j - \tau)} + \frac{\left[\sum_j (x_j - \bar{x}) \sin 2\pi f(t_j - \tau) \right]^2}{\sum_j \sin^2 2\pi f(t_j - \tau)} \right) \quad (5.1)$$

τ wird definiert durch

$$\tan(4\pi f\tau) = \frac{\sum_j \sin 4\pi f t_j}{\sum_j \cos 4\pi f t_j} \quad (5.2)$$

und dient als Korrekturfaktor für Phasenverschiebungen zwischen den verschiedenen Frequenzen. Das Spektrum ist normalisiert mit der Varianz σ^2 der Daten

$$\sigma^2 = \left[\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2 \right] / (N - 1) \quad (5.3)$$

$$\text{wobei } \bar{x} = \left[\sum_{i=1}^N x_i \right] / N, \text{ Mittelwert, } N = \text{Anzahl Datenpunkte } (x_i = x(t_i)) \quad (5.4)$$

gegeben sind. Die kleinste detektierbare Frequenz ist $f_c = 1/T_c$ mit $T_c =$ Länge des betrachteten Zeitabschnitts. Bei Milcent ist $f_c \approx 0.0016 \text{ y}^{-1}$ und bei Dye 3 $f_c \approx 0.003 \text{ y}^{-1}$. Haubold hat die Lomb-Scargle Methode mit der schnellen Fouriertransformation anhand von Sonnenflecken- und ^{10}Be -Daten aus Dye 3 und Milcent verglichen, also denselben Eisproben, die auch in dieser Arbeit verwendet werden. Die detektierten Perioden stimmten bis auf wenige Procente überein. Man sieht auch eine ziemlich gute Uebereinstimmung mit unseren Auswertungen. Kleine Abweichungen zwischen Haubold und dieser Arbeit können zum einen daher stammen, dass Haubold und Beer Proben zwischen 1783 und 1985 AD betrachtet haben, also nicht denselben Zeitabschnitt. Zum anderen haben wir nur Proben analysiert, in denen sowohl Chlor als auch Beryllium erfolgreich gemessen wurde.

Um den mittleren Frequenzbereich ($3\text{y} < T < \text{ca. } 20\text{y}$) studieren zu können, wurde die Analyse an den Rohdaten ohne Langfrist-Trend (in den Graphiken nicht gezeigt) sowie an über 3 Punkte geglätteten Daten ausgeführt, von denen der langfristige Trend abgezogen wurde. Zur Bestimmung des langfristigen Trends wurden die Rohdaten binomial mit einem laufenden Mittel über 49 Punkte geglättet. Diese Kurve wurde punktweise von den Rohdaten abgezogen. Die Frequenzanalysen der so behandelten Kurven der Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl , von deren Verhältnis, $\delta^{18}\text{O}$ und der Akkumulationsrate sind in den Figures 5.2.6 und 5.2.7 gezeigt. Gemeinsame Perioden sind hervorgehoben. Sie befinden sich im Bereich von Periodenlängen von 24 bis 27 Jahren (ausser bei der Akkumulationsrate), 36 bis 40 Jahren und 110 bis 130 Jahren (bei den Isotopen und ihrem Verhältnis). Die Signifikanz der Randfrequenzen in diesen Figures ist wegen der Lücken und der mässigen Auflösung schwierig zu beurteilen.

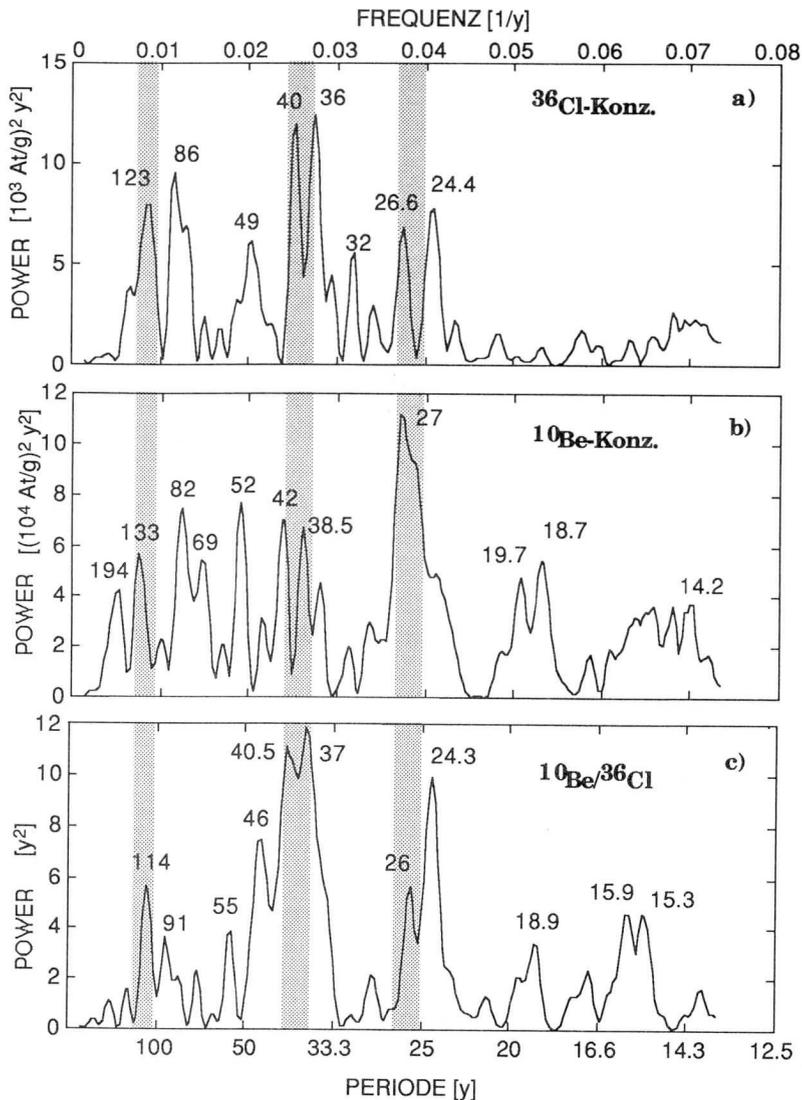


Fig. 5.2.6 Lomb-Scargle-Periodogramme der ^{36}Cl - (a) und ^{10}Be -Konzentration (b) und ihres Verhältnisses (c) von Milcent. Die Kurven wurden über 3 Punkte binomial geglättet und der Trend als binomial geglättete Kurve (mit einem laufenden Mittel über 49 Punkte) abgezogen. Die Zahlen bei den Peaks in den Diagrammen entsprechen den Perioden in Jahren. Gemeinsame Perioden sind durch graue Balken hervorgehoben.

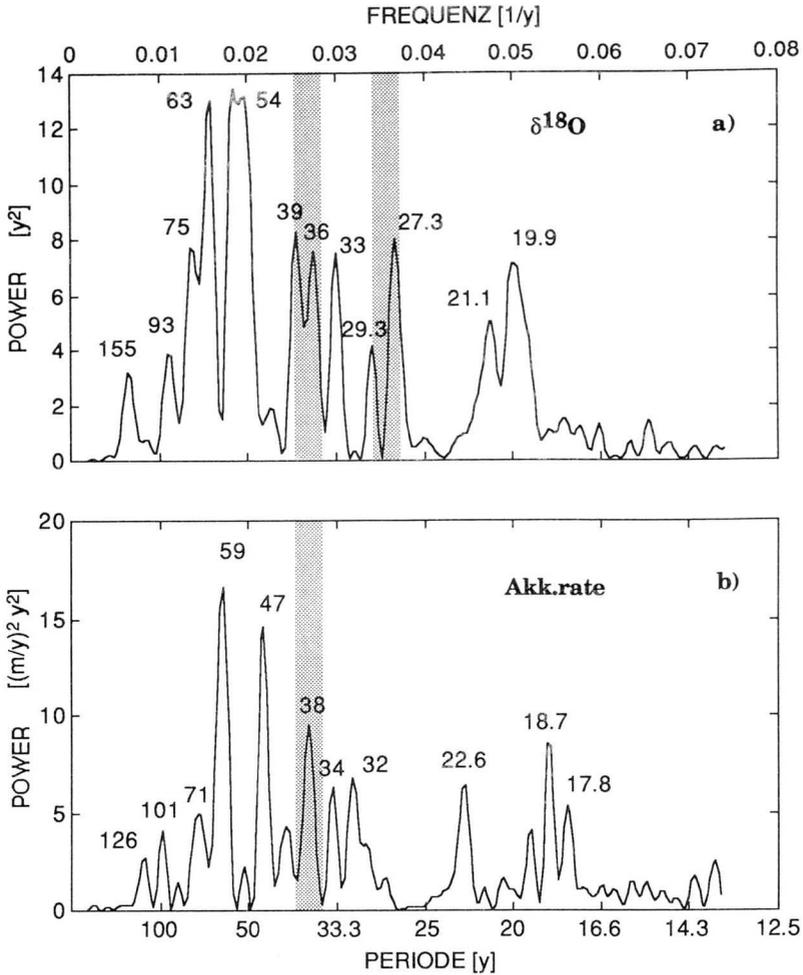


Fig. 5.2.7 Lomb-Scargle Periodogramme von $\delta^{18}\text{O}$ (a) und der Akkumulationsrate (b) von Milcent. Die Kurven wurden über 3 Punkte geglättet und der Trend als binomial geglättete Kurve (mit einem laufenden Mittel über 49 Punkte) abgezogen. Die angegebenen Werte bei den Peaks in den Diagrammen entsprechen den Perioden in Jahren. Gemeinsame Perioden sind durch graue Balken hervorgehoben (siehe auch Fig. 5.2.6).

Um den Spektrumsbereich zu erweitern, wendeten wir dieselbe Methode bei beiden Isotopenreihen auf den 3-jahresaufgelösten Abschnitt von 1600 - 1800 AD an. Von diesen Daten wurde der Langzeittrend (Rohdaten mit einem laufenden Mittel über 21 Punkte geglättet) abgezogen. Damit finden wir Perioden von 7.6, 12.3, 14.8 (am stärksten), 18.8 und 26.8 Jahren (nicht gezeigt). Die 11.4 Jahresperiode, die Attolini et al. (1988) in den Milcent ^{10}Be -Daten vor 1500 AD mit der Zyklusgramm-Methode aufspüren, sehen wir hingegen während dieser Zeit nicht. Da die Zyklusgramm-Methode im Gegensatz zur Lomb-Scargle-Methode nur ganz spezifisch nach einer Frequenz in der Zeitreihe sucht und deshalb auch sehr schwache Signale findet, ist es möglich, dass die 11.4y-Periode im Lomb-Scargle-Spektrum untergeht, zumal sie am Rand des detektierbaren Bereichs liegt.

Kap. 5.2.2 Der Eiskern von Dye 3, Grönland

Bei der Dye 3 Radarstation ($65^{\circ}11' \text{ N}$, $43^{\circ}49' \text{ W}$) auf dem grönländischen Eisschild auf zirka 2480 Metern über Meer wurden im Rahmen von GISP in verschiedenen Jahren Kurzkerne erbohrt. Der längste von ihnen ist 401 Meter lang. Schmelzhorizonte erschwerten die exakte Datierung. Sie erfolgte an der Universität Bern durch Messung der H_2O_2 -Jahresvariationen bis 1770 AD. Darunter wurden die jährlichen Variationen in der Leitfähigkeit im langen Hauptkern von Dye 3 herangezogen. Der Kern reicht bis 1423 AD zurück. Die jährliche Akkumulationsrate beträgt heute 0.52 m Eis/Jahr, entsprechend 0.48 m Wasser/Jahr.

Bis 1770 AD wurden Proben geschnitten, die genau ein Jahr umfassten, zwischen 1770 und 1618 AD 50 cm lange Stücke und vor 1618 AD 40 cm lange Stücke. Dies ermöglichte Messungen mit einer Auflösung von durchschnittlich einem Jahr (vgl. Anhang A.1.2). Beer et al. (1990) bestimmten daran die ^{10}Be -Konzentrationen. Zusätzlich wurde nun an denselben Proben mit der Messung der ^{36}Cl -Konzentrationen begonnen. Die Aufbereitung der Proben erfolgte nach der herkömmlichen Methode, welche in Kapitel 2 beschrieben wurde. Die Resultate zwischen 1567 und

1890 AD liegen in dieser Arbeit vor. Dies sind 299 Proben. Der Messfehler entspricht der 1σ -Grenze der Streuung aller Einzelmessungen um ihren Mittelwert, wobei die Einzelmessungen mit ihrem Messfehler gewichtet wurden. Er liegt in der Regel zwischen 5 und 15%. Es gibt nur wenige Lücken, von denen die grösste 3 Proben umfasst. Es mussten also nur einzelne Werte interpoliert werden, um eine äquidistante Datenreihe mit Einjahresabständen zu erhalten.

Neben den Isotopenkonzentrationen und -flüssen und ihrem Verhältnis lagen vom selben Kern die Zeitreihen der Akkumulationsrate und des $\delta^{18}\text{O}$ vor. Die $\delta^{18}\text{O}$ -Werte wurden uns freundlicherweise von S. Johnsen vom Geophysikalischen Institut in Kopenhagen zur Verfügung gestellt. Sie wurden am Dye 3-Langkern gemessen. Bei der Uebertragung der Werte auf unseren Kurzkern geht man davon aus, dass über die Distanz von wenigen Kilometern im $\delta^{18}\text{O}$ keine Veränderungen von $> 1\%$ stattfinden.

An den gemessenen Proben wurde durch die Abteilung für Chemie an der EAWAG der Chlorgehalt bestimmt um sicherzugehen, dass die Berechnung der Konzentrationen aus den gemessenen Verhältnissen nicht durch natürliches Chlor verfälscht wird. Die gemessenen Chlorwerte sind durchwegs im Bereich von $< 5\%$ der Carriermenge. Das ist konsistent mit den Resultaten anderer Autoren (Beer et al. 1990b; Finkel et al. 1986; Mayewski et al. 1987). Zwar finden sich oft scharfe Chlorpeaks im Eis, die fast ausschliesslich aus der Meeresgischst stammen, welche bei Sturmereignissen bis weit über den Eisschild transportiert wird. Da die kürzeste Distanz von den hochgelegenen Bohrstellen in Grönland (Milcent, Dye 3 und Summit) zur Küste aber mindestens 500 km beträgt, sind dies Ausnahmeereignisse, so dass die Chlorgehalte über ein ganzes Jahr gemittelt verglichen mit der Carriermenge vernachlässigbar sind (Legrand, pers. Komm.).

Der Eindruck der starken Schwankungen von Probe zu Probe in den Rohdaten in Milcent bleibt auch in Dye 3 erhalten und wird durch die feinere Auflösung noch verstärkt (Fig. 5.2.8, 5.2.9, 5.2.10). Wiederum sieht man auch über mehrere Jahrzehnte erhöhte Isotopenkonzentrationen

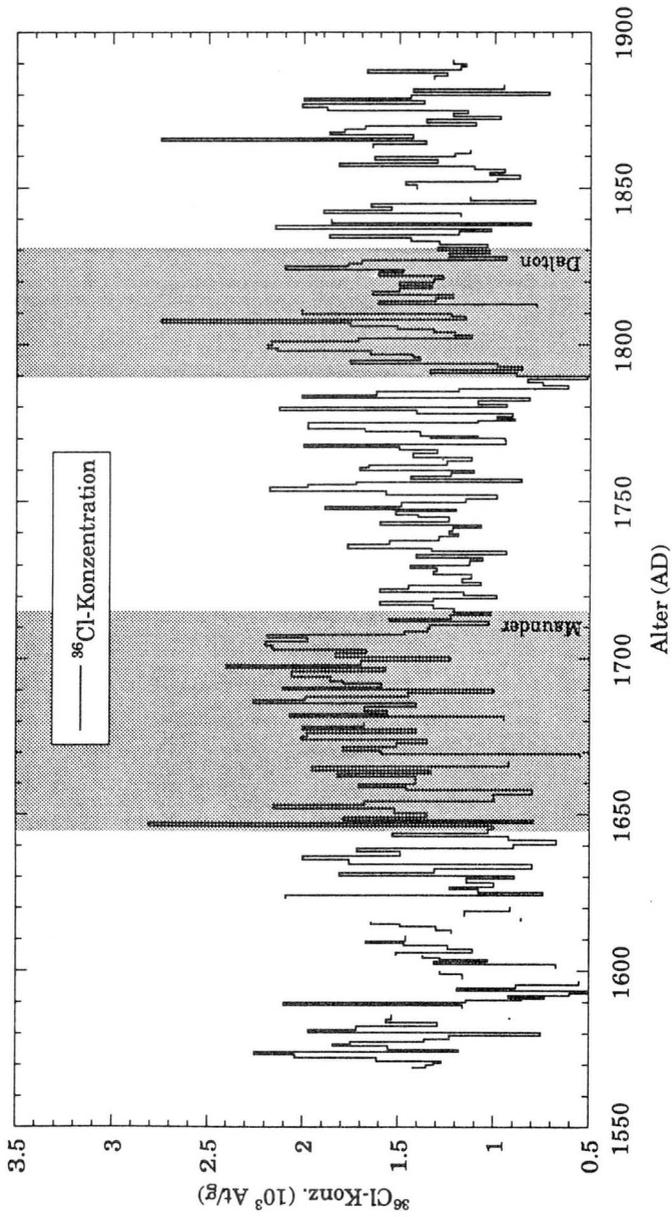


Fig. 5.2.8 ^{36}Cl -Konzentrationen von Dye 3, Grönland, mit eingezeichneten Sonnenminima.

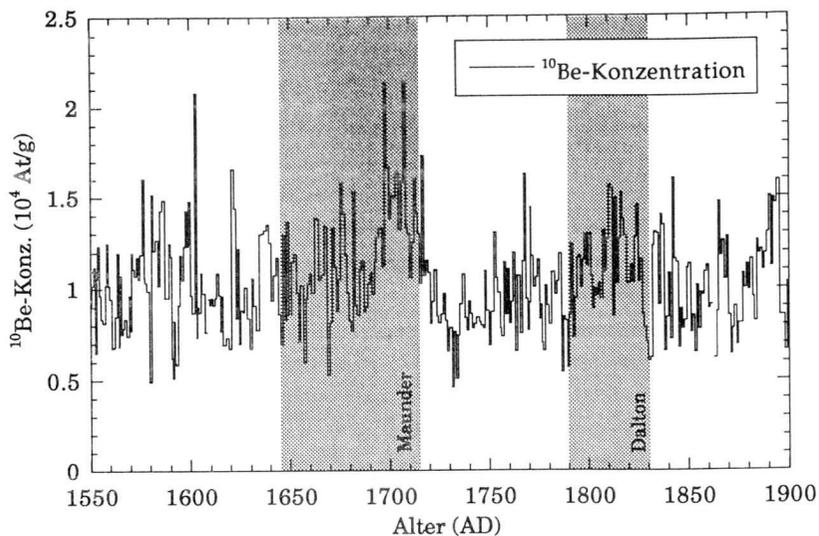


Fig. 5.2.9 ^{10}Be -Konzentrationen von Dye 3, Grönland. Die 1σ -Messfehler finden sich im Anhang A.1.2.

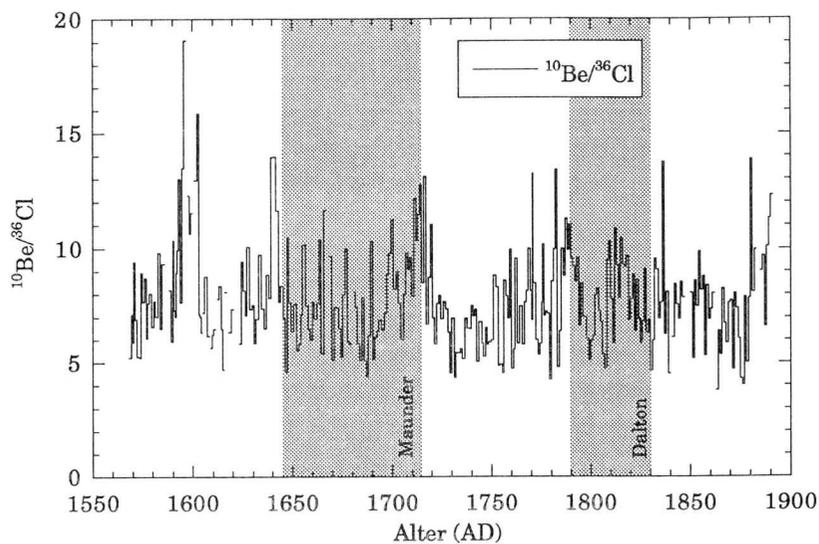


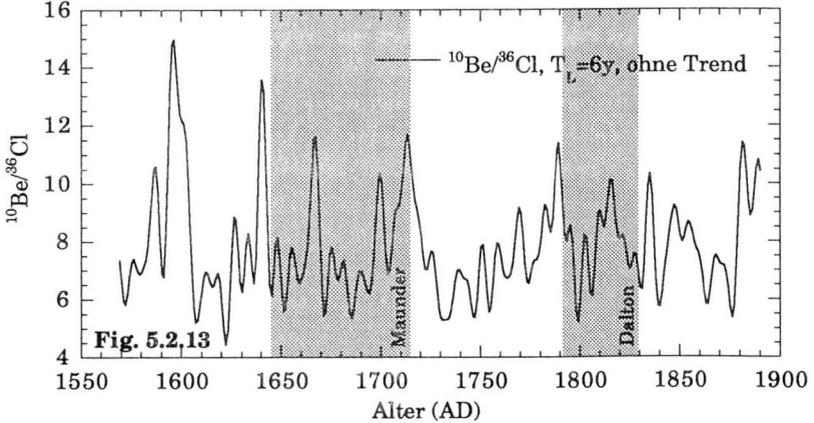
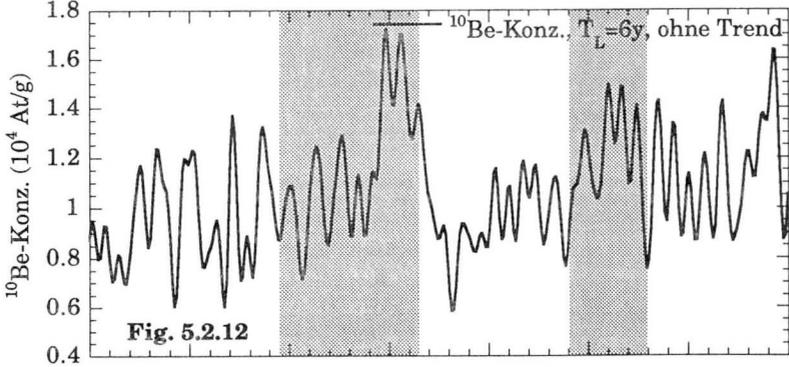
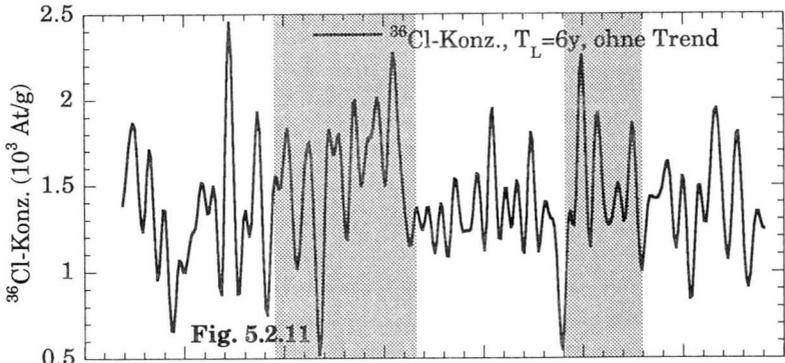
Fig. 5.2.10 $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis von Dye 3, Grönland.

trationen in der Zeit des Maunder-Minimums. Interessanterweise erscheinen die Kurvenverläufe beider Isotope im Maunder-Minimum unterschiedlich. Die ^{36}Cl -Konzentration steigt stetig an, um dann früher als die ^{10}Be -Konzentration einzubrechen. Letztere zeigt dafür erneut, wie schon in Milcent, einen prägnanteren Doppelpeak.

In den Figuren 5.2.11 bis 5.2.13 werden die tiefpassgefilterten Daten gezeigt (es wurden nur Perioden grösser als sechs Jahre zugelassen), von denen die zwischen 1567 und 1890 AD ohnehin sehr kleinen linearen Trends abgezogen wurden. Hier ist ersichtlich, dass der Langzeitverlauf der beiden Isotopenkonzentrationen abgesehen von den oben erwähnten Differenzen ähnlich ist. Augenfällig ist in diesen Graphen sowohl in der ^{10}Be - als auch in der ^{36}Cl -Konzentration eine Schwingung mit einer Periode zwischen 10 und 15 Jahren, die sich über das ganze Zeitintervall hinzieht. Das 16. Jahrhundert wird durch eine rasche ^{36}Cl -Konzentrationsabnahme mit einem Minimum um 1600 AD charakterisiert. Die ^{10}Be -Konzentration folgt diesem Trend nicht, so dass das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis um 1600 AD ein hohes Maximum aufweist. Daran schliesst sich der bereits in den Rohdaten festgestellte unterschiedliche Verlauf des Maunder-Minimums an, welchem ein Konzentrationsminimum bei 1730 AD folgt. In beiden Konzentrationen treten in diesen Graphen die erhöhten Werte bei 1800 mit dem vorgängigen Minimum bei 1790 AD klar hervor.

Trotz der Aehnlichkeiten der Isotopenkonzentrationen schwankt das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis wiederum um mehr als einen Faktor 4 (zwischen 4 und ca. 19, Fig. 5.2.10). Die grossen Unterschiede zwischen den einzelnen Werten sind signifikant verschieden. Diese Variationen verschwinden auch nach Ausfiltern der Perioden unter 6 Jahren nicht (Fig. 5.2.13).

Die Mittelwerte der Konzentrationen und ihres Verhältnisses sind für die gemeinsame Zeitspanne und für das Maunder-Minimum in Tabelle 5.2.B aufgelistet. Der angegebene Fehler ist die 1σ -Grenze der Streuung aller berücksichtigten Werte. Der Mittelwert des Verhältnisses zwischen 1645 und 1715 AD ist nicht erhöht, obwohl in der Figur 5.2.13 um 1700 AD ein



Tiefpassgefilterte ^{10}Be - (Fig. 5.2.12) und ^{36}Cl -Konzentration (Fig. 5.2.11) sowie deren Verhältnis (Fig. 5.2.13) von Dye 3. Der sehr kleine lineare Trend wurde eliminiert, die Grenzperiode ist $T_L=6$ Jahre.

deutliches Maximum im Verhältnis sichtbar ist. Wegen des früheren Anstiegs der ^{36}Cl -Konzentration sind die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Werte vor 1690 AD kleiner als der Mittelwert, was die darauffolgende Erhöhung ausgleicht.

Zeitreihe	Mittel (1567-1890 AD)	Mittel (1645-1715 AD)
^{10}Be (10^3 At/g)	10.4 ± 2.8 ($\pm 27\%$)	11.9 ± 3.2 ($\pm 27\%$)
^{36}Cl (10^3 At/g)	1.4 ± 0.42 ($\pm 30\%$)	1.59 ± 0.45 ($\pm 28\%$)
$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$	7.8 ± 2.2 ($\pm 28\%$)	7.8 ± 2.1 ($\pm 27\%$)

Tab. 5.2.B: *Mittelwerte der Konzentrationen in Dye 3 von 1567 AD-1890 AD und im Maunder-Minimum. Die angegebenen Werte sind die 1 σ -Grenzen der Verteilung der verwendeten Messwerte um ihren Mittelwert.*

Die Streuungen der Konzentrationen und ihres Verhältnisses sind über das gesamte gemeinsame Zeitintervall vergleichbar. Man kann allerdings Unterschiede in den Streuungen der Konzentrationen während einzelnen Zeitabschnitten erkennen. Sowohl im ^{36}Cl wie auch im ^{10}Be erscheint die Streuung zwischen etwa 1720 bis 1780 verglichen mit der umgebenden Zeit kleiner. Die Streuung der ^{36}Cl -Konzentration ist zwischen 1600 und 1700 AD signifikant höher (auf dem 95%-Niveau) als in der ganzen übrigen Zeit, wie dies in den tiefpassgefilterten Daten in Figur 5.2.11 gut zu erkennen ist. Eine erweiterte Diskussion dieses Sachverhalts folgt in Kapitel 6.3.

Frequenzanalyse

Die Frequenz-Analyse mit der Lomb-Scargle Methode (vgl. Kap. 5.2.1) wurde an den Rohdaten mit eliminiertem langfristigem Trend, das heisst, an den Rohdaten abzüglich den über 199 Punkte binomial geglätteten Daten, ausgeführt. Für die Analyse der ^{10}Be -Konzentration wurde die gleiche Zeitspanne wie für die ^{36}Cl -Konzentration verwendet, nämlich 1567 - 1890 AD. Diese Kürzung der ^{10}Be -Zeitreihe hat auf das Spektrum nur einen sehr kleinen Einfluss. Ebenso ändert sich die Lage der typischen Frequenzen im Spektrum nicht, wenn man anstelle der Rohdaten die auf

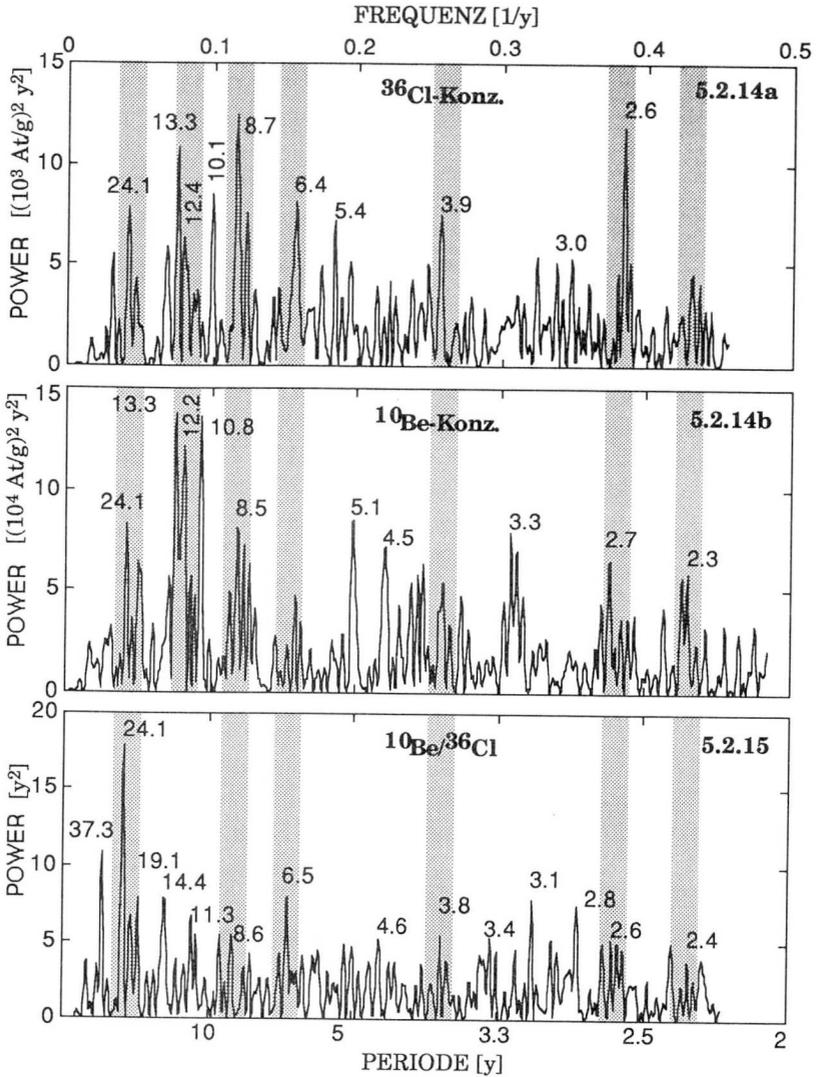
ein Jahr interpolierten Daten verwendet. Allerdings kann dadurch die Stärke einzelner Frequenzen ein wenig verändert werden. Es ist bekannt, dass die Lomb-Scargle-Methode nicht sehr amplitudentreu ist (Mende, pers. Komm.). Die Stärken der einzelnen Amplituden sind also als Richtwerte zu betrachten. Die Spektren der Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl sowie die des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses, der Akkumulationsrate und von $\delta^{18}\text{O}$ von Dye 3 sind in den Figuren 5.2.14 bis 5.2.16 gezeigt. Gemeinsame Perioden sind hervorgehoben.

Die starken Frequenzen der Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl befinden sich hauptsächlich zwischen 6 und 13 Jahren (Fig. 5.2.14a und 5.2.14b). Auffällig ist das Fehlen des stärksten ^{10}Be -Peaks bei 10.8 Jahren im ^{36}Cl , welches stattdessen bei 10.1 Jahren einen schmalen Peak hat. Die Verteilung der kürzeren Perioden unter 6 Jahren zeigt eine gewisse Verwandtschaft. Betrachtet man die gesamte Zeitreihe der ^{10}Be -Konzentration zwischen 1421 und 1985 AD, so sticht die Periode von 2.6 Jahren gleich wie beim ^{36}Cl stark hervor.

Auf der langperiodischen Seite zeigt ^{36}Cl Perioden von etwa 24, 32, stark bei zirka 60 Jahren und bei 140 Jahren (nicht gezeigt). ^{10}Be zeigt Peaks bei zirka 20, 36, 60 und bei zirka 110 Jahren. Beiden gemeinsam ist also nur die 60 Jahr-Periode. Die längste Periode ist aber wegen der Länge der Zeitreihen mit einer sehr grossen Unsicherheit behaftet.

Das Spektrum des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses hat die grössten Amplituden im langwelligen Bereich bei zirka 34 und 22 Jahren. Perioden von 66 und zirka 110 Jahren erscheinen ebenfalls wie bei den einzelnen Isotopen. Im hochfrequenten Bereich sind die Signalstärken gleichmässiger verteilt als bei den Isotopen (Fig. 5.2.15). Im Gegensatz zu den einzelnen Isotopen ist beim Verhältnis im Bereich von 11 Jahren nur wenig Energie im Spektrum.

Die Akkumulationsrate hat die stärksten Perioden bei 7, 14 und 19 Jahren (Fig. 5.2.16a). Auffällig ist der abrupte Abfall im Spektrum unterhalb von



Lomb-Scargle-Periodogramme der ^{36}Cl - und ^{10}Be -Konzentration und ihres Verhältnisses von Dye 3. Bei allen Zeitreihen wurde derselbe Zeitabschnitt analysiert. Vor der Analyse wurde von den Rohdaten eine über 199 Punkte binomial geglättete Kurve abgezogen. Beim $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis enthält das Spektrum im Bereich von $T=11$ Jahre weniger Energie als bei den einzelnen Isotopen. Die Zahlen in den Periodogrammen bezeichnen die Perioden der Peaks in Jahren. Gemeinsame Perioden sind grau hervorgehoben.

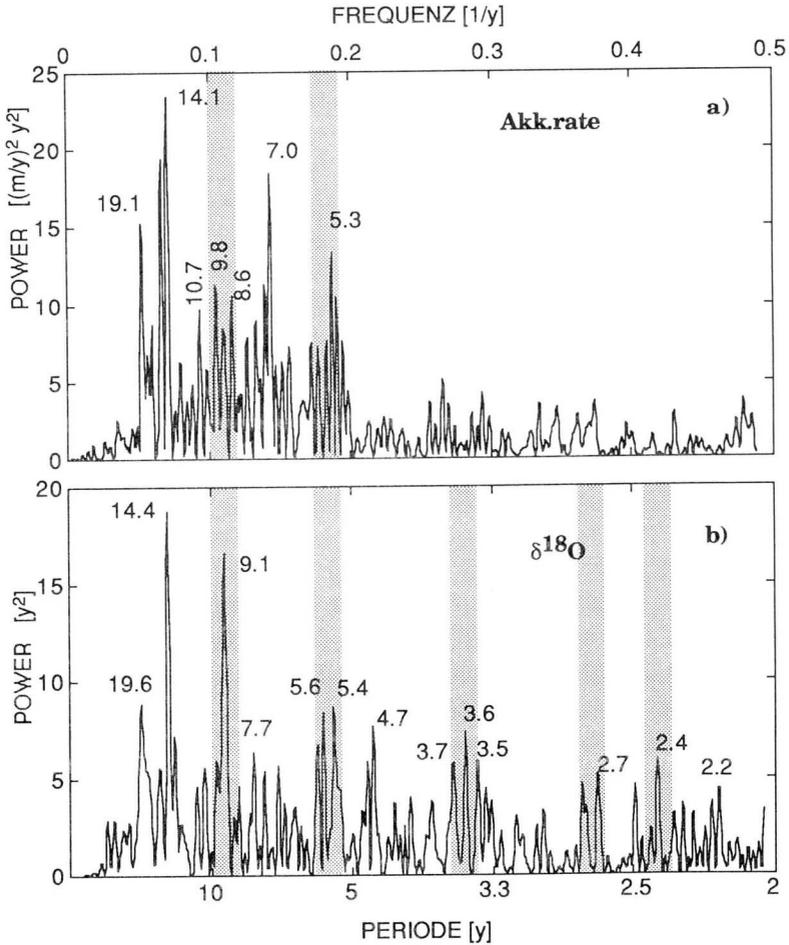


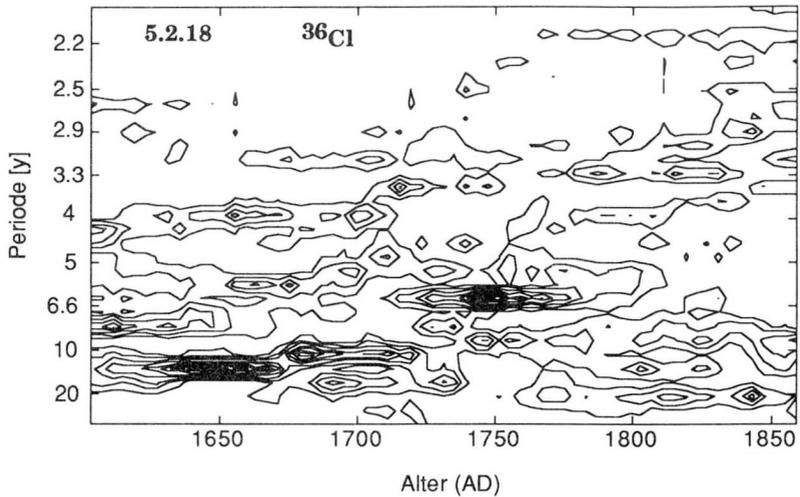
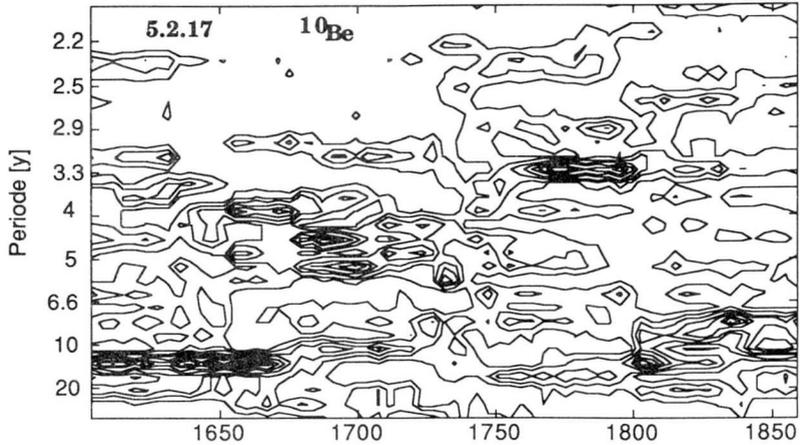
Fig. 5.2.16 Lomb-Scargle Periodogramme der Akkumulationsrate (a) und von $\delta^{18}\text{O}$ (b) von Dye 3. Der Trend wurde als über 199 Punkte binomial geglättete Kurve abgezogen. Bei beiden Kurven wurde dasselbe Zeitintervall wie bei ^{36}Cl analysiert. Die Zahlen bei den Peaks in den Diagrammen entsprechen den Perioden in Jahren. Der Abbruch des Spektrums der Akkumulationsrate unterhalb von $T=5$ Jahren ist nicht methodisch bedingt. Gemeinsame Perioden sind grau hervorgehoben (siehe auch Fig. 5.2.14 und 5.2.15).

5.4 Jahren. Im langperiodischen Bereich ist der stärkste Peak bei 52 Jahren, gefolgt von 105, 29 und 22 Jahren.

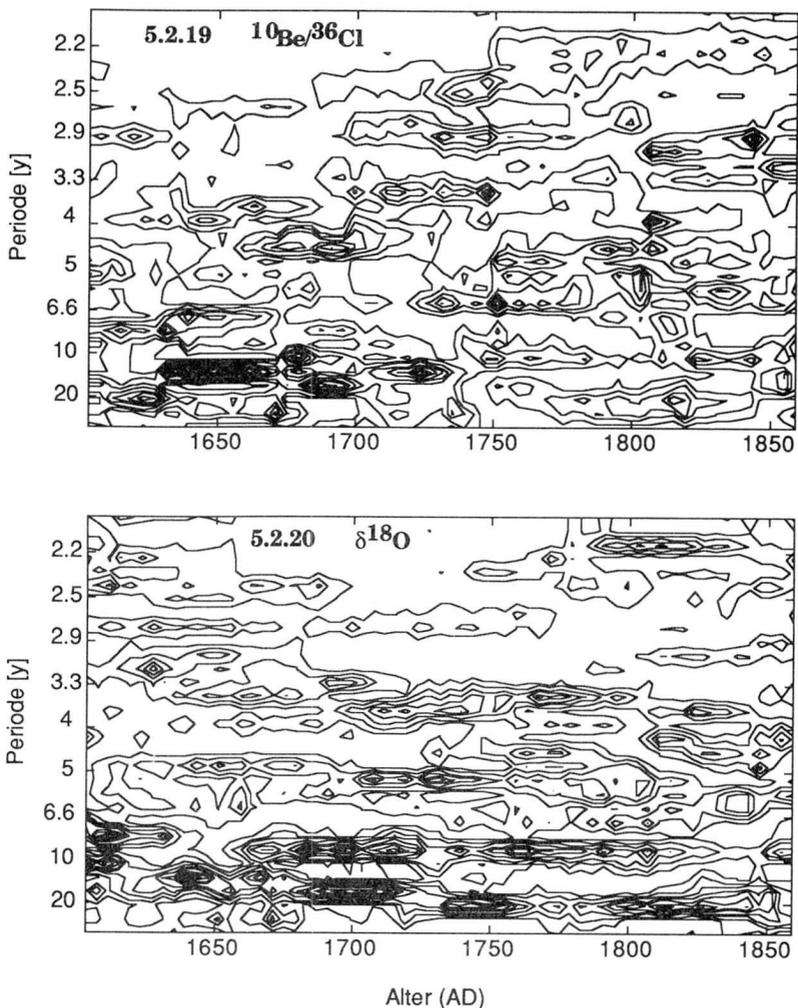
Das $\delta^{18}\text{O}$ des Langkerns hat in der Zeit von 1567 - 1890 AD ein reichhaltiges Spektrum (Fig. 5.2.16b). Der überragende Peak liegt bei einer Periode von 9.4 Jahren. Im langwelligen Bereich schliesslich finden sich Perioden von 27, 32.9, 43 und 81 Jahren (nicht gezeigt).

Im bisher verwendeten Lomb-Scargle Periodogramm wird das über die ganze Zeit gemittelte Spektrum ersichtlich. Sehr aufschlussreich ist jedoch auch die Entwicklung der Spektren über die Zeit, um parallele zeitliche Veränderungen in den Spektren verschiedener Parameter sichtbar zu machen. Dazu bestimmt man das Lomb-Scargle Spektrum für einen Ausschnitt einer Zeitreihe, fährt dann mit diesem Fenster um d Punkte weiter, und so fort. Somit lässt sich die Entwicklung des Spektrums verfolgen, wobei die maximal detektierbare Periode durch die Fensterlänge begrenzt ist. Diese Analyse ist in der Datenreihe von Dye 3 sinnvoll, da man einerseits wegen der Auflösung Perioden bis zu zirka einem Jahr erkennen, andererseits aber durch die Länge der Reihe auch eine grosse Fensterweite wählen kann. Die Spektren der Isotope und ihres Verhältnisses wurden fortlaufend in einem Fenster von 64 Punkten (die nicht äquidistant zu sein brauchen) bestimmt, das jeweils um 4 Punkte verschoben wurde. Die Spektren werden in der Mitte dieser Fenster geplottet und durch Isolinien verbunden.

In der Frequenzentwicklung der ^{10}Be -Konzentration (Fig. 5.2.17) fällt die breite Verteilung im Spektrum mit den markanten Frequenzsprüngen auf. Zwischen 1600 und 1660 sticht eine starke Amplitude im Bereich von 11 Jahren hervor, die sich danach abschwächt, aufteilt und hauptsächlich zu kürzeren Perioden wandert. In dieser Zeit erwächst auch ein starkes Signal bei einer Periode von etwa 3.6 Jahren. Um etwa 1750 AD verstärkt sich die Amplitude bei zirka 13 Jahren wieder und driftet nach 1800 AD zurück in den Bereich von zirka 10 Jahren. Dies erzeugt das in Fig. 5.2.14b gezeigte, über das ganze Intervall gemittelte Spektrum. Aus Fig. 5.2.17



Zeitliche Entwicklung des Lomb-Scargle Spektrums der ^{10}Be - (5.2.17) und der ^{36}Cl -Konzentration (5.2.18) von Dye 3 zwischen 1567 und 1890 AD. Der Trend wurde vor der Analyse entfernt (wie bei Fig. 5.2.16). Für dieses Diagramm wurden Lomb-Scargle Spektren in einem Fenster von 64 Jahren Breite bestimmt, welches sukzessive um 4 Jahre verschoben wurde.



Zeitliche Entwicklung des Lomb-Scargle Spektrums des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses (5.2.19) und von $\delta^{18}\text{O}$ (5.2.20) von Dye 3 zwischen 1567 und 1890 AD. Der Trend wurde vor der Analyse abgezogen (wie bei Fig. 5.2.16). Für diese Diagramme wurden Lomb-Scargle Periodogramme in einem Fenster von 64 Jahren Breite bestimmt und dieses sukzessive um 4 Jahre verschoben. In Fig. 5.2.19 sind die "Brüche" im Spektrum bei 1750 AD und in 60-Jahresabständen davon sichtbar.

wird ersichtlich, dass die im gemittelten Spektrum beobachteten starken Signale zeitlich gestaffelt auftreten.

Die ^{36}Cl -Konzentration teilt den Peak bei zirka 11 Jahren zwischen 1600 und 1660 AD mit ^{10}Be wie auch die Verschiebung danach zu höheren Frequenzen (Fig. 5.2.18). Dabei fällt auf, dass die Periodenlängen in dieser Zeit nicht vollständig übereinstimmen, die Entwicklung jedoch parallel verläuft. Um 1750 AD entsteht ein starkes Signal bei zirka 6.5 Jahren, das im ^{10}Be nur ansatzweise zu sehen ist. Die Rückorientierung gegen eine 10-Jahresperiode nach 1800 AD findet auch bei ^{36}Cl statt, wobei die Frequenzen wiederum nicht völlig übereinstimmen. Neben diesen Parallelen im 10 Jahresbereich zeigen sich auch einige Analogien im höherfrequenten Bereich um 3 Jahre, wobei auch dort die Signalstärken unterschiedlich sind.

Der Graph des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses zeigt eine breitere Verteilung starker Signale (Fig. 5.2.19), die hier auch bei höheren Frequenzen auftreten. Der engere Bereich um Perioden von 11 Jahren erscheint abgeschwächt, was mit dem Spektrum in Figur 5.2.15 übereinstimmt. Die Frequenzen anschliessend an den 11-Jahresbereich werden aufgrund der Unterschiede zwischen den einzelnen Isotopen im Verhältnis aber nicht vollständig eliminiert. Vielmehr verläuft die Frequenzentwicklung in diesem und auch im höherfrequenten Bereich ähnlich wie bei den Isotopen. Bei Betrachtung der Graphik entsteht der Eindruck, dass zu gewissen Zeiten "Brüche" in der Spektralentwicklung stattfinden. Am klarsten ist einer dieser "Brüche" als senkrechte Struktur um 1750 AD sichtbar. Weitere bestehen bei ca. 1810 AD sowie in abgeschwächter Form um 1690 und 1630 AD, also im Abstand von etwa 60 Jahren. Diese Strukturen erkennt man auch in den einzelnen Isotopen und in der Akkumulationsrate (nicht gezeigt).

Im $\delta^{18}\text{O}$ bleiben die beobachteten Perioden über die Zeit konstanter. Die 9.4 Jahresperiode zum Beispiel zieht sich praktisch über die ganze Zeit hin, während andere wie zum Beispiel die 14.7 Jahresperiode leicht gegen

längere Perioden driften (Fig. 5.2.20). Die oben beschriebenen senkrechten Strukturen sind nicht sichtbar.

Kap. 5.3 Die Eiskerne im Vergleich

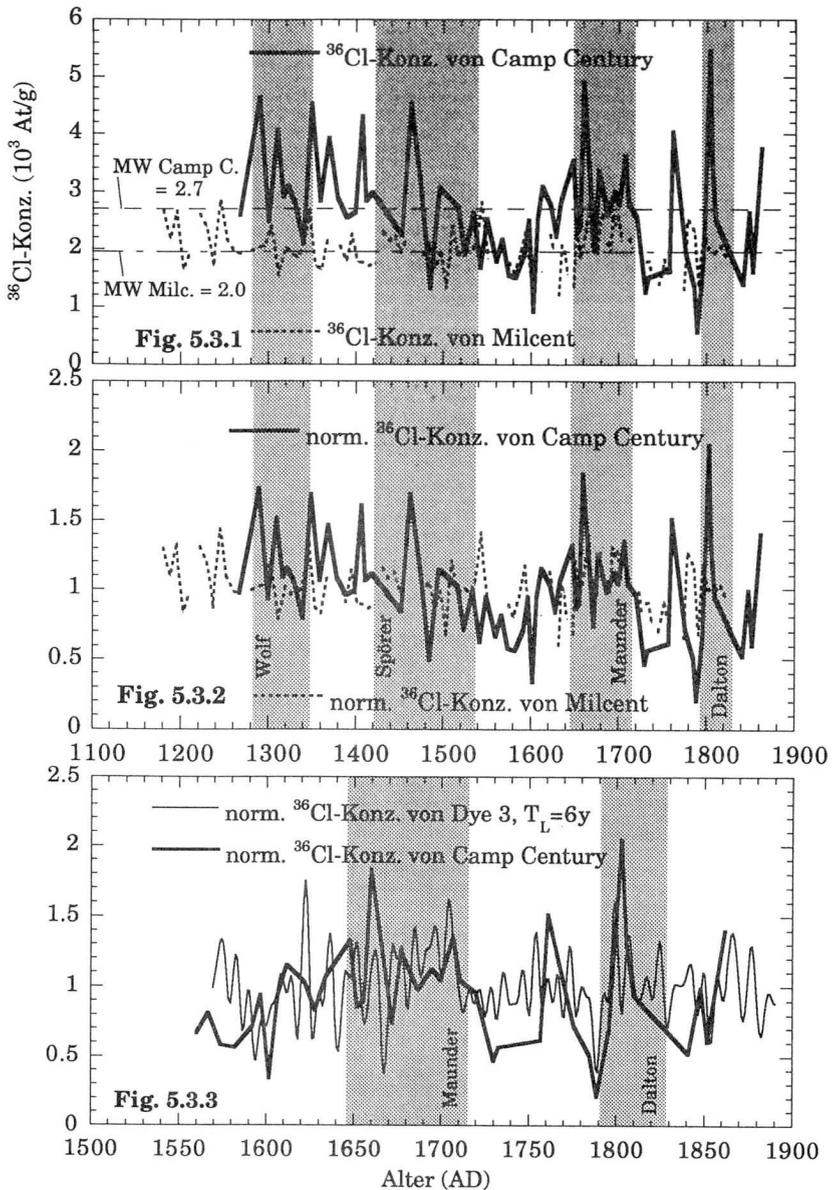
In Kapitel 5.2 wurden die Ergebnisse der beiden Eiskerne einzeln betrachtet. In diesem Kapitel werden sie nun unter Einbezug der ^{36}Cl -Reihe von Camp Century (Conard et al. 1989, Fig. 5.1.1) nebeneinandergestellt. Damit erhält man ein Nord-Süd-Profil von Camp Century (77°N) über Milcent (70°N) bis Dye 3 (65°N) (siehe auch Karte ganz zu Beginn dieser Arbeit). Diese Zusammenstellung soll überregionale Phänomene in den Zeitreihen hervorheben. Sie bildet auch die Grundlage für die Diskussion über Budgetfragen in Kapitel 6. Beim Vergleich der Resultate dieser drei Eiskerne muss man sich jedoch immer vor Augen halten, dass deren Auflösung, die Qualität der Datierung sowie die umfasste Zeitspanne verschieden sind. Dies ist in Tab. 5.3.A zusammen mit den Kenndaten anderer Eiskerne noch einmal zusammengefasst.

5.3.1 Camp Century - Milcent

Der Camp Century- und der Milcent-Kern sind sich vom Zeitumfang und von der Qualität am ähnlichsten. Die Streuung der ^{36}Cl -Konzentration in Camp Century ist wesentlich höher als bei den beiden anderen Kernen. Auch die durchschnittliche ^{36}Cl -Konzentration ist etwas höher (Fig. 5.3.1). Auf die Mittelwerte wird im Detail weiter unten in diesem Abschnitt eingegangen. Der langfristige Verlauf ist bei Camp Century und Milcent praktisch derselbe, wobei Camp Century vor 1600 AD einen stärkeren negativen Trend aufweist. Die Übereinstimmung der beiden ^{36}Cl -Konzentrationen zwischen 1600 und etwa 1720 AD ist sehr gut, auch im kurzperiodischen Bereich, wie die auf den Mittelwert normierten Zeitreihen zeigen (Fig. 5.3.2). Das bedeutet, dass die ^{36}Cl -Konzentration in

Kern(orts)- bezeichnung	Koordinaten	aktuelle Höhe ü.M. (m)	Mittel- temperatur (°C)	aktuelle Akk. rate (m H ₂ O/J.)	Bohrjahr (AD)	Core- Länge (m)	max. Alter (J. AD oder J. BP)
Grönland							
Camp Century	77°11'N, 61°09'W	1885	-24	0.38	1963-1966	1387	ca. 120'000 BP
Crête	71°07'N, 37°19'W	3170	-30	0.25	1974	404	548
Dye 3	65°11'N, 43°49'W	2480	-19.6	0.5	1981	2037	ca. 100'000 BP
Dye 3-86	5.1 km flussabw. von anderen Dye 3 Lokal.	ca. 2480	-19.6	0.5	1986	300	1421
Milcent	70°18'N, 44°35'W	2450	-22.2	0.55	1973	398	1177
North Central	74°37'N, 39°36'W	2940	-31.7	0.11			
Summit GRIP (EU)	72°34'N, 37°38'W	3250	-32	0.23	1990-1992	3028.8	ca. 200'000 BP
Ost Antarktis							
South Pole	90°S	2850	-50	0.07			
Vostok	78°28'S, 106°48'E	3490	-57	0.02		2083	ca. 160'000 BP
Dome C	74°40'S, 125°10'E	3240	-53	0.035		906	
West Antarktis							
Siple	75°55'S, 83°55'W	1000		0.4 (Modell)			
Byrd Station	79°59'S, 120°01'W	1530	-28	0.14		2164	ca. 70'000

Tab. 5.3.A Uebersicht über die wichtigsten Bohrstationen von Grönland und der Antarktis (Karte auf der 1. Seite)



Vergleich der absoluten (Fig. 5.3.1) und auf die Mittelwerte normierten ^{36}Cl -Konzentrationen von Milcent, Camp Century und Dye 3 in Grönland. Die Kurve von Dye 3 ist tiefpassgefiltert ($T_L=6$ Jahre).

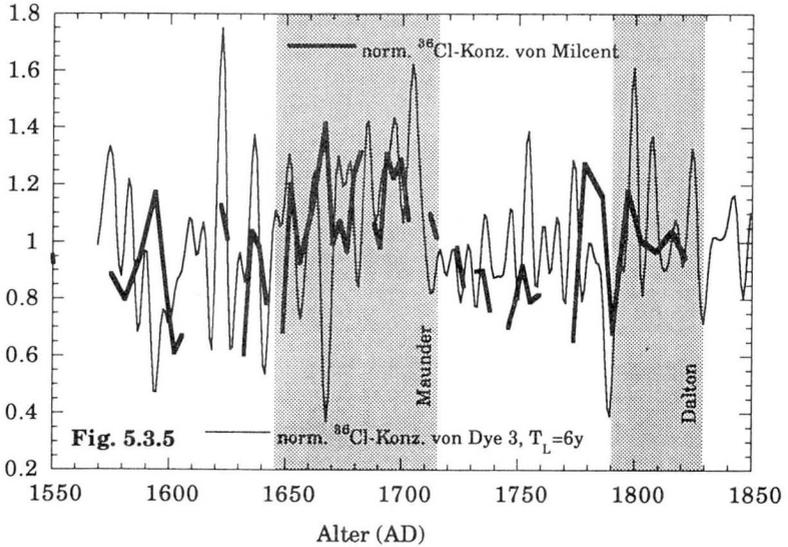
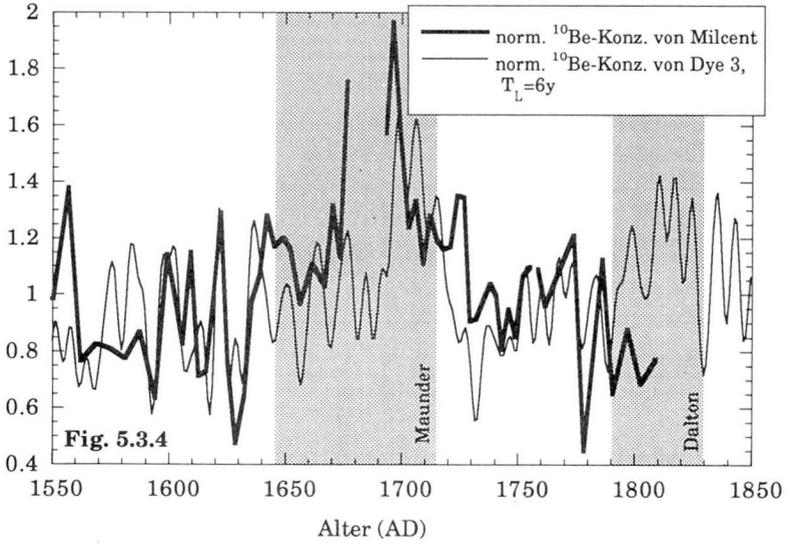
dieser Zeit vorübergehend auf etwa das Doppelte ansteigt. In der Zeit vor 1600 AD gibt es nur zwischen 1300 und 1400 AD eine zufriedenstellende Übereinstimmung im Verlauf beider Konzentrationen. Das bedeutet auch, dass in Camp Century die erwarteten Konzentrationserhöhungen während des Wolf- und des Spörer-Minimums nicht erkannt werden können. Auf den Vergleich der Flüsse wurde verzichtet, da der Akkumulationsratenverlauf von Camp Century nicht hinreichend genau bekannt ist.

5.3.2 Camp Century - Dye 3

Die Übereinstimmung zwischen dem Verlauf der ^{36}Cl -Konzentration in Camp Century und Dye 3 (mit einem gleitenden Mittel über fünf Punkte geglättet) ist im allgemeinen gut (Fig. 5.3.3). Die Ausschläge unterscheiden sich jedoch zum Teil in den Amplituden. Der Trend zwischen 1600 und 1700 AD ist bei beiden Kurven gleich. Der Einbruch nach 1700 AD scheint in Dye 3 etwas früher zu erfolgen. Er ist jedoch nicht so gross wie in Camp Century. Nach 1750 AD folgen sich die beiden Konzentrationen abgesehen von den hohen Peaks wieder sehr schön.

5.3.3 Milcent - Dye 3

Sowohl die ^{10}Be - als auch die ^{36}Cl -Konzentrationen von Milcent und Dye 3 (über fünf Punkte geglättet) folgen sich im allgemeinen gut, sei es im Trend oder sei es in der kurzperiodischen Variabilität (Fig. 5.3.4 und 5.3.5). Die Phasenverschiebungen gegeneinander sind klein, was auf eine zufriedenstellende Datierung schliessen lässt. Nur einzelne Extrema, zum Beispiel das Minimum in der ^{36}Cl -Konzentration vor 1600 AD, sind leicht gegeneinander verschoben. Dieses Minimum erscheint in den ^{10}Be -Konzentrationen nicht. Vor 1500 AD existiert ein Minimum in den Isotopenkonzentrationen von ^{36}Cl und ^{10}Be , welches in allen vorhandenen Zeitreihen gut sichtbar ist, besonders deutlich in der ^{36}Cl -Konzentration von Milcent (Fig. 5.3.1) und in der ^{10}Be -Konzentration von Dye 3 (nicht gezeigt; siehe Beer et al., eingereicht). Die Amplituden von ^{10}Be und ^{36}Cl sind zum Teil erneut unterschiedlich.



Vergleich der auf ihren Mittelwert normierten ^{10}Be - (Fig. 5.3.4) und ^{36}Cl -Konzentrationen (Fig. 5.3.5) von Milcent und Dye 3 (^{10}Be und ^{36}Cl mit Grenzfrequenz von 6 Jahren tiefpassgefiltert) in Grönland.

Eine auffallende Zeit ist erneut die Zeit um 1700 AD. ^{36}Cl und ^{10}Be verhalten sich unterschiedlich. Bei ^{36}Cl ist der Anstieg auf hohe Konzentrationen im 17. Jahrhundert kontinuierlich. Nach 1700 AD bleibt die ^{36}Cl -Konzentration von Dye 3 etwas länger hoch, bricht dann aber sehr abrupt ein, wiederum aber nicht so tief wie in Milcent. In der ^{10}Be -Konzentration scheint der Peak in Dye 3 um 1700 AD etwa 10 Jahre gegenüber dem in Milcent verspätet zu sein. In beiden Kernen beginnt der Anstieg der ^{10}Be -Konzentration später als im ^{36}Cl , ist dann jedoch steiler. Die absteigende Flanke nach 1710 AD ist im ^{10}Be von Dye 3 steiler als in Milcent, jedoch nicht so abrupt wie der von ^{36}Cl .

5.3.4 Die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Zeitreihen in den verschiedenen Kernen

Aufgrund der oben angetroffenen Amplitudendifferenzen und Phasenverschiebungen erwartet man Schwankungen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis. Wie bereits festgestellt variiert es in allen drei Kernen um bis zu einen Faktor 4. Trägt man die Verläufe aller Verhältnisse übereinander auf (das von Dye 3 mit einer Grenzperiode von 6 Jahren tiefpassgefiltert, Fig. 5.3.6), so sieht man, dass die Mittelwerte überall von der gleichen Grösse sind. Die extremsten Ausschläge findet man erneut in Camp Century. Erstaunlicherweise erkennt man trotz der sehr verschiedenen Eisqualitäten und Auflösungen gewisse Gemeinsamkeiten im Verlauf. Deutlich sind die Maxima um 1600 und 1650 AD und das dazwischenliegende Minimum um 1620 AD. Uebereinstimmung findet sich auch im spitzen Maximum um 1700 AD und im Minimum um 1800 AD. Die anderen Extrema sind zum Teil etwas phasenverschoben, oder ihre Länge ist wegen der Auflösung schlecht abschätzbar, vor allem in Camp Century. In der durchgehenden Reihe von Dye 3 entsteht der Eindruck, als ob das Verhältnis von einem ungefähren Basiswert kurzzeitig auf prägnante Maxima hochspringt (Fig. 5.3.6). Prägnante Minima der gleichen Art gibt es keine. Als Grund für diese Maxima im Verhältnis finden wir bei den einzelnen Isotopen sowohl unterschiedliche Amplituden bei gleichgerichteten Ausschlägen (Bsp. 1790 AD) als auch Phasenverschiebungen zwischen ^{10}Be und ^{36}Cl verbunden mit tieferen Einbrüchen der ^{36}Cl -Konzentration (Bsp. bei 1640 AD, Fig. 5.2.11-13).

Statistisch lässt sich die positive Korrelation allerdings wegen den zeitweiligen Phasenverschiebungen nicht belegen.

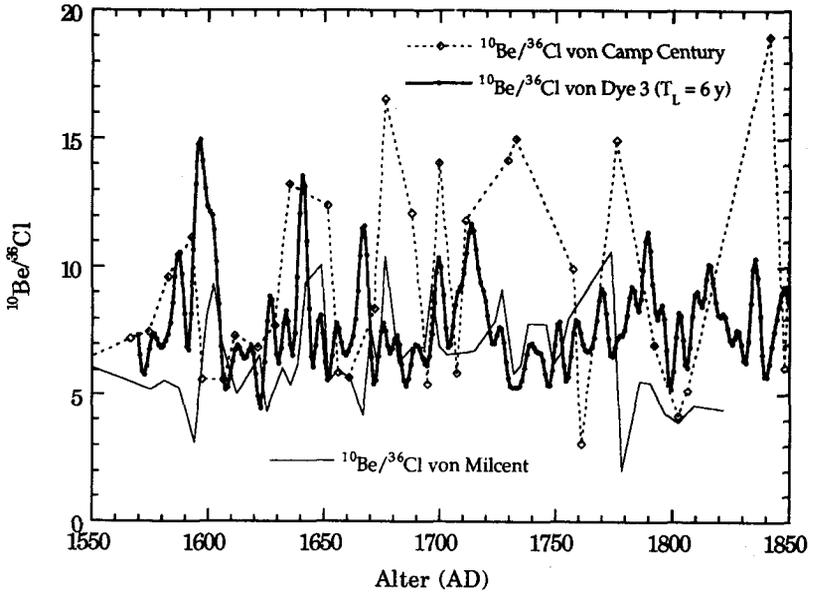


Fig. 5.3.6 $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisse von Camp Century, Milcent und Dye 3 in Grönland. Trotz der stark unterschiedlichen Auflösung und Eisqualität erkennt man zeitweise Parallelen im Verlauf. Die Messfehler der Werte betragen typischerweise um 15%.

5.3.5 Die Isotopenflüsse

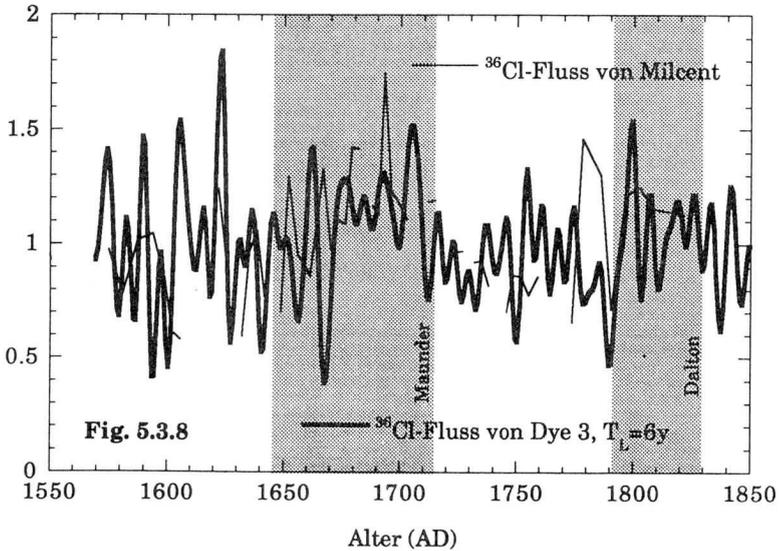
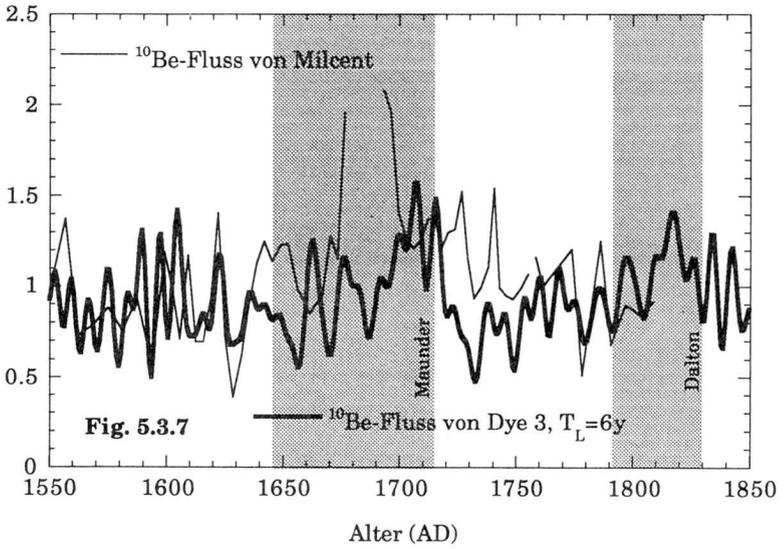
Für die spätere Diskussion der Produktions- und Transportvorgänge in der Atmosphäre ist es sinnvoll, den Isotopenfluss F_I einzuführen. Dieser wird definiert als das Produkt aus der Isotopenkonzentration C_I und der Akkumulationsrate, welche auf das Wasseräquivalent der gemessenen Niederschlagsrate umgerechnet wurde, $A_{\text{corrH}_2\text{O}}$, also

$$F_I = C_I \times A_{\text{corrH}_2\text{O}}.$$

Die Dichte von frischem Schnee beträgt je nach Beschaffenheit 0.25 - 0.5 g/cm³. Durch die fortwährende Bedeckung wird der Schnee zusammengedrückt, wodurch er über mehrere Stufen verfirnt und vereist. Die endgültige Eisdichte nach der Schliessung der Poren beträgt $\rho = 0.918$ g/cm³. Diese Dichte wird in Grönland ungefähr unterhalb einer Tiefe von 80 - 100 Metern erreicht (Bsp. Schwander 1988). Darüber wird die Akkumulationsratenkorrektur aufgrund von Modellen und Schichtdickenmessungen am Kern durchgeführt.

Man stellt fest, dass die Akkumulationsrate in Milcent einen positiven Trend aufweist (nicht gezeigt). Die Zunahme beträgt zwischen 1400 und 1800 AD zirka 20%. In der gleichen Zeit bleibt der Mittelwert der Akkumulationsrate in Dye 3 praktisch konstant (Fig. 6.5.1). Erst zwischen 1870 und 1950 AD nimmt sie um etwa 60% zu, fällt aber danach wieder ungefähr auf den alten Durchschnittswert zurück (nicht gezeigt). Diese Zunahme liegt ausserhalb des untersuchten Bereichs und wird hier nicht diskutiert.

Der Vergleich der Isotopenflüsse von Dye 3 und Milcent ist in den Fig. 5.3.7 und 5.3.8 dargestellt. Die Flüsse von Milcent sind durchschnittlich etwas höher. Im Rahmen der Auflösung sind die Verläufe der ¹⁰Be-Flüsse ähnlich. Phasenverschiebungen ergeben sich um 1610, 1670 und, hier eher stärker als bei den Konzentrationen, nach 1700 AD. Die ³⁶Cl-Flüsse scheinen im 17. Jahrhundert etwas stärker phasenverschoben zu sein als die ³⁶Cl-Konzentrationen (Fig. 5.3.8). Die oben erwähnte Zunahme der



Vergleich der auf ihren Mittelwert normierten ^{10}Be - (Fig. 5.3.7) und der ^{36}Cl -Flüsse (Fig. 5.3.8) von Milcent und Dye 3 (^{10}Be und ^{36}Cl mit Grenzfrequenz von 6 Jahren tiefpassgefiltert) von Grönland.

Akkumulationsrate wird auch auf die Isotopenflüsse übertragen, speziell auf den ^{10}Be -Fluss. Der Mittelwert der ^{10}Be -Konzentration bleibt in dieser Zeit konstant, der der ^{36}Cl -Konzentration nimmt leicht ab.

5.3.6 Die Mittelwerte der Konzentrationen und Flüsse

Neben den zeitlichen Entwicklungen sind auch die Mittelwerte der Isotopen-Flüsse für Budgetbetrachtungen sehr interessant. Zur Uebersicht sind vorerst die Konzentrationsmittelwerte und der Mittelwert ihres Verhältnisses in Tabelle 5.3.B für den gemeinsamen Zeitabschnitt aufgelistet. Camp Century hat den höchsten Mittelwert aller drei ^{36}Cl -Konzentrationen, nämlich $^{36}\text{Cl}_{\text{mean}} = 2.5 \pm 1.05 \times 10^3 \text{ At/g}$. Hingegen finden wir in Dye 3 die kleinsten ^{36}Cl -Konzentrationen im Eis, im Mittel $1.4 \pm 0.42 \times 10^3 \text{ At/g}$. Das heisst, es besteht ein Nord-Süd-Gefälle in den Konzentrationen des ^{36}Cl . Dies gilt auch für die ^{10}Be -Konzentrationen (vgl. Tab. 5.3.B). Beim $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis gibt es keinen eindeutigen Trend. Alle Verhältnisse sind innerhalb des Fehlers gleich.

Zeitreihe (1567-1822 AD)	Dye 3	Milcent	Camp Century
^{10}Be (10^3 At/g)	10.5 ± 2.8	11.9 ± 3.3	ca. 22.3 ± 9.5
^{36}Cl (10^3 At/g)	1.4 ± 0.42	1.93 ± 0.4	2.5 ± 1.05
$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$	7.8 ± 2.3	6.5 ± 1.9	9.0 ± 3.8

Tab. 5.3.B *Vergleich der Mittelwerte der Konzentrationen der überlappenden Zeitspanne aller drei Kerne. Die Fehler sind 1σ -Werte. Sie sind relativ hoch, da die betrachtete Zeitspanne das Maunder-Minimum umfasst. Die ^{10}Be -Werte und die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisse von Camp Century stammen aus einer Serie mit 21 Proben während der betrachteten Zeit (vgl. Suter et al. 1987). Die ^{36}Cl -Werte der Serien von Suter et al. (1987) und Conard et al. (1989) stimmen überein.*

Die Mittelwerte der Isotopenflüsse werden in Tabelle 5.3.C gegeben. Dabei wurde der Fluss von Camp Century mit einer mittleren

5. Kapitel: Resultate

Akkumulationsrate von 0.38 m Wasser/y geschätzt. In der gleichen Tabelle sind die berechneten Flüsse angegeben, die mit Hilfe der Angaben von Lal und Peters (1967) über die Spallations-Produktionsrate der Isotope in der Atmosphäre erhalten wurden. Die Breitenverteilung der Deposition wurde berücksichtigt (siehe Fig. 5.3.9), das heisst, der Wert in der Tabelle gibt den Fluss an, der an diesem Ort erwartet wird. Korrekturen für den Zerfall in der Atmosphäre und für die lokale zur mittleren jährlichen Niederschlagsrate wurden nicht vorgenommen. Damit unterschätzt man die berechneten ^{10}Be - und ^{36}Cl -Flüsse höchstens um einen Faktor 2.

Zeitreihe (1567-1822 AD)	Dye 3	Milcent	Camp Century
gem. ^{10}Be -Fluss ($\text{At}/\text{m}^2 \text{ s}$)	146 ± 46	169 ± 51	267 ± 115
ber. ^{10}Be -Fluss ($\text{At}/\text{m}^2 \text{ s}$)	338	197	135
gem. ^{36}Cl -Fluss ($\text{At}/\text{m}^2 \text{ s}$)	19 ± 7	27 ± 7	30 ± 13
ber. ^{36}Cl -Fluss ($\text{At}/\text{m}^2 \text{ s}$)	8.3	4.8	3.3

Tab. 5.3.C *Mittel der Isotopenflüsse während der überlappenden Zeitspanne aller drei Kerne. Es ist zu beachten, dass die Flüsse in Camp Century aufgrund einer mittleren Akkumulationsrate von 0.38 m Wasser/y grob geschätzt sind. Angegeben sind auch die von Lal und Peters (1967) berechneten Flüsse für die jeweiligen Orte.*

In der Tabelle 5.3.C fallen sofort die sehr hohen gemessenen Flüsse auf. Im Falle von ^{36}Cl liegen sie bis zu einem Faktor 8 über den Berechnungen. Der mittlere Fluss aller drei Stationen ist $25.3 \text{ At}/\text{s m}^2$. Nimmt man an, er werde an einer mittleren Breite aller drei Stationen von 70° N gemessen und rechnet man mit Hilfe der Depositions-Breitenverteilung von Lal zurück (Fig. 5.3.9), so kann man einen globalen ^{36}Cl -Fluss von rund $33 \text{ At}/\text{s m}^2$ abschätzen. Der mittlere Fluss von ^{10}Be in Tabelle 5.3.C stimmt ungefähr mit dem berechneten überein. Er beträgt $194 \text{ At}/\text{s m}^2$. Verfährt man gleich wie beim ^{36}Cl , so ergibt sich daraus ein mittlerer globaler Fluss von $252 \text{ At}/\text{s m}^2$. Zum Vergleich sind in Tabelle 5.3.D die berechneten globalen Flüsse verschiedener Autoren angegeben.

Autoren	glob. ¹⁰ Be-Fluss (At/m ² s)	glob. ³⁶ Cl-Fluss (At/m ² s)
Lal und Peters (1967)	450	11
Oeschger et al. (1969)	140	22
O'Brien (1979)	250	8.7
Blinov (1988)	260	19

Tab. 5.3.D: Von verschiedenen Autoren geschätzte Werte der global gemittelten Isotopenflüsse.

Offensichtlich stellt sich beim ³⁶Cl ein Problem bei der globalen Budgetierung. Allerdings muss man sich vor Augen halten, dass die Berechnung des globalen Flusses aufgrund der wenigen Messpunkte relativ unsicher ist, umso mehr, als darin auch Annahmen über die Breitenverteilung der Deposition von langlebigen Isotopen (Lal und Peters 1967, Fig. 5.3.9) verwendet werden. Umgekehrt sind auch die Berechnungen des globalen Flusses über die atmosphärische Produktion mit einigen Annahmen verbunden, zum Beispiel über die solare Modulation des primären Protonenspektrums oder über die Reaktionsquerschnitte der verschiedenen Produktionskanäle. Variationen innerhalb dieser Annahmen können das obige Budgetproblem unter Umständen etwas entschärfen.

Neben der Diskrepanz des globalen ³⁶Cl-Flusses besteht in Tabelle 5.3.C noch eine andere bezüglich der Annahmen von Lal und Peters. Nach Lal und Peters liegen die Depositionsmaxima langlebiger Radioisotope, die an Aerosole gebunden sind, in ± 40° Breite. Polwärts nimmt die Depositionsrate rasch ab. Dye 3 müsste demnach einen 2.5 mal höheren Isotopenfluss zeigen als Camp Century. In Tabelle 5.3.C ist der Gradient offensichtlich bei beiden Isotopen umgekehrt. Aufgrund der grossen Streuung um die Mittelwerte ist es möglich, dass der gemessene Trend abgeschwächt wird oder sogar verschwindet. Es ist aber unwahr-

scheinlich, dass sich die Messungen der Breitenverteilung mit den Erwartungen decken.

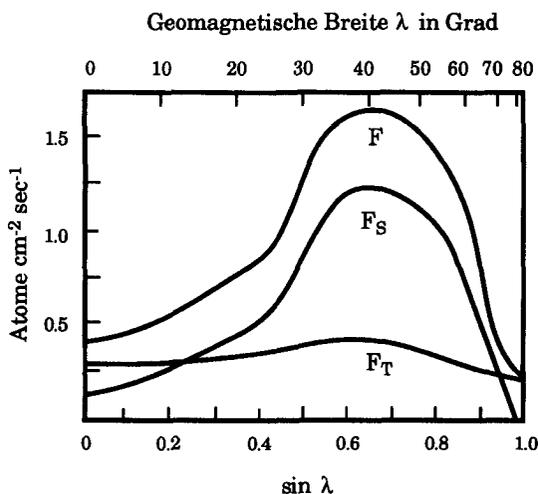


Fig. 5.3.9 Breiten-Depositionskurve nach Lal und Peters (1967) für ein stabiles, in der Atmosphäre produziertes Isotop, welches eine globale Produktionsrate von $1 \text{ Atom/m}^2 \text{ sec}$ hat und an Aerosolen angelagert mit dem Niederschlag ausgewaschen wird. F_S bezeichnet den stratosphärischen, F_T den troposphärischen Produktionsanteil. F ist die Summenkurve der beiden Anteile. Für die Berechnung der Depositionsverteilung eines bestimmten Radioisotops muss diese Kurve mit drei Faktoren multipliziert werden: 1) mit der tatsächlichen globalen Produktionsrate des betreffenden Isotops, 2) mit einem Faktor, der den Zerfall in der Atmosphäre wiedergibt und 3) mit dem Verhältnis von lokaler zu mittlerer jährlicher Niederschlagsrate des betreffenden Breitengürtels.

5.4 ^{10}Be und ^{36}Cl in Gewitterniederschlägen - 2 Fallstudien in Dübendorf, Schweiz

5.4.1 Ziele des Experiments

Für die Interpretation der Isotopenmessungen in den Eiskernen erschien es notwendig, das Verhalten der Isotope in der Atmosphäre genauer zu kennen. Ein spezielles Interesse besteht an den Vorgängen während der Niederschlagsbildung in den Wolken.

Nach einer Idee von A. Waldvogel am Labor für Atmosphärenphysik der ETH (LAPETH) wurden Isotopenmessungen in Gewitterniederschlägen geplant. Von Gewittern ist bekannt, dass sie bis in die Stratosphäre reichen können. Es ist anzunehmen, dass sie dabei auch stratosphärische Luft einmischen. Diese im Mittel ein Jahr alte Stratosphärenluft müsste an einem tieferen $^7\text{Be}/^{10}\text{Be}$ -Verhältnis zu erkennen sein. Dies hängt mit den Halbwertszeiten beider Isotope und den Aufenthaltszeiten in der Stratosphäre und der Troposphäre zusammen. Sowohl ^7Be als auch ^{10}Be werden in der Stratosphäre und in der Troposphäre produziert. Durch die einjährige Aufenthaltszeit beider Isotope in der Stratosphäre ist bei der Heruntermischung ein Grossteil des ^7Be bereits zerfallen, da dieses nur eine Halbwertszeit von 53.4 Tagen aufweist. Die in der Troposphäre produzierten Berylliumisotope werden hingegen innerhalb weniger Wochen deponiert, so dass das troposphärische $^7\text{Be}/^{10}\text{Be}$ -Verhältnis im Niederschlag höher ist. Das Ziel dieser Experimente war es, ^7Be , ^{10}Be und ^{36}Cl zeitlich aufgelöst im Gewitterniederschlag zu messen. Gleichzeitig sollten Wetterradardaten weitere Anhaltspunkte über die Luftmassenherkunft geben. Man hoffte, den Verlauf des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses mit der Luftmassenherkunft und mit dem Niederschlagsverlauf in Verbindung bringen zu können.

5.4.2 Aufbau und Durchführung des Experiments

In Zusammenarbeit mit dem LAPETH wurde das Experiment als erste Sondierung in der Atmosphäre bewusst einfach und flexibel gestaltet. Nach einer Gewitterwarnung aufgrund von Radarbeobachtungen des LAPETHs wurde ein mit Polypropylen-Auffangbehältern und Trichtern von einem Quadratmeter Einlassweite ausgerüstetes Fahrzeug zum Gewitter hingeleitet. Es wurde ein VW-Bus verwendet, der als Unterstand, geschützte Ablagefläche und Blitzschutz diente. Da keine Spurenanalyse des Wassers geplant war, wurden die neuen Behälter und die Trichter vorher nur mit destilliertem Wasser gespült, sonst aber nicht speziell präpariert. Der Carrier wurde vorgelegt. In einer späteren Phase wurde dann das Fahrzeug zum Gewitter dirigiert, wo es sich nach Möglichkeit im Luv des Gewitters aufstellte. Beim im Jahre 1988 erforschten Gewitter kam man so an den Rand der intensivsten Zelle. Dieser Gewitterherd war besonders heftig. Während der intensivsten Niederschlagsperiode fiel am Probenahmeort eine Mischung aus Hagel und Regen. Die Plastikbehälter wurden in freiem Gelände aufgestellt, bis sie ein bis drei Liter Niederschlag enthielten. Die Füllzeit wurde notiert und ein Aliquot von zirka 15 ml genommen. Gleichzeitig wurden die Bedingungen in der Wolke mit dem auf dem VW-Bus installierten Dopplerradar aufgezeichnet.

5.4.3 Messung

Die Aufbereitung und die Messung von ^{10}Be und ^{36}Cl erfolgte beim ersten Gewitter analog zu den Eisproben nach der herkömmlichen Methode. Die Proben des zweiten Experiments wurden mit der Säulenmethode aufgearbeitet. Um die volle Ausbeute zu erhalten, müssen die Proben bei dieser Methode leicht angesäuert werden (mit 0.3 ml/l $\text{HNO}_{3\text{konz}}$). Die ^7Be -Proben wurden innerhalb weniger Tage gemessen. ^7Be gibt nach einem Elektroneneinfang ein γ -Quant ab ($^7\text{Be}(\text{e-Einf.}, \gamma)^7\text{Li}$). Diese γ -Strahlung mit einer Energie von 477.6 keV wurde mit einem Germanium-Detektor gemessen.

5.4.4 Die Datensätze

1. Gewitter 15.8.1988

Alle 10 Beryllium-Proben konnten vollständig gemessen werden. Die vierte ^{36}Cl -Probe ging bei der Aufbereitung verloren. Bei den letzten zwei Proben (Nr. 9 und 10) ist die Probenmenge ungenau bekannt. Leider waren die Radardaten aufgrund eines technischen Problems mit dem Magnetband nicht mehr lesbar. Wir mussten uns daher mit den Fotos der Radarbilder begnügen. Diese zeigten, dass die innerste Zelle eine Höhe von mehr als zehn Kilometern erreichte hatte.

Das Abprallen von Hagel oder sehr grossen Wassertropfen während der intensivsten Niederschlagsperiode führte möglicherweise zu Probenverlusten und damit zu einem Unterschätzen des Isotopenflusses. Der so verursachte Fehler dürfte aber 20% nicht überschreiten. Eine weitere Unterschätzung ist möglich, weil das Regenwasser Chlor enthielt. Da aber zu jeder Probe 3.8 mg Chlor-Carrier zugeben wurden, dürfte dieser Fehler maximal 10-20% betragen. Eine genaue Korrektur ist nicht möglich, da an diesen Proben der Chloridgehalt nicht bestimmt wurde.

2. Gewitter 11.9.1991

Bei diesem Gewitter fiel genug Niederschlag für sechs Proben. Sämtliche ^7Be und ^{36}Cl Proben wurden gemessen. Die ^{10}Be -Proben fielen einem Laborfehler zum Opfer.

Der Chloridgehalt aller Proben liegt zwischen 0.2 und 0.4 mg/l. Eine genauere Bestimmung ist aus messtechnischen Gründen momentan nicht möglich. Eventuell unterschätzen wir die ^{36}Cl -Konzentration in den Proben um 10-15%.

5.4.5 Resultate

Diese Isotopenmessungen an Gewitterniederschlägen sind unseres Wissens die ersten ihrer Art. Obwohl die Datensätze nicht so komplett sind wie erhofft, lassen sich doch erste Schlüsse aus den Messungen ziehen. Diese werden in Kapitel 6 diskutiert.

Label	Zeit A	Zeit B	Menge	⁷ Be- Konz.	⁷ Be Fehler	¹⁰ Be- Konz.	¹⁰ Be Fehler	³⁶ Cl- Konz.	³⁶ Cl Fehler	¹⁰ Be/ ³⁶ Cl	⁷ Be/ ¹⁰ Be
			(g)	(10 ⁴ At/g)	(%)	(10 ⁴ At/g)	(%)	(10 ⁴ At/g)	(%)		
GEW4	18:42	18:52	1147	2.31	13.4	4.5	5.3	0.39	26.2	11.42	0.52
GEW5	18:52	18:58	1629	1.84	11.4	3.4	5	0.37	17	9.22	0.54
GEW6	18:58	19:01	2958	1.55	11	2.9	4	0.21	12.9	14.14	0.53
GEW7	19:01	19:04	2941	1.07	14	2.63	7.5	-	-	-	0.41
GEW8	19:04	19:08	2830	1.01	19	1.83	7.8	0.07	17.4	26.74	0.56
GEW9	19:08	19:13	2944	0.94	34	2.65	15.4	0.18	10.3	15.11	0.35
GEW10	19:13	19:22	1072	1.16	43.1	2.36	7.3	0.42	13.2	5.6	0.49
GEW11	19:22	19:34	1521	2.1	20.5	3.18	7.2	0.76	7.2	4.16	0.66
GEW12	19:34	19:50	1000?	1.77	33.3	4.26	6.7	0.9	8	4.71	0.42
GEW13	19:50	20:15	1000?	1.28	37.5	1.61	10.7	0.26	18.4	6.23	0.79

Tab. 5.4.A Werte des Gewitters vom 15.8.88. Der Regen wurde in Dübendorf gesammelt. Die ⁷Be-Konzentrationen beziehen sich auf die Sammelzeit.

5. Kapitel: Resultate

Label	Zeit A	Zeit B	Menge	³⁶ Cl- Konz.	Fehler ³⁶ Cl	³⁶ Cl- Flux	⁷ Be- Konz.	Fehler ⁷ Be	⁷ Be- Flux	⁷ Be/ ³⁶ Cl
			(g)	(10 ⁴ At/g)	(%)	(10 ⁴ At /s m ²)	(10 ⁴ At/g)	(%)	(10 ⁴ At/s m ²)	
GW 91 1	18:41	19:01	1640	1.93	6	2.638	0.499	9.8	0.683	0.26
GW 91 2	19:01	19:21	1422	1.716	2.4	2.034	0.327	9.2	0.388	0.19
GW 91 3	19:21	19:41	1360	0.196	6.5	0.222	0.267	11.6	0.303	1.36
GW 91 4	19:41	20:01	1778	0.251	5.1	0.372	0.190	12.1	0.281	0.76
GW 91 5	20:01	20:21	1190	0.147	12.6	0.073	0.251	12	0.125	1.71
GW 91 6	20:21	20:41	1660	0.095	13.7	0.131	0.115	18.3	0.160	1.22

Tab. 5.4.B Werte des Gewitters vom 11.9.91. Die ⁷Be-Konzentrationen beziehen sich auf die Sammelzeit.

Die Niederschlagsintensität variiert in beiden Gewittern erheblich. In Fig. 5.4.1 sind die auf ihre Mittelwerte normierten Flüsse aller Isotope sowie die Niederschlagsintensität des 1. Gewitterversuchs 1988 aufgetragen. Die Flüsse aller Isotope sind zeitlich variabel. Man sieht, dass sie vor allem in der intensivsten Zelle sehr schön parallel laufen. Die Flusszunahme ist nahezu proportional zur Niederschlagszunahme. Die Isotopenkonzentrationen im Niederschlag sind in der gleichen Zeit weniger von der Akkumulationsrate abhängig. Sie brechen in der intensivsten Zeit ein wenig ein (Fig. 5.4.2). Eine ausführlicherer Vergleich des Verhaltens von Isotopenfluss und -konzentration findet sich Kapitel 6.1.

Das ⁷Be/¹⁰Be-Verhältnis im Gewitter von 1988 bleibt beinahe konstant auf einem Wert von 0.5, wie man ihn in Stratosphärenluft erwartet (Fig. 5.4.3). Da die Luft auf Tropopausenhöhe ca. 1 Jahr alt ist, ist die ⁷Be-Konzentration dort kleiner als in der Troposphäre, wo die Luft nur eine kurze Aufenthaltszeit hat. Gegen Ende des Gewitters nimmt das

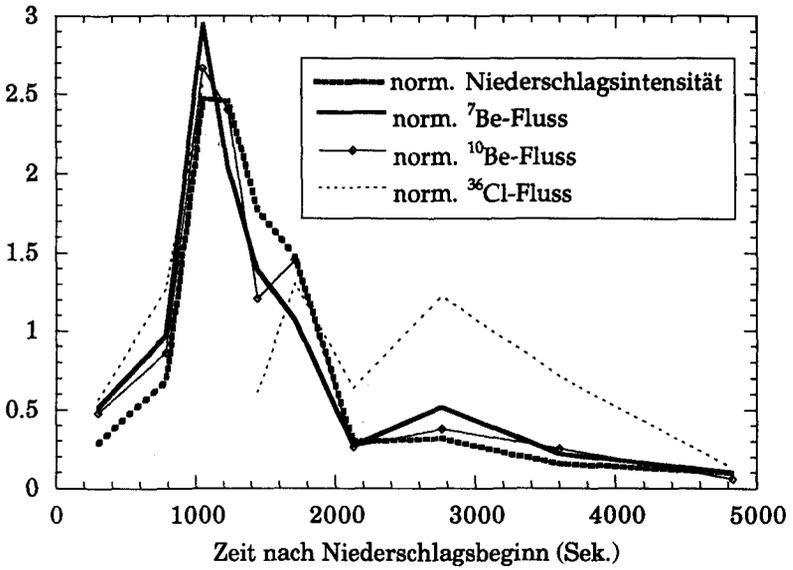


Fig. 5.4.1 Auf ihren Mittelwert normierte Verläufe der Isotopenflüsse und der Niederschlagsrate während des Gewitters 1988.

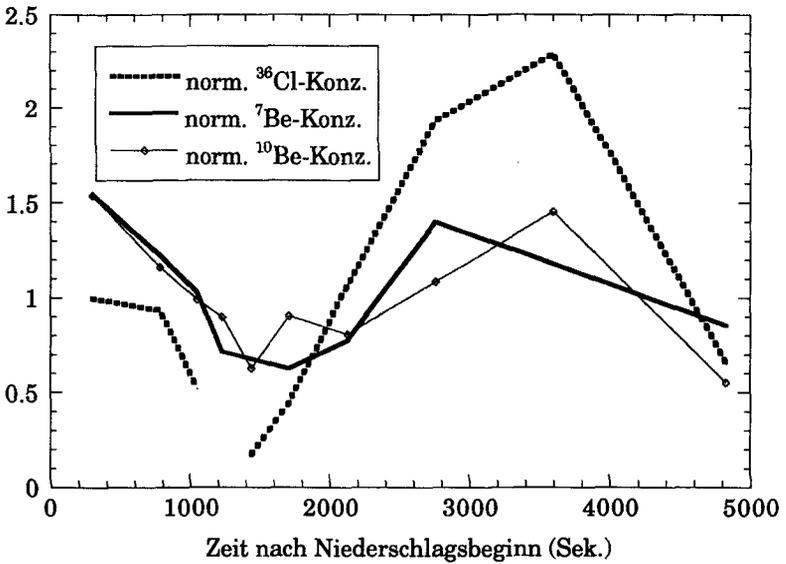


Fig. 5.4.2 Auf ihren Mittelwert normierte Verläufe der Isotopenkonzentrationen im Niederschlag des Gewitters 1988.

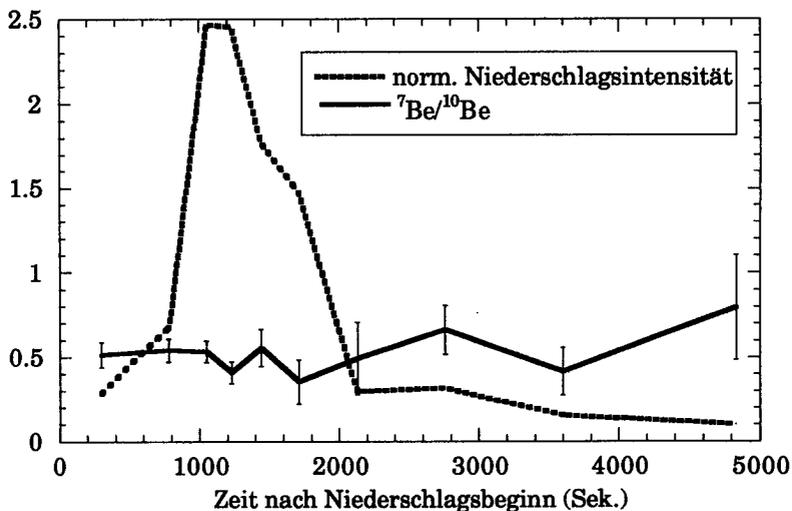


Fig. 5.4.3 Vergleich der Niederschlagsrate (auf ihren Mittelwert normiert) mit dem ${}^7\text{Be}/{}^{10}\text{Be}$ -Verhältnis (mit 1σ -Messfehlern).

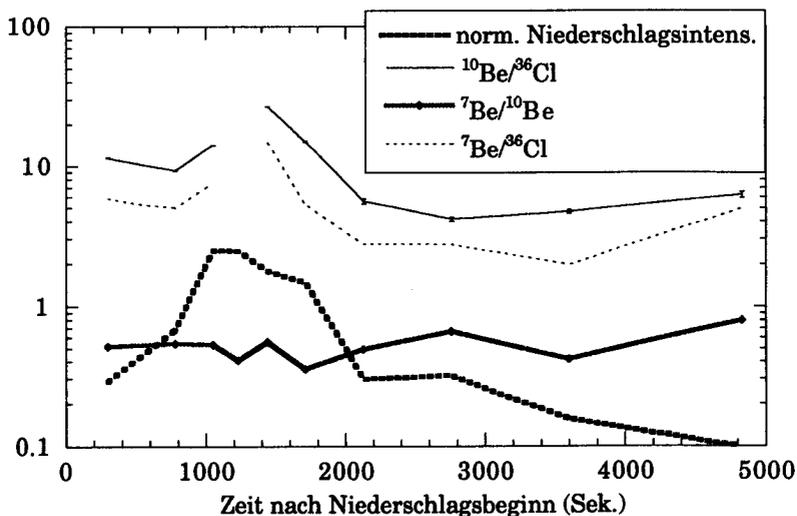


Fig. 5.4.4 Verläufe der Isotopenverhältnisse mit der Niederschlagsrate (auf ihren Mittelwert normiert). Man sieht, dass das ${}^7\text{Be}/{}^{10}\text{Be}$ -Verhältnis viel schwächer mit der Niederschlagsrate korreliert als die anderen Verhältnisse.

5. Kapitel: Resultate

Verhältnis eher wieder zu, wobei der Fehler von zirka 40% keine sichere Aussage zulässt. In Troposphärenluft beträgt das Verhältnis ungefähr 2. (vgl. dazu auch Luder 1986).

Die beiden Berylliumisotope korrelieren besser untereinander als mit ^{36}Cl . Die Verhältnisse der Beryllium-Isotope zu ^{36}Cl variieren in beiden Gewittern wesentlich stärker als das $^7\text{Be}/^{10}\text{Be}$ -Verhältnis (Fig. 5.4.4), da die ^{36}Cl -Flüsse im intensivsten Niederschlag vor den Beryllium-Flüssen zurückgehen. Das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis beträgt am Anfang des Gewitters von 1988 zirka 10, pendelt sich aber nach dem Durchgang der intensivsten Zelle auf einem Wert von ca. 5-6 ein, wie wir ihn auch in Grönland im Mittel finden. Die unterschiedlichen Verläufe von Chlor und Beryllium sind ein Hinweis darauf, dass bei der Auswaschung aus der Atmosphäre unterschiedliche Prozesse involviert sind. In Kapitel 6 wird in einem grösseren Kontext nochmals darauf eingegangen.

Vergleicht man das 1991 untersuchte Gewitter mit dem von 1988, so sieht man, wie verschieden solche Ereignisse sein können. Dies ist eine der wesentlichsten Erkenntnisse aus dem Gewitter von 1991. Dieses Gewitter war viel schwächer als das vorhergehende. Entsprechend waren auch die Flüsse viel geringer (Fig. 5.4.5). Beim Gewitter 1991, dessen Hauptzelle ebenfalls bis in die Stratosphäre reichte, konnte nur eine Randzone beprobt werden. Es ist deshalb nicht sicher, wie repräsentativ diese Niederschlagsproben für das ganze Gewitter sind. Man sieht, dass hier die Flüsse weniger stark durch die Niederschlagsintensität bestimmt werden (Fig. 5.4.5). Erneut geht allerdings der ^{36}Cl -Fluss vor dem ^7Be -Fluss auf niedrigere Werte zurück.

Als Resultat der ersten Sondierversuche ist unser Datensatz sehr beschränkt. Daraus geht hervor, dass sich ^7Be und ^{10}Be sehr ähnlich verhalten. ^{36}Cl weicht mehr davon ab. Der zeitliche Verlauf der Verhältnisse ist nicht zufällig, sondern scheint mit der Niederschlagsintensität korreliert zu sein. Wichtig ist die Feststellung, dass Gewitter als sehr intensive und eng lokalisierte Ereignisse sehr verschiedene

Charaktere haben können. Die Resultate unserer Fallstudien sind deshalb nicht einfach übertragbar.

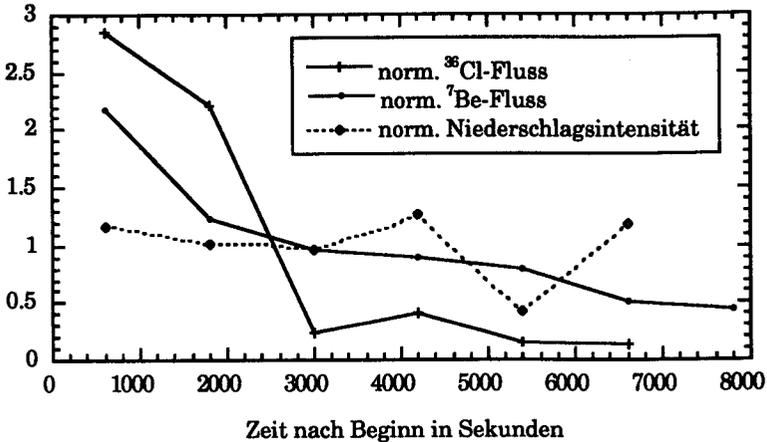


Fig. 5.4.5 Auf ihre Mittelwerte normierte Verläufe der Isotopenflüsse und der Niederschlagsintensität des Gewitters von 1991.

Der Gewitterversuch liefert aufgrund des stark konvektiven Niederschlagstyps keine direkte Vergleichsmöglichkeit mit den Verhältnissen in Grönland, wo vor allem gleichmässige Niederschläge vorherrschen. Sein Wert liegt eher in der Möglichkeit, kurz aufeinanderfolgende Veränderungen in der Auswaschung zu beobachten und zu verifizieren, dass dabei ¹⁰Be/³⁶Cl-Schwankungen auftreten können. Man kann dann annehmen, dass sich auch langsam ändernde atmosphärische Bedingungen unterschiedlich auf die Auswaschungseffizienz von Beryllium und Chlor und damit auf den Verlauf ihres Verhältnisses auswirken können.

Zusammenfassung der wichtigsten Erkenntnisse

1) Die Konzentrationen und Flüsse von ^{10}Be und ^{36}Cl im Eis zeigen Variationen auf allen Zeitskalen. Sowohl die Verläufe von ^{10}Be und ^{36}Cl in einem Kern als auch die Verläufe eines Isotops in verschiedenen Kernen weisen im langfristigen Verlauf viele Parallelen auf. Insbesondere ist in allen Kurven eine deutliche Erhöhung während des Maunder-Minimums von 1645 - 1715 AD zu sehen. Im feinaufgelösten Dye 3-Kern zieht sich in der ^{10}Be - wie auch in der ^{36}Cl -Konzentration über das ganze Zeitintervall hinweg, also auch über das Maunder-Minimum, eine Schwingung mit einer Periode von zirka 11 Jahren. Die stärksten Perioden des Spektrums liegen bei beiden Isotopen zwischen 9 und 13 Jahren. Die spektrale Verteilung aller gemessenen Parameter sind in Dye 3 während des beobachteten Zeitintervalls nicht stationär.

2) Das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis variiert in allen Kernen um mehr als einen Faktor 3 auf allen Zeitskalen. Diese Variationen kommen sowohl durch Amplituden- als auch durch Phasenunterschiede zwischen ^{10}Be und ^{36}Cl zustande. Es scheint, dass die Verläufe in verschiedenen Kernen gewisse Parallelen aufweisen.

3) Die Gewitterstudien erfassen Zeitskalen von wenigen Stunden. Es zeigt sich, dass die Isotopenflüsse in Gewitterniederschlägen viel stärker mit der Akkumulationsrate gekoppelt sind als die Isotopenkonzentrationen. Durch Verhältnisbildung verschwindet diese Kopplung nicht. Das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis kann also auch innerhalb einzelner Niederschlagsereignisse variieren. Es korreliert wesentlich besser (positiv) mit der Niederschlagsrate als das $^7\text{Be}/^{10}\text{Be}$ -Verhältnis. Daraus kann man schliessen, dass bei der Auswaschung von ^{36}Cl und ^{10}Be verschiedene Prozesse involviert sein müssen.

4) Die Isotopenflüsse nehmen in Grönland von Norden nach Süden ab. Ein konstanter Fluss über die Breite ist innerhalb des Fehlers möglich. Eine Zunahme der Flüsse Richtung Süden, wie sie Lal und Peters (1967) voraussagen, ist jedoch unwahrscheinlich.

5. Kapitel: Resultate

Der aus der Produktion berechnete und der aus den Eis-Konzentrationsmessungen berechnete globale ^{10}Be -Fluss stimmen innerhalb eines Faktors 2 überein. Die beobachteten ^{36}Cl -Flüsse an den einzelnen Stationen sind jedoch gegenüber den Berechnungen bis um einen Faktor 10 zu hoch, der beobachtete globale Mittelwert je nach Autor bis um einen Faktor 4.

6. Kapitel

Diskussion

6.1 Einführung

Die Resultate von Kapitel 5 werden in Kapitel 6 anhand des Schemas in Figur 6.1.1 diskutiert. Die eingezeichneten Verbindungen werden aufgrund der Resultate dieser Arbeit und denen anderer Autoren postuliert. Die dominante Verbindung ist der Einfluss solarer Aktivitätsschwankungen auf die Produktion von ^{10}Be und ^{36}Cl in der Atmosphäre. Während des atmosphärischen Transports wirken zusätzlich klimatische Prozesse auf die Isotope. In Kapitel 6.4 wird in einer kurzen Zusammenstellung dargelegt, dass das Klima selbst auch durch Sonnenaktivitätsschwankungen moduliert wird. Für ^{36}Cl wurden als weitere Modulationsmöglichkeiten der Isotopenkonzentration im Eis zusätzliche irdische ^{36}Cl -Quellen in Betracht gezogen. Es wird abgeschätzt, dass diese keinen signifikanten Beitrag zu leisten vermögen.

Jeder Teil von Kapitel 6 behandelt eine der eingezeichneten Verbindungen. Am Schluss des Kapitels werden mögliche Gründe für die beobachteten Schwankungen des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses unter Einbezug aller Einflüsse diskutiert. Vor Beginn der Diskussion werden zunächst die wichtigsten Begriffe, die im Kapitel 6 verwendet werden, anhand von Querschnitten durch die Sonne und die Erdatmosphäre eingeführt.

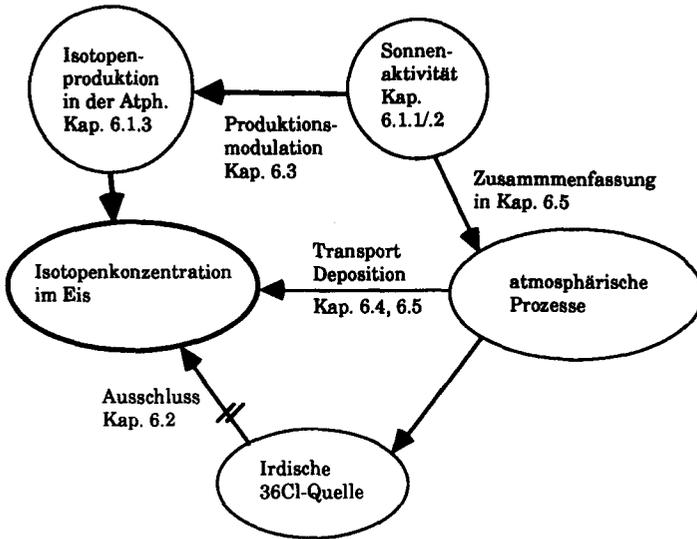


Fig. 6.1.1 Hypothese zum Wirkungsschema auf die Isotope in der Atmosphäre. Das Schema enthält einen Leitfaden zur schnellen Orientierung im Kapitel 6.

6.1.1 Der Aufbau der Sonne und ihrer Atmosphäre

Ein Querschnitt durch die Sonne ist in Figur 6.1.2 wiedergegeben. Das Innere kann grob in drei Zonen eingeteilt werden: den Kern, die Strahlungszone und die Konvektionszone. Im Kern findet die Energieproduktion durch Fusion statt (z. B. Stix 1991). Diese Energieproduktion nimmt nach dem allgemein akzeptierten Standard-Sonnenmodell mit der Zeit langsam zu. In den letzten 4.5 Milliarden Jahren betrug diese Zunahme etwa 30%. Auf Zeitskalen von Hundertausenden von Jahren kann die Energieproduktion aber als konstant angesehen werden. Anschliessend an den Kern folgt eine Zone, in der die Energie durch

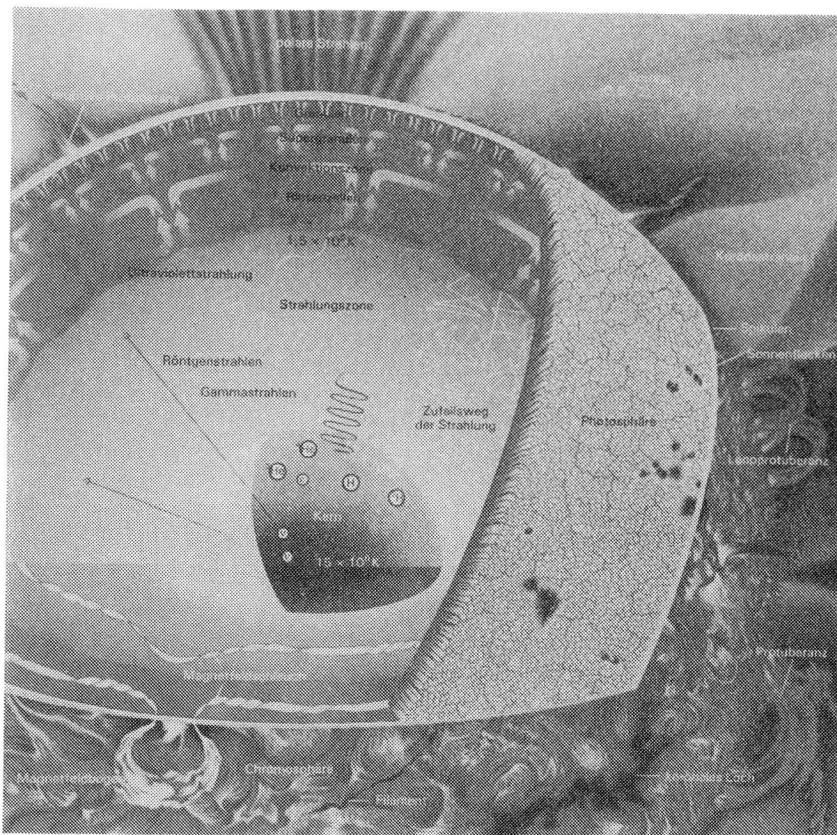


Fig. 6.1.2 (aus Friedman 1987) Aufbau der Sonne und ihrer Atmosphäre mit sichtbaren Phänomenen als Folge magneto-hydrodynamischer Vorgänge (siehe Text).

Strahlung transportiert wird. Auch dieser Transport wird als sehr stabil angesehen. Darüber folgt die Konvektionszone, die zirka einen Drittel des Durchmessers ausmacht. Variationen der mittleren Konvektionsgeschwindigkeit oder Staueffekte in der Umgebung von Sonnenflecken in der Photosphäre (siehe nächster Abschnitt) können vorübergehende Schwankungen des Energietransportes bewirken, die aber wegen des konstanten Flusses aus dem Inneren kompensiert werden müssen. Interaktionen zwischen dem Dipolfeld und der Konvektion des Plasmas (sog. magneto-hydrodynamische Prozesse) haben überdies Modifikationen des Magnetfeldes der Sonne zur Folge. Diese führen zu den beobachtbaren Phänomenen an der Oberfläche, wie zum Beispiel den Sonnenflecken, die sich an den Stellen bilden, wo Magnetfeldlinien aus der Oberfläche austreten.

Die solare Atmosphäre besteht aus drei Schichten. Am Uebergang von der zur optisch undurchdringbaren Zone ("Oberfläche") liegt die nur 100 Kilometer dicke Photosphäre. Alles Licht, welches wir von der Sonne erhalten, wird in dieser Schicht emittiert. Unmittelbar darüber schliesst die Chromosphäre an, eine ausgesprochen dünne, schwierig zu beobachtende Schicht, in der die tiefsten Temperaturen auf der Sonne gemessen werden (bis 4000 K). Mehrere Absorptionslinien im solaren Spektrum haben ihren Ursprung in der Chromosphäre. Darüber folgt die dynamische Korona, deren Form sehr stark von der Sonnenaktivität abhängig ist. Sie kann bei hoher Aktivität eine Ausdehnung von mehreren Sonnendurchmessern erreichen. In ihr werden Temperaturen bis zwei Millionen Kelvin und sehr hohe Teilchengeschwindigkeiten gemessen.

Die Dynamik des Magnetfeldes bestimmt die Erscheinungen an der Oberfläche und in der Sonnenatmosphäre in hohem Masse. Ueberall auf der Sonne werden Materieflüsse entlang von Magnetfeldbogen beobachtet (sog. Protuberanzen), die aus der Oberfläche austreten (Fig. 6.1.2). In der Atmosphäre in der Umgebung der Sonnenflecken treten verschiedene Erscheinungen auf, die den gehemmten Energietransport durch die Fleckenfläche überkompensieren. Die bekanntesten sind heftige Eruptionen, nach ihrer optischen Erscheinung als Fackeln (in Fig. 6.1.2 nicht eingezeichnet) bezeichnet, in denen Materie oft bis in die Korona

hochgeschleudert wird und die Sonnenatmosphäre verlässt. Die Materie wird in der Korona beschleunigt und verlässt sie entlang sogenannter koronaler Löcher, die unter dem Einfluss des Dipolfeldes entstehen.

Die Abstrahlung in der Korona schwankt mit dem Schwabezyklus mit einer Periode von ungefähr 11 Jahren. Die Maxima der Abstrahlung fallen mit den Maxima der Sonnenfleckenzahlen zusammen. Während eines Sonnenfleckenzyklus wechselt das Dipolfeld seine Polarität. Die Umpolung und der Sonnenfleckenzyklus sind phasenverschoben. Die maximale Ausprägung des Dipols fällt mit dem Sonnenfleckenminimum zusammen. In dieser Phase werden ausserhalb einer dünnen Schicht in der Äquatorgegend (in Fig. 6.1.2 nicht eingezeichnet), die zwischen den unterschiedlich polarisierten Hemisphären liegt, schnelle Sonnenwinde emittiert (Legrand et al. 1991). In dieser dünnen Schicht findet man immer nur langsame Winde. Die Schicht ist während schwachen Sonnenfleckenzyklen (wenige Flecken) dicker.

6.1.2 Auswirkungen des Sonnenwindes in der Erdatmosphäre

Der Zustand der dünnen Zwischenschicht in der Äquatorebene der Sonne hat für die Erde, die sich ungefähr in dieser Ebene bewegt, Konsequenzen, da jeder Uebergang von der Zone langsamer in die Zone schneller Winde zu magnetischen Schockwellen in der Erdatmosphäre führt, die als sogenannte AA-Indices erfasst werden. Solche Schockwellen geben Anlass zu Störungen der Ionosphäre und des geomagnetischen Feldes (oft als "magnetische Stürme" bezeichnet) und zum Auftreten von Aurorae (andere Bezeichnungen für "Aurora" sind "Polarlicht" oder "Nordlicht"). Aurorae treten zwischen 100 und 400 Kilometern Höhe auf. Die Anzahl der gemessenen Schockwellen hängt von der Stärke und von der Phase des Sonnenfleckenzyklus ab (für Details siehe Legrand et al. 1991). Allgemein kann man sagen, dass während der Maxima des Sonnenfleckenzyklus am meisten Schockwellen gemessen werden. Während schwacher Sonnenfleckenzyklen mit Maxima von weniger als 40 SFR (Sonnenflecken-

relativzahl, normiertes Mass für die Anzahl der Sonnenflecken), wie sie zum Beispiel während solarer Minima auftreten, bleiben Schockwellen dagegen fast völlig aus.

Eine weitere wichtige, solare Quelle von Aurorae sind nach Legrand et al. (1991) schnelle Jets des Sonnenwindes von mehr als 450 km/sec, die vor allem an den Polen des solaren Magnetfeldes emittiert werden. Sie führen zu den gleichen optischen Phänomenen in der Erdatmosphäre. Analysen von Legrand et al. (1991) zeigen allerdings, dass Aurorae von Jets im Gegensatz zu Aurorae von Schockwellen praktisch nicht unter 57° geomagnetischer Breite (Breite vom magnetischen Pol gemessen) auftreten. Da früher die meisten Beobachtungsstationen in mittleren Breiten lagen, kann eine Verschiebung des Verhältnisses von Jet- zu Schock-Aurorae (was gleichbedeutend ist mit einer Verschiebung der Breite des Auftretens der Aurorae) einen Einfluss auf die Anzahl beobachteter Aurorae gehabt haben. Die Abwesenheit von Schockaurorae in mittleren Breiten könnte also dazu führen, dass in historischen Quellen kaum Beobachtungen von Aurorae gefunden werden. Daraus ergibt sich eine erhöhte Unsicherheit in der historisch rekonstruierten Aurorae-Zeitreihe über die tatsächliche Anzahl der Aurorae während der solaren Minima.

Die spektralen Abstrahlungsschwankungen der Sonne während eines Sonnenfleckenzyklus können erst seit dem Beginn der satellitengestützten Messungen erfasst werden. Sie belegen, dass die Abstrahlung mit den Sonnenfleckenzahlen während der letzten zwei Sonnenfleckenzyklen korreliert und über alle Spektralbereiche gemittelt etwa um ein Promille schwankt (Lean 1991). In gewissen Spektralbereichen sind die Änderungen jedoch wesentlich höher und betragen zum Beispiel im UV-Bereich bis zu einem Faktor 2. Wie schon länger vermutet, variiert also auch die Solar"konstante" (definiert als die auf der Erde pro Fläche und Zeit eingestrahlte Energie) mit der magnetischen Aktivität der Sonne.

Aufgrund von $\Delta^{14}\text{C}$ -Messungen in Baumringen schätzt man, dass die Abstrahlungsschwankungen während des letzten Jahrhunderts gering waren. Das Auftreten der Sonnenminima dieses Jahrtausends und

Untersuchungen an sonnenähnlichen Sternen lassen jedoch vermuten, dass das Variabilitätspotential der Sonne wesentlich grösser ist (Balunias et al. 1993).

6.1.3 Die ^{10}Be - und ^{36}Cl -Produktion in der Erdatmosphäre

Die Primärstrahlung, die von aussen in die Erdatmosphäre eindringt, besteht zu 90% aus Protonen, 10% α -Teilchen und einem kleinen Anteil an schwereren Teilchen. Die Anzahl der in die Erdatmosphäre eintretenden kosmischen Teilchen wird auf zwei Arten variiert, erstens durch die Stärke des geomagnetischen Feldes der Erde und zweitens durch die solaren Aktivitätsschwankungen.

Die geomagnetische Modulation

Das Dipolfeld der Erde hält Teilchen unterhalb eines bestimmten Impuls/Ladungs-Verhältnisses vom Eintritt in die Erdatmosphäre ab. Von der Abschirmung ist vor allem der niederenergetische Teil der kosmischen Strahlung bis etwa 15 GeV betroffen. Teilchen mit hohen Energien passieren ungehindert. Diese sogenannte "Cut-off rigidity"¹ R der Teilchen ist proportional zur Stärke des Dipolfeldes der Erde (Blinov 1988). Unter Berücksichtigung der Energieverteilung der galaktischen kosmischen Strahlung (vgl. z. B. Lal und Peters 1967) wird die Produktion P_I von ^{10}Be , ^{36}Cl und ^{14}C für kleine Aenderungen des Feldes ungefähr proportional zum Kehrwert der Wurzel aus der Dipolstärke D , das heisst

$$\frac{P_{I_2}}{P_{I_1}} = \frac{\sqrt{D_2}}{\sqrt{D_1}} = \sqrt{\frac{D_2}{D_1}}$$

R nimmt überdies mit der geomagnetischen Breite gemäss

¹ Rigidity: Verhältnis des Impulses eines Teilchens zu seiner Ladung

$$R_{\alpha} = R_0 \cos^4(\alpha)$$

mit R_{α} : Cut-off rigidity R bei der Breite α

R_0 : Cut-off rigidity am Aequator

($R_0=14.9$ GV)

α : Geomagnetische Breite

ab. In der polaren Atmosphäre werden also mehr Isotope produziert.

Veränderungen des irdischen Magnetfeldes finden im Zeitraum von Jahrtausenden statt und können deshalb in den Isotopen-Messreihen der drei Eiskerne höchstens einen Trend erzeugen. Zwischen 1000 und 1900 AD hat die Stärke des Erdmagnetfeldes um zirka 15% abgenommen (Beer et al. 1984; Bucha 1983; McElhinny et al. 1982). Diese Schätzungen haben wegen der lokalen Komponente der Messungen eine Ungenauigkeit von zirka $\pm 7.5\%$, so dass die Magnetfeldänderung vorsichtig geschätzt eine Zunahme der Isotopenflüsse um etwa 9% über diesen Zeitraum bewirken kann.

Die Vorzeichen und die Stärke der festgestellten Trends in den Messdaten von ^{36}Cl und ^{10}Be der verschiedenen Bohrkerne sind, wie in Kapitel 5 erwähnt, unterschiedlich. Der Einfluss des geomagnetischen Feldes scheint daher nicht entscheidend zu sein. Da eine neunprozentige Zunahme über 700 Jahre auch gegenüber den Amplituden der kurzzeitigen Schwankungen vernachlässigbar ist, wird dieser Effekt auf die Produktion im folgenden nicht mehr weiter behandelt. In Kernen, die mehrere tausend Jahre umfassen, muss der geomagnetische Einfluss in den Isotopenreihen jedoch korrigiert werden.

Die solare Modulation

Die Energie der von der Sonne emittierten Teilchen reicht zur Spallationsproduktion von ^{10}Be und ^{36}Cl in der Atmosphäre nicht aus. Die im Sonnenwind "eingefrorenen" Magnetfelder interferieren jedoch auf komplizierte Weise mit der galaktischen kosmischen Strahlung von Energien von weniger als 15 - 20 GeV. Ihre Wirkung auf diesen Teil der kosmischen Strahlung nimmt mit abnehmender Teilchenenergie zu. Die Stärke des Sonnenwindes variiert mit dem Sonnenfleckenzzyklus, so dass während eines

Sonnenaktivitäts-Maximums (Sonnenfleckenmaximum) eine minimale Isotopenproduktion erwartet wird. Eine mit der Sonnenaktivität antikorrelierte Isotopenproduktion in der Atmosphäre wurde tatsächlich von verschiedenen Autoren während der solaren Aktivitätsminima (Beer et al. 1988; Conard et al. 1989; Stuiver und Quay 1980) und während des Schwabezyklus (Beer et al. 1990) beobachtet.

Das Schicksal der ^{10}Be - und ^{36}Cl -Isotope in der Atmosphäre zwischen Produktion und Deposition ist in der Figur 6.1.3 schematisch dargestellt. Das Maximum der Spallationsproduktion durch hochenergetische kosmische Strahlung an atmosphärischen Gasen (hauptsächlich an ^{40}Ar für ^{36}Cl und an ^{14}N - und ^{16}O -Teilchen in Molekülen für ^{10}Be) befindet sich in ungefähr 16 Kilometern Höhe in der Stratosphäre. Sowohl ^{10}Be wie auch ^{36}Cl werden durch die Spallationsreaktion hochenergetischer Teilchen zu zwei Dritteln in der Stratosphäre und zu einem Drittel in der Troposphäre produziert. Nach neuesten Berechnungen verschiebt sich dieses Produktionsverhältnis für ^{10}Be aufgrund niederenergetischer sekundärer Neutronen der Spallationsreaktion (Blinov, pers. Komm., siehe Kap. 6.3.5), so dass ^{10}Be etwa zu gleichen Teilen in der Strato- und in der Troposphäre produziert wird. Das Maximum der Neutronenproduktion befindet sich in zirka acht Kilometern Höhe in der Troposphäre. ^{10}Be lagert sich an Aerosole an oder wird als BeO gebunden und verhält sich inert. ^{36}Cl dürfte in verschiedenen "Konfektionen" auftreten, da Chlor viel reaktiver ist. Es kann sowohl als HCl -Gas als auch partikulär vorliegen.

Die Aufenthaltszeit der Isotope in der Stratosphäre nimmt gegen unten ab. Die minimale Aufenthaltszeit für Isotope nahe der Tropopause beträgt zirka 0.8 Jahre (Reiter 1975). Die mittlere Aufenthaltszeit aller Isotope beträgt ungefähr 1.5 Jahre (Beer et al. 1990). Aufgrund von Messungen der ^{90}Sr -Depositionsverteilung nach Atombombenversuchen nimmt man an, dass der Isotopentransport von der Stratosphäre in die Troposphäre hauptsächlich in mittleren Breiten durch Tropopausenfaltungen stattfindet (Gwinn und Sarmiento 1984). Dieser Transport hat im Frühling ein Maximum. In der Troposphäre werden ^{10}Be und ^{36}Cl innert etwa vier Wochen im Niederschlag

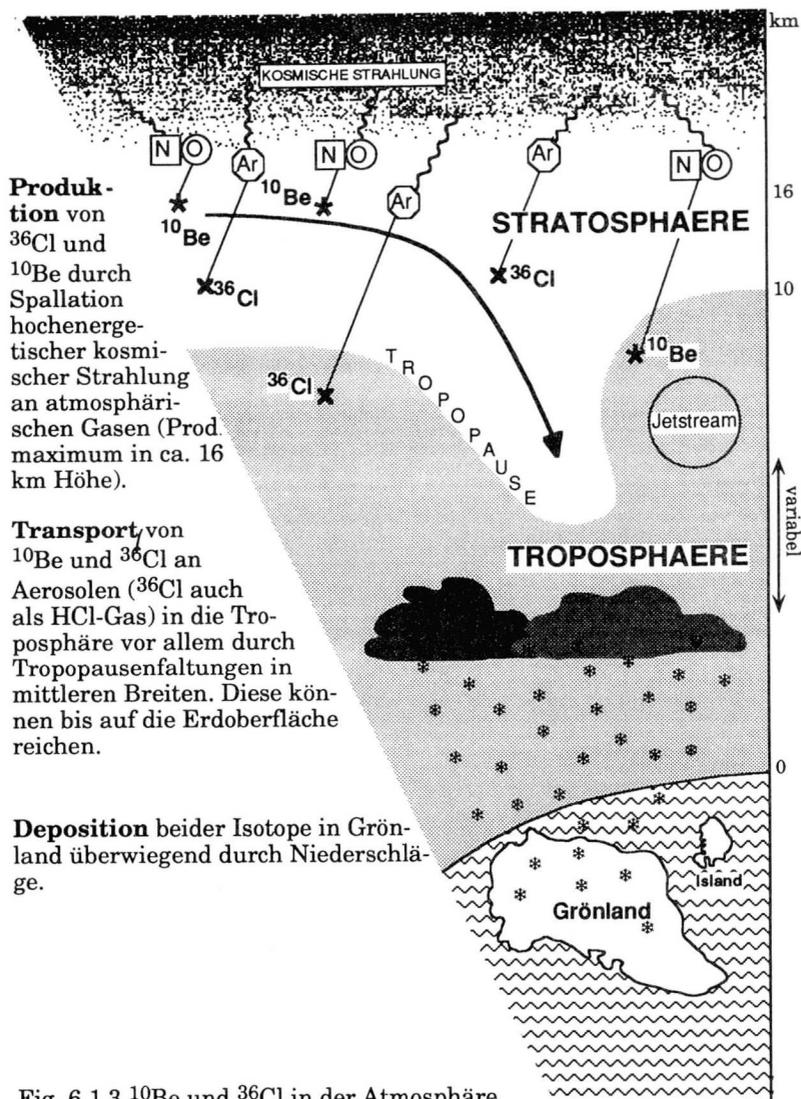


Fig. 6.1.3 ^{10}Be und ^{36}Cl in der Atmosphäre

aus der Atmosphäre entfernt (sog. nasse Deposition). Danach bleiben die Isotope im inneren Eisschild von Grönland gebunden, denn es werden keine grossen Schmelzhorizonte beobachtet, die eine Verlagerung im Wasser vermuten lassen. Die abgelagerten Jahresschichten dünnen sich jedoch mit zunehmender Tiefe aus, da das Eis gegen die Küste abfließt.

6.1.4 Die Sonnenaktivität und ihre Proxis

Die zwei obenstehenden Abschnitte haben gezeigt, dass der Sonnenwind optische und magnetische Erscheinungen in der Erdatmosphäre hervorruft. Der Sonnenwind moduliert ebenfalls die ^{10}Be - und ^{36}Cl -Produktion in der Erdatmosphäre. Der Sonnenfleckenzyklus äussert sich einerseits in optischen Phänomenen auf der Sonne selber, variiert andererseits aber auch die Stärke des Sonnenwindes und damit die Erscheinungen in der Erdatmosphäre. Deshalb ist die Produktion mit dem Sonnenfleckenzyklus, der Zahl der Aurorae und der Schockwellen antikorreliert. Somit stehen verschiedenen Beobachtungsgrössen zur Verfügung, die den Sonnenfleckenzyklus genähert widergeben. Sie werden als 'Proxis' des Sonnenfleckenzyklus bezeichnet.

Die Phänomene auf der Sonne und in der Erdatmosphäre, welche mit der magnetischen Aktivität einhergehen, sind zum Teil seit wesentlich längerer Zeit bekannt als die erst seit kurzem messbaren Variationen der Abstrahlung. Die längste und zuverlässigste direkt beobachtete Reihe stellen die Sonnenflecken dar. Ihre Zahl wurde seit der Entdeckung der Zyklicität durch Schwabe von 1826 AD an systematisch aufgezeichnet. Darüberhinaus existieren Rekonstruktionen des Sonnenfleckenzyklus mit abnehmender Verlässlichkeit zurück bis 1500 AD (Schove 1983). Die Isotopenkonzentrationen, mit denen das Sonnensignal im Eis lückenlos zurückverfolgt werden kann, enthalten zusätzlich zu den solaren noch atmosphärische Signale.

Die verschiedenen Phänomene sind stark, aber bezüglich Phase und Amplitude nicht linear miteinander korreliert (Hoyt 1993). Obwohl alle

Phänomene ihren Ursprung in magneto-hydrodynamischen Vorgängen haben, ist über die Natur ihrer Korrelation wenig bekannt. Neuere Untersuchungen von Hoyt und Lean (Lean 1991) belegen, dass die magneto-hydrodynamischen Ereignisse, die auch zu Abstrahlungsvariationen führen, nicht in allen Phänomenen erscheinen respektive erscheinen müssen. Diese Phänomene sind also nur Proxis für den Verlauf der solaren Aktivität. Das bekannteste Beispiel für diesen Sachverhalt ist das Maunder-Minimum, während dem der Schwabezyklus im ^{10}Be sichtbar blieb (Beer et al. 1990), obwohl praktisch keine Sonnenflecken auftraten. Einzelne Proxis, wie zum Beispiel die Radioisotope, können überdies noch andere Signale enthalten (Beer et al., eingereicht), die nicht von der Sonne stammen (Atmosphärensignale).

Der beobachtete Zustand des Ensembles der Proxis (oder eines Teils davon) wird oft als "Sonnenaktivität" bezeichnet. Dieser Begriff ist wegen der erwähnten Ausprägungen eines solaren Ereignisses in den verschiedenen Proxis nicht absolut scharf gefasst. Die Proxis waren jedoch die einzige Möglichkeit, die Abstrahlungsstärke der Sonne in vergangener Zeit zu charakterisieren. Das Ensemble der Proxireihen wird mit zunehmendem Alter immer kleiner. Länger als hundert Jahre sind nur fünf verlässliche Proxi-Reihen: Die bereits erwähnte Sonnenfleckenreihe, die Reihe über das Auftreten von Schockwellen solaren Ursprungs sowie die Radioisotopenreihen von ^{10}Be , ^{36}Cl und $\Delta^{14}\text{C}$. Die Reihe über das Auftreten von Schockwellen reicht bis 1870 AD zurück.

Die Aurorae-Zeitreihe (in Schove 1983), die auf visuellen Beobachtungen beruht, kann ebenfalls über mehr als 100 Jahre aus geschichtlichen Archiven rekonstruiert werden. Infolge der visuellen Beobachtung hängt sie aber von der Witterung, der Regelmässigkeit der Beobachtungen sowie der Sichtbarkeit der Aurorae in bewohnten Gebieten ab. Wegen allen diesen Faktoren kann die Rekonstruktion der Aurora-Zeitreihe von variabler Qualität sein (siehe Kap. 6.1.2 und Legrand et al. 1991).

Die Radioisotope bieten heute also die einzige Möglichkeit, die Sonnenaktivität über viele Jahrhunderte feinaufgelöst zu verfolgen (Beer et

al., eingereicht). Die Zuverlässigkeit dieser Information ist nur von der zeitlichen Auflösung der Eiskerne und der Kenntnis der massgebenden Einflüsse auf die Isotope abhängig. Sowohl ^{10}Be und ^{36}Cl als auch ^{14}C werden auf vergleichbare Weise durch primäre oder sekundäre Teilchen der hochenergetischen kosmischen Strahlung in der Atmosphäre produziert. Das Verhalten von ^{14}C danach ist aber wesentlich verschieden. Während ^{10}Be und ^{36}Cl vor allem durch nasse Deposition innerhalb von etwa 2 Jahren praktisch irreversibel aus der Atmosphäre ausgewaschen werden, hat die Atmosphäre im Falle von ^{14}C ein wesentlich längeres Gedächtnis, da es in den CO_2 -Kreislauf eingebunden wird (z. B. Siegenthaler et al. 1980). Die Phasenverschiebungen und die Dämpfungen der Signale hängen wegen den Wechselwirkungen mit den involvierten Archiven von deren Frequenzen ab. Die ^{14}C -Isotope werden in der Atmosphäre über den Globus vollständig gemischt. Die kurzfristigen Schwankungen werden am stärksten gedämpft. Bei einem dominanten Spallationsproduktionssignal in den Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl erwartet man also vor allem im langperiodischen Vergleich Parallelen.

6.2 Ausschluss einer zusätzlichen ^{36}Cl -Quelle als Ursache für die Schwankungen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis

Wegen der zu ^{10}Be ähnlichen Produktion von ^{36}Cl in der Atmosphäre war ursprünglich auch ein sehr ähnlicher Konzentrationsverlauf von ^{10}Be und ^{36}Cl im Eis vorausgesagt worden. Wie in Kapitel 5 gezeigt wurden diese Erwartungen nicht vollumfänglich erfüllt. Zwar sind die Kurven stark positiv korreliert. Zwischen ^{10}Be und ^{36}Cl bestehen neben den Parallelen Differenzen, für die es keine einfache Erklärung gibt. Diese Differenzen schlagen sich im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verlauf nieder.

Aufgrund der Diskrepanz zwischen berechnetem (siehe Tabelle 5.3.D) und beobachtetem (Tabelle 5.3.C) Mittelwert des ^{36}Cl -Flusses stellt sich die Frage, ob nicht eine zusätzliche, irdische ^{36}Cl -Quelle existieren könnte. Diese würde möglicherweise sowohl die beobachteten Amplituden- und Phasenunterschiede zwischen ^{36}Cl und ^{10}Be wie auch den zu hohen ^{36}Cl -Mittelwert erklären.

Die Suche nach ^{36}Cl -Quellen wird durch zwei Tatsachen erleichtert: erstens gibt es nur wenige effektive Produktionsmechanismen, und zweitens muss das so produzierte ^{36}Cl auch noch in genügenden Mengen ins grönländische Eis transportiert werden. Dieser Transport ist nur über die Atmosphäre möglich.

Folgende Produktionsmechanismen von ^{36}Cl sind neben der Spallationsreaktion $^{40}\text{Ar}(p,n\alpha)^{36}\text{Cl}$ in der Atmosphäre bekannt:

- Neutronenaktivierung von ^{35}Cl (hoher Wirkungsquerschnitt von 43.6 barn) in der Atmosphäre, im Meerwasser (vor allem bekannt geworden nach Atombombentests, siehe z. B. Synal et al. 1990). Die Atombombentests und Atomkraftwerke werden hier als ^{36}Cl -Quellen nicht weiter diskutiert, da sie in der untersuchten Zeitspanne keine Rolle spielen.

- $^{36}\text{Ar}(n,p)^{36}\text{Cl}$ in der Atmosphäre (vernachlässigbar gegenüber der Spallation, da ^{36}Ar nur 0.34% des gesamten Argons in der Atmosphäre ausmacht)
- Compoundreaktionen von niederenergetischen kosmischen Protonen (auch solaren Ursprungs) mit Argon. Diese galten bisher als vernachlässigbar. Neue Erkenntnisse von Blinov (1988) werden am Schluss des Kapitels 6.3 besprochen. Es scheint sehr wünschenswert, die Reaktionsquerschnitt dieser Compoundreaktionen zu messen oder zu überprüfen.
- Reaktionen von atmosphärischen, sekundären Neutronen hauptsächlich mit ^{40}Ca , ^{39}K und ^{35}Cl in den obersten Metern der Lithosphäre
- Neutronenaktivierung von ^{35}Cl mit Neutronen aus dem Uran- und Thoriumzerfall in der Lithosphäre. Zusätzlich findet auch die Reaktion von negativen Myonen mit ^{39}K in den obersten 30 Metern der Lithosphäre statt, die aber zu geringeren Produktionsraten führt.

Die ^{36}Cl -Isotope der letzten beiden Mechanismen werden zwar in der Lithosphäre produziert, können aber nach der Erosion des Gesteins als Staub in die Atmosphäre gelangen.

Nachstehend werden verschiedene Reaktionen überprüft, die einen wichtigen Beitrag zum ^{36}Cl -Budget in Grönland liefern könnten.

6.2.1 ^{36}Cl -Eintrag durch Methylchlorid (CH_3Cl)

Nach Fabian (Fabian 1989, S. 41 und S. 75) ist CH_3Cl (CFC-40) die häufigste natürliche Chlorverbindung in der Atmosphäre. Es werden etwa 5×10^6 t/y CH_3Cl in die Atmosphäre emittiert. In der Troposphäre ist die Konzentration mit der Höhe ziemlich konstant. Darüber nimmt sie ungefähr logarithmisch ab (nur noch 1/10 in 30 km Höhe).

1.1 Direkter Input von ^{36}Cl

In 5×10^6 t/y CH_3Cl werden ca. 3.5×10^6 t/y Chlor in die Atmosphäre emittiert. Das sind 6×10^{34} Atome Cl pro Jahr. Als Hauptquelle von Methylchlorid gelten biologische Prozesse im Ozean. Somit können wir in erster Näherung annehmen, das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis entspreche dem im Meer, nämlich

$$\alpha = {}^{36}\text{Cl}/\text{Cl} \leq 10^{-15}. \quad (6.1)$$

Nimmt man an, Methylchlorid sei gleichmässig über die Oberfläche verteilt, so erhält man einen Fluss von

$$P_{\text{CH}_3\text{Cl}} = \alpha \cdot {}^{36}\text{Cl}_{\text{CH}_3\text{Cl}} / F_{\text{Erde}} \approx 3.7 \cdot 10^{-7} \text{ At} / \text{cm}^2 \text{ sec}$$

Zum Vergleich finden wir in Lal und Peters (1967) für die Spallationsreaktion eine Produktionsrate von

$$P_{\text{Spall.}} {}^{36}\text{Cl} = 1.1 \times 10^{-3} \text{ At} / \text{cm}^2 \text{ sec}$$

Der direkte Beitrag von Methylchlorid ist also vernachlässigbar.

1.2 Neutronenaktivierung von ^{35}Cl in Methylchlorid in der Atmosphäre

Während seines Aufenthalts in der Atmosphäre wird Methylchlorid der kosmischen Strahlung ausgesetzt. Um die Produktionsrate durch diese Reaktion abzuschätzen, geht man am besten von der Produktionsgleichung eines radioaktiven Isotops aus, welches aus einem atmosphärischen Teilchen produziert wird, und vergleicht sie zum Beispiel mit der von ^{14}C . Die Produktionsrate P_x aus dem Target x ist

$$P_x = \frac{\Phi N \sigma_x (\rho x)_x}{A_x} \quad (6.2)$$

- mit Φ : Fluss thermischer Neutronen
 σ_x : Reaktionsquerschnitt des Targetteilchens x für die betreffende Reaktion
 N : Loschmidtsche Zahl
 ρx_x : Dichte des Targetteilchens x in der Atmosphäre in g/cm^2
 A_x : Atomgewicht des Targets x

Damit lässt sich die Produktionsrate für ^{36}Cl aus der Neutronenaktivierung in Methylchlorid ausdrücken als

$$P(^{36}\text{Cl}) = \frac{\sigma_{\text{Cl}}(\rho x)_{\text{Cl}} A_N}{\sigma_N(\rho x)_N A_{\text{Cl}}} \cdot P(^{14}\text{C}) \quad (6.3)$$

- Dabei ist $P(^{14}\text{C}) = 2.5 \text{ At/cm}^2 \text{ sec}$ (nach Lal und Peters, 1967)
 $\sigma_N = 1.8 \text{ barn}$
 $\sigma_{^{35}\text{Cl}} = 43.2 \text{ barn}$
 $(\rho x)_N = 0.8 \cdot (\rho x)_{\text{Atph}} = 0.8 \cdot 1033 \text{ g/cm}^2 = 828 \text{ g/cm}^2$
 $(\rho x)_{\text{Cl}} = \text{Prod. y Cl}(\text{CH}_3\text{Cl}) / F_{\text{Erde}} = 3.5 \cdot 10^{12} \text{ g} / 5.1 \cdot 10^{18} \text{ cm}^2$
 $= 6.9 \cdot 10^{-7} \text{ g/cm}^2$

Damit wird

$$P(^{36}\text{Cl}) = 2 \times 10^{-8} \text{ At/cm}^2 \text{ sec,}$$

also völlig vernachlässigbar gegenüber der Spallationsproduktion.

6.2.2 Neutronenaktivierung von ^{35}Cl im Meerwasser

Die folgende Ueberlegung zeigt, dass dieser Beitrag unwichtig ist:

Die Chloridkonzentrationen im Eis waren über ein Jahr gemittelt zwischen 20 bis 40 $\mu\text{g Cl}^-/\text{kg Eis}$. Das meiste davon dürfte aus dem Meer stammen. Meerwasser hat gemäss Gleichung (6.1) ein $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis auf dem Blank-Niveau ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 10^{-15}$). Die Messwerte liegen aber trotzdem wesentlich über dem Blank. Das bedeutet, dass aus anderen Quellen viel mehr ^{36}Cl kommen muss. Deshalb kann ^{36}Cl aus dem Meer nicht wichtig sein.

6.2.3 Abschätzungen zu Modulationen durch Vulkane

Die folgende Abschätzung versucht eine obere Grenze für den Eintrag von ^{10}Be und ^{36}Cl ins Eis durch vulkanische Eruptionen abzustecken. Dazu wird beispielhaft der Laki-Ausbruch von Island behandelt, der als die weitaus grösste Eruption der Nordhemisphäre nach 1200 AD bekannt ist.

Island liegt auf dem mittelatlantischen Rücken, wo vorwiegend Magma aufgeschmolzen wird, dessen mittlere Aufenthaltszeit im Mantel die Halbwertszeiten beider Isotope um ein Vielfaches übersteigt. Deshalb erwartet man im Magma des Mantels keine signifikanten Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl . Nach Hammer (1977) wurden von Laki 2.4 $\text{kg H}^+/\text{km}^2$ in Crête (Grönland) deponiert, zur Hauptsache als H_2SO_4 . Schätzt man aufgrund dieser Arbeit grob ab, dass zehn Prozente davon HCl gewesen seien, so erhält man in einem Kern von 10 cm Durchmesser 1.1×10^{18} Atome Cl von Laki. Bei einer Dauer der Deposition von 0.75 Jahren (nach Hammer 1977) könnte sich der gesamte Niederschlag in einer einzigen Probe befunden haben. Trotzdem ist diese Menge bei einer Zugabe von 3.8 mg Cl-Carrier (entspricht 6×10^{19} At. Cl) vernachlässigbar. Die ^{36}Cl -Menge kann man mit der Tab. 1.1 in der Arbeit von Bascom Purdy (1991) abschätzen. Das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis schwankt in Gesteinen zwischen 1000×10^{-14} (Maximum der oberflächennahen Gesteine) und 5×10^{-14}

(tieferliegende Tone). Die tieferliegenden Gesteine machen den Grossteil der Masse aus. Deshalb wurde ein Mittelwert von 10×10^{-14} angenommen. Mit der groben Annahme, dass dieses Verhältnis beim Aufschmelzen in der Subduktionszone erhalten bleibt (keine Mischung mit älterem Mantelmaterial) und einer Verweilzeit von zirka 1 Mio Jahren reduziert sich dieses Verhältnis auf 10^{-14} . Das ist eine obere Grenze, da das Magma beim Mittelatlantischen Rücken eher erheblich älter ist, finden sich doch schon in Subduktionszonen Alter von über 3 Mio. Jahren (Monaghan 1988). Falls das Verhältnis von 10^{-14} auch beim Auswurf erhalten bliebe und in die Gas-respektive Aerosolphase übernommen würde, fände es sich also auch im Eis wieder. Das unter diesen Annahmen berechnete Verhältnis wäre also ziemlich genau gleich gross wie das gemessene. Die Carriermenge überwiegt den natürlichen Chlorgehalt in Crête bei weitem. Wie wir oben abgeschätzt haben, liegt sie auch 2 Grössenordnungen über der Chlormenge von Laki. Somit ist bei gleichem $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis auch die eingetragene ^{36}Cl -Menge vernachlässigbar.

Eine weitere potentielle Quelle ist die Produktion von ^{36}Cl aus dem ^{35}Cl des Vulkanauswurfs in die Atmosphäre mittels der Reaktion $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$. Folgende grobe Abschätzung zeigt aber, dass dieser Prozess unwichtig ist. Man kann wiederum den obigen Vergleich mit der ^{14}C -Produktion in der Atmosphäre heranziehen. Nach Hammer (1977) wurden insgesamt 10^{14} g saures Material in die Atmosphäre geschleudert, zur Hauptsache H_2SO_4 . Wie oben wird angenommen, 10 Gewichtsprozent davon seien ^{35}Cl gewesen. Die Masse der Atmosphäre der Nordhemisphäre beträgt 2.56×10^{21} g. Somit ist der Massenanteil des ^{35}Cl in der Atmosphäre 5×10^{-9} , entsprechend einem $(\rho x)_{^{35}\text{Cl}}$ in Gleichung (6.3) von

$$(\rho x)_{^{35}\text{Cl}} = 5 \times 10^{-9} \times 1033 \text{ g/cm}^2 = 5.1 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2.$$

Damit wird

$$R(^{36}\text{Cl}) = 1.5 \times 10^{-7} \text{ At/ cm}^2 \text{ sec.}$$

Dies ist vernachlässigbar gegenüber der Spallationsreaktion.

Wenn also tatsächlich ein Zusammenhang bestehen sollte zwischen dem Vulkanausbruch und den Isotopen, so müsste das saure Material in der Atmosphäre einen markant höheren Fluss von *kosmogenen* Isotopen initiiert haben. Solche Mechanismen sind aber keine bekannt.

Eine weitere Möglichkeit, den vulkanischen Einfluss auf die beiden Isotope zu prüfen, ist die visuelle Suche nach Auffälligkeiten im Eis des feinaufgelösten Dye 3-Kerns nach bekannten Vulkanausbrüchen. In der betrachteten Zeitspanne brachen nach Hammer et al. (1980) acht grössere Vulkane aus, davon je einer in Japan, Lanzarote und Guatemala, je zwei in Indonesien und Island. Der Ort der Eruption von 1601 AD ist unbekannt. Gemessen an der Amplitude der H^+ -Konzentration im Eis von Dye 3 war der Ausbruch von Laki 1783 AD auf Island die gewaltigste Eruption. Hammer et al. weisen darauf hin, dass die Höhe des H^+ -Peaks im Eis einerseits von der Stärke des Ausbruchs abhängt, andererseits aber auch von der Differenz der geografischen Breiten von Eruptions- und Bohrort. Deshalb findet man im grönländischen Eis nur Signale von aussergewöhnlich starken Vulkanausbrüchen der Südhemisphäre.

Grundsätzlich gibt es nirgendwo einen alles überragenden ^{10}Be - oder ^{36}Cl -Peak, der eindeutig mit einem Vulkanausbruch in Verbindung gebracht werden kann, weder in der ^{10}Be - noch in der ^{36}Cl -Konzentration oder in deren Verhältnis (Fig. 6.2.1).

Nach Tabelle 6.2.A scheint die Konzentration von ^{10}Be , ausser möglicherweise bei 1601 AD, nicht auf Vulkanausbrüche zu reagieren. Die ^{36}Cl -Konzentration weist zwar kurz nach einzelnen Ausbrüchen Maxima auf. Sie liegen aber innerhalb der üblichen Schwankungen, die man über die ganze Zeit sonst auch findet. Die Ausschläge sind scharf und von kurzer Dauer. Wenn eine kausale Verbindung bestünde, müsste auch das natürliche Chlor nach den Ausbrüchen erhöht sein. Dies ist aber nur ansatzweise in den Proben von 1662 und in der Zeit des Katlaausbruchs um 1738 AD der Fall.

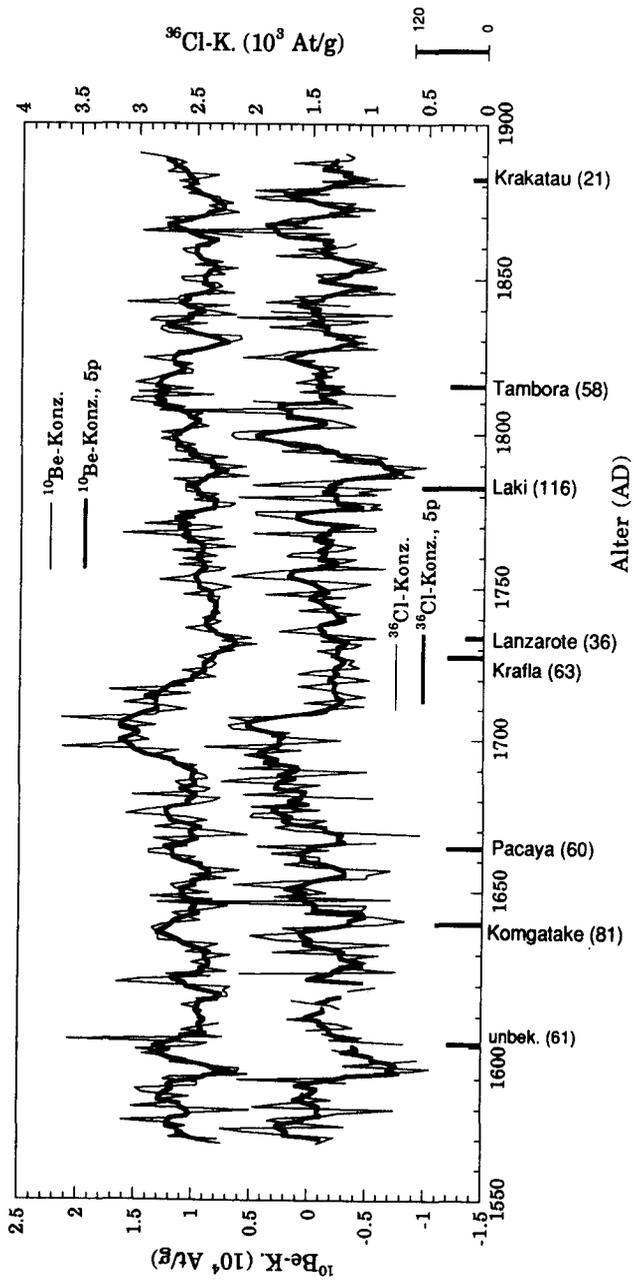


Fig. 6.2.1 Die ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen von Dye 3 und die Säurepeaks (in $\text{kg}(\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{HX})/\text{km}^2$) im Eis von Crête mit den damit identifizierten Vulkanausbrüchen (vgl. Text).

Eruption	^{10}Be -Peak	^{36}Cl -Peak	$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Peak
1601	+	-	+
Komagatake	0	(+)	(-)
Pacay u.a.	0	+	-
Lanzarote	- bis 0	- bis 0	- bis 0
Katla	- bis 0	- bis 0	- bis 0
Laki	0	+	-
Tambora	0	0	0
Krakatau	0	0	0

Tab. 6.2.A Für jede Eruption wird die Richtung eines allfälligen Peaks 0-5 Jahre nach dem Ausbruch vermerkt., '-' steht für ein Minimum, '+' für ein Maximum und '0', wo kein Ausschlag zu sehen ist. Klammern deuten an, dass der Peak schon an der Grenze der Zeitspanne ist, an der er noch etwas mit dem Ausbruch zu tun haben kann (ca. drei Jahre).

Aufgrund dieser unregelmässigen Koinzidenzen zwischen Isotopenpeaks und Vulkanausbrüchen und unter Berücksichtigung der obigen Abschätzungen zum ^{36}Cl -Gehalt des Magmas erscheint es als höchst unwahrscheinlich, dass die Vulkane einen direkten Einfluss auf die Isotopenkonzentrationen ausüben.

6.2.4 Erosion und Verfrachtung von ^{36}Cl im Oberflächen-gestein

Den Beitrag von erodiertem Gesteinsmaterial (Staub) im Eis wurde wie folgt abgeschätzt: Nach Fabryka-Martin (Tab. 1.1 in Bascom Purdy 1991) bewegen sich die ^{36}Cl -Konzentrationen in den obersten 30 Metern verschiedener Gesteine zwischen 16.4×10^5 und 119×10^5 At/g. Eigene Messungen an Jurakalk ergaben Werte in einer ähnlichen Grössenordnung, maximal 6.7×10^5 At/g.

Nach Paterson et al. (1987) bewegen sich die Staubkonzentrationen im Eis von Dye 3 im Holozän in der Grössenordnung von 0.1 mg/ kg Eis. In der Eiszeit steigen sie auf ca. 2 mg / kg Eis an. Mit 120×10^5 At ^{36}Cl / g Staub hat man also 2.4×10^4 ^{36}Cl / kg Eis. Die minimalen Werte, die wir messen, liegen knapp unter 1×10^6 ^{36}Cl / kg Eis. Der Beitrag vom Staub liegt also selbst in der Eiszeit höchstens im Prozent-Bereich.

6.2.5 ^{36}Cl -Eintrag durch Mikrometeoriten

Mikrometeorite sind eine nicht zu unterschätzende Isotopenquelle. Erstens fallen sie ziemlich gleichmässig auf die Erdoberfläche, also auch auf entlegene Gebiete. Man schätzt die gesamte Masse auf 1.6×10^7 kg/ Jahr. Zweitens werden in ihnen hohe ^{36}Cl -Konzentrationen gemessen. Man findet Sättigungsaktivitäten in der Grössenordnung von 17 dpm/kg (Eugster et al. 1991; dpm = decays per minute). Dies ergibt ungefähr - je nach Meteoritentyp - 3.9×10^{12} At ^{36}Cl / kg Meteorit.

Nimmt man diese Konzentration und multipliziert sie mit dem obigen Massenfluss pro Jahr auf die Erde, so erhält man über die ganze Erdoberfläche verteilt einen Fluss von etwa 4×10^{-7} Atome ^{36}Cl / cm^2 sec. Verglichen mit den 1.1×10^{-3} At/ cm^2 sec der Spallationsproduktion ist das vernachlässigbar.

Fazit

Aus den obigen Abschätzungen folgt, dass es zur Zeit keine Hinweise auf zusätzliche irdische ^{36}Cl -Quellen gibt, die die beobachteten Schwankungen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis und den erhöhten ^{36}Cl -Fluss erklären könnten.

Kap. 6.3: Die solare Modulation der Isotopenproduktion

6.3.1 Der Vergleich von ^{10}Be , ^{36}Cl und ihrem Verhältnis mit $\Delta^{14}\text{C}$ und den Aurorae

Der Vergleich von ^{10}Be und ^{36}Cl mit den Aurorae (z. B. Legrand et al. 1991) und dem $\Delta^{14}\text{C}$ in Baumringen (Stuiver und Quay 1980; Stuiver und Braziunas 1993) ist geeignet, solare Modulationen der Isotopenproduktion auf Zeitskalen von mehreren Jahrzehnten zu erkennen. Zur Detektion kürzerperiodischer Signale können die Zeitreihen von $\Delta^{14}\text{C}$ und den Aurorae aus den in Kapitel 6.1 dargelegten Gründen nicht verwendet werden.

Der Vergleich mit $\Delta^{14}\text{C}$

Für ^{10}Be und $\Delta^{14}\text{C}$ haben Beer et al. (1987) Parallelen im langperiodischen Bereich mit Hilfe einer ^{10}Be -Zeitreihe gezeigt, die aus Daten von Milcent in Grönland und South Pole in der Antarktis zusammengesetzt wurde. Die Figur 6.3.1 zeigt, dass der langfristige Verlauf von ^{36}Cl in Milcent diese Parallelen ebenfalls aufweist. Die Erhöhung der ^{36}Cl -Konzentration im Spörer-Minimum ist etwas deutlicher als im ^{10}Be ; hingegen ist auch im ^{36}Cl die Erhöhung im Wolf-Minimum nur klein. Aufgrund der oben genannten Verstärkung des ^{10}Be -Signals nach der Kombination mit dem Südhemisphären-Eiskern kann man annehmen, dass das schwache Signal in beiden Isotopen während des Wolf-Minimum ein lokaler Effekt sein muss. Für eine Kombination mit einer Zeitreihe vom Südpol zur Elimination lokaler Effekte im ^{36}Cl stehen leider noch keine Daten zur Verfügung.

Für den Vergleich mit dem Dye 3-Kern stand eine neuere, besser aufgelöste $\Delta^{14}\text{C}$ -Reihe zur Verfügung (Stuiver und Braziunas 1993, Fig. 6.3.2). In Figur 6.3.2 wurde aus der ^{10}Be -Zeitreihe mit Hilfe eines

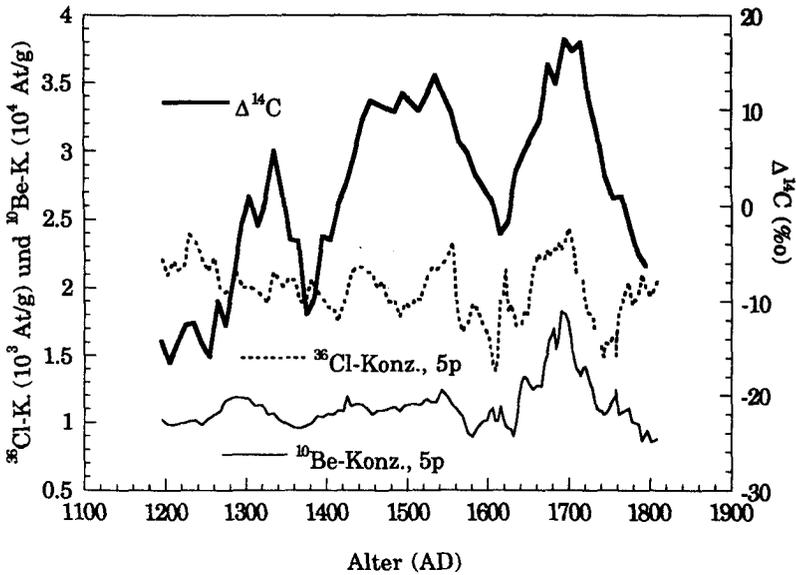


Fig. 6.3.1 Die $\Delta^{14}\text{C}$ -Kurve aus Baumringen nach Stuiver und Quay (1980) und die Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl (über 5 Punkte geglättet) von Milcent, Grönland.

gekoppelten Ozean-Atmosphären-Boxmodells die $\Delta^{14}\text{C}$ -Zeitreihe modelliert (Siegenthaler et al. 1980). Für ^{36}Cl stehen die gleichen Modellrechnungen noch nicht zur Verfügung. Dort können nur die gemessenen Zeitreihen direkt verglichen werden. Die Übereinstimmung ist bei ^{10}Be selbst in den meisten Feinstrukturen erkennbar. Zwischen 1500 und 1600 AD gibt ^{36}Cl den Trend des $\Delta^{14}\text{C}$ besser wieder, während im ^{10}Be die grossen Amplitudenvariationen auffallen. Am Ende des Maunder-Minimums fallen ^{10}Be und ^{36}Cl wegen der kürzeren Aufenthaltszeit in der Atmosphäre schneller ab als $\Delta^{14}\text{C}$. Die Differenzen zwischen Dye 3 und

Milcent in dieser Zeit weisen aber auf lokale Gegebenheiten hin. Eine weitere Diskrepanz zwischen $\Delta^{14}\text{C}$ und der im Eis gemessenen Isotopenkonzentrationen besteht um 1830 AD. Diese Diskrepanz besteht jedoch nach den Modellrechnungen mit dem ^{10}Be nicht mehr. Es dürfte sich dabei also um einen Effekt aufgrund verschiedener Transportvorgänge handeln. Das Dalton-Minimum um 1800 AD wird in allen Isotopen schön repräsentiert.

Nach den Korrelationen belegt auch der Vergleich der Isotope beider Kerne mit $\Delta^{14}\text{C}$, dass das Produktionssignal der hochenergetischen Spallationsproduktion in den Zeitreihen dominant ist. Deshalb erstaunt es nicht, dass der deutliche Langzeittrend des $\Delta^{14}\text{C}$ im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis eliminiert ist (Fig. 6.3.3). Allfällige gleichzeitige Signale den kurzen hohen Maxima im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis könnten im $\Delta^{14}\text{C}$ wegen der starken Dämpfung in diesem Zeitbereich nicht gefunden werden. Trotzdem entsteht vor allem beim Vergleich mit Milcent der Eindruck, dass das Verhältnis in Zeiten hohen $\Delta^{14}\text{C}$ ebenfalls leicht erhöht ist oder, wie im Fall des Maunder-Minimums, eine erhöhte Variabilität zeigt (Fig. 6.3.3a). Die Synchronisierung der Feinstrukturen des $\Delta^{14}\text{C}$ und des Verhältnisses ist wegen der kurzen Dauer dieser Ereignisse und wegen der verschiedenen Aufenthaltszeiten der Isotope in der Atmosphäre heikel. Man kann aber Folgendes festhalten: Die Maxima im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis können durch Vergleich mit dem $\Delta^{14}\text{C}$ -Verlauf nicht eindeutig mit Produktionseffekten in Verbindung gebracht werden. Eine leichte, trotz Verhältnisbildung von ^{10}Be und ^{36}Cl verbleibendes Signal ist aber sowohl auf der langperiodischen wie auch auf der kurzperiodischen Zeitskala nicht ganz auszuschliessen. Um dies zu verifizieren, braucht man vorerst weitere lange und feinaufgelöste Zeitreihen, um das überregionale Lang- und Kurzzeitverhalten des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses zuverlässig bestimmen zu können.

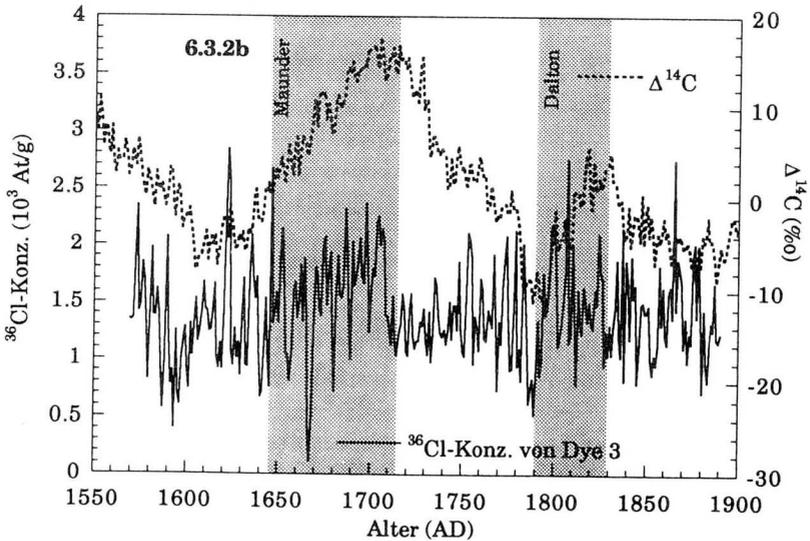
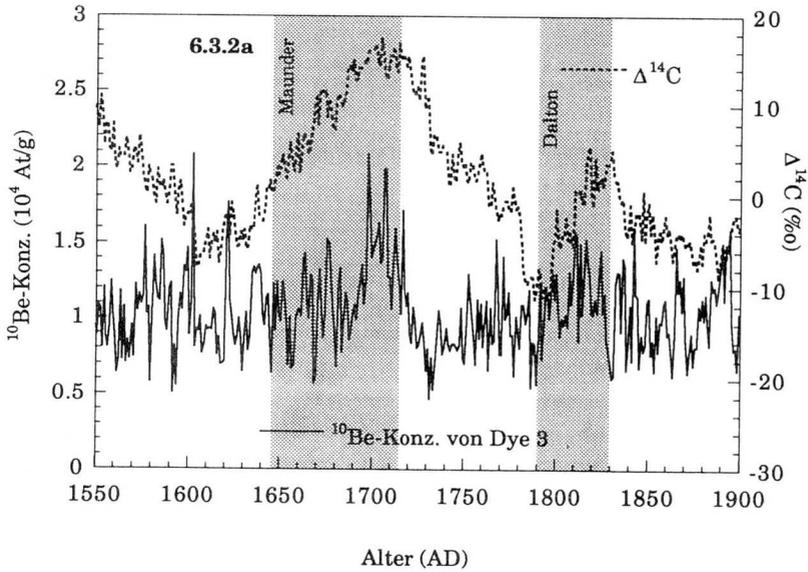


Fig. 6.3.2 $\Delta^{14}\text{C}$ aus Baumringen (Stuiver und Braziunas 1993) und die ^{10}Be - (6.3.2a) und ^{36}Cl -Konzentration (6.3.2b) von Dye 3, Grönland.

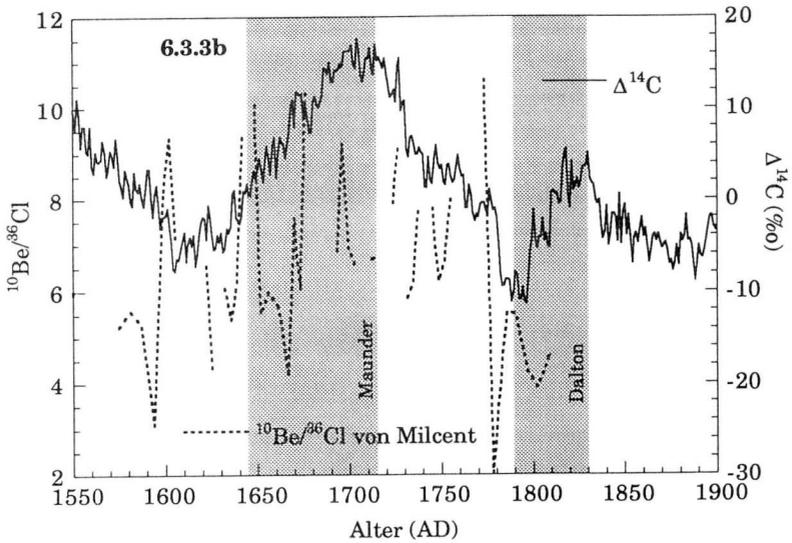
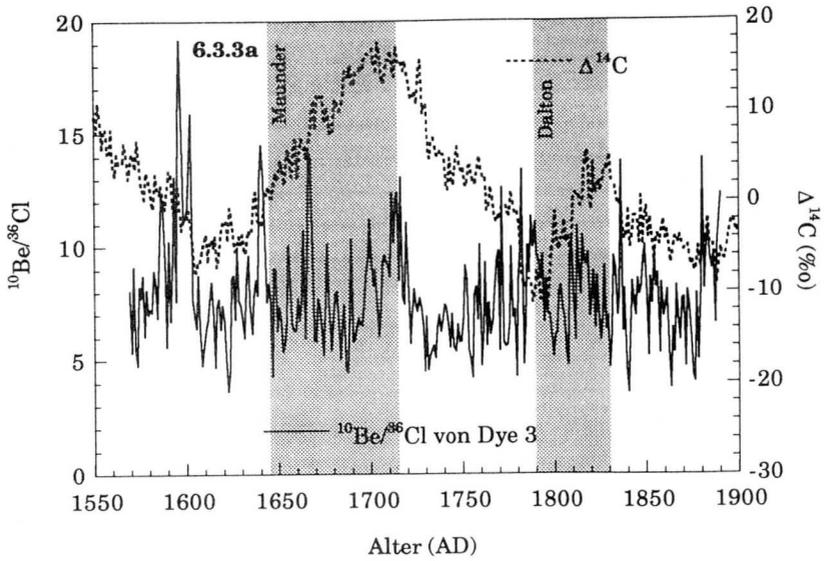


Fig. 6.3.3 $\Delta^{14}\text{C}$ aus Baumringen (Stuiver und Braziunas 1993) und die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisse von Dye (6.3.3a) und Milcent (6.3.3b), Grönland.

Der Vergleich mit den Aurorae

In der Figur 6.3.4 ergibt sich in allen Kernen eine gute Langzeitübereinstimmung des Konzentrationsverlaufs beider Isotope mit den Aurorae (inverse Skalen). Das Bild wird durch das Spörer- und das Maunder-Minimum bestimmt. ^{10}Be von Milcent und Dye 3 folgt dem Verlauf der Aurorae vor 1600 AD exakter, während ^{36}Cl den Anstieg ins Maunder-Minimum im 17. Jahrhundert besser reflektiert. Warum diese Unterschiede entstehen, ist nicht bekannt.

In Figur 6.3.5 sind die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisse der drei Kerne gegen die Aurorae aufgetragen. Wie schon im $\Delta^{14}\text{C}$ entsprechen sich auch hier die langfristigen Trends nicht. Auffällig ist hingegen, dass die Maxima der $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisse mit Minima in den Aurorae-Beobachtungen zusammenfallen oder sich in den Flanken starker Gradienten in der Aurora-Reihe befinden, in Zeiten also, in denen sich die Sonnenaktivität stark verändert haben dürfte. Das legt die Vermutung nahe, dass in diesen Perioden entweder solare oder klimatische Effekte auftreten, die unterschiedlich auf die ^{10}Be - und die ^{36}Cl -Produktion einwirken.

Erwähnenswert ist der Einbruch in den Aurorae um 1600 AD, wo die ^{10}Be -Konzentrationen und die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisse aller Kerne gleichzeitig Maxima aufweisen. Diese Koinzidenz ist ähnlich wie während der solaren Minima. Um 1600 AD scheint sich ein bisher nicht bekanntes schwaches Minimum der Sonne zu befinden (siehe auch Fig. 6.3.13 und Kap. 6.5).

Fazit

Die Indizien aus dem Vergleich von ^{10}Be , ^{36}Cl und den Aurorae- und $\Delta^{14}\text{C}$ -Daten stimmen überein. In allen Zeitreihen sind Modulationen während der solaren Minima sichtbar. Daraus kann man schliessen, dass das Produktionssignal sowohl in ^{10}Be und ^{36}Cl dominant ist. Allerdings scheinen auf verschiedenen Zeitskalen Phasen- und Amplituden-Unterschiede zu bestehen, die dazu führen, dass das Produktionssignal auch in ihrem Verhältnis nicht vollständig eliminiert ist.

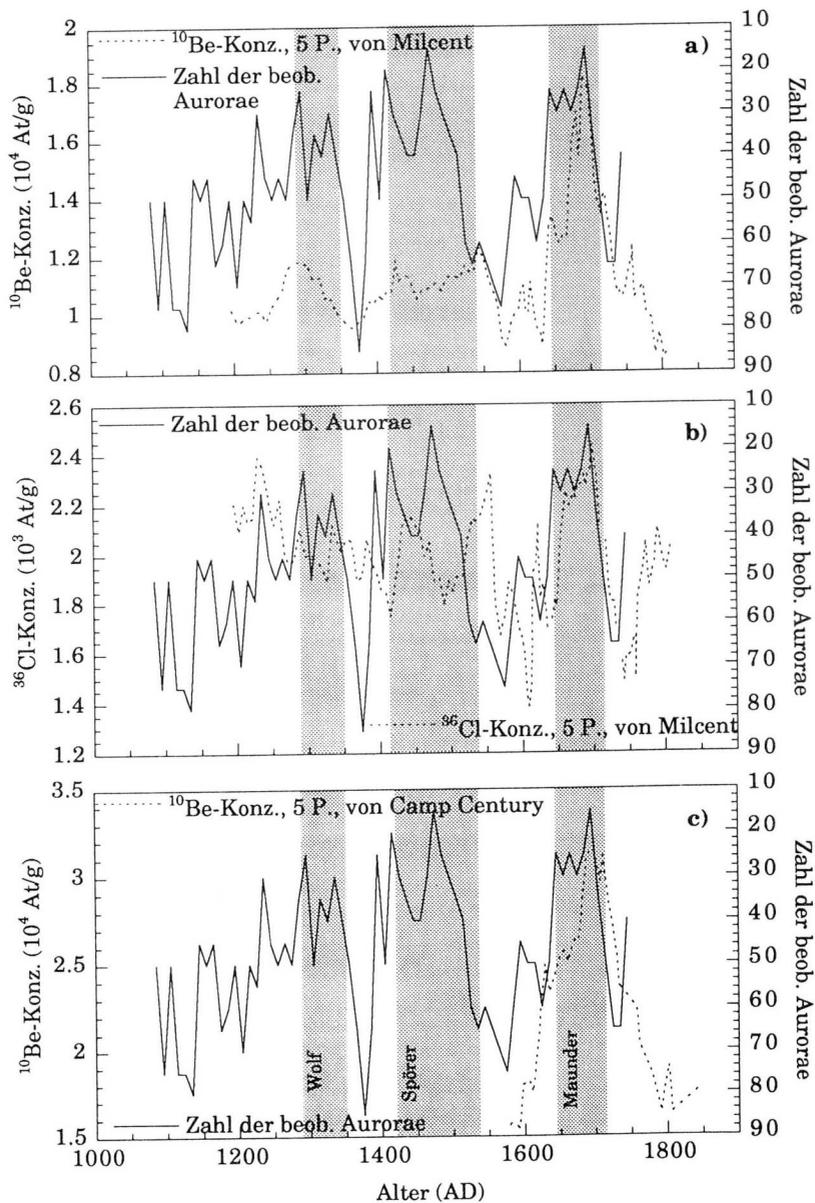


Fig. 6.3.4 a - c (d - f siehe folgende Seite)

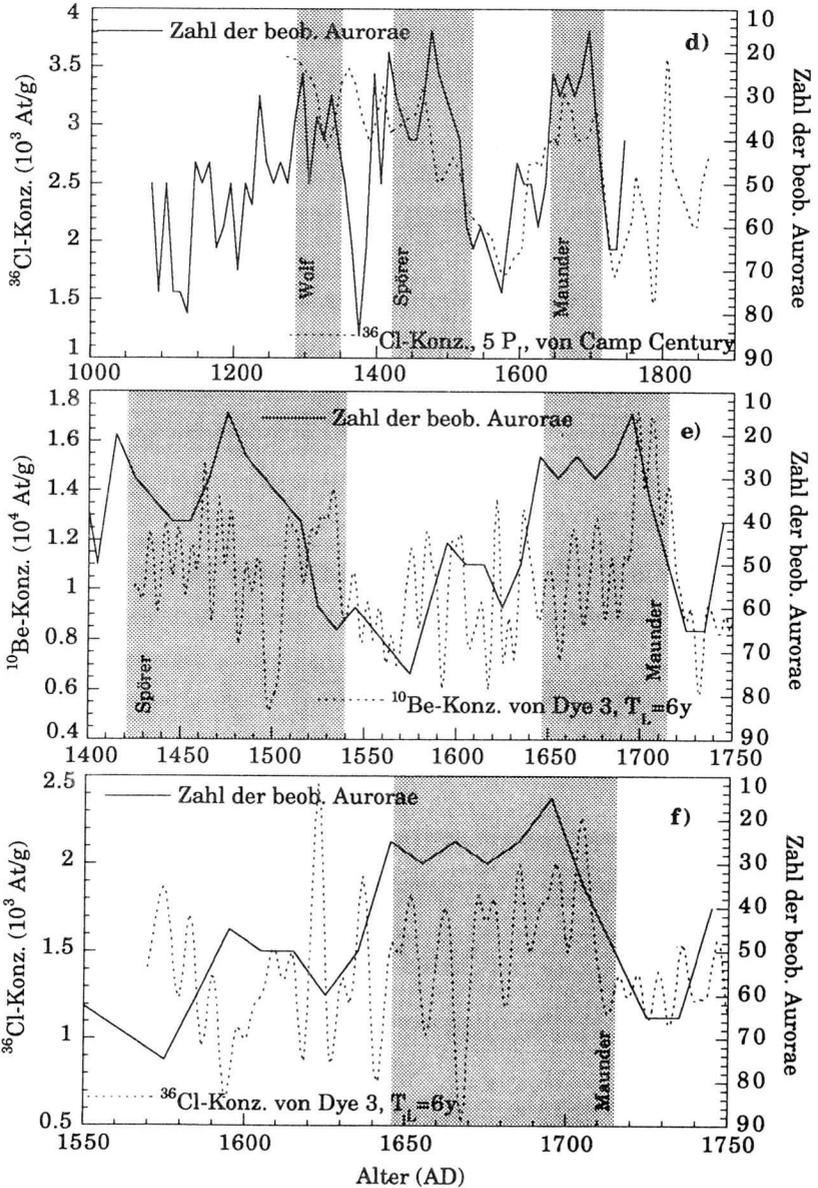


Fig. 6.3.4 d - f (a - c siehe vorhergehende Seite)
 Vergleich der Isotopenkonzentrationen aller drei Kerne mit der Zahl der beobachteten Aurorae (Polarlichter). Es ist eine deutliche Antikorrelation sichtbar.

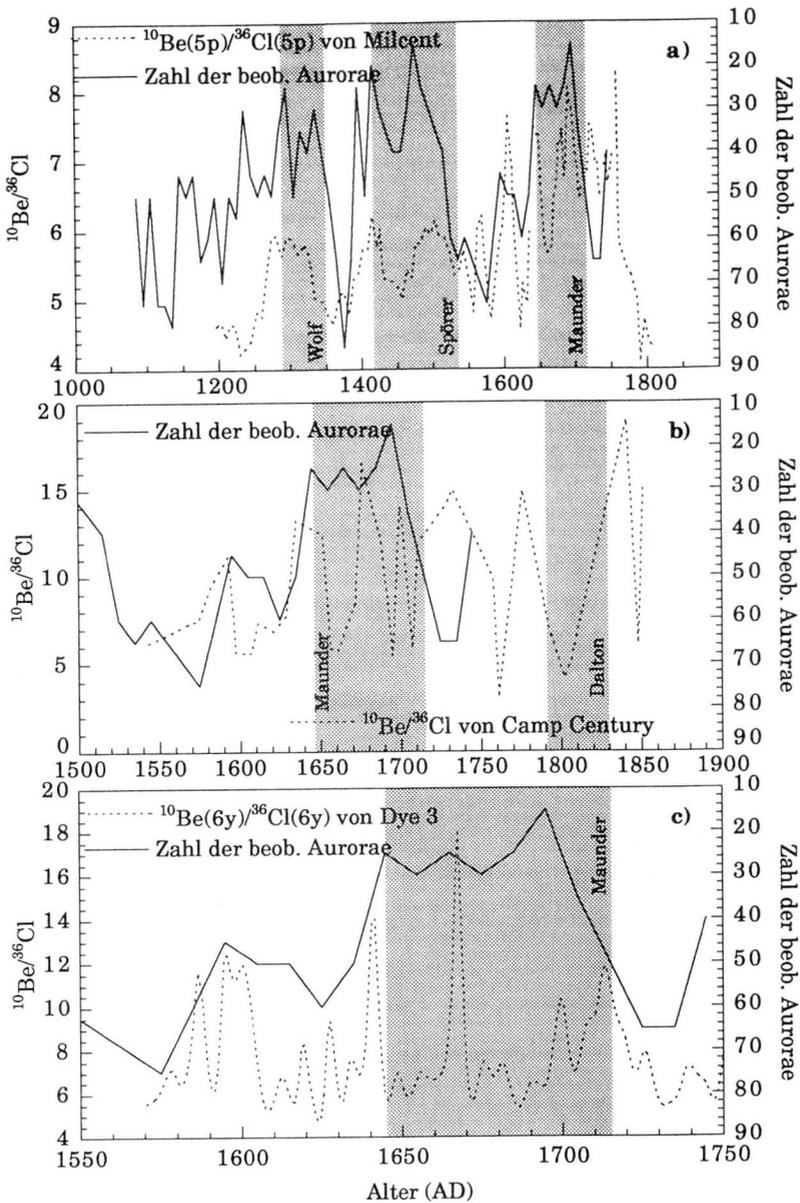


Fig. 6.3.5 Vergleich der Zahl der beobachteten Aurorae mit den $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnissen aller drei Eiskerne. Während den Minima (und auch bei 1600 AD) sind Verhältnismaxima sichtbar.

6.3.2 Die Fragen von Newkirk (1984) zu den Sonnenphänomenen

Zur Erklärung der Sonnenbeobachtungen wurden verschiedene physikalische Modelle entwickelt, die aber mangels langer systematischer Beobachtungsreihen nicht vollständig überprüft werden konnten. 1984 stellte Newkirk folgenden astrophysikalischen Fragenkatalog als Aufgabe für die Beschleunigermassenspektrometrie auf (Newkirk 1984): 1) Bleibt der 11-Jahreszyklus während des Maunder-, Spörer- und während der anderen Sonnenminima sichtbar? 2) Behält der 11-Jahreszyklus in solchen Minima die Phase bei? 3) Enthält die Sonnenaktivität einen 80-90 Jahre-Zyklus, wie es beschränkte optische Beobachtungen und die Aurorae vermuten lassen? 4) Ist der heute beobachtete Charakter des 11-Jahreszyklus auch typisch für vergangene Zeiten mit hoher Sonnenaktivität? 5) Werden klimatische Schwankungen auf irgendeine Art durch solare Schwankungen induziert oder beeinflusst? 6) Wie sieht das Frequenzspektrum der Sonnenaktivität aus?

Diese Fragen dienen als Leitfaden für die nachfolgenden Analysen. In der Zusammenfassung am Schluss des Kapitels 6.3 werden die Resultate der einzelnen Abschnitte zusammengenommen und dargelegt, in welchem Rahmen sie mit dem heutigen Kenntnisstand beantwortet werden können.

6.3.3 Das Signal des Schwabezyklus im ^{10}Be und ^{36}Cl von Dye 3

Vorbemerkung

Die Schwabesignale in der Sonnenfleckenreihe und in den Isotopen sind, wie nachstehend gezeigt wird, gekoppelt. Die Begriffe "Schwabezyklus" oder "Schwabesignal" werden deshalb in allen Zeitreihen für eine deutlich sichtbare Oszillation im Bereich einer Periode von 11 Jahren verwendet. Da sich die Sonnenaktivitätsänderungen nicht in allen Proxis völlig identisch präsentieren (siehe Kapitel 6.1.5), wird die Zeitreihe, von deren Schwabesignal die Rede ist, immer angegeben.

6.3.3.1 Der Schwabezyklus in den Spektren der Isotope

In den Figuren 5.2.11 und 5.2.12 ist in den gefilterten ^{10}Be - und ^{36}Cl -Daten von Dye 3 und auch in deren Spektren (Fig. 5.2.14 bis 5.2.16) sehr deutlich eine Variation mit einer Periode von etwa elf Jahren sichtbar. Diese bringen wir mit dem Schwabezyklus in Verbindung. Die Spektren in den Figuren 5.2.14a und b (gleichlange Zeitreihen von ^{10}Be und ^{36}Cl) zeigen neben den starken Maxima bei Perioden von 10.8 (^{10}Be) respektive 10.1 Jahren (^{36}Cl) auch Spitzen in der Nähe der zweiten, dritten, vierten und fünften Harmonischen von 10.9 Jahren bei etwa 5.4, 3.7, 2.6 und 2.2 Jahren. Das Maximum der ganzen ^{10}Be -Reihe finden Beer et al. (eingereicht) im Fourier-Spektrum bei 10.85 Jahren. In der ganzen ^{10}Be -Reihe betragen die Abweichungen von den theoretischen Werten der Harmonischen weniger als 1.5%. Das Spektrum ist bezüglich der 10.85-Jahresperiode und ihrer Harmonischen sehr kohärent. Nach Mittelung der Spektren der in zwölf Teilintervalle aufgeteilten Reihe finden Beer et al. (eingereicht) dieselben Werte. Nach Mende (in Vorbereitung) stimmen die Maxima der Periode von 10.8 Jahren und ihrer Harmonischen in den Spektren der Sonnenflecken und des ^{10}Be überein.

In der kürzeren ^{36}Cl -Reihe treten die Harmonischen von 10.8 Jahren interessanterweise auch auf, obwohl der Peak nicht bei 10.8, sondern bei 10.1-Jahren liegt. Dies deutet darauf hin, dass die 10.8-Jahresperiode von einer anderen Oszillation gestört wird und deshalb im Spektrum nicht auftaucht. Es ist auch möglich, dass der Peak im ^{36}Cl aufgrund der verschiedenen Zeitreihenlängen leicht verschoben ist. Vergleicht man das ^{10}Be -Spektrum der ganzen Länge der ^{10}Be -Zeitreihe (von 1423 AD bis 1985 AD) mit dem ^{10}Be -Spektrum der Länge der ^{36}Cl -Reihe, so stellt man leichte Unterschiede in den Frequenzen der Harmonischen fest. Somit können leichte Verschiebungen im ^{36}Cl -Spektrum erwartet werden, wenn später die gesamte ^{36}Cl -Reihe zur Analyse zur Verfügung steht. Möglicherweise fällt der Vergleich der ^{10}Be - und ^{36}Cl -Spektren der vollen Länge homogener aus. Gewisse Abweichungen zwischen den Spektren von ^{10}Be und ^{36}Cl werden aber sicher bestehen bleiben.

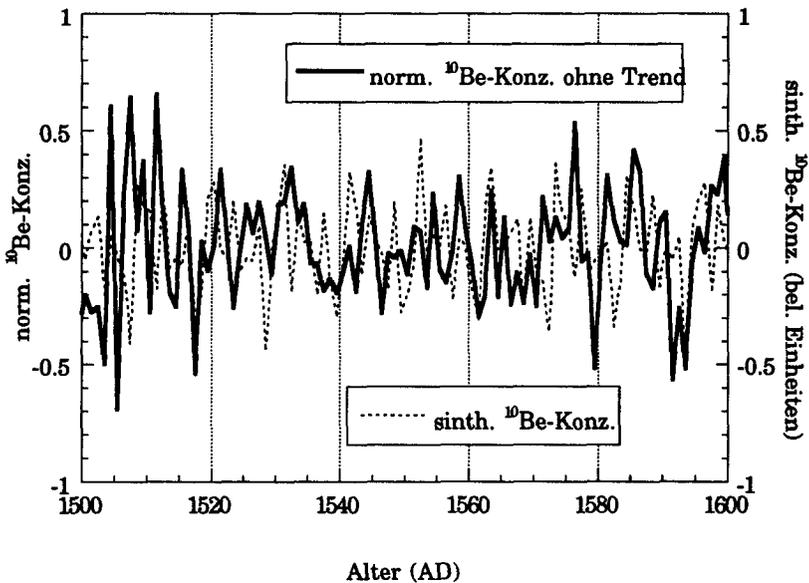


Fig. 6.3.6 Vergleich eines Ausschnitts der ^{10}Be -Konzentration von Dye 3 (von der der Langzeittrend als über 199 Punkte binomial geglättete Kurve abgezogen wurde) mit einer synthetischen ^{10}Be -Kurve. Sie wurde aus fünf Sinusschwingungen mit Perioden von 10.8, 5.4, 3.6, 2.6 und 2.15 Jahren ohne Anfangsphasenverschiebungen konstruiert. Sowohl die Periodenlängen als auch die Amplituden der Sinusschwingungen wurden dem ^{10}Be -Spektrum von Dye 3 entnommen. Die synthetische Kurve wurde so verschoben, dass die Kreuzkorrelation zwischen den Kurven maximal ist. Trotz der einfachen Konstruktion erreicht man bereits eine erstaunliche Ähnlichkeit, was zeigt, dass die 10.8-Jahresschwingung und ihre Harmonischen den Verlauf der ^{10}Be -Konzentration stark bestimmen.

Die Dominanz der 10.8-Jahresschwingung und ihrer Harmonischen kann mit folgender künstlicher ^{10}Be -Zeitreihenkonstruktion veranschaulicht werden. Durch Summierung von Sinusschwingungen mit Perioden von 10.8, 5.4, 3.6, 2.6 und 2.15 Jahren ohne Anfangsphasenverschiebung wurde eine "synthetische" Isotopenzeitreihe erstellt. Die relativen Amplituden der einzelnen Schwingungen wurden dem ^{10}Be -Spektrum entnommen. Mit diesem einfachen Ansatz erreicht man nach visueller Optimierung der gegenseitigen Phasenverschiebung bereits eine erstaunliche Aehnlichkeit mit dem ^{10}Be -Verlauf (Fig. 6.3.6). Das heisst, dass das 10.8-Jahressignal und seine Oberschwingungen einen namhaften Beitrag zur Gestalt des ^{10}Be -Verlaufs liefern. Dies bestätigt den visuellen Eindruck im ^{10}Be -Spektrum, wonach diese Schwingungen hervorragen.

6.3.3.2 Die Bestimmung der Schwabe-Minima in den ^{10}Be - und ^{36}Cl -Reihen

Vor Beginn der systematischen Beobachtungen 1826 AD wurde die Sonnenfleckenkurve aus vielen Einzelbeobachtungen zusammengesetzt (Schove 1983). Vor 1720 AD wird die Rekonstruktion immer unzuverlässiger, da die Beobachtungen immer unregelmässiger werden. Deshalb wurde eine Aufteilung in die Intervalle vor und nach 1750 AD vorgenommen. In den Figuren 6.3.7 bis 6.3.9 sind die ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen und die Sonnenfleckenzahlen gegen die Zeit aufgetragen. Da eine grosse Sonnenfleckenzahl mit hoher Sonnenaktivität verknüpft ist, welche zu einer reduzierten Isotopenproduktion führt, sind die Isotopenkonzentrationen in den Figuren 6.3.7-6.3.9 invers dargestellt.

In der Figur 6.3.7 sollten sich die Maxima der gezeichneten Kurven entsprechen. Dies ist abgesehen von leichten Verschiebungen zwischen den Spitzen der Fall, wobei die Verschiebung durch die atmosphärische Aufenthaltszeit der Isotope und die Datierungsunsicherheiten der Eiskerne in dieser Figur ebensowenig berücksichtigt sind wie mögliche Zeitverschiebungen zwischen der visuellen Erscheinung der Sonnenflecken und der Modulation der kosmischen Strahlung durch die Sonne (max. ein Jahr). Drei Sonnenfleckemaxima fallen nach 1750 AD

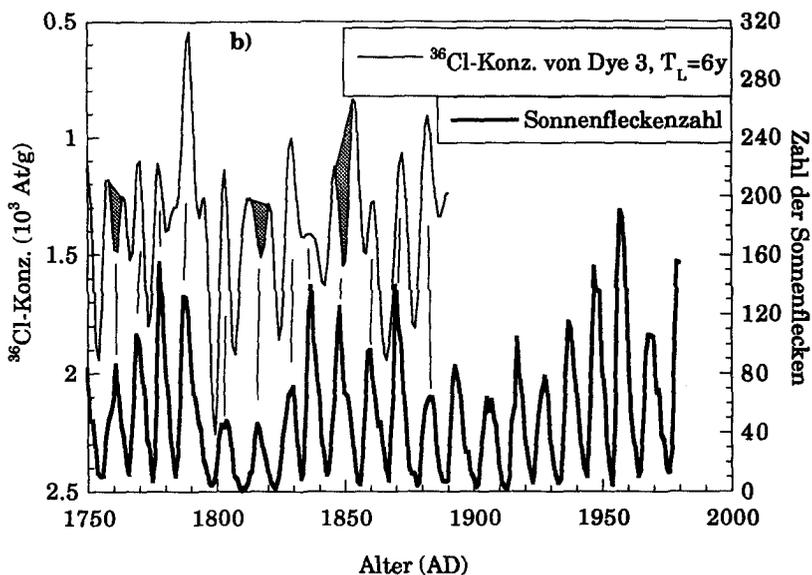
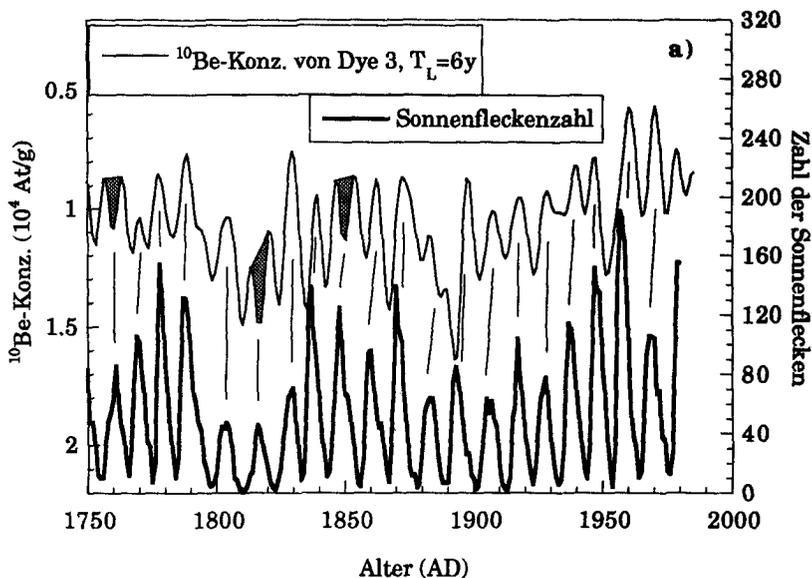


Fig. 6.3.7 Tiefpassgefilterte ^{10}Be - (a) und ^{36}Cl -Konzentrationen (b) (Grenzperiode 6 Jahre) von Dye 3, deren linearer Trend entfernt wurde, nach 1750 AD (inverse Skala) und die Sonnenfleckenzahlen nach Schove.

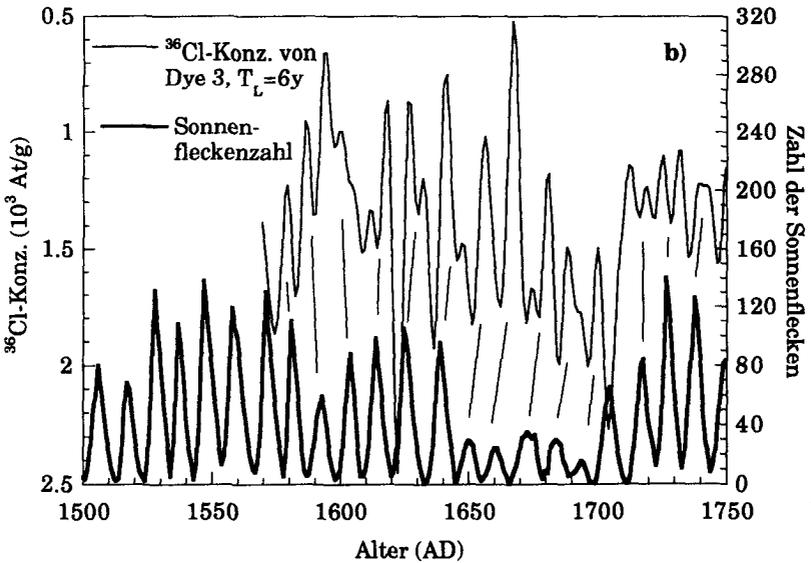
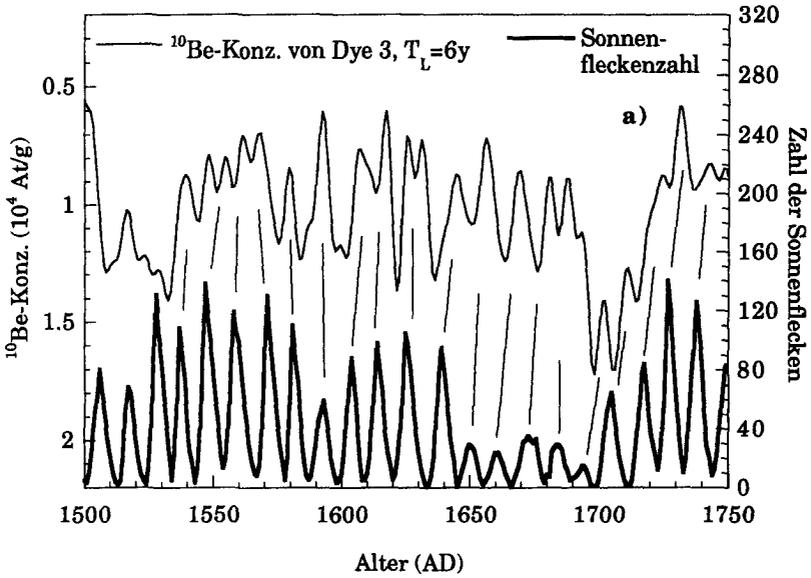


Fig. 6.3.8 Tiefpassgefilterte ^{10}Be - (a) und ^{36}Cl -Konzentrationen (b) (Grenzperiode 6 Jahre) von Dye 3, deren linearer Trend entfernt wurde, vor 1750 AD (inverse Skala), und die Sonnenfleckenzahlen nach Schove.

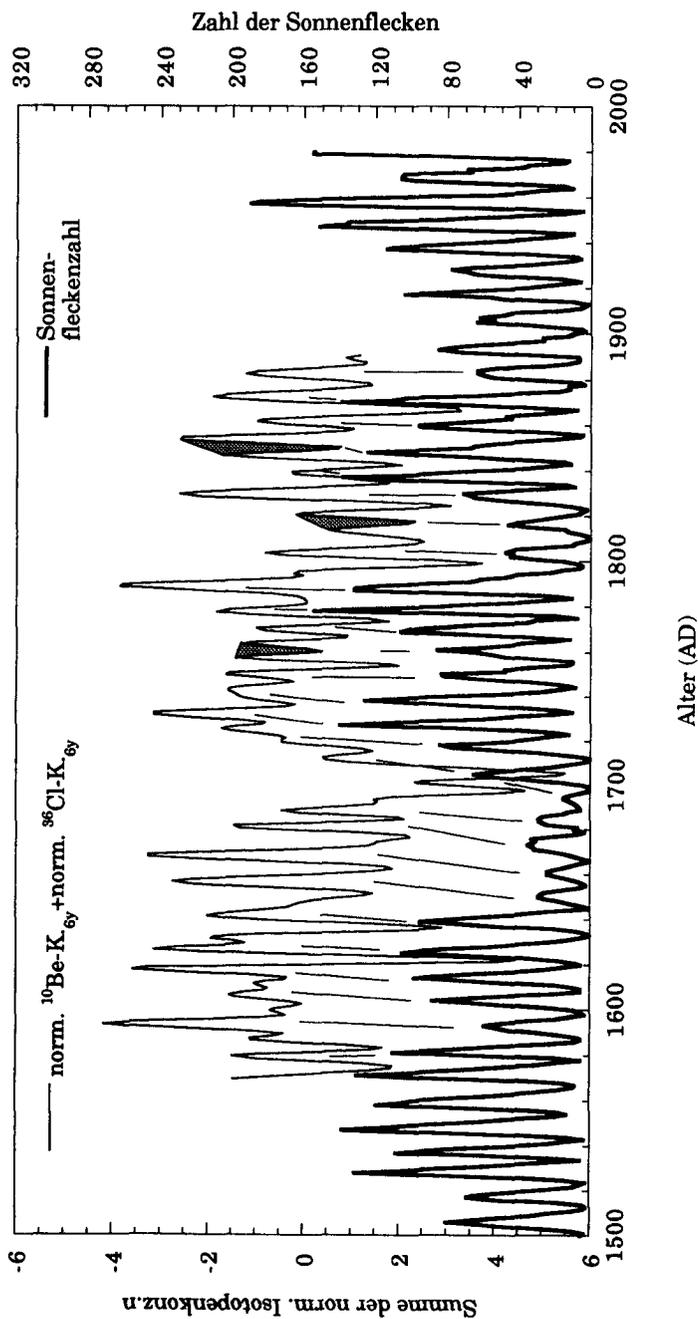


Fig. 6.3.9 Summe der auf den Mittelwert 0 und die Standardabweichung 1 normierten Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl von Dye 3 und die Sonnenfleckenreihe. In den Isotopen erscheint der Schwabeyklus deutlicher.

mit Isotopenminima zusammen (1760, 1820, 1850 AD). Diese Stellen stimmen bei ^{10}Be und ^{36}Cl überein. Die Isotope zeigen an diesen Stellen ein zusätzliches Maximum, welches in der Sonnenfleckenkurve nicht vorhanden ist. Diese Daten entsprechen nicht denen der hohen $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima (Fig. 5.3.6).

Figur 6.3.8 macht deutlich, dass sich die Zuordnung der Maxima vor 1750 AD schwieriger gestaltet. Die Amplitude des Schwabesignals ist teilweise von der gleichen Grösse wie die der Oberschwungung. Da die auf der Sonne direkt beobachteten Zyklenlängen zwischen 6 und 16 Jahren schwanken, kann bei gleich grossen Amplituden nicht zwischen zwei kurzen und einem langen Zyklus unterschieden werden. Das Schwabesignal kann durch Kombination der normierten ^{10}Be - und ^{36}Cl -Reihen etwas deutlicher hervorgehoben werden (Fig. 6.3.9). Dadurch können die Konzentrationsminima gemeinsamer Herkunft sicherer identifiziert werden (Tab. 6.3.A). Einzelne Oberschwungungen - oder entsprechend die zusätzlichen Maxima in den Isotopen - werden allerdings nicht eliminiert. Speziell zu bemerken ist, dass das Schwabesignal während des Maunder-Minimums in beiden Isotopen ohne Abschwächung erhalten bleibt, obwohl es in den Sonnenflecken fast vollständig verschwindet.

Man kann diese zusätzlichen Maxima in den Isotopen als Sonnenaktivitätsschwankungen interpretieren, die sich in den Sonnenflecken nicht manifestieren oder als Signal, das aus dem Transport und der Auswaschung in der Atmosphäre stammt. Die erste Interpretation bedingt, dass es einen Prozess auf der Sonne gibt, der Schwankungen im Sonnenwind verursacht, die Sonnenfleckenanzahl aber nicht verändert. Ein solcher Prozess erscheint als unwahrscheinlich, selbst wenn während des Maunder-Minimums eine gewisse Entkopplung von Sonnenaktivität und Sonnenfleckenzyklus stattgefunden hat, wie man aus den Modulationen der Isotope schliessen kann. Wenn es sich wie in der zweiten Interpretation angenommen um atmosphärische Signale handelt, so müssten für eine lückenlose Bestimmung der Sonnenfleckenmaxima zuerst mit Hilfe zusätzlicher Informationen die Produktions- von den Transportsignalen getrennt werden. Das

6.Kapitel: Diskussion

Daten (AD) der Minima der Isotopenreihen aus den Fig.n 6.2.2 - 4	Länge von Minimum zu Minimum in Jahren	Verwendete Zeitreihe und Unsicherheiten	Sonnenflecken-maxima nach Schove (1983)
1978.5	7.9	nur ^{10}Be	1979.9
1970.6	9.9	nur ^{10}Be	1968.9
1960.7	13.2	nur ^{10}Be	1957.9
1947.5	7.5	nur ^{10}Be	1947.5
1940.0	11.5	nur ^{10}Be	1937.4
1928.5	10.4	nur ^{10}Be	1928.4
1918.1	10.3	nur ^{10}Be	1917.6
1907.8	10.1	nur ^{10}Be	1907.0
1897.7	8.7	nur ^{10}Be	1894.1
1889.0	5.7	nur ^{10}Be	
1883.3	10.8	ab hier ($^{10}\text{Be}+^{36}\text{Cl}$)	1883.9
1872.5	10.7		1870.6
1861.8	7.8		1860.1
1854.0	7.5		1848.1
1846.5	7.5		
1839.0	9.6		1837.2
1829.4	8.9		1829.9
1820.5	7.0		1816.4
1813.5	10.1		
1803.4	14.6		1805.2
1788.8	11.4		1788.1
1777.4	7.0		1778.4
1770.4	7.0		1769.7
1763.4	6.0		1761.5
1757.4	7.5		
1749.9	7.6		1750.3
1742.3	10.3	unsicher	1738.7
1732.0	6.8		1727.5
1725.2	5.7		1719.0
1719.5	7.3	unklar	1705.5
1712.2	10.9		1694.5
1701.3	7.8		1684.0
1693.5	4.9	unklar	1673.5
1688.6	7.3		1661.5
1681.3	13.2		1650.8
1668.1	11.7		1639.3
1656.4	14.8	1648 ??	1625.8
1641.6	9.6		1614.3

6.Kapitel: Diskussion

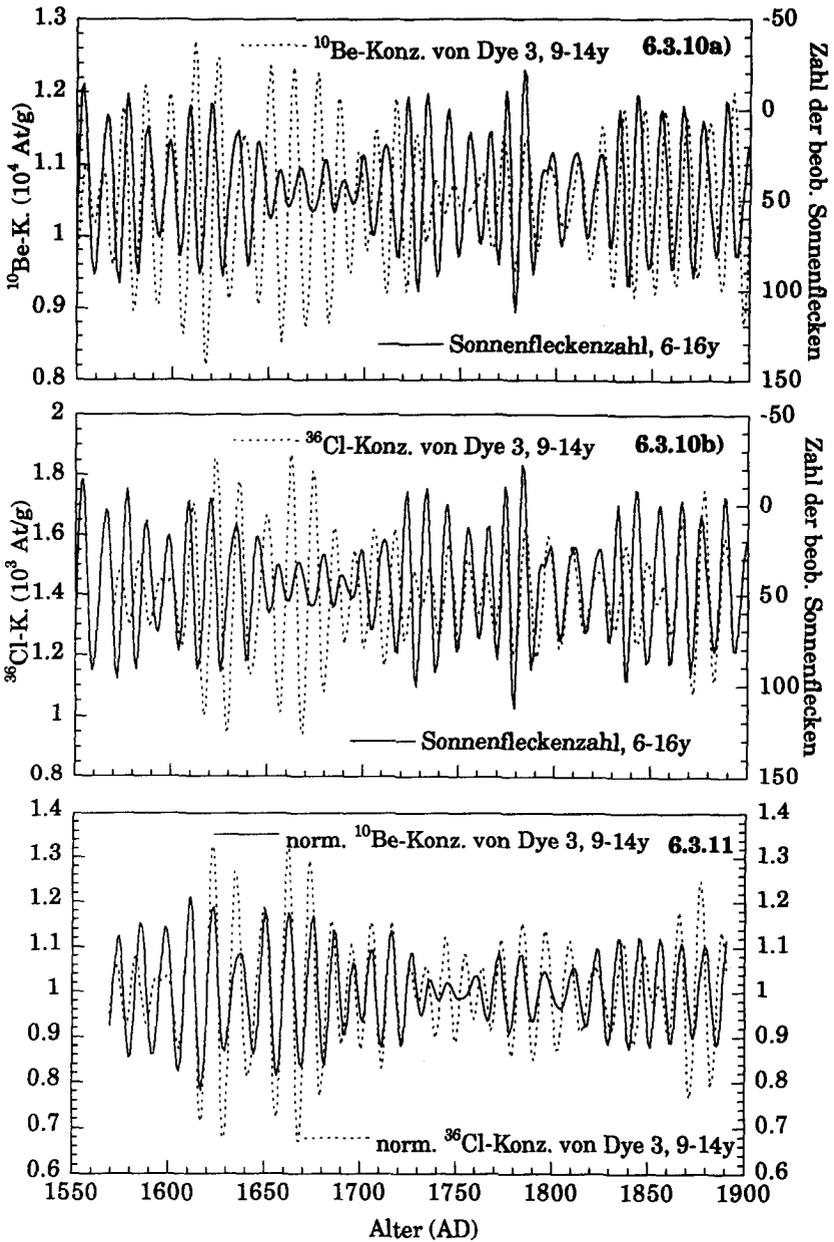
Daten (AD) der Minima der Isotopenreihen aus den Fig.n 6.2.2 - 4	Länge von Minimum zu Minimum in Jahren	Verwendete Zeitreihe und Unsicherheiten	Sonnenfleck-maxima nach Schove (1983)
1632.0	5.2	höchst.w. 1	1604.4
1626.8	9.4	höchst.w. 1	1593.8
1617.4	6.0		1581.5
1611.4	4.9	s. kl. Ampl.	1571.0
1606.5	6.5	s. kl. Ampl.	1558.0
1600.0	6.8	s. kl. Ampl.	1547.0
1593.2	6.2		1537.0
1587.0	7.5	klein	1528.0
1579.5	11.2	b. hier (^{10}Be , ^{36}Cl)	1517.0
1568.3	6.7	ab hier nur ^{10}Be	1506.0
1561.6	6.8		
1554.8	6.2		
1548.6	9.4		
1539.2	10.4		
1528.8	5.7	s.schwach	
1523.1	6.7	s.schwach	
1516.4	18.3		
1498.1	9.3		
1488.8	7.2		
1481.6	7.5		
1474.1	7.3		
1466.8	8.4		
1458.4	5.9		
1452.5	7.0		
1445.5	8.1		
1437.4	8.3		
1429.1			

Tab. 6.3.A Numerische Angaben der Daten sämtlicher Minima in den Isotopenkonzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl von Dye 3. Wo vorhanden, wurde die kombinierte Reihe beider Isotopenkonzentrationen aus Figur 6.3.9 verwendet. Die angegebenen Daten der Isotopenminima entsprechen nicht notwendigerweise den Daten der Sonnenfleckmaxima nach Schove (1983). Diese sind zum Vergleich in der rechten Kolonne angegeben. Die Zeitskalen wurden wegen der zunehmenden Unsicherheit in beiden Zeitreihen nur bis 1750 AD zurück adaptiert (siehe Text).

geochemische Verhalten von ^{10}Be und ^{36}Cl während des Transports kann, wie in Kapitel 6.1 diskutiert wurde, verschieden sein. Deshalb müssten sich Transporteffekte nach der Kombination abschwächen. Das heisst, dass das klarere Sonnensignal in der kombinierten Kurve in Figur 6.3.9 nicht nur eine Folge der Verstärkung der Sonnensignale ist, sondern auch durch die Abschwächung unterschiedlicher atmosphärischer Signale zustande kommt. Ob die "Oberschwingungen" aus Vorgängen kommen, die für beide Isotope gleich sind - sei es bei der Produktion oder dem Transport -, oder aber von anderen als den diskutierten Prozessen stammen, muss offen gelassen werden. Eine weitere Hilfe für ein tieferes Verständnis wäre die Kombination von Zeitreihen eines Isotops von verschiedenen Orten. Diese Methode wurde von Beer et al. (1987) für ^{10}Be schon erfolgreich angewendet. Ein sehr geeigneter Kern für die Kombination mit dem Dye 3-Kern zur Verfolgung des Sonnensignals dürfte der ebenfalls gut aufgelöste Summit-Kern sein, der zur Zeit analysiert wird.

Um das Schwabesignal in den Isotopen möglichst ungestört mit den Sonnenflecken vergleichen zu können, wurden die Daten zwischen Perioden von 9 und 14 Jahren bandgefiltert (resp. die Sonnenflecken zwischen 6 und 16 Jahren). Nach 1600 weisen sowohl ^{36}Cl als auch ^{10}Be zunehmende Phasenverschiebungen zu den Sonnenflecken auf (Fig. 6.3.10). Diese Phasenverschiebungen werden aber bis 1750 AD aufgeholt. ^{10}Be weist dort eine Schwingung weniger auf als die beiden anderen Zeitreihen. Nach 1770 AD ist die Phasenkohärenz zwischen ^{10}Be und den Sonnenflecken gut. ^{36}Cl und die Sonnenflecken stimmen in der Phase nach 1750 gut überein, ausser nach 1820, wo eine Phasenverschiebung stattfindet, die aber bis 1850 AD aufgeholt wird.

Die Phasenkohärenz zwischen ^{10}Be und ^{36}Cl zwischen 1600 und 1750 und nach 1830 AD ist gut (Fig. 6.3.11). Die Anzahl der Maxima stimmt in diesen Intervallen überein. Um 1570, 1760 und um 1820 AD ereignen sich grössere Phasenverschiebungen. Um 1760 AD weist ^{36}Cl ein Maximum mehr auf als ^{10}Be . Um 1760 sind die Periodenlängen allgemein instabil.



Vergleich der zwischen 9 und 14 Jahren bandgefilterten ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen von Dye 3 (auf den Mittelwert normiert) untereinander (6.3.11) und mit den zwischen 6 und 16 Jahren bandgefilterten Sonnenfleckenzenzahlen (Fig. 6.3.10a/b). 155

Die Amplitude der dominanten Schwingung ist klein verglichen mit der übrigen Zeit. Dies gilt auch für 1570 AD. Im ^{36}Cl tritt die Unregelmässigkeit in Form einer Art Doppelschwingung um 1600 AD auf.

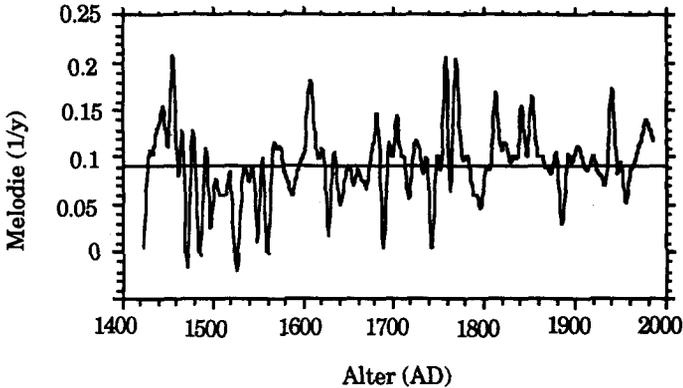


Fig. 6.3.12 ^{10}Be -Melodie, die aus der bandgefilterten (zwischen 6 und 20 Jahren) ^{10}Be -Konzentration von Dye 3 erhalten wurde. Die mittlere Frequenz entspricht 10.78 Jahren, was mit dem 10.83 Jahre-Peak im Fourier-Spektrum sehr gut übereinstimmt (aus Beer et al., eingereicht).

Fazit

Man kann allgemein sagen, dass wiederholt - eventuell sogar regelmässig - Phasenstörungen in den solaren Zyklen (sichtbar in den Isotopen also auch in den Sonnenflecken) stattfanden. Diese Unregelmässigkeiten treten um 1760 und 1820 (bei ^{36}Cl auch 1850 AD) auf, wo wir beim Vergleich mit den tiefpassgefilterten Isotopendaten auf die zusätzlichen Oberschwingungen stiessen (Fig. 6.3.7, 6.3.8). Das zusätzliche ^{36}Cl -Maximum um 1750 AD der bandgefilterten Daten ist in den tiefpassgefilterten Daten nicht zu erkennen. Offensichtlich muss um 1750 AD eine grössere Störung im Phasenverlauf der solaren Zyklen stattgefunden haben. Die genannten

Zeiten fallen auch in den zeitlichen Spektrumsverläufen in den Figuren 5.2.17 - 19 als "Brüche" auf.

Die Daten der Minima in den Isotopen sind in Tabelle 6.3.A zusammengefasst. Zwischen 1570 und 1890 AD wurden die Minima aus der kombinierten Isotopenkurve von Dye 3 herausgelesen, davor und danach aus der ^{10}Be -Kurve von Dye 3. Man erkennt, dass die Daten der Isotopenminima nach 1750 AD im allgemeinen mit denen der Maxima der Sonnenflecken bis auf wenige Jahre übereinstimmen, dass aber eine durchgehende Bestimmung der Sonnenfleckenmaxima aufgrund einzelner Oberschwingungen in den Isotopen noch nicht sicher möglich ist.

6.3.3.3 Phasen- und Amplitudenmodulationen des Schwabezyklus als Proxis

Für das Verständnis der Sonne ist es von grossem Interesse, wann Frequenz- und Amplitudenmodulationen des Sonnensignals auftreten (Balunias, pers. Komm.). Wie eingangs erwähnt, wird die Zahl (Amplitude) der Sonnenflecken als Proxi für die Sonnenaktivität verwendet werden. Neue Arbeiten schlagen vor, auch die Länge der einzelnen Zyklen als Aktivitätsproxi zu verwenden (Friis-Christensen und Lassen 1991; Hoyt 1993). Die Autoren argumentieren, dass ein langer Sonnenfleckenzyklus gleichbedeutend ist mit langsamer Konvektion auf der Sonne, was bei konstantem Strahlungsfluss aus dem Innern einem geringeren Energietransport entspricht. Somit wären lange Zyklen mit geringerer Sonnenaktivität verknüpft. Deshalb würde man während solarer Minima, in denen die Sonnenfleckenzahlen gering sind, tendenziell lange Sonnenfleckenzyklen erwarten. Das bedeutet, dass in Zeiten langer Zyklen im Eis hohe Isotopenkonzentrationen zu finden sein müssten.

Die Amplitude des Schwabesignals in den Isotopen

Wie bei den Sonnenflecken kann auch die Amplitude des Schwabesignals in den Isotopen als Proxi für die Sonnenaktivität verwendet werden. Bei

der Betrachtung der 6 Jahre-tiefpassgefilterten Daten in Figur 6.3.9 fällt die gute Übereinstimmung des langfristigen Amplitudenverlaufs nach 1700 AD zwischen den beiden Isotopen (invers aufgetragen) und den Sonnenflecken auf. Dieser Verlauf entspricht den Erwartungen, nachdem die Spallationsreaktion, welche vom Sonnenwind moduliert wird, als dominantes Signal in den Isotopen gefunden wurde. Gemäss den früheren Erkenntnissen besteht auch hier eine Diskrepanz im und vor dem Maunder-Minimum.

Hebt man das Schwabesignal in den Reihen von ^{10}Be und ^{36}Cl durch eine Bandfilterung zwischen neun und vierzehn Jahren und in den Sonnenflecken (sechs bis sechzehn Jahre) hervor, so bestätigt sich die Verwandtschaft von Isotopen und Sonnenflecken. Der Amplitudenverlauf der Sonnenflecken folgt dem des Schwabesignals in den Isotopen (Bandfilterung, Fig. 6.3.10) zufriedenstellend, ausser zwischen 1650 und 1700 AD und mit Einschränkungen um 1750 AD. Das erste Intervall im Maunder-Minimum ist bereits wegen seiner Diskrepanz im Schwabesignal zwischen Isotopen und Sonnenflecken aufgefallen. Die Amplituden beider Isotope, deutlicher aber jene von ^{10}Be (Fig. 6.3.10), scheinen gewissen Langzeitmodulationen zu unterliegen (vgl. auch den Abschnitt "6.3.4 Langperiodische Oszillationen" in diesem Kapitel). Die instabile Zeit um 1750 AD fällt bei beiden Isotopen mit kleinen Amplituden der Schwabeoszillation zusammen.

Beim Vergleich der Figuren 6.3.10 und 5.2.17/18 sieht man, dass der beobachtete Amplitudenverlauf des Schwabesignals in den Isotopen mit den in den zeitlichen Spektralverläufen gefundenen übereinstimmt. Bis vor 1750 AD finden wir dort viel Energie in der Schwingung bei 11 Jahren (grosse Amplitude). Die Amplitude der 11-Jahresschwingung nimmt gegen 1750 ab und die Periode driftet leicht. Zwischen 1750 und etwa 1790 ist die Amplitude bei Perioden von 11 Jahren klein. Das Signal bei längeren Perioden um zirka 15 Jahre ist im ^{10}Be dominant. Diese Signal verschiebt sich nach 1810 AD wieder in Richtung 11-Jahresperiode. Im ^{36}Cl treten die langen Perioden etwas später auf; die stärksten Signale liegen jedoch im Bereich von 8 Jahren.

Die Zykluslänge des Schwabesignals in den Isotopen

Lassen sich auch in den Isotopen die langen Zyklen mit den vier Minimumsperioden verknüpfen? In ^{36}Cl und ^{10}Be findet man übereinstimmend wenige längere Zyklen vor 1900 AD und zwei lange Zyklen um 1800 AD (Tab. 6.3.A und Fig. 6.3.7-9). Letztere fallen mit dem Dalton-Minimum der Sonne (1790 - 1830 AD) zusammen, das durch eine Erhöhung in den Isotopenkonzentrationen angezeigt wird. Ebenfalls in beiden Reihen findet man (mit einer Ausnahme um 1680 AD) zwischen 1620 und 1700 AD überdurchschnittlich lange Zyklen. In diese Zeit fällt das Maunder-Minimum der Sonne. Die Maxima in den Isotopenkonzentrationen finden sich erst am Schluss dieser Zeit um 1700 AD (Fig. 5.2.1, 5.2.2, 5.2.11, 5.2.12). Die Zykluslängen in den Isotopen und die Angaben über den Sonnenfleckenzyklus vor 1600 AD sind unsicher. Im ^{10}Be erscheint eine mittlere Zykluslänge von sechs bis acht Jahren. Nimmt man an, dass es sich um erste Oberschwingung des Schwabesignals handelt, die dominiert, so dass zwei Isotopenminima auf einen Sonnenfleckenzyklus fallen, so sind praktisch alle Schwabezyklen länger als 10.8 Jahre, wenn man zwei beobachtete Zyklen zu einem Schwabezyklus zusammenfasst. Speziell lange finden sich dann vor 1540 AD, wo aufgrund von $\Delta^{14}\text{C}$ -Daten das Spörer-Minimum vermutet wird (1420 - 1540 AD). Die Daten unserer und der von Schove angegebenen Maxima stimmen vor 1600 oft nicht überein. Für eine weitergehende Diskussion müssen für die Zeit vor 1600 AD die Messungen der ^{36}Cl -Proben abgewartet werden.

Man stellt also fest, dass in den Minimumsperioden der Sonne tendenziell lange Zyklen im ^{10}Be und ^{36}Cl zu finden sind, dass aber auch ausserhalb dieser Minima vor 1900 AD lange Zyklen in den Isotopen auftreten. Die Zykluslänge der Isotope scheint also nicht eindeutig mit der Abstrahlungsstärke der Sonne verknüpft zu sein, im Gegensatz zur Zykluslänge der Sonnenflecken, wo ein solcher Zusammenhang vermutet wird (Friis-Christensen und Lassen 1991).

Fazit

Der Frequenz- und der Amplitudenverlauf in den Sonnenflecken und in den Isotopen stimmt nur zeitweise überein. Die Verwendung der Zykluslänge in den Isotopenreihen als Proxi für die Sonnenaktivität scheint weniger sinnvoll als bei den Sonnenflecken, da auch ausserhalb von Sonnenminimumsperioden überdurchschnittlich lange Zyklen auftreten können und da die Länge, wie in Kapitel 6.3.3.3 ausgeführt, wegen der Oberschwingungen zeitweise schwierig zu bestimmen ist. Der Amplitudenverlauf des Schwabesignals in den Isotopen stimmt, ausser im Maunder-Minimum, gut mit dem der Sonnenflecken überein. Die inversen Konzentrationskurven folgen dem langfristigen Verlauf der Sonnenflecken gut. Die Verwendung des Amplitudenverlaufs der Isotope als Proxi für die Sonnenaktivität erscheint deshalb sinnvoller.

6.3.3.4 Das langfristige Phasenverhalten des Schwabezyklus als Diskriminator für solare Modelle

Da die Energieproduktion im Innern der Sonne über Jahrtausende sehr stabil ist, muss die Ursache für die Abstrahlungsschwankungen beim Energietransport in der Konvektionszone und bei Stauwirkungen im Bereich der Sonnenflecken liegen (Kap. 6.1). Der eigentliche Grund für die Schwankungen der Sonnenaktivität ist nicht bekannt. Die Mehrheit der Sonnenmodelle, welche die beobachteten Erscheinungen im Zusammenhang mit den Aktivitätsschwankungen zu modellieren versuchen, ist deshalb phänomenologisch (Hoyt 1993). Sie erlauben nur, die optischen Erscheinungen in der Photosphäre zu prüfen.

Keines der Modelle, die auf *physikalischen* Hypothesen der solaren Schwankungen aufgebaut sind, vermochte die beobachteten Phänomene bisher hinreichend zu erklären. Der bekannteste Disput um Modelle dieser Art ist der um das Dynamo- und das "Delayed clock"-Modell (Newkirk 1984). Letzteres geht auf eine Idee von Dicke (1978) zurück, wonach tief in der Sonne ein Signal konstanter Frequenz (der "11-Jahreszyklus") generiert und dessen Frequenz auf dem Transport in der Konvektionszone

moduliert wird. Der feste Schlag der Uhr wird dann in der Konvektionszone je nach Transportgeschwindigkeit gedehnt oder gestaucht. Das heisst unter anderem, dass eine Verlängerung des Schlags zu einem späteren Zeitpunkt wieder aufgeholt wird. Wenn dem so ist, dann müsste dieser feste Zyklus seine Phase über lange Zeit beibehalten. Das Konvektions-Dynamo-Modell dagegen behauptet, dass der Schwabezyklus nur durch magneto-hydrodynamische Prozesse im Mantel generiert wird. In diesem Falle erwartet man ein stochastisches Verhalten der Phasenlagen des Schwabezyklus (Newkirk 1984). Das bedeutet, dass eine Verspätung im Zyklus von den folgenden Zyklen nicht mehr aufgeholt wird.

Die bisherigen Sonnenbeobachtungen erlaubten aufgrund der beschränkten Länge oder Auflösung nicht, das eine oder andere Modell zu favorisieren. Newkirk zeigte in einer Monte Carlo-Simulation, dass die Summen der Phasenverschiebungen beim Dynamomodell wesentlich schneller wächst, sich von derjenigen der "Uhr" aber erst nach etwa 40 Sonnenfleckenzyklen deutlich unterscheidet. Die bisherigen verlässlichen Sonnenfleckenbeobachtungen nach 1700 AD umfassen aber nur etwa 22 Zyklen. Die daraus resultierende Summe der Phasenverschiebungen verläuft zwischen denen der beiden Modelle.

Mit Hilfe der ^{10}Be - und der ^{36}Cl -Reihe von Dye 3 kann die Beobachtungslänge des Sonnenfleckenzyklus verdoppelt werden. Eine direkte Bestimmung der Phasenabweichung vom mittleren Zyklus ist jedoch nicht mit genügender Genauigkeit möglich, da die Oberschwingungen in den Isotopenkurven, wie oben dargelegt, keine durchgehende Bestimmung der Anzahl und der Daten der solaren Maxima zulassen¹. Es lassen sich verschiedene Realisationen des Sonnenfleckenzyklus aufgrund der Isotopenkurven finden, die auf das eine oder das andere Modell hinweisen. Deshalb ist diese Methode der Bestimmung der Zyklenlängen mit Hilfe der Isotopenminima nicht

¹ Notwendig wäre eine Genauigkeit von mindestens ± 1 Jahr bei der Bestimmung der solaren Maxima

anwendbar, solange die auf die Isotope wirkenden Prozesse nicht besser verstanden sind.

Mende kann mit Hilfe der sogenannten Sonnenmelodie Hinweise auf das "Delayed clock"-Modell finden (Beer et al., eingereicht). Bei der Sonnenmelodie handelt es sich um die momentane Frequenz des Schwabezyklus an jedem Punkt der ^{10}Be -Kurve, welche zwischen Perioden von 6 und 20 Jahren tiefpassgefiltert wurde. Diese Methode liefert also eine feinere Auflösung als die im letzten Abschnitt beschriebene, da die Zyklenlänge nicht nur von Maximum zu Maximum bestimmt wird. Bei der Sonnenmelodie wird die Zeit für einen vollen Phasenumgang an jedem Punkt erhoben. Der resultierende Frequenzverlauf ist in Figur 6.3.12 wiedergegeben.

Der Zyklus scheint eine mittlere Frequenz von 10.78 Jahren beizubehalten, was der mittleren Frequenz des Schwabezyklus von 10.84 Jahren aus dem Spektrum ausgezeichnet entspricht. Obwohl der Phasenverlauf deshalb eher dem des "Delayed clock"-Modells zugeordnet wird, ist die Zeitreihe für eine definitive Aussage auch mit dieser Methode zu kurz (Beer et al., eingereicht).

6.3.3.5 Der Schwabezyklus im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis

Nach Blinov (1988) erwartet man während des Sonnenfleckenzyklus eine negativ korrelierte Schwankung des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses um $\pm 10\%$. Figur 6.3.13 zeigt, dass man im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis ein Signal von der Periodenlänge des Schwabesignals tatsächlich beobachten kann, wobei die Korrelation mit den Sonnenflecken aber sehr oft *positiv* und in einigen Fällen unsicher ist und die Amplituden einzelner Ausschläge wesentlich grösser sind als erwartet.

Der Eindruck der positiven Korrelation wird durch den Vergleich mit der Zahl der beobachteten Schockwellen bestätigt. Die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Reihe von Dye 3 und die Reihe der Anzahl der Schockwellen der Sonne, denen die Erde

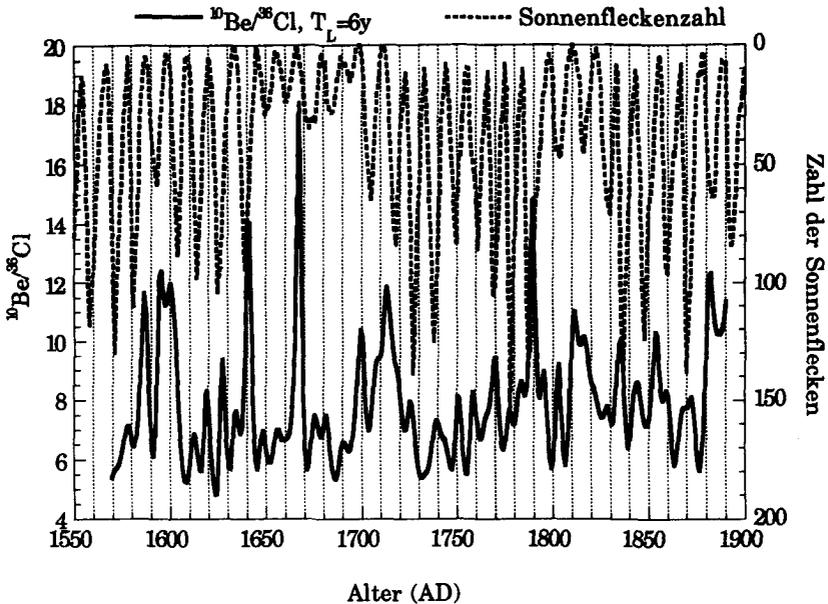


Fig. 6.3.13 Vergleich der beobachteten Sonnenfleckenzahlen nach Schöve (1983) mit dem $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis von Dye 3, Grönland. Vor der Verhältnisbildung wurden die ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen mit einer Grenzperiode von $T = 6$ Jahren tiefpassgefiltert.

ausgesetzt war, überlappen nur gerade zwei Sonnenfleckenzyklen² (Fig. 6.3.15). Schockwellen werden vorwiegend in der Umgebung von Sonnenflecken produziert. Ihre Zahl ist deshalb proportional zur Anzahl der Sonnenflecken (für detaillierte Erläuterungen siehe Legrand et al. 1991). Erwartungsgemäss fallen die Minima beider Isotope mit den Maxima der Schockwellenzahlen zusammen (Figur 6.3.14). Der Vergleich

²Die Rekonstruktion dieser Reihe wurde uns freundlicherweise von P. Legrand zur Verfügung gestellt.

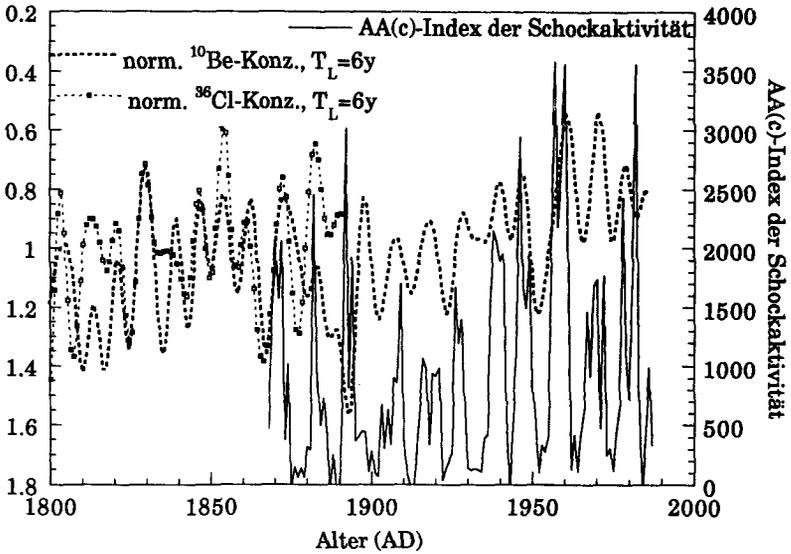


Fig. 6.3.14 Auf den Mittelwert normierte, tiefpassgefilterte ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen (Grenzperiode 6 Jahre) von Dye 3 und die auf der Erde gemessenen Schockwellen nach Legrand, als AA-Indices aufgetragen.

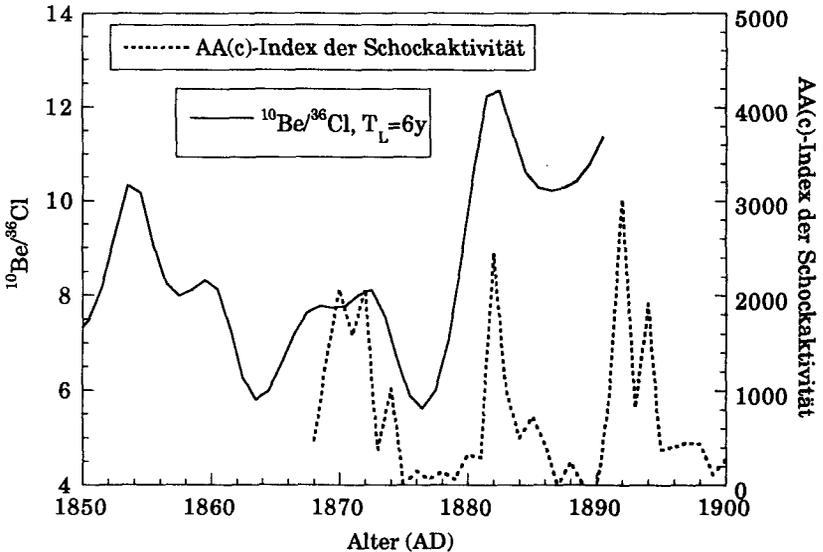


Fig. 6.3.15 $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis von Dye 3 (^{10}Be und ^{36}Cl wurden mit einer Grenzperiode von 6 Jahren tiefpassgefiltert) und die auf der Erde gemessenen Schockwellen nach Legrand, als AA-Indices aufgetragen.

mit ^{10}Be bestätigt diesen Befund im 20. Jahrhundert. Die Phasenübereinstimmung zwischen den Kurven ist stabil. Einzig nach 1890 AD findet ein starker Sprung in der Phasenbeziehung zwischen den Schocks und ^{10}Be statt, so dass die Maxima in beiden Kurven zusammenfallen. Für ein genaueres Verständnis dieser einen Unregelmässigkeit müssen vorerst die ^{36}Cl -Werte abgewartet werden.

Das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis ist mit der Zahl der beobachteten Schockwellen positiv korreliert, obwohl beide Isotope einzeln gleichphasig negativ korreliert sind (Fig. 6.3.15). Die Schwankungen im Verhältnis übersteigen die erwarteten 10% bei weitem (Blinov 1988). Für eine definitive Aussage ist die Ueberlappung der beiden Kurven natürlich zu kurz.

Die positive Korrelation des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses zum Schwabesignal der Sonne überrascht. Nach Blinov (1988) sollte die ^{10}Be -Produktionsänderung während eines Schwabezyklus stärker sein als diejenige des ^{36}Cl , so dass deren Verhältnis ebenfalls negativ mit den beiden Proxis korreliert sein müsste. Sollte sich dieser umgekehrte Befund zwischen dem $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis und dem Schwabezyklus im 20. Jahrhundert bestätigen, so müssen die Produktionsquerschnitte der Isotope in Abhängigkeit der Teilchenenergie für Protonen und Neutronen überprüft werden. Im Bereich der Teilchenenergien, die durch den Sonnenfleckenzyklus moduliert werden (siehe Blinov 1988), erwartete man bei Bestätigung unserer Resultate eine grössere Empfindlichkeit von ^{36}Cl auf Schwankungen der Sonnenaktivität als von ^{10}Be , im Gegensatz zu den heutigen Annahmen.

Die Diskussion um die Korrelation zwischen dem $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis und dem Schwabesignal der Sonne ist noch offen. Erstens ist ihr Vorzeichen anhand von Figur 6.3.13 im Vergleich mit den Sonnenflecken nicht eindeutig bestimmbar, und zweitens ist es selbst nach einer allfälligen Korrektur kaum wahrscheinlich, dass Produktionseffekte allein sowohl die Grösse der Amplitude als auch das Vorzeichen der Korrelation zum Schwabesignal zu erklären vermöchten. Ebenso unvorstellbar scheint es nach dem heutigen Wissensstand, dass die

Wechsel des Vorzeichens der Korrelation und die grossen Amplituden des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwabesignals nur durch atmosphärische Effekte erklärt werden können. Dazu müssten sie nämlich Phasenverschiebungen zwischen der ^{10}Be - und der ^{36}Cl -Produktion von mehreren Jahren erzeugen können.

Neben dieser Unklarheiten im Bereich des Schwabsignals gibt es eine weitere Auffälligkeit im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verlauf. In Figur 6.3.13 sind im Verhältnis hohe Maxima erkennbar. Wie schon beim Vergleich mit den Aurorae (vgl. Anf. d. Kap.) treten diese Maxima vorwiegend in Zeiten mit schwachem Sonnenfleckenzyklus oder in Uebergangszeiten zu solchen Perioden auf (Fig. 6.3.13). Dies gilt für alle drei Eiskerne, da die Verläufe der $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisse - unter Vorbehalt der unterschiedlichen Auflösung - ähnlich sind. Die hohen Maxima des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses treten während *Minimums*perioden der Sonnenflecken auf. Die Amplituden der Sonnenflecken und dieser Maxima im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis sind also im Gegensatz zum oben diskutierten, regelmässigen Schwabesignal antikorreliert.

Fazit

Aus dem Vergleich von ^{10}Be , ^{36}Cl und ihres Verhältnisses mit den Sonnenflecken und den Schockwellen folgen zwei Hauptergebnisse: 1) Das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis weist ein periodisches Schwabesignal auf, welches mehrheitlich positiv mit den Sonnenflecken und den Schockwellen korreliert ist. 2) Nur während solaren Minimumsperioden finden wir in unregelmässigen Abständen sehr hohe $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima. Beide Phänomene sind weder mit den heutigen Vorstellungen der Isotopenproduktion nach Blinov (1988) noch durch atmosphärische Effekte allein erklärbar (siehe Kap. 6.4). Sollten sich der Befund der positiven Korrelation zwischen dem Schwabesignal im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis und den Schockwellen über längere Zeitintervalle bestätigen, dann müssen die heutigen Vorstellungen über die Produktionsquerschnitte in Abhängigkeit der Teilchenenergie überprüft und, sicher für das zweite, unregelmässige Phänomen der hohen Maxima, auch atmosphärische Verstärkungseffekte

in Betracht gezogen werden. Vorstellungen über solche atmosphärische Effekte werden später in Kapitel 6.4 diskutiert.

6.3.4 Langperiodische Oszillationen

In den Spektren der Isotope und ihrem Verhältnis von Dye 3 - nicht aber von Milcent - wurden in Kapitel 5 in 60-Jahresabständen Phasensprünge gefunden, die sich als senkrechte Strukturen auszeichnen (Fig. 5.2.17 - .19 und Text). Die Positionen dieser Phasensprünge werden durch Extrema in der Sonnenmelodie nach Mende (Fig. 6.3.12, aus Beer et al., eingereicht) genauer lokalisiert. Die Extrema liegen auf wenige Jahre genau im 60-Jahre-Abstand. Sie fallen vorwiegend mit Frequenzminima, also mit langen Schwabezyklen zusammen. Die Positionen dieser Sprünge (1880, 1810, 1750, 1690, 1630, 1570 AD) stimmen mit lokalen Amplitudenminima des Schwabesignals in den Isotopen überein, besonders deutlich im ^{10}Be (Bandfilterung Fig. 6.3.10). Die Zeit um 1750 AD fällt auch hier mit den stärksten Phasensprüngen auf. Leider ist die Zeitreihe von ^{10}Be zu kurz, um die in Figur 6.3.10 angedeuteten 200- und 400 Jahre (?) -Oszillationen zu verfolgen und künstliche Amplitudenmodulationen durch die Bandfilterung vollständig auszuschliessen. Möglicherweise könnte die Auffälligkeit der Zeit um 1750 AD auf das Zusammentreffen der Minima zweier solarer Oszillationen zurückgeführt werden. Eine interessante Frage wäre dann allerdings, warum die Phasen verschiedener Proxis (^{10}Be , ^{36}Cl und Sonnenflecken) in dieser Situation auseinanderlaufen und warum eine solche Zeit nicht wesentlich auffälligere Phänomene zeitigt als das Maunder-Minimum.

Wie oben in Kapitel 5 erwähnt ist eine genaue Bestimmung von Perioden länger als etwa 60 Jahre in Dye 3 durch einfache Spektralanalyse nicht möglich. Durch die Spline-Einbettungsmethode kann das Frequenzfenster jedoch noch etwas erweitert werden. Beer et al. (eingereicht) finden damit im ^{10}Be von Dye 3 unter anderem einen Peak bei einer Periode von 87.4 Jahren, der dem Gleissbergzyklus zugeordnet werden kann. Dasselbe Periode finden wir im ^{36}Cl von Milcent (Fig. 5.1.6a). Der nächstliegende

Peak im ^{10}Be -Spektrum von Milcent liegt bei 82 Jahren (Fig. 5.1.6b). Die Periodenlänge von 87 Jahren in Dye 3 wird durch die Ergebnisse der Bandfilterung der Isotopenreihen und ihres Verhältnisses von Dye 3 zwischen Periodenlängen von 85 und 102 Jahren gestützt, welche ebenfalls eine Oszillation genau dieser Periode zeigt. Allerdings ist diese Bandfilterung empfindlich auf die Lage der unteren Grenze.

Der Zusammenhang zwischen Amplitude und Länge des Schwabzyklus

Wir haben im Abschnitt 6.3.3.3 gesehen, dass das Auftreten langer Zyklen im Schwabesignal *der Isotope* nicht eindeutig mit den bekannten Zeiten minimaler Sonnenfleckenzahlen in Verbindung gebracht werden kann. Da die Amplituden der Isotopenkonzentrationen und der Sonnenflecken nach 1750 AD invers korreliert sind (Fig. 6.3.7), bedeutet das auch, dass zwischen der Zykluslänge und der Amplitude des Schwabesignals in den tiefpassgefilterten Isotopenkonzentrationen kein eindeutiger Zusammenhang besteht. Die bandgefilterten Daten und die Sonnenmelodie in Figur 6.3.12 deuten nun aber daraufhin, dass grosse Phasenmodulationen im Schwabezyklus in der zur Verfügung stehenden Zeit oft in der Nähe von Amplitudenminima langperiodischer Oszillationen stattfinden könnten. Dem Verlauf der Spektren kann man entnehmen, dass gleichzeitig Oszillationen anderer Frequenzen verstärkt werden. Dieses wechselseitige Verhalten von Phase und Amplitude des Schwabezyklus ist jedoch sehr hypothetisch. Es gibt noch viele Fragezeichen, speziell, warum das dominante 60 Jahre-Signal in den Spektren der Isotope von Milcent und in den Sonnenflecken nicht auftritt. Der längere und ebenfalls gut aufgelöste Summit-Eiskern dürfte hier weitere Hinweise zu diesem Phänomen liefern.

6.3.5 Zusätzliche Isotopenproduktion durch niederenergetische Teilchen in der Atmosphäre

6.3.5.1 ^{10}Be -Produktion durch sekundäre Neutronen des Spallationsprozesses

Nach Blinov (pers. Komm.) gibt es in der Atmosphäre für ^{10}Be einen Produktionskanal³ durch Compoundreaktionen von Neutronen ab zirka 20 MeV, die als Sekundärteilchen bei der Wechselwirkung der hochenergetischen kosmischen Strahlung mit der Atmosphäre entstehen. Wie man den Figuren 3 und 7 in Lal und Peters (1967) entnimmt, sind die Neutronenflüsse in der unteren Atmosphäre dominant gegenüber den Protonenflüssen gleicher Energie. Das Maximum der ^{10}Be -Produktion durch Neutronen liegt in der *Troposphäre* bei zirka einer Höhe von 300 - 400 g/cm² (ca. 8 Kilometer). Die Zunahme der ^{10}Be -Produktion durch die Neutronenreaktion kann bis zu 50% betragen. Sie ist nicht breitenabhängig und erhöht die ^{10}Be -Produktion in tieferen Schichten. Somit wird die bisher angenommene Produktionsverteilung (2/3 in Stratosphäre, 1/3 in der Troposphäre) in Richtung der Troposphäre verschoben. Da aber auch dieser Produktionskanal von der Spallationsreaktion abhängig ist, wird die bisherige Vorstellung des zeitlichen Verlaufs der ^{10}Be -Produktion in der Atmosphäre nicht völlig umgestossen.

6.3.5.2 ^{36}Cl -Produktion durch niederenergetische Protonen aus grossen solaren Fackeln

Die Möglichkeit, in der Atmosphäre ^{36}Cl durch niederenergetische Protonen zu erzeugen, war eigentlich schon bekannt, wurde aber von Lal (Lal und Peters 1967) als vernachlässigbar betrachtet. Unsere Unstimmigkeiten im Vergleich mit ^{10}Be im Eis veranlassten Blinov und

³ Unter einem Produktionskanal von ^{10}Be versteht man hier die ^{10}Be -Produktion aus einer Reaktion mit einer bestimmten Zusammensetzung der teilnehmenden Teilchen.

Kremliovskij (1991), die Reaktionsquerschnitte nachzumessen. Figur 6.3.16 (nach Blinov 1993a) zeigt, dass in der Atmosphäre drei Reaktionen für die ^{36}Cl -Produktion wichtig sind. Für die Reaktion $^{40}\text{Ar}(p,\alpha)^{36}\text{Cl}$ wurde bei 27 MeV ein Reaktionsquerschnitt von $\sigma = 9.0 \pm 1.2$ mbarn gemessen. Die Reaktion $(p,2p3n)$, die ihr Produktionsmaximum bei 55 - 60 MeV hat, ist aber noch ergiebiger und hat nach Modellrechnungen bei dieser Energie einen Reaktionsquerschnitt σ von über 100 mbarn. Bei Protonenenergien über 100 MeV dominiert dann die Spallationsreaktion mit einem Reaktionsquerschnitt von 22 mbarn bei 1 GeV. Die Produktion kann in der Zeit des Peaks starker solarer Fackeln einen namhaften Teil der gesamten atmosphärischen ^{36}Cl -Produktion ausmachen. Die Integration über alle Energien ergibt einen Fluss von 3.8 Atome/ cm^2 sec. Wegen der geomagnetischen Abschirmung findet diese Produktion nur in Breiten über 65° statt, also in der hohen polaren Stratosphäre beider Hemisphären. Der Beitrag dieser Kanäle zum gesamten Fluss ist schwierig abzuschätzen. Nimmt man eine grosse Fackel pro Jahr (Blinov 1993a) und ein Verhältnis von polarer zu gesamter Atmosphäre von 0.1 an, dann macht der Anteil durch solare Teilchen 10% des gesamten Flusses aus (1.2×10^{-4} At/ cm^2 sec). Da das ^{36}Cl aus diesem Produktionskanal wahrscheinlich nicht gleichmässig auf der ganzen Erdoberfläche deponiert wird, könnte der Anteil lokal wesentlich höher sein.

Wie die Tabellen 5.3.C und 5.3.D zeigen, liegen die theoretisch berechneten Flüsse beider Isotope eher an der unteren Grenze der Messwerte. Eine zusätzliche Quelle entschärft diese Unstimmigkeit. Wenn wir für ^{36}Cl eine Zunahme um 10% erwarten, so liegen die berechneten Werte immer noch relativ tief verglichen mit den Messungen. Allerdings hat Scheffel (1992) den Reaktionsquerschnitt der Spallationsreaktion bei 1 GeV nachgemessen und einen um einen Faktor 2 höheren Wert gefunden. Mit diesem Wert bekäme man eine bessere Uebereinstimmung von Theorie und Messung. Dieser erste Messwert muss allerdings noch bestätigt werden.

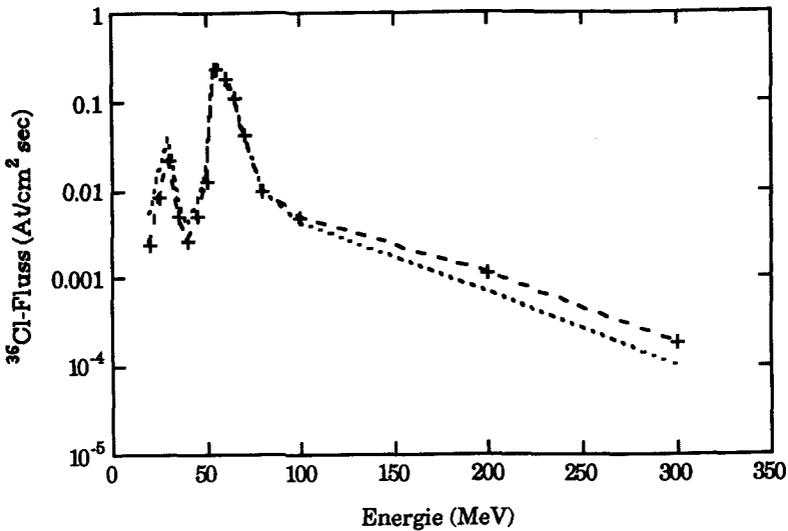


Fig. 6.3.16 ^{36}Cl -Produktionsrate durch Protonen solarer Flares nach Blinov (1993a). Bei Energien grösser 200 MeV wird die Spallationsproduktion dominant.

6.3.5.3 Konsequenzen für das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis

Sämtliche atmosphärische Produktionskanäle von ^{10}Be hängen mit der Spallationsreaktion zusammen. Deshalb sollte ^{10}Be ausgeprägter auf Modulationen der galaktischen kosmischen Strahlung reagieren als ^{36}Cl , da letzteres durch Protonen von solaren Flares produziert werden kann. Die Emission von Protonen solarer Herkunft geht tendenziell mit einer gleichzeitigen Abschwächung der kosmischen Strahlung einher. Der Beitrag durch solare Protonen dürfte 10% des gesamten ^{36}Cl der Atmosphäre nicht überschreiten. Das Spallationsproduktionssignal dominiert also auch im ^{36}Cl . Die Annahme, die Produktionseffekte seien aus dem $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis eliminiert, ist aber nicht ganz zutreffend.

Das Signal der stratosphärischen Spallationsproduktion im Eis wird gestört durch die asynchrone Deposition der ^{10}Be -Isotope aus den beiden Produktionskanälen. Das in der Troposphäre produzierte ^{10}Be wird innert weniger Wochen deponiert, während die Isotope der hohen Stratosphäre mehrere Jahre brauchen, bis sie in die Troposphäre gelangen und ausgewaschen werden. Eine "Störung" des ^{36}Cl -Signals der hochenergetischen Spallationsproduktion im Eis kommt vom niederenergetischen ^{36}Cl -Kanal, der durch solare Protonen bestimmt wird, dessen Beitrag aber ebenfalls von der Stratosphäre heruntertransportiert wird. Wie lange dieser Transport wirklich dauert, ist nicht bekannt. Es wäre durchaus möglich, dass an den Polen direktere Heruntermischung stattfinden kann (z. B. durch Subsidenz im südpolaren Hochdruckgebiet), was die Deposition wesentlich beschleunigen würde.

Für ^{10}Be erwartet man also eine asynchrone Deposition gleichzeitig produzierter Isotope, während im ^{36}Cl ein Mischsignal von Isotopen zweier tendenziell antagonistischer Produktionskanäle beobachtet wird. Diese Diskrepanz muss sich auf das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis auswirken. Wie gross die induzierten Schwankungen sind, ist ungewiss. Die Modulation von ^{36}Cl ist nicht vorhersagbar, da sie von sporadisch auftretenden Flare-Ereignissen auf der Sonne abhängt. Wenn grosse Wechsel der Sonnenaktivität mit einer stark veränderten Fackel-Tätigkeit einhergehen, so könnte diese mit ein Grund für die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima im Eis sein. Eine Fallstudie an den bekannten grossen Flare-Ereignissen von 1956 und 1972 ist leider nicht möglich, da diese in die Zeit der ^{36}Cl -Verunreinigung des Eises durch Atombombentests fallen.

6.3.5.4 Abschätzung der maximal möglichen $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Variation durch Produktionsschwankungen

^{10}Be und ^{36}Cl werden durch kosmische Teilchen mit Energien oberhalb zirka 20 MeV produziert. Die Reaktionsquerschnitte hängen von der Teilchenenergie ab. Der wichtigste Teilchenenergiebereich liegt zwischen wenigen bis einigen 10 GeV. Nur der Anteil der kosmischen Strahlung mit Energien unter zirka 15 GeV ist von der solaren Modulation betroffen. Die Variation der Produktionsrate innerhalb eines Sonnenfleckenzyklus beträgt ungefähr 40% für ^{10}Be und 30% für ^{36}Cl (Blinov 1988). Somit erwartet man bei niedriger Sonnenaktivität eine Zunahme des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses um zirka 10%. Diese Variation erfolgt kontinuierlich, erklärt also weder die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Spitzen noch deren Amplituden.

Die Unterschiede in den niederenergetischen Produktionszweigen können die scharfen Peaks im Verhältnis aus mehreren Gründen nicht erklären. Die ^{36}Cl -Produktion dieses Zweigs ist zu schwach für die beobachtete Amplitude, und selbst wenn man einen lokal und periodisch höhere ^{36}Cl -Deposition aufgrund von solaren Fackeln annimmt, so müssten im Eis $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Minima zu beobachten sein. Man findet aber prägnante Maxima. Eine Verschiebung im Verhältnis könnte auch entstehen, wenn der niederenergetische Kanal der ^{10}Be -Produktion nicht proportional zur hochenergetischen Spallationsproduktion wäre. Mit der Annahme, dass

$$BE = S_{\text{hbe}} + S_{\text{nbe}}$$

$$CL = (1/c) S_{\text{hbe}} \quad \text{mit } c = \text{konst. und}$$

BE: totale Prod. rate von ^{10}Be

CL: totale Prod. rate von ^{36}Cl

S_{hbe} : Prod.rate von ^{10}Be durch Spallation durch hochenerg. kosm. Strahl.

S_{nbe} : Prod.rate von ^{10}Be durch niederen. sek. Neutronen infolge Spall.

ist, wird die zeitliche Veränderung des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{BE}{CL} \right) = \frac{d}{dt} \left(\frac{S_{hbe} + S_{nbe}}{(1/c)S_{hbe}} \right) = c \frac{d}{dt} \left(\frac{S_{nbe}}{S_{hbe}} \right),$$

was nur verschieden von Null ist, falls die beiden Produktionskanäle von ^{10}Be nicht proportional sind. Dies widerspricht den Erwartungen. Auch mit diesem Effekt wären die scharfen Spitzen nicht erklärbar.

6.3.5.5 Konsequenzen für die Breitenabhängigkeit des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses

Die niederenergetischen Produktionsterme haben auch Konsequenzen für die räumliche Verteilung der Deposition. Der totale ^{10}Be -Fluss ist durch die Troposphärenkomponente wesentlich weniger breitenabhängig als der ^{36}Cl -Fluss. Dieser wird wegen der verstärkten Stratosphärenkomponente (Austausch vor allem in mittleren Breiten) eher stärker von der Breite abhängen (eventuell mit einer zeitweise erhöhten Depositionsrate an den Polen) als früher angenommen. Während solarer Minima erwartet man eine veränderte Breitenabhängigkeit der Produktion, da in dieser Zeit mehr Teilchen mit kleineren Energien auf die Erdatmosphäre treffen und vor allem in höheren Breiten die stratosphärische Isotopenproduktion erhöhen, weil sie in niederen Breiten durch das geomagnetische Feld abgehalten werden.

Der Breitenverteilung der ^{10}Be - und ^{36}Cl -Flüsse sollte überprüft werden, einerseits, um die relative Wichtigkeit der niederenergetischen Produktionsterme abzuklären und andererseits, um die Ungereimtheiten bei der Budgetierung zu beseitigen. Bei der Nachmessung der Breitenabhängigkeit der Isotopenflüsse ist zu beachten, dass der ^{10}Be -Fluss an verschiedenen Orten proportional zu der jeweiligen Niederschlagsrate ist (Blinov 1993b; Brown et al. 1989). Diese Korrelation ist wesentlich besser als die zu der erwarteten Breitenverteilung nach Lal und Peters. Eventuell ist vor dem Vergleich eine Normierung notwendig. Interessanterweise verhält sich ^{36}Cl in den Proben von Blinov viel ungeordneter (Proben gemessen durch Scheffel 1992). Generell ist der

Fluss um einen Faktor 10 - 30 über den Erwartungen. Einzelne Werte streuen stark. Ob das seinen Grund in einer Unterschätzung des Reaktionsquerschnitts der Spallationsreaktion, in unbekanntem natürlichen Effekten, in künstlichen Quellen (Bsp. Atomkraftwerke) oder in einer Kontamination im Labor hat, ist noch nicht geklärt.

Fazit aus der Diskussion der niederenergetischen Produktionsterme

Die solaren Modulationen des Energiespektrums der kosmischen Strahlung ziehen sowohl räumliche wie auch zeitliche Schwankungen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis nach sich. Die induzierten Produktionsschwankungen allein können aber weder die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima noch die hohen ^{36}Cl -Flüsse erklären. Für eine exaktere Quantifizierung der neuen Quellen durch den niederenergetischen Anteil der kosmischen Strahlung müssen die Reaktionsquerschnitte der Protonen und Neutronen für die relevanten Reaktionen in der Atmosphäre abgewartet werden. Für eine genauere Vorstellung über die Modifikationen der Produktionsbreitenverteilung durch den atmosphärischen Transport sollten $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Messungen über die geografische Breite durchgeführt werden.

6.3.6 Zusammenfassung

Der Vergleich der Zeitreihen der ^{10}Be - und der ^{36}Cl -Konzentrationen im Eis mit denen der Aurorae und von $\Delta^{14}\text{C}$ in Baumringen zeigt auf Zeitskalen von Jahrzehnten und Jahrhunderten eine Korrelation zwischen den Isotopen und eine Antikorrelation zwischen den Isotopen und den Aurorae. Dieses Ergebnis wird erwartet und zeigt, dass die Spallation hochenergetischer Teilchen in der Atmosphäre die dominante Quelle von ^{10}Be und ^{36}Cl im Eis ist. Unerwartet sind die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima in oder an Uebergängen zu solaren Minima, die darauf schliessen lassen, dass die Signale der solaren Modulation im Isotopenverhältnis (Produktion oder Transport) nicht vollständig eliminiert sind.

Der Vergleich unserer Isotopenmessungen im Eis mit den Sonnenfleckenaufzeichnungen nach 1750 AD (Schove 1983) lässt vermuten, dass die gängigen Vorstellungen über die Produktionsquerschnitte als Funktion der Teilchenenergie von ^{10}Be und ^{36}Cl noch nicht ganz korrekt sind. Besonders deutlich wird dies im Vergleich des Schwabesignal im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis mit den Schockwellen nach Legrand (pers. Komm.), wo die gefundene Beziehung oft gerade invers zu der erwarteten ist.

Das Verhalten von ^{10}Be , ^{36}Cl und ihrem Verhältnis ist nicht abschliessend erklärt. Eine durchgehende Bestimmung des Sonnenfleckenzyklus mit Hilfe der Isotope ist aufgrund von Oberschwingungen noch nicht möglich. Der Vergleich von ^{10}Be und ^{36}Cl mit den Sonnenfleckenzahlen nach Schove zeigt, dass die Diskrepanzen zwischen beiden Isotopen und den Sonnenflecken zur gleichen Zeit auftreten (1750, 1820, 1850 AD). Ob diese Oberschwingungen ebenfalls das Resultat einer solaren Oszillation sind, die sich in den Sonnenflecken nicht manifestiert, oder aber ein atmosphärisches Signal darstellen, welches in beiden Isotopen vorkommt, ist offen. Für die Klärung dieser Frage braucht man vorerst genauere Kenntnisse aller auf die Isotope wirkenden Prozesse, speziell derjenigen während des atmosphärischen Transports. Daraus geht vielleicht auch eine Erklärung für die hohen $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima hervor, welche im beobachteten Zeitintervall ausschliesslich während Perioden mit geringen Sonnenfleckenzahlen auftreten.

Infolge der Oberschwingungen kann mit den Isotopenreihen noch nicht definitiv entschieden werden, ob das "Delayed clock"- oder das "Dynamo"-Modell die Vorgänge auf der Sonne richtig wiedergibt. Die Tatsache, dass die Periode um ein Mittel von 10.8 Jahren pendelt, deutet jedoch auf das erstere hin.

Die Schwabezykluslänge in den Isotopenreihen ist weniger deutlich mit der Sonnenaktivität verknüpft als die Amplitude der Konzentrationen. Letztere eignet sich deshalb besser als Proxi für die Sonnenaktivität.

Zu den Fragen Newkirks aus dem Jahre 1984 kann bis jetzt wie folgt Stellung genommen werden: Der Schwabezyklus zieht sich auch über die Minimumsperioden der Sonne hin. Grössere, abrupte Phasenverschiebungen im Schwabesignal sind nicht an diese Zeitabschnitte gebunden. Sie traten wiederholt, vermutlich sogar regelmässig auf. Diesbezüglich ist 1750 AD eine auffällige Zeit. Die Phasenverschiebungen in beiden Isotopen fallen mit lokalen Minima in der Amplitude des Schwabesignals in den Isotopen zusammen. Die Isotopenreihen scheinen verschiedene langperiodische Schwingungen zu enthalten, die sich in Amplituden- und Phasenmodulationen des Schwabesignals äussern. Mit der Spektralanalyse können nur Perioden von 60 und 87 (Beer et al., eingereicht) Jahren identifiziert werden. Diese und längere Perioden müssen mit längeren Zeitreihen erst noch verifiziert werden.

Neben den Produktionstermen von ^{10}Be und ^{36}Cl durch hochenergetische kosmische Strahlung existieren in der Atmosphäre für beide Isotope stark unterschiedliche Produktionsterme durch niederenergetische Teilchen. Die ^{10}Be -Produktion durch niederenergetische Neutronen, die als Sekundärteilchen der hochenergetischen Spallationsproduktion entstehen, ist von ähnlicher Grössenordnung wie der hochenergetische Term und verschiebt das Profil der atmosphärischen ^{10}Be -Produktion, so dass ^{10}Be zu gleichen Teilen in der Stratosphäre und in der Troposphäre produziert wird. Die troposphärische ^{10}Be -Produktion ist breitenunabhängig. Die niederenergetische ^{36}Cl -Produktion, die durch solare Protonen aus starken solaren Eruptionen zustande kommt, findet ausschliesslich in der hohen polaren Stratosphäre beider Hemisphären statt und dürfte nicht mehr als 10% zur gesamten ^{36}Cl -Produktion in der Atmosphäre beitragen. Die beiden niederenergetischen Produktionsterme können die beobachteten $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen nicht erklären.

6.4 ^{10}Be , ^{36}Cl und Klima

6.4.1 Diskussion klimatischer Schwankungen als mögliche Ursache für die Variationen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis

Welcher Anteil an den Variationen in den Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl und ihrem Verhältnis kann durch Klimaeffekte oder atmosphärische Vorgänge erklärt werden? Da die Variabilitäten der hochenergetischen Spallationsreaktionen für ^{10}Be und ^{36}Cl sehr ähnlich sind, sollten sie sich im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis zum grössten Teil eliminieren. Dadurch müssten sich Klimaeffekte, die unterschiedlich auf die beiden Isotope wirken, im Verhältnis deutlicher manifestieren. Somit sollten die Einzelisotope oder deren Verhältnis mit den Klimaparametern $\delta^{18}\text{O}$, der über die Nordhemisphäre gemittelten Temperatur oder mit der Akkumulationsrate korreliert sein, oder ausgezeichnete Extrema müssten in den einzelnen Kurven zeitlich zusammenfallen. Neben diesen Parametern könnten sich auch Depositions- und Transporteffekte im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis bemerkbar machen.

6.4.1.1 Die Korrelationen auf verschiedenen Zeitskalen

In allen in den Eiskernen gemessenen Zeitreihen sind Schwankungen auf verschiedenen Zeitskalen sichtbar. Aufgrund visueller Eindrücke erwartet man, dass die Kurven eher im langfristigen Bereich korreliert sind. Deshalb wurde die statistische Analyse für die kurz- und langperiodischen Bereiche getrennt durchgeführt. Damit kann auch die Störung durch ein allfälliges Rauschen verkleinert werden.

Da die Milcent-Daten eine variable Auflösung und einige Lücken enthalten, wurde auf eine Interpolation auf äquidistante Punkte mit anschliessender Filterung verzichtet. Anstelle einer Tiefpassfilterung wurden die Daten mit einem gleitenden Mittelwert über zirka 63 Jahre geglättet. Bei den Hochpassdaten handelt es sich um die Rohdaten, von denen die über 63 Jahre geglättete Datenreihe abgezogen wurde. Bei der Dye 3-Datenreihe wurden die Daten mit einer FFT transformiert, das

Spektrum unterhalb einer bestimmten Frequenz abgeschnitten und zurücktransformiert. Für die Hochpassdaten wurden die Rohdaten zwischen $T=2y$ und $T=6y$ bandgefiltert.

In Tabelle 6.4.A sind die Korrelationen für die "hochpassgefilterten" Isotopen-Daten sowie die Akkumulationsrate und $\delta^{18}O$ von Milcent eingetragen, in Tabelle 6.4.C jene von Dye 3. Für Milcent sind Korrelationskoeffizienten von $r>0.2$ auf dem 95%-Niveau, solche $r>0.25$ auf dem 99%-Niveau signifikant (100 Messpunkte). Für Dye 3 sind schon geringfügig tiefere Korrelationen signifikant (300 Punkte). Betrachtet man die "tiefpassgeglätteten" Daten in den Tabellen 6.4.B und 6.4.D, so stellt man wesentlich höhere Korrelationskoeffizienten fest. Das Signifikanzmass kann für Milcent folgendermassen abgeschätzt werden: Für das Glätten über zirka 63 Jahre wurde ein gleitendes Mittel über 9 Punkte verwendet. Man kann also als grobe obere Grenze annehmen, dass zirka 9 Punkte zu einem Punkt zusammengefasst werden, so dass die Zeitreihe noch durch 11 Punkte wiedergegeben wird. Für diese Anzahl liegt das Signifikanzniveau für 95% bei 0.55 und für 99% bei 0.68. Die Daten von Dye 3 wurden mit einer Grenzperiode von $T=20y$ tiefpassgefiltert. Verfährt man gleich wie oben, so würden 20 Punkte zu einem Punkt zusammengefasst, eine sehr grobe Abschätzung. Für diese wären Korrelationen $r>0.48$ auf dem 95%- und $r>0.61$ auf dem 99%-Niveau signifikant. Die Signifikanz der Korrelationen kann deshalb nicht streng beurteilt werden. Zudem zeigt die visuelle Betrachtung der tiefpassgefilterten Kurven zeitweilige und leicht driftende Phasenverschiebungen gegeneinander (z. B. ^{10}Be und $\delta^{18}O$ von Dye 3), welche sich auf den Korrelationskoeffizienten destruktiv auswirken.

Die linearen Trends wurden für die Bestimmung der langfristigen Korrelationen in Tabelle 6.4.B und 6.4.D entfernt. Die Trends ergeben in Milcent und Dye 3 kein einheitliches Bild. Die ^{10}Be -Konzentration und die Akkumulationsrate von Milcent haben eine relativ starke, zunehmende Tendenz, während die ^{36}Cl -Konzentration vom gleichen Ort vor dem Maunder-Minimum einen recht starken negativen Trend aufweist. Die linearen Trends von Dye 3 sind klein. Im betrachteten Intervall hat die

6. Kapitel: Diskussion

^{10}Be -Konzentration einen leichten, negativen Trend, die ^{36}Cl -Konzentration und die Akkumulationsrate einen minimalen positiven. Grosse Veränderungen finden in der Akkumulationsrate erst nach 1850 AD statt.

	^{10}Be -Konz.	^{36}Cl -Konz.	$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$	$\delta^{18}\text{O}$	Akk.rate
^{10}Be -Konz.	1				
^{36}Cl -Konz.	.03	1			
$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$.64	-.59	1		
$\delta^{18}\text{O}$	-.07	-.09	.06	1	
Akk.rate	.18	-.07	.12	.23	1

Tab. 6.4.A *Korrelationen der hochfrequenten Anteile von Milcent. Die fettgedruckten Zahlen sind auf dem 95%-Niveau signifikant (siehe Text).*

	^{10}Be -Konz.	^{36}Cl -Konz.	$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$	$\delta^{18}\text{O}$	Akk.rate
^{10}Be -Konz.	1				
^{36}Cl -Konz.	.59	1			
$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$.75	-.1	1		
$\delta^{18}\text{O}$	-.58 (-.75)	-.80 (-.78)	-.10 (-.39)	1	
Akk.rate	.38 (.17)	-.2 (.15)	.60 (.16)	.2 (.04)	1

Tab. 6.4.B *Korrelationen der niederfrequenten Anteile von Milcent. Die fettgedruckten Zahlen sind auf dem 95%-Niveau signifikant (siehe Text). Die Angaben in Klammern sind die Korrelationen nach Eliminationen eines starken linearen Trends. Die Korrelation zwischen ^{36}Cl und dem $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis ist aufgrund einzelner Spitzenwerte im Verhältnis, die ausser Phase sind, so tief. Ohne diese beträgt sie zirka -0.75.*

6. Kapitel: Diskussion

	^{10}Be -Konz.	^{36}Cl -Konz.	$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$	$\delta^{18}\text{O}$	Akk.rate
^{10}Be -Konz.	1				
^{36}Cl -Konz.	0.05	1			
$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$	0.71	-0.63	1		
$\delta^{18}\text{O}$	0	0.04	0	1	
Akk.rate	0	-0.02	0.05	0	1

Tab. 6.4.C Die Korrelationen der hochpassgefilterten Daten von Dye 3 (siehe Text). Fettgedruckte Korrelationen sind auf dem 99%-Niveau signifikant.

	^{10}Be -Konz.	^{36}Cl -Konz.	$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$	$\delta^{18}\text{O}$	Akk.rate
^{10}Be -Konz.	1				
^{36}Cl -Konz.	0.42	1			
$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$	0.55	-0.52	1		
$\delta^{18}\text{O}$	-0.17	0.09	-0.06	1	
Akk.rate	-0.12	-0.41	0.22	0.03	1

Tab. 6.4.D: Die Korrelationen der mit $T_{\text{limit}}=20\text{y}$ tiefpassgefilterten Daten ohne Trend von Dye 3. Fettgedruckte Korrelationen sind auf dem 95%-Niveau signifikant.

In den hochfrequenten Daten ist neben den Korrelationen zwischen den Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl und ihrem Verhältnis nur die Korrelation zwischen $\delta^{18}\text{O}$ und der Akkumulationsrate von Milcent auf dem 95%-Niveau knapp signifikant. ^{10}Be und ^{36}Cl sind untereinander nicht korreliert. Diese Ergebnisse lassen auf dieser Zeitskala einen dominanten Rauschuntergrund vermuten. Die Korrelation zwischen $\delta^{18}\text{O}$ und der Akkumulationsrate in Milcent geben allerdings einen Hinweis darauf, dass selbst auf dieser Zeitskala systematische Klima-Effekte auftreten können. Ein Einfluss auf die Isotopenkonzentrationen lässt sich aber nicht nachweisen.

Aus den Tabellen der tiefpassgefilterten Daten lassen sich die folgenden Hauptmerkmale entnehmen:

- Die Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl sind langfristig positiv gekoppelt. Dies entspricht auch dem visuellen Eindruck aus den Kurven.
- Beide Isotopenkonzentrationen sind in Milcent negativ mit $\delta^{18}\text{O}$ korreliert. Dieselben Korrelationen in Dye 3 sind nicht signifikant. Sowohl in Milcent als auch in Dye 3 besteht keine signifikante Korrelation zwischen dem $\delta^{18}\text{O}$ und dem $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis. Später in diesem Kapitel wird gezeigt, dass dieser Befund gut mit dem Vergleich zwischen den Abweichungen von der mittleren Temperatur der Nordhemisphäre und den Isotopen übereinstimmt.
- Nach Entfernung des Trends existieren zwischen den ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen und der Akkumulationsrate in Milcent keine signifikanten Korrelationen mehr. Betrachtet man jedoch die Figur 6.4.1, so scheinen die langfristigen Verläufe der Akkumulationsrate und des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses gewisse Gemeinsamkeiten aufzuweisen. Denselben Eindruck gewinnt man auch in Dye 3, obwohl zeitweise Phasenverschiebungen zwischen den Kurven zu beobachten sind. Die Dye 3-Daten in Tab. 6.4.D weisen darauf hin, dass die ^{10}Be -Konzentration etwas positiver mit der Akkumulationsrate verknüpft ist als die ^{36}Cl -Konzentration, welche ohne Trend signifikant negativ mit der Akkumulationsrate korreliert ist.

Die unterschiedlichen Beziehungen zwischen der Akkumulationsrate und den Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl werden nachstehend noch spezifischer untersucht. Es wird gezeigt, dass

- die Schwankungen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis nicht durch die unterschiedlichen Korrelationen zwischen der Akkumulationsrate und ^{10}Be und ^{36}Cl erzeugt werden
- die Isotopenkonzentrations- und Isotopenflusskurven in den wesentlichen Merkmalen übereinstimmen
- die wichtigsten Merkmale der Kurven auch nach einer "Korrektur" für Verdünnungseffekte erhalten bleiben.

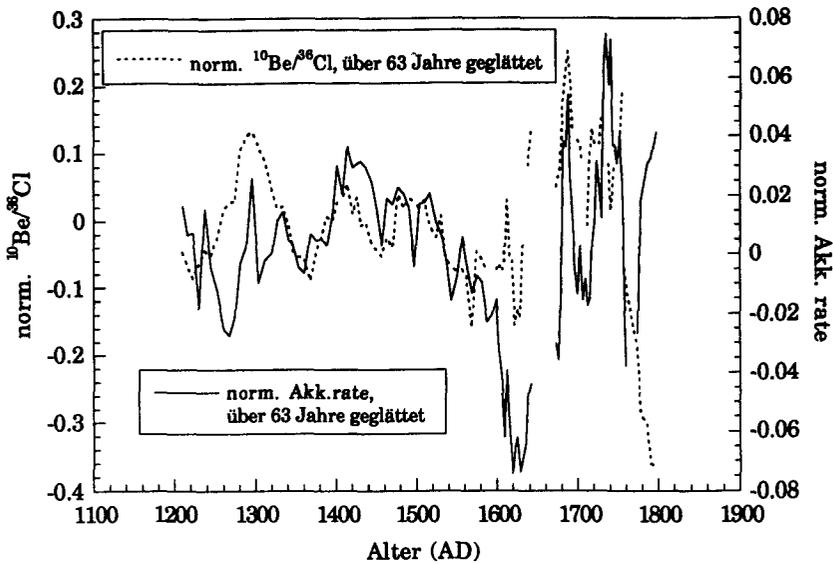
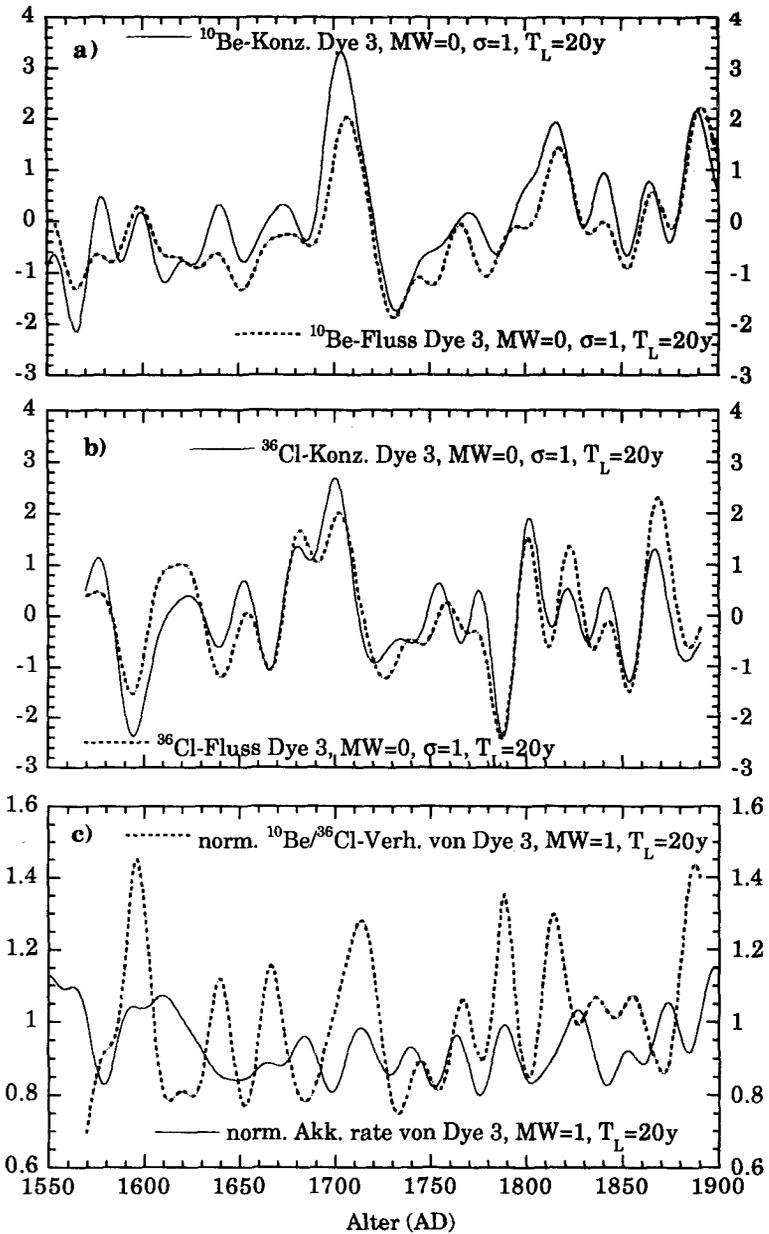


Fig. 6.4.1 Auf den Mittelwert 0 und die Standardabweichung 1 normierte, über 9 Punkte (entsprechend 63 Jahren) geglättete Kurven des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses und der Akkumulationsrate von Milcent in Grönland. Die Skala der Akkumulationsrate ist vergrößert.

6.4.1.2 Die Ähnlichkeit der Verläufe von Isotopenfluss und -konzentration

Bei der Betrachtung der Isotopenkonzentrationschwankungen im Eis wurde schon die Frage aufgeworfen, ob es sich dabei nicht einfach um Verdünnungseffekte aufgrund der schwankenden Akkumulationsrate handelt. Die negative Korrelation mit $r = -0.4$ zwischen der tiefpassgefilterten ^{36}Cl -Konzentration und der Akkumulationsrate in Dye 3 (Tab. 6.4.D) deuten auf einen solchen Effekt hin.



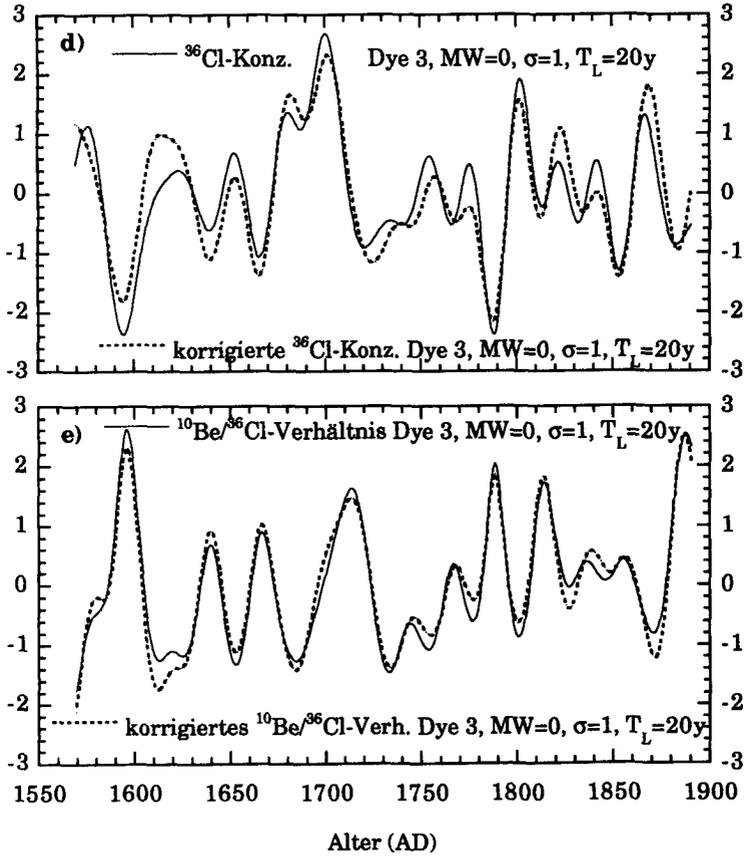


Fig. 6.4.2 (Seite 184/85) Alle Kurven in a), b), d) und e) wurden auf den Mittelwert 0 und die Standardabweichung 1 normiert und mit einer Grenzperiode von $T_L=20$ Jahre tiefpassgefiltert. In a) und b) wird die Aehnlichkeit der Verläufe von Isotopenfluss und -konzentration von ^{10}Be und ^{36}Cl von Dye 3 (a,b) ersichtlich. Die Schwankungen der Akkumulationsrate waren im beobachteten Zeitintervall nur von untergeordneter Bedeutung (c); hier wurde zum Vergleich der Amplituden auf den Mittelwert 1 normiert. Dies belegt auch die Korrektur der ^{36}Cl -Konzentration und des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses in den Figuren d) und e), die zu keinen wesentlichen Veränderungen führt. Bei der Korrektur wurde die Steigung der Regressionsgeraden von der Akkumulationsrate auf die Isotopenkonzentrationen auf Null gesetzt.

Ein Szenario für Verdünnungseffekte bei der Auswaschung

Nehmen wir an, in einem Luftpaket in der Troposphäre sei eine bestimmte Isotopenkonzentration C_1 . Die Isotopenmenge sei an Aerosole angelagert und werde mit dem Niederschlag aus der Luft ausgewaschen. Wenn diese Auswaschung unabhängig von der Niederschlagsmenge aus diesem Luftpaket vollständig ist, dann ist die Isotopenkonzentration im Niederschlag umgekehrt proportional zur Niederschlagsmenge.

Vergleich dieses Szenarios mit den Beobachtungen

Um einen reinen Verdünnungseffekt zu beobachten, müssten die Akkumulationsrate und die Isotopenkonzentration im Eis also antikorreliert sein. Der Fluss als Produkt dieser zwei Parameter bliebe dann konstant. In Tabelle 6.4.E und 6.4.F sind die Korrelationen von Milcent und Dye 3 angegeben. Sie zeigen, dass dieses Szenario nicht zutrifft. Konzentration und Fluss korrelieren wesentlich besser als Akkumulationsrate und Fluss. Längerwährende positive Abweichungen der Akkumulationsrate vom Mittelwert, die in den untersuchten Eiskernen nur zwischen 1800 und 1950 AD in Dye 3 stattfinden, führen zu einer Erhöhung der Isotopenflüsse. Zwischen den Rohdaten der Akkumulationsrate und der Isotopenkonzentrationen bestehen keine negativen Korrelationen. Dies bestätigt sich in Fig. 6.4.2, wo sich Fluss (gleich dem Produkt von Konzentration und korr. Akkumulationsrate) und Konzentration in den wesentlichen Zügen, wie zum Beispiel dem Maunder-Minimum, schön folgen. Das bedeutet also, dass die Konzentrationsverläufe während der bekannten drei Minimumsperioden nicht im Zusammenhang mit der Akkumulationsrate stehen, wie es von Monaghan (1987) vorgeschlagen worden war.

6. Kapitel: Diskussion

	¹⁰ Be-Konz	³⁶ Cl-Konz	Akk.rate	¹⁰ Be-Fluss	³⁶ Cl-Fluss
¹⁰ Be-Konz	1				
³⁶ Cl-Konz	.22	1			
Akk.rate	.24	.1	1		
¹⁰ Be-Fluss	.91		.55	1	
³⁶ Cl-Fluss		.84	.47	.22	1

Tab. 6.4.E *Korrelationen zwischen den Isotopenflüssen und -konzentrationen und der Akkumulationsrate in Milcent. Koeffizienten von $r = 0.2$ sind auf dem 95%-Niveau signifikant.*

	¹⁰ Be-Konz.	³⁶ Cl-Konz.	Akk.rate	¹⁰ Be-Fluss	³⁶ Cl-Fluss
¹⁰ Be-Konz.	1				
³⁶ Cl-Konz.	.53	1			
Akk.rate	-.09	-.12	1		
¹⁰ Be-Fluss	.73		.48	1	
³⁶ Cl-Fluss		.79	.48	.53	1

Tab. 6.4.F *Korrelationen zwischen den Isotopenflüssen und -konzentrationen und der Akkumulationsrate von Dye 3. Koeffizienten ab $r = \pm 0.19$ sind auf dem 95%-Niveau signifikant.*

Die unterschiedlichen Beziehungen zwischen ³⁶Cl und ¹⁰Be und der Akkumulationsrate

Man kann postulieren, dass die unterschiedlichen Korrelationen zwischen der ¹⁰Be- und der ³⁶Cl-Konzentration und der Akkumulationsrate in Tabelle 6.4.D für die grossen Schwankungen im ¹⁰Be/³⁶Cl-Verhältnis verantwortlich sind. Falls unterschiedliche Einflüsse von der Akkumulationsrate auf die beiden Isotope bestehen, so lassen sich diese eliminieren, indem man die Regressionsgeraden von der Akkumulationsrate auf die beiden Isotopenkonzentrationen berechnet und damit die Korrelation auf Null korrigiert. Für ¹⁰Be ist die Korrektur

vernachlässigbar. Der Unterschied zwischen der korrigierten und der unkorrigierten ^{36}Cl -Konzentration von Dye 3 ist in Fig. 6.4.2b gezeigt. Die wesentlichen Züge bleiben erhalten. Die hauptsächlichlichen Amplitudenveränderungen betreffen den Anstieg ins Maunder-Minimum um 1650 AD, die Zeit zwischen 1700 und 1790, sowie das lokale Maximum um 1820 AD. Es ist daher klar, dass auch die wesentlichen Züge des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses erhalten bleiben (Fig. 6.4.2c). Die Korrelationsunterschiede der Isotope zur Akkumulationsrate sind also nicht ein wesentlicher Grund für die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen.

Die Befunde entsprechen den Postulaten von Junge (1975), nach denen die Isotopenkonzentrationen im Niederschlag proportional zur Konzentration in der umgebenden Luft und die Isotopenflüsse in erster Näherung proportional zur Akkumulationsrate sind. Sie konnten durch die Messungen des radioaktiven Niederschlags von Tschernobyl über der Schweiz überprüft werden (Beer, pers. Komm). Die Verteilung des ^{137}Cs war eng mit der Niederschlagsverteilung verknüpft. Die beiden Postulate scheinen näherungsweise selbst im Extremfall unserer Gewitterstudie von 1988 zu gelten, wo die Akkumulationsrate extrem schwankte (vgl. Kap. 5).

6.4.1.3 ^{10}Be , ^{36}Cl , $\delta^{18}\text{O}$ und die nordhemisphärische Temperatur

Bei niedrigen Umgebungstemperaturen erwartet man im Eis kleine $\delta^{18}\text{O}$ -Werte (siehe zum Beispiel Johnsen et al. 1989). Nach der Antikorrelation von ^{10}Be und ^{36}Cl mit dem $\delta^{18}\text{O}$ von Milcent (Tab. 6.4.B) erwartet man demnach auch eine Antikorrelation mit der Lufttemperatur. Um dies zu prüfen, stehen zwei Temperaturkurven der Nordhemisphäre zur Verfügung, die nach 1700 AD sehr gut übereinstimmen: Erstens diejenige von Mittelengland von 1659 AD an (aufbereitet von Manley 1974) und zweitens die Abweichungen von der mittleren Nordhemisphären-temperatur von 1579 bis 1880 AD nach Groveman et al. (1979) sowie daran anschliessend von 1851 bis 1984 nach Jones et al. (1986).

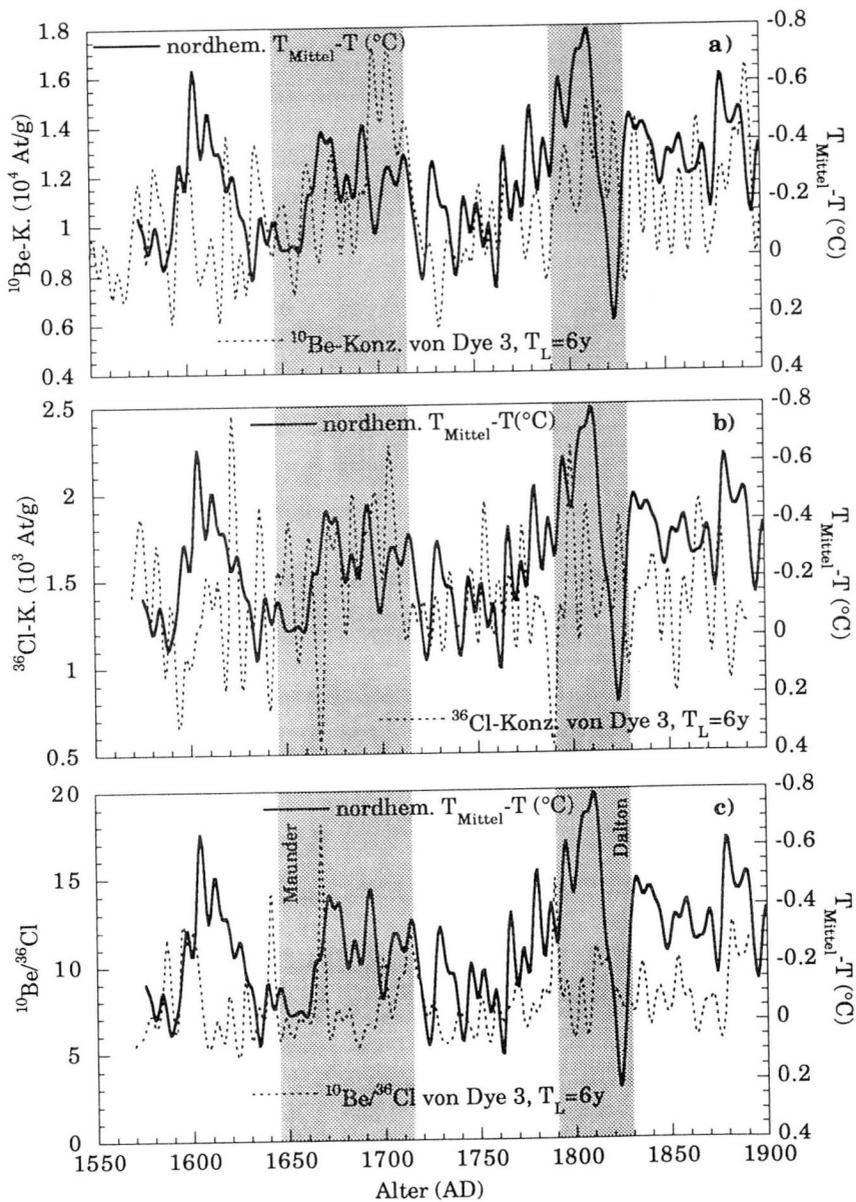


Fig. 6.4.3 Die ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen von Dye 3, ihr Verhältnis und die Abweichung der mittleren Nordhemisphärentemperatur (invers aufgetragen). Alle Kurven sind tiefpassgefiltert (Grenzperiode $T=6\text{y}$).

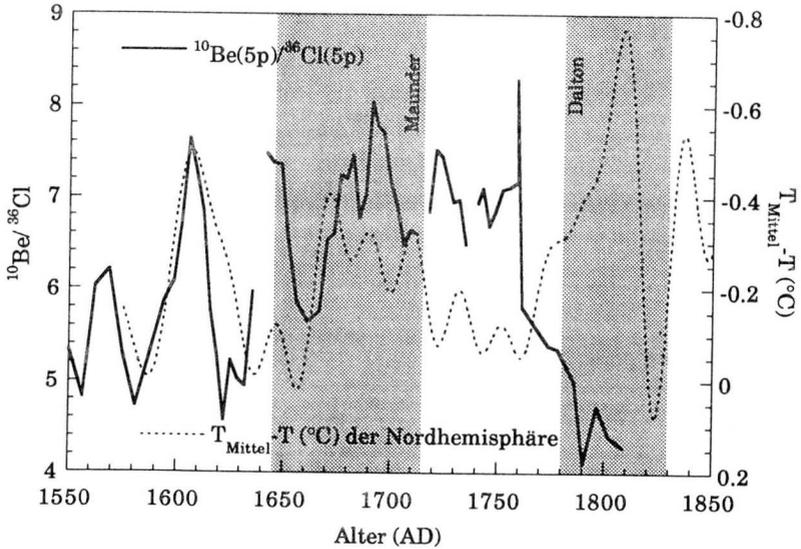
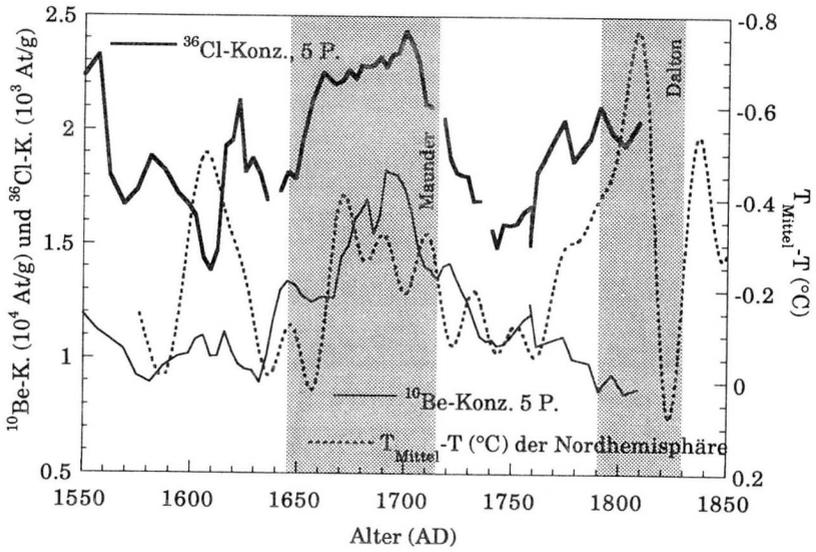


Fig. 6.4.4 Vergleich der über 5 Punkte geglätteten ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konz.n und deren Verhältnis von Milcent mit den Abweichungen von der mittleren Nordhemisphärentemperatur (invers aufgetr., tiefpassgef. $T_L = 20\text{y}$).

Die Antikorrelation im Langzeitverlauf der ^{10}Be -Konzentration von Dye 3 (Fig. 6.4.3) und Milcent (Fig. 6.4.4) und den Temperaturreihen ist über Erwarten deutlich. Speziell fallen der Temperaturanstieg und die gleichzeitige Abnahme der ^{10}Be -Konzentration in Dye 3 in der ersten Hälfte des 20. Jahrhunderts auf. Die ^{36}Cl -Werte dieses Abschnitts fehlen noch. Die Korrelationen zwischen der Temperatur und der ^{36}Cl -Konzentration variieren intervallweise in der Zeit zwischen 1600 und 1900 AD stärker, so dass über diese Zeit praktisch keine Korrelation besteht. Ebenfalls sehr auffällig ist die Zeit um 1600 AD, wo die ^{10}Be - und die Temperaturkurve eher korreliert sind. Eine Erklärung existiert dafür nicht. Eine Uebereinstimmung im Detail und eine durchgehende Phasenkohärenz werden natürlich auch nicht erwartet, zumal es sich bei der Temperaturreihe um eine Rekonstruktion aus vielen Messstationen mit variabler Verlässlichkeit handelt. Aus demselben Grund erwartet man auch keine vollständige Uebereinstimmung mit den $\delta^{18}\text{O}$ -Reihen von Dye 3 und Milcent.

Unabhängig von der Frequenzgrenze der Filterung findet man zwischen diesen Temperaturreihen und dem $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis zwischen 1700 und 1900 AD eine Antikorrelation (Fig. 6.4.3, 6.4.4), die für die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Reihe von Dye 3 auf dem 95%-Niveau signifikant ist. Es scheint, dass die Prozesse, die zu einer Antikorrelation von ^{10}Be und tendenziell auch von ^{36}Cl mit der Temperatur führen, in deren Verhältnis leicht abgeschwächt sind.

Die Schwankungen in den $\delta^{18}\text{O}$ -Reihen in Grönland sind während des betrachteten Zeitintervalls gering und überschreiten nur während des Maunder-Minimums in Milcent zwei Promille (Fig. 6.4.5). Sowohl in Milcent wie auch in Dye 3 finden sich Phasen verschiedener Korrelationen zwischen $\delta^{18}\text{O}$ und ^{10}Be und ^{36}Cl (Fig. 6.4.5 und 6.5.2). Bei beiden sieht man zum Beispiel um 1700 AD eine deutliche Antikorrelation, während die Kurven vor 1680 AD in Dye 3 oder im 15. Jahrhundert in Milcent eher korreliert erscheinen. Die $\delta^{18}\text{O}$ -Reihen dürften relativ stark lokal beeinflusst sein, was sich auch darin äussert, dass die Kurven von Dye 3 und Milcent kaum Gemeinsamkeiten

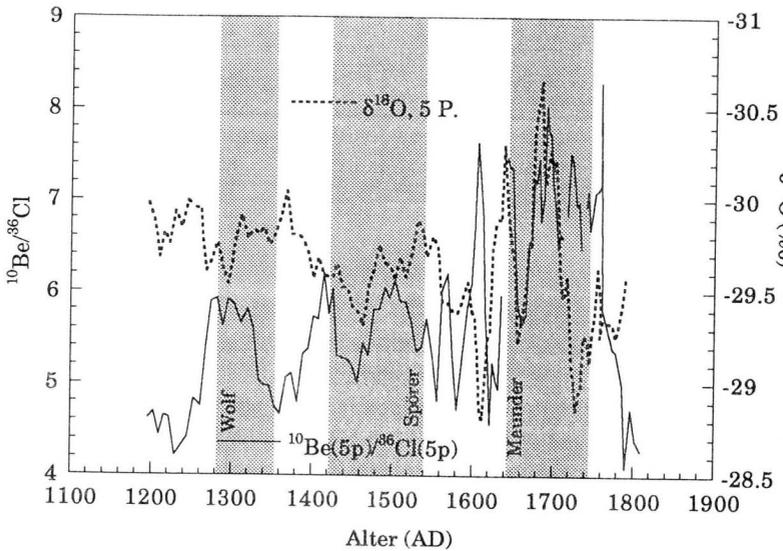
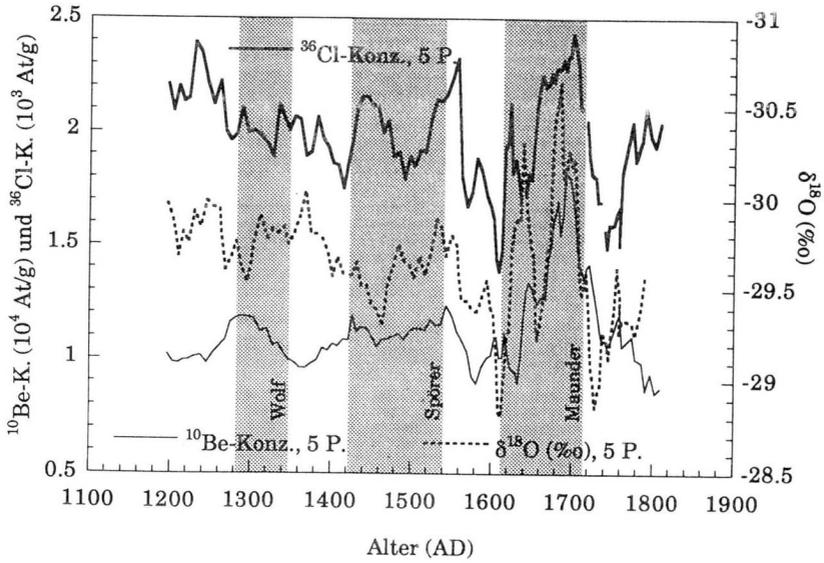


Fig. 6.4.5 Die ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen, deren Verhältnis und $\delta^{18}\text{O}$ (invers aufgetragen) von Milcent. Die Kurven sind über 5 Punkte geglättet.

aufweisen (nicht gezeigt). Aufgrund der Resultate von Milcent und des Vergleichs der Isotope mit den Temperaturreihen sind ^{10}Be und vermutlich auch ^{36}Cl eher antikorreliert mit diesen beiden Klimaparametern. Dies muss jedoch in anderen Kernen noch überprüft werden.

Das Gleissberg-Signal in Sonnenaktivitäts- und Klimaparametern

Die obige Antikorrelation zwischen den Isotopen und der nordhemisphärischen Temperatur ist im Bereich des Gleissbergzyklus mit einer Periode von etwa 87 Jahren ebenfalls vorhanden. In Figur 6.4.6 wurden ^{10}Be , ^{36}Cl , die Temperatur der Nordhemisphäre sowie das $\Delta^{14}\text{C}$ aus Baumringen (nach Stuiver und Braziunas 1993) zwischen 86 und 90 Jahren bandgefiltert. Die $\Delta^{14}\text{C}$ -Kurve wurde um -20 Jahre verschoben, um die längere Aufenthaltszeit in der Atmosphäre zu korrigieren. Die Temperatur ist invers aufgetragen. Sämtliche Kurven verlaufen sehr schön in Phase. Das langperiodische Gleissbergssignal scheint durch die Temperatur sehr direkt übernommen zu werden.

Fazit

Die Vergleiche der Isotope mit $\delta^{18}\text{O}$ von Milcent und der Temperatur der Nordhemisphäre zeigen also übereinstimmend eine Antikorrelation. Kleine Diskrepanzen dürften an der Verschiedenheit der Klimazeitreihen und an den kleinen Temperaturänderungen auf der Nordhemisphäre während des betrachteten Zeitintervalls liegen. Die dadurch verursachten $\delta^{18}\text{O}$ -Schwankungen lassen sich nur schwer von lokalen Signalen unterscheiden. Dies bestätigt ein Vergleich zwischen den $\delta^{18}\text{O}$ -Reihen von Dye 3 und Milcent, der nur wenige Gemeinsamkeiten zeigt. Deshalb erstaunt es auch nicht, dass das Vorzeichen der Korrelationen zwischen den Zeitreihen von ^{10}Be , ^{36}Cl , deren Verhältnis und $\delta^{18}\text{O}$ in Dye 3 variabel ist.

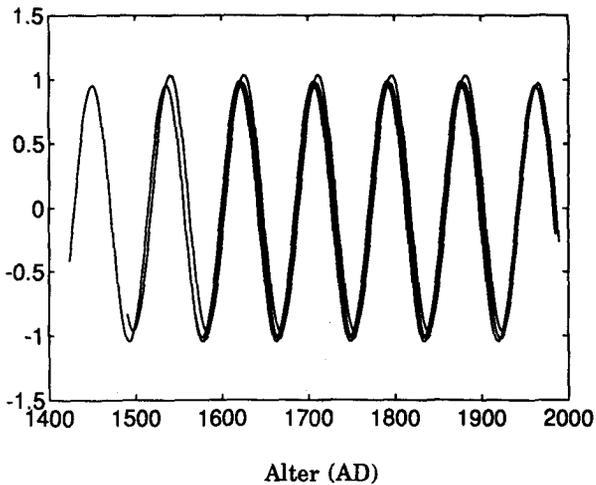


Fig. 6.4.6 Zwischen 86 und 90 Jahren bandgefilterte und normierte Zeitreihen der ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen von Dye 3, der Abweichungen von der nordhemisphärischen Temperatur (wegen der Antikorrelation zu den Isotopen invers aufgetragen) und des $\Delta^{14}\text{C}$ aus Baumringen (um -20 Jahre verschoben, um für die längere mittlere Aufenthaltszeit zu korrigieren). Der Gleissberg-Zyklus ist in allen Zeitreihen in Phase.

Bemerkung

Die Aussage, wonach das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis nicht mit $\delta^{18}\text{O}$ und der Akkumulationsrate korreliert ist, kann nicht einfach auf *globale* Klimaänderungen, wie zum Beispiel das Eiszeitende, übertragen werden. Damals stieg das Mittel der Akkumulationsrate *aller Eiskerne* auf das Doppelte, wodurch sich die Isotopenkonzentrationen im Mittel halbierten, da die Produktionsraten in der Atmosphäre unverändert blieben. Gleichzeitig änderten sich die mittlere Temperatur um mehrere Grade und das $\delta^{18}\text{O}$ im Eis um mehrere Promille. Solche Ereignisse lassen sich

nicht mit den geringen Klimaveränderungen in den letzten Jahrhunderten vergleichen. Das Eiszeitende eignet sich jedoch für Untersuchungen der Klimaabhängigkeit des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses. Seit 1992 steht mit dem Summit-Kern ein punkto Länge und Auflösung hervorragendes Eisarchiv für die Klärung dieser Fragen zur Verfügung (z. B. Stauffer 1993).

6.4.2 Das Variabilitätspotential im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis durch Auswaschungsprozesse

Aus den bisherigen Vergleichen und Abschätzungen kann nicht erklärt werden, woher die Schwankungen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis stammen. Die Ähnlichkeit der Verläufe der Verhältnisse in den drei untersuchten Kernen deutet jedoch auf eine überregionale Ursache hin.

Nachfolgend wird erläutert, dass eine Auftrennung von ^{10}Be und ^{36}Cl während des Transports aus der Stratosphäre unwahrscheinlich ist deshalb als Ursache für die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen kaum in Frage kommt, und es wird gezeigt, wie gross das Variabilitätspotential der Auswaschung ist.

Modulationen während des Transports und bei der Auswaschung

Der Transport in der Atmosphäre

Zu Beginn der ^{10}Be - und ^{36}Cl -Messungen war man der Ansicht, dass diese beiden Isotope nach der Produktion in der Stratosphäre schnell an Aerosole angelagert, mit diesen in die Troposphäre transportiert und hernach innerhalb weniger Wochen durch Niederschläge ausgewaschen werden. Kontrollmessungen in der Stratosphäre waren aber wegen des benötigten grossen Luftvolumens von etwa 1000 m^3 praktisch nicht durchführbar. Aufgrund der ersten $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Resultate wurde mehrmals ein unterschiedliches Verhalten der beiden Isotope in der Atmosphäre oder nach der Deposition erwogen. Im Zusammenhang mit den Arbeiten

zum Ozonloch, bei dessen Bildung Chlor eine zentrale Rolle spielt, konnte auch gezeigt werden, dass sich Chlor in der Stratosphäre sehr reaktiv verhält und in verschiedenen Verbindungen erscheint. Wahlen et al. (1991) fanden bei einer stratosphärischen Messung, dass zirka 90% des ^{36}Cl in der Form von gasförmigem HCl gebunden ist. Man ist heute der Ansicht, dass Salzsäure-Gas die Hauptsenke von Chlor in der Stratosphäre ist (Kerr, pers. Komm).

Als Folge der Reaktivität von Chlor, die es ihm unter Umständen erlaubt, innerhalb von sehr kurzer Zeit (möglich sind Grössenordnungen von Stunden und Minuten) die Phase zu wechseln, kann von den stratosphärischen Messungen nicht automatisch auf die "Konfektion" in der Troposphäre geschlossen werden. Beryllium verhält sich dagegen relativ inert und dürfte an Aerosole gebunden bleiben.

Die zonalen Winde in der Stratosphäre sind stark. Deshalb ist anzunehmen, dass Beryllium und Chlor dort homogen gemischt sind, selbst wenn Chlor gasförmig als HCl auftritt. Nach Reiter (1975) ist der Anteil diffusiver und kleinskaliger Prozesse bei der Heruntermischung stratosphärischer Luft in die Troposphäre sehr gering (< 1%). Somit ist eine Fraktionierung während des Heruntermischens unwahrscheinlich.

Aufgrund von Messungen der Breitenverteilung der ^{90}Sr -Deposition nimmt man heute an, dass ^{10}Be und ^{36}Cl , analog vor allem durch Tropopausenfaltungen, in mittleren Breiten heruntertransportiert werden. Die heruntergemischte Luft wird innert weniger Tage erodiert und mit Umgebungsluft vermischt. Danach werden die Isotope zum überwiegenden Teil durch nasse Deposition aus der Atmosphäre eliminiert. Dies bestätigt eine unpublizierte Studie von Blinov für ^{10}Be (Blinov 1993, entsprechende Messungen für ^{36}Cl fehlen). Er trug den ^{10}Be -Fluss eines Jahres von verschiedenen Messstellen der Nordhemisphäre gegen die Niederschlagsmenge an diesen Orten auf und fand einen linearen Zusammenhang (siehe auch Brown et al. 1989; Turekian und Volchok 1979). Dies zeigt, dass die trockene Deposition an Orten mit regelmässigen Niederschlägen höchstens einen sehr geringen Beitrag

zur ^{10}Be -Deposition liefert. Aus diesen Vorstellungen zusammen mit der kurzen Aufenthaltszeit der Isotope in der Troposphäre (wenige Wochen) ergibt sich im Mittel die Depositionsverteilung von Lal in Fig. 5.3.9, in der der stratosphärische Anteil der Isotope ($2/3$ der gesamten atmosph. Produktion) eine Breitenverteilung mit einem Maximum in mittleren Breiten aufweist, der troposphärische Anteil ($1/3$ der gesamten atmosph. Prod.) hingegen nahezu breitenunabhängig deponiert wird.

Beim Auswaschungsvorgang kann es von grosser Wichtigkeit sein, in welcher Form das Chlor gebunden ist. Da der ganze Auswaschungsprozess sehr komplex ist und die beobachteten Ereignisse zum Teil sehr individuelle Charaktere aufweisen (z. B. Schumann 1989), wird die Auswaschung hier nur in groben Zügen behandelt (nach LAPETH/IGW 1989, Schumann 1989).

Der Auswaschungsvorgang für Aerosole und Gase

Allgemein wird die Entwicklung einer Wolke nach ihrer Entstehung und die Art und die Menge des erzeugten Niederschlags hauptsächlich durch die grossräumigen Verhältnisse, wie zum Beispiel Temperaturverteilung, Konvektivität und Feuchtigkeitsnachschub, bestimmt. Die mikrophysikalische Struktur ist eher für die Schwellenbedingungen und die Zeit der Niederschlagsbildung verantwortlich.

Ausserhalb der Tropen wird der Niederschlag fast ausschliesslich über den Bergeron-Findeisen-Prozess gebildet, bei dem die eigentliche Niederschlagsbildung über die Eisphase erfolgt. Wasserlösliche Aerosole sind in der Atmosphäre immer mit einem Wasserfilm umgeben. Erreicht eine Luftmasse Sättigung, d. h. 100% relative Luftfeuchtigkeit (z. B. durch Hebung oder durch Aufeinandertreffen zweier Luftmassen), so bilden sich an diesen Aerosolkeimen Wassertröpfchen (sog. heterogene Keimbildung). Es entsteht eine Wolke. Bei Fortgang der auslösenden Strömung wächst die Luftfeuchtigkeit auf Bruchteile von Prozenten über 100% an. Mit zunehmender Uebersättigung wachsen diese Tröpfchen,

wobei das Verhältnis zwischen Uebersättigung S und Tröpfchenradius r durch die Köhler-Gleichung

$$e/e_s = 1 + a/r - b/r^3$$

beschrieben wird mit

- e : Wasserdampfdruck an der Tropfenoberfläche
- e_s : Sättigungsdampfdruck für Wasser bei der Temperatur T
- $S = e/e_s$

$(1+a/r)$ ist der sogenannte Krümmungsterm, $(1-b/r^3)$ der Lösungsterm, der ermöglicht, dass sehr kleine Tröpfchen bei relativen Feuchtigkeiten unter 100% gebildet werden und mit ihrer Umgebung im chemischen Gleichgewicht stehen. Der erste Term ist nur von der Oberflächenkrümmung des Tropfens abhängig und bestimmt die Wachstumsgeschwindigkeit, wenn Tropfen in Abwesenheit von Aerosolen gebildet werden. Diese sogenannte homogene Keimbildung ist in der Natur nur äusserst selten unter absoluten Reinluftbedingungen anzutreffen. Figur 6.4.7 zeigt, dass sich diese beiden Terme entgegenwirken. Oberhalb eines kritischen Radius r^* können die Tröpfchen nach Erreichen einer kritischen Uebersättigung S^* auch ohne Zunahme der Uebersättigung schnell weiterwachsen (sog. aktivierte Tröpfchen). S^* und r^* hängen von den chemischen Verhältnissen in der Wolke ab.

Nach der Entstehung der Tröpfchen waschen sie durch diffusive Anlagerung anderer Tröpfchen weiter. Dieses diffusive Wachstum ist aber für die beobachtete Niederschlagsbildung zu langsam. Verschmutzte Luft enthält aber immer auch wasserunlösliche Tonerden (jeder millionste Kondensationskeim), die eine ähnliche Struktur wie Wassereis haben. Diese wirken als Eiskeime. An diesen Eiskristallen lagern sich Wassertröpfchen wesentlich effizienter an, da der Dampfdruck über Eis geringer ist als über Wassertröpfchen. Durch diesen Unterschied können Eiskristalle auf Kosten von Wassertröpfchen wachsen. Die Form und die Anzahl der Eiskristalle sind temperaturabhängig. Die Wachstums

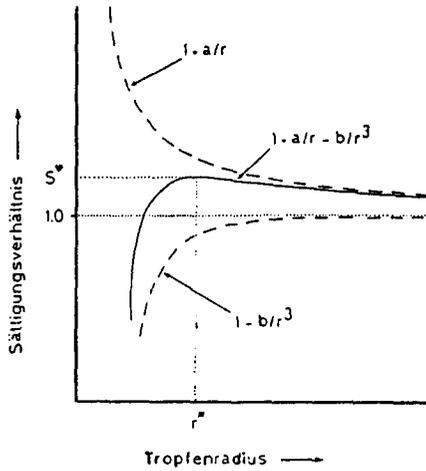


Fig. 6.4.7 (aus LAPETH/IGW 1989) Das Sättigungsverhältnis S als Funktion des Lösungsströpfchenradius r (Köhler-Gleichung). Der Massstab für Sättigungsverhältnisse S grösser als 1 ist stark überhöht.

geschwindigkeit ist für alle Kristallformen etwa dieselbe. Die Radiuschwelle, ab der unterkühlte Wassertröpfchen eingefangen werden, ist hingegen bei säulenförmigen Kristallen am kleinsten ($40 \mu\text{m}$). Mit dieser Eiskristallform bilden sich also am schnellsten Schneeflocken. Durch Zerbrechen der wachsenden Schneeflocken kann sich die Zahl der Eiskeime schnell vermehren. In konvektiven Wolken findet das Kristallwachstum vor allem durch Anfrieren unterkühlter Tröpfchen an Eiskristalle statt (sog. Riming), welches zu Graupelteilchen führt. Es findet bei Temperaturen von über -5°C statt. In gleichmässigen Niederschlägen (stratifizierte Wolken) herrschen Deposition von Wasserdampf auf Eiskristallen und Zusammenlagerung von Eiskristallen vor (LAPETH/IGW 1989, Kap. 3). In solchen Wolken kann aber dennoch während des Ausfallens einer Schneeflocke aus der Wolke in den tieferliegenden Wolkenschichten Riming auftreten.

Aerosolteilchen spielen also als Kondensationskeime bei der Wolkenbildung eine entscheidende Rolle. Kommt es zum Ausfall von Niederschlag, werden sie aus der Luftmasse entfernt (sog. nasse Deposition). Die involvierten Aerosolteilchen stammen hauptsächlich aus einem Grössenbereich zwischen 0.1 und 2 μm Durchmesser (sog. Akkumulationsbereich). Neben dem Durchmesser sind für die Effizienz der Entfernungsmechanismen für die Aerosole aus der Luft vor allem deren hygroskopische Eigenschaften entscheidend.

Es zeigt sich, dass diffusiv gewachsene Schneekristalle ziemlich rein sind, selbst wenn sie in verschmutzter Umgebung entstehen, da sie durch Anlagerung von Wasserdampf wachsen. Tritt aber Riming auf, bei dem ganze Wassertröpfchen an die Schneekristalle angelagert werden, kann die Entfernung von Aerosolen aus der Luft bis zu sechs Grössenordnungen effizienter sein. Neben der Elimination der Kondensationskeime und dem Reinigen der Luftmasse durch Aufprall von Wassertröpfchen auf fallenden Niederschlag (da beides in der Wolke stattfindet, wird es unter "In-cloud-scavenging" zusammengefasst) kann auch die Auswaschung unterhalb der Wolke einen namhaften Beitrag zur Elimination von Aerosolen aus der Luft beitragen (sog. "Below-cloud-scavenging"). In Feldstudien fand Schumann (1989), dass alle Scavenging-Arten zusammen zirka 60 - 70% und mehr der Aerosolfracht einer Luftmasse deponierten.

Für die Auswaschung von Gasen aus der Atmosphäre spielt deren Wasserlöslichkeit eine entscheidende Rolle. Sie lösen sich im Wassertröpfchen, das sich um das Aerosol gebildet hat. Deshalb hängt der Umfang der Reaktion stark vom pH des Tropfens und dessen chemischer Zusammensetzung ab. Wenn das Gas innerhalb des Tropfens durch weitere chemische Reaktionen umgewandelt wird, kann das Lösungsgleichgewicht weit überschritten werden. Während also das In-cloud-Scavenging eines Gases hauptsächlich durch dessen Henry-Koeffizienten und die chemischen Verhältnisse in der Wolke bestimmt wird, sind für die Effizienz des Below-cloud-scavenging auch meteorologische Parameter wichtig. Nach Schumann (1989) werden Gase

unterhalb der Wolke durch Schneeflocken bis zu zwei Grössenordnungen effizienter ausgewaschen als durch Tropfen.

Fazit

Bei der Betrachtung des Auswaschungsprozesses fällt auf, dass die Scavenging-Effizienz von Aerosolen und Gasen im Bereich von mehreren Grössenordnungen schwanken kann. Sie hängt von vielen mikro-physikalischen, chemischen und meteorologischen Parametern ab, die vor Ort schwierig zu bestimmen sind. Diese Parameter können ihrerseits von Ereignis zu Ereignis sehr unterschiedlich sein.

Bedeutung für ^{10}Be und ^{36}Cl :

Nach den obenstehenden Darlegungen erscheinen Kenntnisse über die Form, in der ^{10}Be und ^{36}Cl in der Atmosphäre vorliegen, sehr wichtig zu sein. Darüber gab es aber bisher keine direkte Studien in der Troposphäre. A priori fällt der Durchmesser stratosphärischer Aerosole in den Bereich von 0.1 - 2 μm (Watson et al. 1990), welcher beim Niederschlagsbildungsprozess am meisten involviert ist. ^{10}Be und ^{36}Cl nehmen somit in Aerosolen und Gasen stratosphärischen Ursprungs am Auswaschungsprozess teil, weshalb ihre Auswaschungsraten den oben diskutierten Einflüssen unterliegen.

Erste Denudermessungen auf dem Jungfraujoch, Schweiz

Eine elegante Methode zur Beantwortung der Frage nach der vorliegenden Form von ^{36}Cl und ^{10}Be in der Atmosphäre ist die nach Aerosol- und Gasphase getrennte Isotopenmessung in einem Luftvolumen. Eine solche Auftrennung lässt sich mit der Denudertechnik erreichen. In Zusammenarbeit mit der Gruppe Gäggeler am Paul Scherrer Institut wurden auf dem Jungfraujoch (Schweiz) während einer Woche Luftproben genommen. Hinter dem Denuder (innenbeschichtetes Rohr, auf dem die Gase haften) wurde ein basisches Partikelfilter

angebracht. Diese Anordnung erlaubt die Trennung von ^{10}Be und ^{36}Cl in Partikeln und Gasen. Insgesamt konnten bis jetzt fünf ^{36}Cl -Proben gemessen werden. Die ^{36}Cl -Werte waren nach der ersten Messung in der Stratosphäre von Wahlen et al. (1991), die über 90% des ^{36}Cl als HCl vorfanden, überraschend. In vier von fünf Proben war mehr als 80% des ^{36}Cl auf dem Partikelfilter. Nur in einer Probe war es zu 100% auf dem Denuder zu finden. Die ^{10}Be -Proben wurden noch nicht gemessen. Nach ersten Testmessungen von Luftproben erwartet man aber, dass ^{10}Be an Partikeln angelagert ist.

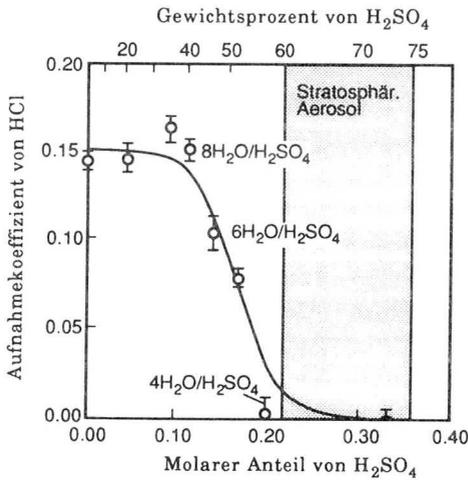


Fig. 6.4.8 (aus Watson et al. 1990) Der Aufnahmekoeffizient von HCl in Tröpfchen als Funktion des molaren Anteils von H_2SO_4 bei 283 K. Die Fehlergrenzen bezeichnen die 1σ -Fehler des Experiments, enthalten aber nicht die Unsicherheit des Gaskoeffizienten. Die ausgezogene Kurve ist das Resultat eines Modells, bei dem der Aufnahmekoeffizient von HCl zur Hauptsache durch die Löslichkeit von HCl in H_2SO_4 -Lösungen bestimmt wird (für Details siehe Watson et al.).

Bei diesen Messungen handelt es sich um die ersten ihrer Art. Das Experiment zeigt, dass die Diskussion über das Verhalten von Chlor in der Troposphäre noch offen ist. Vorerst braucht es weitere Messungen, die die Denuder-Resultate bestätigen. Es ist durchaus möglich, dass weitere widersprüchliche Resultate erhalten werden. Watson et al. (1990) haben in ihren Laborexperimenten nämlich gezeigt, dass Chlor bei einem bestimmten $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Verhältnis im Tropfen fast sprunghaft vom Wasserfilm um das Aerosol in die Gasphase wechseln kann. In Figur 6.4.8 sieht man, dass dieses kritische Verhältnis in der Stratosphäre tatsächlich erreicht werden kann. Wie diese Resultate auf troposphärische Bedingungen übertragen werden können, ist Gegenstand weiterer Untersuchungen.

Überlegungen zu unseren Messresultaten

Die Frage, in welcher Form ^{36}Cl in der Atmosphäre vorliegt, kann noch nicht beantwortet werden. Es ist möglich, dass die Verteilung von ^{36}Cl zwischen Gas- und Aerosolphase von den Umgebungsbedingungen abhängt.

Unter dieser Voraussetzung ist es leicht vorstellbar, dass das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis während eines einzelnen Niederschlags schwankt, besonders, wenn es sich um einen stark konvektiven Niederschlag wie im Falle des Gewitters handelt. Mögliche Ursachen für die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen im Gewitter sind dann:

- unterschiedlich starkes Riming im Verlaufe des Niederschlags. Diese Vermutung wird gestützt durch die Veränderung der Niederschlagsform (Auftreten von Hagel in der intensivsten Zelle) im Verlauf des Gewitters
- Stratosphärenlufteinbruch in der intensivsten Zelle mit anderem $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis als in der Troposphäre
- Erschöpfung des ^{36}Cl -Gehalts im ausgewaschenen Luftpaket. Dies könnte das stärkere Einbrechen der ^{36}Cl -Konzentration und das schnellere Zurückgehen des ^{36}Cl -Flusses verglichen mit den Berylliumflüssen erklären

schnellere Zurückgehen des ^{36}Cl -Flusses verglichen mit den Berylliumflüssen erklären

- Auswaschung von Staub mit unterschiedlichem $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis zu Beginn des Niederschlags
- Frischluftzufuhr im Verlaufe des Niederschlags.

Im Falle der Eiskerndaten gilt es zu klären, wie solche Differenzen bei der Auswaschung in den über mindestens ein Jahr gemittelten Daten von Grönland bestehen bleiben können. Gemittelt über viele Niederschlagsereignisse erwartet man einen gewissen Ausgleich obiger Effekte. Betrachtet man den Extremfall, dass ^{10}Be an Aerosolen und ^{36}Cl an HCl gebunden sind, dann wird ^{10}Be im Mittel zu ungefähr zwei Dritteln (Schumann (1989) folgend) und ^{36}Cl in HCl als sehr wasserlöslichem Gas sogar nahezu vollständig ausgewaschen. Ist Chlor auf beide Phasen verteilt, so sollten sich allfällige Unterschiede noch zusätzlich ausgleichen. Die Wichtigkeit der nassen Deposition als Senke sowohl für Aerosole als auch für wasserlösliche Gase ist wahrscheinlich verantwortlich für die parallelen Signale im Eis, obwohl im Auswaschvorgang ein viel grösseres "Stör"-Potential liegen würde.

Fazit

Aus stark vereinfachten Betrachtungen über den Auswaschvorgang in den Wolken geht hervor, dass bei der Niederschlagsbildung ein grosses Potential für Schwankungen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis liegt. Das Gewitterexperiment belegt, dass das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis in einem Niederschlag tatsächlich variiert. Um genauere Angaben über das Schicksal der beiden Isotope bei der Auswaschung zu machen, braucht man zuerst bessere Kenntnisse über den Ablauf der Niederschlagsbildung unter verschiedenen atmosphärischen Bedingungen.

6.5 ^{10}Be und ^{36}Cl als Indikatoren solar-terrestrischer Beziehungen

6.5.1 Einführung

Die Sonne hat einen fundamentalen Einfluss auf das irdische Klima. Die Erdrotation und die differentielle Einstrahlung sind die treibenden Kräfte des atmosphärischen Geschehens. Der entscheidende Einfluss der Sonne auf die Erdatmosphäre ist unbestritten. Es besteht jedoch eine offene Diskussion über die Auswirkungen von Sonnenaktivitätsänderungen auf das Klima der Erde. Die Frage nach der Stärke der Kopplung zwischen solarer Abstrahlung und irdischer Zirkulation wurde insbesondere im Zusammenhang mit sehr grossen Klimaänderungen wie den Eiszeiten gestellt. Erst in neuester Zeit wurde auch bei Klimaänderungen im Holozän nach solaren Ursachen gesucht.

Seit einigen Jahren wird der Frage nachgegangen, ob die minimalen Einstrahlungsveränderungen und die Ionisationseffekte in der hohen Atmosphäre durch die Sonne nicht über Verstärkungsmechanismen Auswirkungen auf die Schichtung und die Zirkulation in den unteren Atmosphärenschichten und somit auf das Wettergeschehen haben. Eine Reaktion der Atmosphäre auf kleine Verschiebungen in der Sonnenaktivität brächte unter Umständen auch neue Voraussetzungen für die Diskussion um die Grösse des anthropogenen Treibhauseffekts mit sich. Bis heute wird für die Kalibrierung von Modellen zur Simulation des Treibhauseffekts nämlich angenommen, dass die beobachtete Temperaturzunahme ausschliesslich der Zunahme der Treibhausgase zuzurechnen ist. Wenn nun gleichzeitig zur Zunahme der Treibhausgase auch eine Veränderung der Sonnenaktivität stattfindet, die sich in der mittleren Temperatur der Atmosphäre niederschlägt, wäre diese Art der Eichung unkorrekt.

Bis heute sind die massgebenden Prozesse für eine solche Verbindung nicht sicher identifiziert. Im Mittelpunkt des Interesses stehen aber nach wie vor Wolkenbildungsprozesse an ionisierten Teilchen sowie die

Mechanismen der Fortpflanzung der elektrischen Schockwellen in den tieferen Luftschichten.

6.5.2 Ein kurzer Ueberblick über verschiedene Ansätze zur Detektion solarer Einflüsse auf das Wetter und Klima

Verschiedene Gruppen haben versucht, die subtilen Effekte solarer Variationen in der grossen Variabilität der atmosphärischen Zirkulation nachzuweisen.

Mehrere Arbeiten können in einem ersten Ansatz zusammengefasst werden. Sie untersuchen den solaren Einfluss auf bestimmte atmosphärische Erscheinungen sowie deren Verknüpfung mit der atmosphärischen Zirkulation im allgemeinen. Labitzke und van Loon (1987) beschäftigten sich mit den Auswirkungen des Schwabezyklus auf die Quasi Biennial Oscillation (QBO)¹ in der Stratosphäre. Ein statistisch signifikanter Zusammenhang zwischen dem Sonnenfleckenzyklus und der stratosphärischen Zirkulation konnte nur für die östliche Phase der QBO gefunden werden (Labitzke und Chanin 1988; Venne und Dartt 1990). Die QBO, eine Erscheinung der äquatorialen Stratosphäre, kann die Hoch- und Tiefdruckgebiete in mittleren Breiten beeinflussen und sich über diese auf die polare Zirkulation auswirken (Holton eingereicht; O'Sullivan und Salby 1990). Die Strömungsverhältnisse der Stratosphäre und der Troposphäre sind über die aufwärtsgerichtete Energie-Dissipation troposphärischer Wirbel gekoppelt, welche durch das Brechen dieser Wirbel an der Tropopause zustande kommt (Holton 1990). Diese Energie oberhalb der Tropopause steuert ihrerseits wieder den Luftmassenaustausch zwischen den beiden Atmosphärenschichten. Verknüpft man die Ergebnisse dieser Arbeiten, so zeigen sie einen möglichen Weg auf, wie sich Auswirkungen von Sonnenaktivitätsänderungen auf die QBO in der Stratosphäre in der atmosphärischen Zirkulation in der Troposphäre fortpflanzen und damit wiederum auf den

¹ Bei der QBO handelt es sich um eine Oszillation der Strömung in der tropischen Stratosphäre, die eine Periode von ungefähr zwei Jahren aufweist.

Luftmassenaustausch zwischen den beiden Atmosphärenschichten Einfluss nehmen könnten.

Verschiedene Autoren suchen direkt nach Verbindungen zwischen troposphärischer Zirkulation und Ereignissen auf der Sonne und fanden in der Troposphäre eine Verminderung der 300 mb-Höhe und eine breitenabhängige Veränderung der Zyklonizität innerhalb von Tagen nach Durchgang von "Forbush decreases"² (u. a. Roberts und Olson 1973; Tinsley et al. 1989).

Dieser statistisch-dynamische Ansatz zeichnet eine Wirkungskette in der Atmosphäre nach, in welcher der solare Einfluss in der stratosphärischen Strömung angreift. Die offenen Fragen liegen vor allem in der statistischen Signifikanz der Korrelationen zwischen Sonnenaktivität und den verschiedenen irdischen Strömungsregimen.

Ein anderer Ansatz ist die Modellierung der vertikalen, atmosphärischen Wirkungskette. Hauglustaine und Gérard (1990) berechneten als Folge von Kaskaden energetischer Partikel (durch solare Protonen oder durch eine Hülle einer Supernovae) Veränderungen der stratosphärischen Zusammensetzung und des vertikalen Temperaturprofils. Diese Simulationen gelten für den Spezialfall eines sehr grossen Einfalls geladener Teilchen während der Umkehrung des geomagnetischen Feldes der Erde. In diesem Extremfall sind die Effekte einer Teilchenkaskade wesentlich stärker und weiter über die ganze Atmosphäre verbreitet als in der heutigen Situation. Grundsätzlich werden aber dieselben Mechanismen wirksam. Nach diesem Modell sind nach solchen Ereignissen eine starke Ozonabnahme in der Stratosphäre und eine Abnahme der Oberflächentemperatur um mehrere Grad Celsius zu erwarten. Die Messungen von Tinsley et al. (1989) nach viel kleineren "Forbush decreases" stimmen qualitativ mit den berechneten Temperaturprofilen in der Troposphäre überein. Die von Hauglustaine und Gérard (1990) modellierten, qualitativ gleichen Effekte nach dem

² *Einbrüche der galaktischen kosmischen Strahlung nach dem Durchgang solarer Protonenereignisse*

Durchgang eines solaren Protonenereignisses finden Tinsley et al. (1989) jedoch nicht. Ihre Messungen haben eine Auflösung von Stunden und untersuchen eine Zeitspanne von wenigen Tagen. Da sie im Gegensatz zum Modell von Hauglustaine und Gérard (1990) die zeitliche Dynamik beinhalten, sind sie jedoch auch nicht detailliert mit den stationären Modellrechnungen vergleichbar. Die wichtigsten offenen Fragen betreffen das Verständnis der mikrophysikalischen Vorgänge an den Aerosolpartikeln und Wolken, die zur Kopplung von Partikelschauern und synoptischen Parametern führen.

Abschliessend seien hier die Meldungen verschiedener Autoren über grosse Aehnlichkeiten im Verlauf von solaren Proxis und Klimaparametern wie zum Beispiel der Temperatur erwähnt (Friis-Christensen und Lassen 1991; Kelly und Wigley 1992; Lean 1991; Schlesinger und Ramankutty 1992). Diese Arbeiten machen aber keine Angaben über die Art der atmosphärischen Prozesse, die zu diesen Korrelationen führen.

Fazit

Es gibt einige Hinweise darauf, dass schon relativ geringe solare Aktivitätsschwankungen, wie sie während des Schwabezyklus oder Maunder-Minimum-ähnlichen Perioden auftreten, Auswirkungen auf die irdische Atmosphäre haben, sei es auf die Zusammensetzung, auf die Dynamik oder auf die Temperaturverteilung. Von einem detaillierten Verständnis des Zusammenspiels der wichtigsten Vorgänge ist man aber noch weit entfernt. Direkte solare und atmosphärische Beobachtungen, die zur Klärung dieser Fragen beitragen sollen, sind praktisch ausschliesslich auf die letzten Jahrzehnte beschränkt.

6.5.3 ^{10}Be und ^{36}Cl als Tracer solarer Einflüsse auf die Erdatmosphäre in der Vergangenheit

^{10}Be und ^{36}Cl können wertvolle Informationen über die solar-terrestrischen Beziehungen in der Vergangenheit liefern und so die

Kenntnisse aus direkten Beobachtungen erweitern. In den Kapiteln 6.3 und 6.4 wurde gezeigt, dass das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis einerseits Produktionssignale aufweist und andererseits zu Klimaparametern antikorreliert ist, dass aber weder Produktionseffekte noch Klimaeffekte allein die Schwankungen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis erklären können. Deshalb kann man postulieren, dass die Isotopenkonzentrationen und die Klimaparameter nicht nur eine gemeinsame Modulationsquelle besitzen (Kap. 6.4), sondern dass auch Rückkopplungseffekte existieren, indem die solare Modulation der Isotope über solar modulierte klimatische Effekte noch verstärkt wird. In einem Fallbeispiel soll diese Idee weiter erhärtet werden.

Auffällige Zeitintervalle der Sonne und des Klimas: Beispiele

Die Perioden um 1790 AD und um 1830 AD deuten eine Verbindung zwischen Sonnenaktivität und Klimavorgängen an. Die Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl weisen dort beide sehr tiefe Einbrüche von etwa zehn Jahren Länge auf (Fig. 6.5.1). In der gleichen Zeit, um 1790, um 1815 und um 1835 AD weist nun auch das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis, unabhängig von der Akkumulationsratenkorrektur, deutliche Maxima auf (Fig. 6.3.13 und 6.4.2).

Zwischen 1790 und 1830 AD liegt das Dalton-Minimum der Sonne, das sich in drei Sonnenfleckenzyklen mit kleiner Amplitude äussert (Fig. 6.3.13). Genau zu den beiden oben angegebenen Zeiten ändert sich die Zahl der Sonnenflecken sprunghaft. Um 1790 AD liegen zwei sehr lange Zyklen, was die Idee mehrerer Autoren stützt, dass lange Zyklen mit kleiner Sonnenaktivität verbunden sind. In dieses Zeitintervall fällt auch eine der "Oberschwingungen" in den Isotopen (1820 AD), so dass über die Länge der Zyklen um 1830 AD nichts Definitives ausgesagt werden kann.

Bei diesen beiden Daten häufen sich auch mehrere klimatische Auffälligkeiten. Die Akkumulationsrate weist zwei spitze Maxima auf. Das $\delta^{18}\text{O}$ korreliert mit den Isotopenverläufen und hat zwei moderate

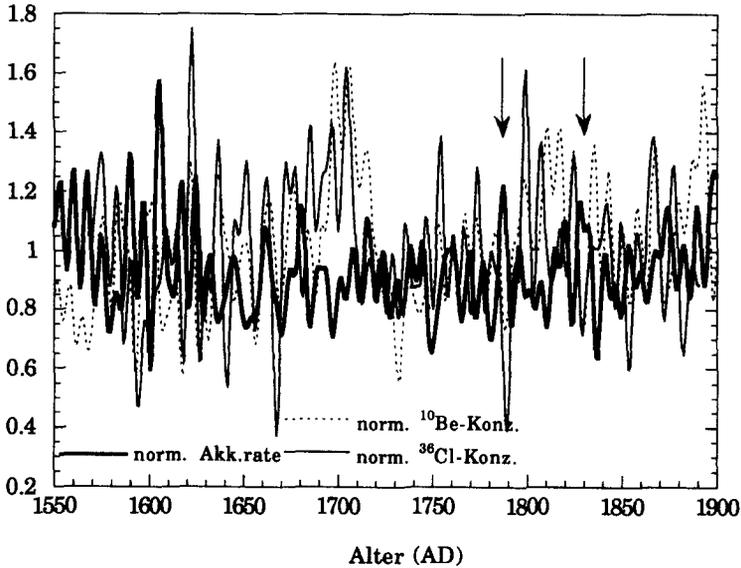


Fig. 6.5.1 Auf ihren Mittelwert normierte Zeitreihen der ¹⁰Be- und ³⁶Cl-Konzentrationen und der Akkumulationsrate von Dye 3. Die mit Pfeilen bezeichneten Stellen sind die im Text erwähnten Perioden mit auffälligem Verhalten der Klimaparameter und der Isotope.

Minima (Fig. 6.5.2). Die Nordhemisphärentemperatur fällt innerhalb weniger Jahre von einem ausserordentlich hohen Maximum um 1825 AD auf ein Minimum bei 1830 AD. Hoyt (1993) diskutiert gleichzeitig Unstimmigkeiten zwischen der beobachteten und der mit einem Abstrahlungsmodell der Sonne berechneten Temperatur.

Die Ereignisse in der Atmosphäre um 1790 AD und 1830 AD sind also Ausdruck einer besonderen Phase auf der Sonne, deren Anfang und Ende

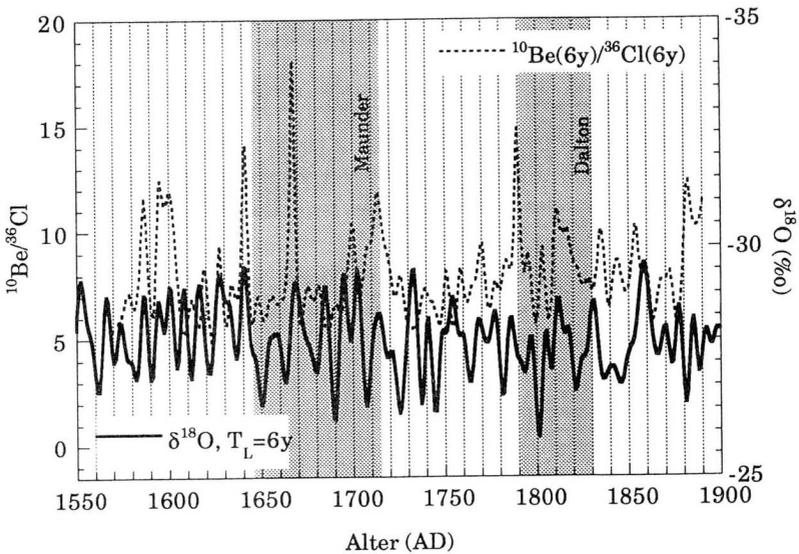
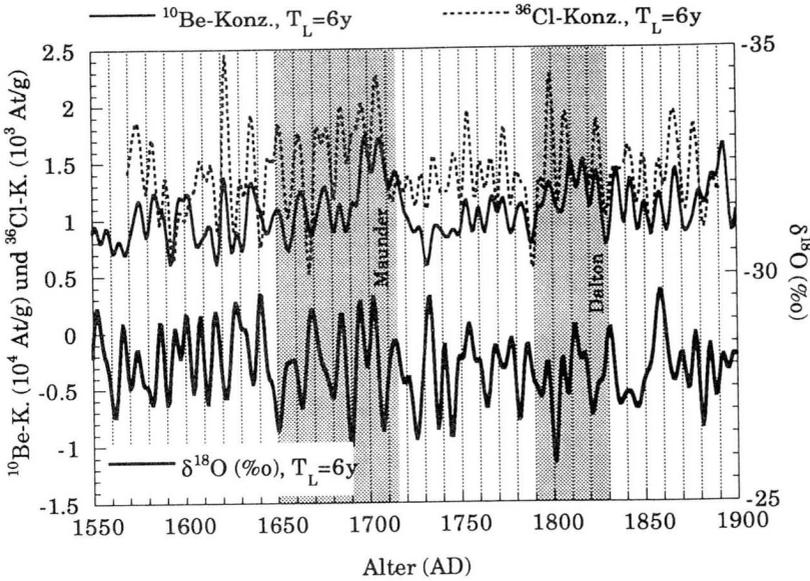


Fig. 6.5.2 Die ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen, deren Verhältnis und $\delta^{18}\text{O}$ (invers aufgetragen) von Dye 3. Die Kurven sind mit einer Grenzperiode von $T = 6$ Jahren tiefpassgefiltert.

sich offenbar auf die Isotopenproduktion und auf verschiedene atmosphärische Parameter auswirkt. Ein Vergleich mit anderen Minima belegt, dass das Sonnensignal offenbar Auswirkungen auf die Erdatmosphäre hat, dass schnelle Anregungen, wie es solche Uebergänge darstellen, jedoch im trägeren Erdsystem nicht immer von allen Parametern gleich aufgenommen werden. So finden sich ähnliche, aber nicht in allen Parametern so deutliche Hinweise ebenfalls am Anfang und Ende des Maunder-Minimums. Um 1670 AD divergieren die Verläufe von ^{36}Cl und der Akkumulationsrate ebenfalls, wobei $\delta^{18}\text{O}$ mit den Isotopen korreliert und das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis ein Maximum aufweist, ebenso wie am Ende um 1710 AD.

Um 1600 AD fand ein praktisch nur einen Schwabezyklus lang dauerndes Minimum auf der Sonne statt, das nirgendwo Erwähnung findet. Es zeigt die gleichen Merkmale wie die anderen Minima (Fig. 6.3.13, 6.4.2, 6.4.3, 6.5.2). Das hohe $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maximum (Fig. 6.3.13) und die Phasenverschiebungen im Schwabezyklus der einzelnen Isotope (Fig. 6.2.5 - 7) fallen besonders auf. Die Auswirkungen auf $\delta^{18}\text{O}$ und die Akkumulationsrate scheinen nicht stark gewesen zu sein, wogegen offensichtlich nach 1600 AD ein prägnanter Temperaturanstieg stattgefunden hat.

Es ist erwähnenswert, dass regelmässig immer zu den Jahrhundertwenden mehr oder weniger ausgeprägte Minima auftreten, so um 1800, 1700, 1600 und, aufgrund der Daten in Fig. 6.3.2, auch um 1500 AD. Dies passt zu den in den Spektren gefundenen langen Perioden von ungefähr 100 Jahren (vgl. Kap. 5), die möglicherweise noch durch längerperiodische Schwingungen moduliert werden (vgl. Kap. 6.3.4).

Fazit

Wenn es gelingt, die von solaren Variationen betroffenen atmosphärischen Prozesse, welche die Maxima im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis hervorrufen, zu identifizieren, dann hat man mit dem $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis umgekehrt einen Tracer für diese Prozesse in der Vergangenheit. Die Kenntnisse der solar-terrestrischen Beziehungen sind

noch mit grossen Lücken behaftet, wie am Anfang dieses Kapitels beschrieben wurde. Trotzdem werden nachstehend die Fakten, die aus dieser Arbeit und aus Arbeiten anderer Autoren schon bekannt sind, zu drei Szenarien zur Erklärung der $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima weiterspinnen.

6.5.4 Drei Szenarien zur Modulation des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses

Jedes Szenarium beschreibt eine Möglichkeit zur Modulierung des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses. Im Mittelpunkt steht dabei die Verbindung zwischen Klima und den Isotopenkonzentrationen im Eis (Fig. 6.1.1). Es ist wahrscheinlich, dass die Szenarien kombiniert auftreten. Der Einfachheit halber werden sie aber getrennt beschrieben.

Szenarium 1: $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen durch Unterschiede bei der Auswaschung

Kurze pulsartige Signale im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis sollten wegen der ein- bis zweijährigen Aufenthaltszeit von ^{10}Be und ^{36}Cl in der Atmosphäre gedämpft werden. Die grossen Amplitudenänderungen des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses innerhalb kurzer Zeit erstaunen deshalb. Da die hohen $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima nicht allein durch Produktionsänderungen erzeugt werden können, müssen die Maxima entweder durch atmosphärische Prozesse entstehen oder aber Produktionsmaxima werden in der Atmosphäre verstärkt. In Kapitel 6.4 wurde erläutert, dass die Auswaschungsrate die einzige bekannte Grösse ist, die in Abhängigkeit vieler Klimaparameter innert kürzester Zeit um Grössenordnungen schwanken kann. Ein interessanter Parameter ist die Temperatur, die ja zu den Isotopenkonzentrationen im Eis und zu deren Verhältnis antikorreliert ist. Beryllium und Chlor haben über längere Zeit gemittelt unterschiedliche Auswaschungsraten. Es ist wahrscheinlich, dass diese bei sich ändernden Umgebungsbedingungen unterschiedlich variieren. Die Umgebungstemperatur ist ein Parameter, welcher auf die Auswaschungsrate einen starken Einfluss haben könnte. Da die Auswaschungsraten von Niederschlag zu Niederschlag stark variieren,

ist es leicht vorstellbar, dass sie auch im Mittel zum Beispiel bei Temperaturveränderungen um einen Faktor fünf bis zehn schwanken können. Solche Phänomene werden beobachtet, wenn bei der Auswaschung Riming involviert ist. Aenderungen im Grad des Rimings wirken sich sehr empfindlich auf die Auswaschungsrate aus. Die Temperaturen in den Wolken über Grönland befinden sich in dem Bereich von -5°C , wo Riming auftritt. Die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Aenderungen innerhalb kurzer Zeit während unserer Gewitterstudie belegen, dass Schwankungen im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis tatsächlich auftreten. Diese Variabilität aufgrund der Temperatur kann durch die chemische Reaktivität des Chlors erhöht werden, da dieses in verschiedenen Formen in der Atmosphäre vorliegt, was sich auf die Auswaschungsrate auswirkt.

Szenarium 2: $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen infolge verschiedener Produktionsverteilungen von ^{10}Be und ^{36}Cl und Zirkulationsveränderungen

Das zweite Szenario rechnet die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen dem Umstand zu, dass sich einerseits Aenderungen der Sonnenaktivität auf die Zirkulation in der Erdatmosphäre auswirken und sich andererseits die Produktionsverteilungen von ^{10}Be und ^{36}Cl in der Atmosphäre unterscheiden (Fig. 6.5.3). Durch die niederenergetischen sekundären Neutronen ist das Verhältnis von troposphärisch produziertem zu stratosphärisch produziertem ^{10}Be grösser (ca. 1:1) als das von ^{36}Cl (ca. 1:2). Dadurch entsteht eine Phasenverschiebung von höchstens 1-2 Jahren bei der Deposition von gleichzeitig produziertem ^{10}Be und ^{36}Cl . Diese kann infolge Sonnenaktivitätsschwankungen verändert werden, indem sich die mittlere Breite der Tropopausenfaltungen verschiebt, so dass das stratosphärische ^{36}Cl einen längeren oder kürzeren Weg bis zum gleichen Depositionsort zurücklegen muss.

Sonnenaktivitätsschwankungen verändern unter bestimmten Umständen die Zugbahnen von Tiefdruckgebieten (Kap. 6.5.2, Roberts und Olson 1973). Möglicherweise bewirken sie auch eine meridionale Verschiebung des nördlichen Jet-streams. Wenn man annimmt, dass die Herunter-

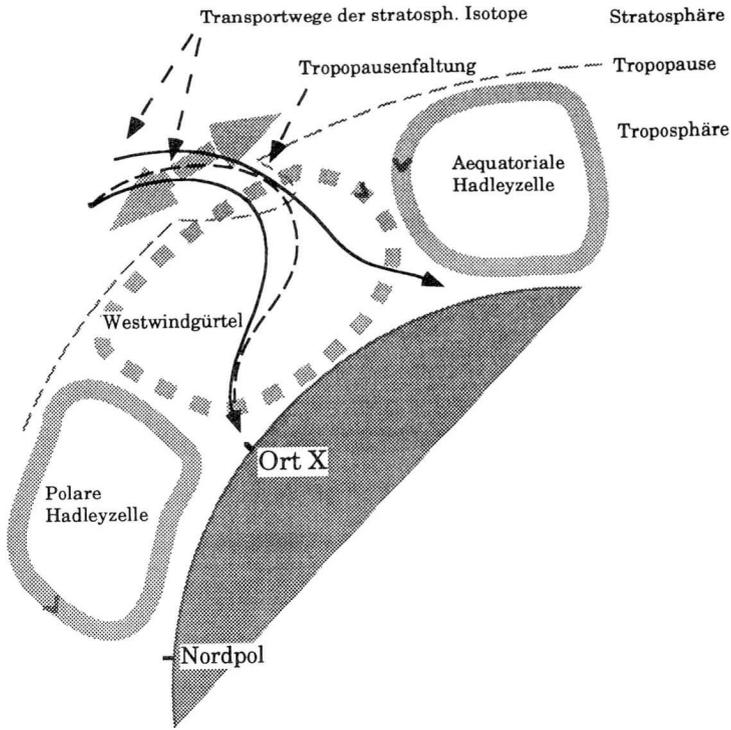


Fig. 6.5.3 Schematische Darstellung der mittleren meridionalen Zirkulation der Nordhemisphäre. Zwischen der stabilen Strömung der äquatorialen Hadleyzelle und der Hadleyzelle der zirkumpolaren Strömung befindet sich der Westwindgürtel mit den eingelagerten Tiefdruckgebieten, in deren Bereich die Tropopausenfaltungen stattfinden. Die Strömung in diesem Bereich variiert stark, im Mittel muss sich aber die gestrichelt eingezeichnete Hadleyzelle ergeben. Wenn sich deren Zentrum aufgrund solarer Einflüsse tatsächlich verschiebt, könnten die stratosphärisch produzierten Isotope neuen Transportwegen folgen.

mischung von ^{10}Be und ^{36}Cl aus der Stratosphäre zur Hauptsache durch Tropopausenfaltungen in der Umgebung des Jet-streams stattfindet, dann könnte eine meridionale Verlagerung des Strahlstroms die Phasenverschiebung zwischen den in der Troposphäre und den in der Stratosphäre produzierten Isotopen verändern. Es ist auch nicht auszuschliessen, dass durch die Verschiebung ein neues Depositionsmuster der stratosphärischen Isotope entstünde (Fig. 6.5.3).

In Kap. 6.3 wurde gezeigt, dass ^{10}Be einen höheren Anteil von in der Troposphäre produzierten Isotopen als ^{36}Cl hat. Der troposphärische Produktionsanteil ist relativ gleichmässig über die geomagnetische Breite verteilt. Dazu kommen die in der Stratosphäre produzierten Isotope, die hauptsächlich in mittleren Breiten heruntergemischt werden. Wenn die Breitenverteilungen der Isotope beim Heruntermischen auch nach der Deposition erhalten bleiben, wie man aufgrund der ^{90}Sr -Depositionsverteilung annimmt (Gwinn und Sarmiento 1984), so muss diejenige von ^{36}Cl wegen des höheren stratosphärischen Anteils stärker sein. Damit hat das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis ein Minimum im Bereich des Jet-streams. Zusätzlich zur $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verteilung kommt der Effekt der oben beschriebenen Wanderung des Jet-streams. Einerseits kommt ein bestimmter Ort durch diese Wanderung an eine andere Stelle der $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verteilung zu liegen und andererseits erhöht sich die Phasenverschiebung zwischen ^{10}Be und ^{36}Cl . Welche Änderung im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis durch diese Effekte erzeugt werden kann, ist ungewiss. Das Verhältnisminimum aufgrund der Breitenverteilung dürfte maximal 20% tiefer liegen als der gleichzeitige globale Durchschnittswert, wenn man annimmt, dass das Verhältnis von stratosphärischer zu troposphärischer Produktion bei ^{10}Be 1:1 und bei ^{36}Cl 2:1 beträgt.

Die Zeitverschiebung zwischen der Deposition von ^{36}Cl und ^{10}Be kann unter Umständen sehr viel höhere Unterschiede erzeugen, wenn hohe Produktionspulse existieren, die im ^{10}Be schneller deponiert (und daher weniger gedämpft) werden als im ^{36}Cl . Kurze Pulse extraterrestrischer

Strahlung, die die beobachteten hohen $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima zu produzieren vermögen, sind allerdings nie beobachtet worden.

Szenarium 3: $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen durch unterschiedliche Auswaschungsraten von Beryllium und Chlor und Zirkulationsveränderungen

Eine Luftmasse habe ein bestimmtes $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Anfangsverhältnis. Gemäss ersten parallelen Messungen in den Schweizer Alpen scheint die Auswaschungsrate von ^{36}Cl höher zu sein als diejenige von ^{10}Be (Baltensperger et al. 1993). Wenn die Auswaschungsraten von ^{10}Be und ^{36}Cl verschieden sind, so verändert sich das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis bei sukzessiven Niederschlägen aus dieser Luftmasse. Wenn nun Zirkulationsänderungen stattfinden, die die mittlere Distanz zwischen der Quelle (wo immer das gleiche $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis gemessen werde) und einem Depositionsort verändern, so erwartet man damit auch ein anderes mittleres $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis am Depositionsort.

Es ist klar, dass diese Skizze grob vereinfacht ist, denn eine Luftmasse ist nicht völlig konservativ, das heisst, sie vermischt sich im Laufe der Zeit teilweise mit Umgebungsluft. Dabei ändert sich das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis in der Luftmasse. Wenn danach erst wieder Niederschläge aus dieser Luftmasse fallen, stimmt diese einfache Ueberlegung natürlich nicht mehr. Völlig abwegig scheint sie allerdings nicht zu sein. Beim $\delta^{18}\text{O}$ tritt ein solcher Effekt im Verlaufe der Ueberströmung einer Landmasse tatsächlich auf (Johnsen et al. 1989, Gat, pers. Komm.).

Anmerkung

Keines der drei Szenarien kann erklären, warum die hohen $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima vorwiegend an den Uebergängen am Rande der Sonnenminima aufzutreten scheinen. Der sehr hohe $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Peak mitten im Maunder-Minimum deutet darauf hin, dass dieser Eindruck des Auftretens an den Uebergängen vielleicht nur entsteht, weil alle anderen Minima während

der untersuchten Zeit sehr kurz sind. Eine Klärung dieser Unsicherheit erwartet man vom Verhalten des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses während des Spörer-Minimums.

Fazit

Im Dye 3-Kern scheint das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis trotz eines grossen Schwankungspotentials durch Auswaschungseffekte einen mittleren "Basiswert" einzuhalten, von dem sich hohe Maxima abheben.

Grundsätzlich gibt es drei Möglichkeiten, wie die pointierten Maxima des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses erzeugt werden können. Erstens nur durch unterschiedliche Produktionsraten von ^{10}Be und ^{36}Cl nach solaren Ereignissen, zweitens nur durch atmosphärische Effekte, und drittens durch eine atmosphärische Verstärkung eines kleinen $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maximums aufgrund von Produktionsschwankungen.

Welche Prozesse tatsächlich involviert sind, ist nicht bekannt. Zur Abklärung sind Messungen zur Ueberprüfung der Szenarien notwendig. Im folgenden Abschnitt werden verschiedene Vorschläge für weitere Experimente gemacht.

Anregungen für weitere Untersuchungen

Die vereinfachten Szenarien aus dem Kapitel 6.5, die auf *Ergebnissen* unserer Isotopenmessungen und atmosphärischen Studien anderer Autoren fussen (siehe Kap. 6.4, 6.5.1), lassen viele Fragen unbeantwortet. Vermögen zum Beispiel die Szenarien 2 und 3 solch abrupte $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen wirklich zu produzieren? Oder umgekehrt: Wenn eines der Szenarien, am wahrscheinlichsten das erste, solch grosse Schwankungen erzeugen kann, warum ist dann das Produktionssignal der Spallation in der Regel sowohl in den einzelnen Isotopen wie auch in ihrem Verhältnis so ungestört sichtbar?

Gerade dass dies so ist, weist auf äussere Anregungen der Atmosphäre durch die Schwankungen der Sonnenaktivität hin, die Abweichungen von einem mittleren Normalzustand bewirken. Die fehlende Korrelation in kurzfristigen Isotopenkonzentrationsschwankungen und die wesentlich grössere Verwandtschaft im Langfristbereich zeigen überdies, dass es sich in den Eiskernen um ein Mischsignal handeln muss, welches sich aus lokal erzeugten (lokal klimatische Vorgänge, konservative Eigenschaften von Luftmassen) und einem überregionalen Anteil zusammensetzt. Dieser überregionale Anteil kommt durch den globalen Anteil am Produktionssignal und durch verschiedene Prozesse, welche örtliche oder zeitliche Konzentrationsunterschiede in der Atmosphäre oder im Archiv ausmitteln, zustande, wie zum Beispiel Mischungsvorgänge von Luftmassen, Mischung im Archiv und die zeitliche Auflösung der Proben. Welchen Beitrag die einzelnen Prozesse leisten, ist nicht bekannt.

Aus den offenen Fragen und den Szenarien erhält man verschiedene Anregungen zu weiteren Untersuchungen. Es geht hauptsächlich darum, das atmosphärische Schicksal beider Isotope besser zu verstehen. Unklarheiten bestehen bei der Produktion, dem Transport wie auch bei den Depositionsprozessen.

Anregungen für weitere Untersuchungen

- 1) Als erstes müssen die Produktionsquerschnitte von ^{10}Be und ^{36}Cl bei der Produktion durch Protonen und Neutronen gemessen, respektive überprüft werden. Dadurch erhält man ein klares Bild über die Produktionsverteilung beider Isotope in der Stratosphäre und Troposphäre.
- 2) Sodann ist es wichtig, die Breitenverteilung von ^{10}Be und ^{36}Cl nach der Deposition zu messen. Dies sollte auf zweierlei Arten geschehen. In Kurzkernen aus den Eiskappen beider Pole und aus hohen Gebirgen können die Verteilungen der Isotope über mehrere Jahre zurückverfolgt werden. Noch feiner aufgelöst lässt sich die Verteilung durch Analyse von monatlichen oder jährlichen Niederschlagsproben der festinstallierten meteorologischen Stationen bestimmen. Dieses Netz liefert natürlich keine Informationen über die Vergangenheit. Die Erhebung dieser Proben ist aber mit einem wesentlich kleineren Aufwand möglich und kann innert relativ kurzer Zeit die dringend benötigte Information über die globale Isotopenverteilung liefern.

Mit Hilfe der Produktionsverteilung in der Atmosphäre und einem möglichst dichten Netz synchroner Isotopenmessungen über die letzten Jahre oder Jahrzehnte sind unter Beizug der meteorologischen Beobachtungen Aussagen über den Transport der Isotope möglich, ohne zahlreiche Messungen in der Atmosphäre durchführen zu müssen. Die einzige Einschränkungen dieses Vorgehens ergibt sich durch die künstlich erzeugten hohen ^{36}Cl -Werte durch Atombombenversuche zwischen 1950 und etwa 1980 AD.

- 3) Zur Ueberprüfung der Vorstellungen, die sich aus den Messungen von Punkt 1) und 2) ergeben, sind direkte Messungen von ^{36}Cl - und ^{10}Be -Profilen notwendig. Solchen Messungen in der freien Atmosphäre sind aber verschiedene Grenzen gesetzt. Direkte Probenahmen sind beim heutigen Stand der Messtechnik sehr aufwendig, da für eine Probe ungefähr 1000 Kubikmeter Luft benötigt werden. Solche Volumina bedingen leistungsfähige Pumpen mit Probesammlern, die ^{36}Cl und ^{10}Be bei grossen Luftdurchsätzen herausfiltern können, oder aber lange

Sammelzeiten. Diese grosse Menge macht auch die gleichzeitige Bestimmung der in der Atmosphäre vorliegenden chemischen Form sehr heikel, da die Substanzen im Probenbehälter während der Sammelzeit leicht miteinander reagieren können. Die Schwierigkeiten bei der Untersuchung von mikrophysikalischen Prozessen während der Niederschlagsbildung in den Wolken sind andernorts beschrieben (z. B. Schumann 1989). Die Durchführung einzelner solcher Messungen ist zum genauen Verständnis des Verhaltens der Isotope in der Atmosphäre trotzdem unerlässlich.

- 4) Das Verständnis der Kurzzeiteffekte in einzelnen Niederschlägen kann durch kontinuierliche Messungen sukzessiver Ereignisse an einer ortsfesten Station verbessert werden. Dieser Ort sollte so abgelegen sein, dass die Messungen nicht durch künstlich produzierte Isotope oder Isotope aus Staub gestört werden können, wie es bei den bisherigen Messkampagnen in Zivilisationsnähe der Fall war. Gleichzeitige chemische und mikrophysikalische Messungen in der Atmosphäre, in den Wolken und im Niederschlag unter den Reinluftbedingungen von Grönland gibt es bis heute keine. Diese Feldexperimente sollten durch Laborversuche zur Abklärung der Abhängigkeit der Auswaschungsrate von den meteorologischen Parametern unterstützt werden.
- 5) Unsere Auswertungen haben gezeigt, dass für das Verständnis der langfristigen Klimageschichte und zur Evaluation von lokalen und globalen Signalen lange und möglichst 1-jahresaufgelöste Eiskerne wie zum Beispiel der Summit-Kern für den Vergleich mit dem Kern von Dye 3 benötigt werden. Erst diese ermöglichen eine Bestätigung der bisherigen Ergebnisse und eine Bereinigung der Unklarheiten bezüglich des Schwabesignals der Sonne.

Zusammenfassung der Ergebnisse und Schlussfolgerungen

^{36}Cl bestätigt die Vorstellungen über die Spallationsproduktion in der Atmosphäre und die Informationen über die Sonne, die man aus ^{10}Be gewonnen hat. Es erweitert aufgrund seines unterschiedlichen chemischen Verhaltens in der Atmosphäre die Aussagekraft von ^{10}Be über atmosphärische Prozesse. Die Auswertungen der Isotopenzeitreihen von ^{10}Be und ^{36}Cl in den Eiskernen von Milcent und Dye 3 können zu folgenden Hauptergebnissen zusammengefasst werden:

- 1) Die Zeitreihen der ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen in den einzelnen Eiskernen von Grönland verlaufen ähnlich. Zusammen mit dem vorhandenen Wissen über die Produktionsmechanismen kann man daraus schliessen, dass das Spallationssignal in den ^{10}Be - und ^{36}Cl -Reihen im Eis für Zeitskalen von mehr als einem Jahr dominiert. Dieser Schluss wird auch unterstützt durch den Vergleich mit den Sonnenfleckenzahlen, den Aurorabeobachtungen und dem $\Delta^{14}\text{C}$ aus Baumringen. Die langfristigen Verläufe von ^{36}Cl , ^{10}Be und $\Delta^{14}\text{C}$ weisen alle Konzentrationserhöhungen während der solaren Minimumperioden auf.
- 2) Die ^{10}Be - und ^{36}Cl -Zeitreihen der drei Kerne stimmen zwar in den wesentlichen Merkmalen, aber nicht in allen Details überein. Daraus lässt sich schliessen, dass die Isotope sowohl lokale wie auch regionale und globale Signale enthalten. Den globalen Anteil kann man mit Hilfe der oben erwähnten Aehnlichkeiten zum $\Delta^{14}\text{C}$ abschätzen, welches infolge seiner langen Aufenthaltszeit in der Atmosphäre in Form von $^{14}\text{CO}_2$ über den ganzen Globus homogen gemischt wird. Eine verfeinerte Unterscheidung lokaler und globaler Signale wird durch den Vergleich mit den ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen in weiteren Eiskernen aus verschiedenen Regionen möglich werden.

- 3) Irdische ^{36}Cl -Quellen wie Spallation oder Neutroneneinfang an biogenen Chlorverbindungen (die häufigste davon ist CH_3Cl), an NaCl des Meeres oder an Chlor aus Vulkanemissionen in der Atmosphäre können als Ursache für diese $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Schwankungen ebenso ausgeschlossen werden wie ein direkter ^{36}Cl -Eintrag ins Eis aus Vulkanausbrüchen, Bodenerosion und Mikrometeoriten.
- 4) Der mittlere globale ^{36}Cl -Fluss ist höher als erwartet. Die Breitenverteilung der Isotope im Eis entspricht zudem nicht den Erwartungen.
- 5) ^{36}Cl bestätigt die Erkenntnisse über die Sonne, die aus ^{10}Be gewonnen wurden. In Dye 3 ist der Schwabezyklus sowohl im Spektrum von ^{10}Be wie auch in dem von ^{36}Cl mit einer Periode von 10.8 Jahren (respektive beim ^{36}Cl 10.1 Jahren) und seine Harmonischen bei Perioden von 5.4, 3.6, 2.1 Jahren sichtbar. Er zieht sich über das ganze beobachtete Zeitintervall, das heisst auch über die solaren Minima hin. Eine Kombination der ^{10}Be - und der ^{36}Cl -Reihe von Dye 3 verstärkt das Schwabesignal in den Isotopen. Die Länge der einzelnen Zyklen des Schwabesignals in den Isotopen kann allerdings nicht durchgehend bestimmt werden, da eine kürzerperiodische Schwingung mit einer ähnlichen Amplitude überlagert ist. Zusätzliche Isotopenmaxima durch diese Oberschwingungen finden sich bei beiden Isotopen an denselben Stellen. Zwischen dem Schwabesignal in den Sonnenflecken und in den Isotopen fanden wiederholt Phasenverschiebungen statt. Gleichzeitig weist das Signal jeweils Amplitudenminima auf. Ueber lange Zeit behält das Schwabesignal im ^{10}Be aber eine mittlere Periodenlänge von 10.8 Jahren bei. Die direkten Sonnenfleckenbeobachtungen und das Schwabesignal in den Isotopen, beides Proxies für die Sonnenaktivität, stimmen also nicht vollständig überein. Es ist offen, ob solare Signale, die sich in den Sonnenflecken nicht äussern, oder Transportprozesse in der Erdatmosphäre die Ursache dafür sind. Die Amplituden des Schwabesignals in den Isotopen scheinen durch langperiodische Schwingungen moduliert zu werden. Perioden von 60 und 87 Jahren (Gleissbergzyklus) konnten identifiziert werden.

Nach den Vorstellungen über die Produktion von ^{10}Be und ^{36}Cl in der Atmosphäre erwartet man im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis ein Schwabesignal mit dem gleichen Vorzeichen wie das in den einzelnen Isotopen, aber mit dreimal kleinerer Amplitude als beim ^{36}Cl . Ein Schwabesignal findet sich tatsächlich im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis. Seine Amplitude ist aber wesentlich grösser als vorausgesagt, und das Vorzeichen des Schwabesignals ist mindestens zeitweise invers zum erwarteten. Die vorliegenden Daten erlauben noch keinen definitiven Entscheid über das Vorzeichen des Schwabesignals im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis.

- 6) Zwischen ^{10}Be und ^{36}Cl und Klimaparametern werden folgende Verbindungen gefunden: 1) Der langfristige Temperaturverlauf der Nordhemisphäre ist mit dem der Isotopenkonzentrationen erstaunlich deutlich antikorreliert. 2) Zwischen den beiden Isotopen und $\delta^{18}\text{O}$ besteht nur im langfristigen Verlauf in Milcent eine signifikante Antikorrelation. In Dye 3 wechselt die Korrelation zu $\delta^{18}\text{O}$ je nach Zeitabschnitt das Vorzeichen. 3) Eine signifikante Korrelation besteht nur zwischen ^{36}Cl und der Akkumulationsrate von Dye 3. Die Verläufe der Isotopenkonzentration und der Isotopenflüsse folgen sich in den untersuchten Eiskernen mit einzelnen Ausnahmen sehr schön. Das heisst, die Variationen der Akkumulationsrate können weder die Schwankungen der Konzentrationen der einzelnen Isotope noch die ihres Verhältnisses erklären.
- 7) In den obigen Vergleichen zwischen den Klimaparametern und den beiden Isotopen bleibt die Frage offen, ob es sich um scheinbare Korrelationen aufgrund von solaren Signalen in allen Zeitreihen oder um direkte Verbindungen handelt. Hierzu gibt das Verhalten des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses Hinweise.

Das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis zeigt, vorbehaltlich der unterschiedlichen Auflösung in allen Kernen, einen ähnlichen Verlauf. Es schwankt bis zu einem Faktor 3. Neben dem Schwabesignal weist das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis in unregelmässigen Abständen einzelne, sehr hohe Maxima auf. Diese treten nur in oder am Rand von Zeitintervallen mit geringen

Sonnenfleckenzahlen auf. Am Beispiel des Dalton-Minimums zwischen 1790 und 1830 AD kann gezeigt werden, dass in diesen Uebergangsstadien gleichzeitig mit den $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima klimatische Auffälligkeiten stattgefunden haben. Da die Amplituden der Verhältnis-Maxima durch Produktionseffekte allein nicht erklärbar sind, liegt der Schluss nahe, dass auch atmosphärische Prozesse auf die Isotope eingewirkt haben. Welcher Art diese Prozesse sind, ist noch unklar. Unsere Gewitterfallstudie belegt, dass das $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis innerhalb eines Niederschlags erheblich schwanken kann. Die zwei wahrscheinlichsten Gründe sind: 1) Variationen der Auswaschungs-raten der Isotope. 2) Verschiebungen in der atmosphärischen Zirkulation, welche sich auf die beiden Isotope unterschiedlich auswirken, da sie verschiedene Produktionsverteilungen in der Atmosphäre aufweisen.

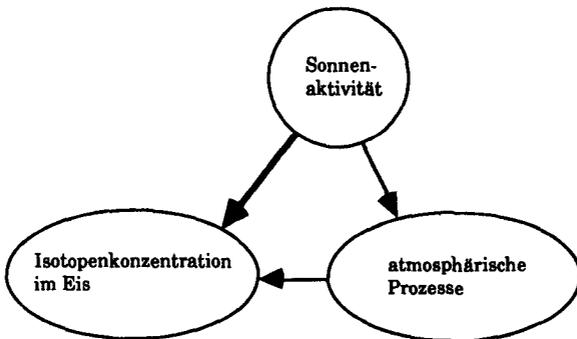


Fig. 7.1.1 Hypothese zum Wirkungsschema auf die Isotope in der Atmosphäre, die zu den beobachteten Verläufen der Isotopenkonzentrationen im Eis führen.

- 8) Aufgrund der vorliegenden Ergebnisse zeichnet sich in der Atmosphäre das folgende Wirkungsschema ab, welches zu den beobachteten Isotopenkonzentrationen im Eis führt und in Figur 7.1.1 festgehalten ist: ^{10}Be und ^{36}Cl werden in der Atmosphäre hauptsächlich durch Spallation produziert. Die Produktionsrate wird durch die Sonnenaktivität moduliert. Transport und Deposition sind durch atmosphärische Prozesse bestimmt. Diese unterliegen wahrscheinlich teilweise selber dem Einfluss der Sonnenaktivität.
- 9) Die wichtigsten offenen Fragen in dieser Arbeit kommen aus dem unerwarteten Schwabesignal im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis, den hohen $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima während solarer Minima und dem Verlauf des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses während des Gewitterniederschlags. Für eine Erklärung dieser Beobachtungen wird die Bestimmung der Produktionsquerschnitte beider Isotope in Abhängigkeit der Teilchenenergie benötigt, die die Quantifizierung der Produktionsverteilung in der Atmosphäre ermöglicht. Sehr wichtig für das Verständnis der Isotopenzeitreihen im Eis sind Kenntnisse der Vorgänge bei der Auswaschung von Chlor und Beryllium aus der Atmosphäre und deren Abhängigkeit von atmosphärischen Parametern. Die Erhebung dieser Daten ist relativ aufwendig. Es ist deshalb vordringlich, gleichzeitige Isotopenmessungen in Kurzkernen oder Niederschlägen verschiedener Stationen auf der Nordhemisphäre durchzuführen, um eine Vorstellung über die Verteilung der Isotope nach der Deposition zu bekommen. Schliesslich sind detaillierte Kenntnisse der Kopplung von Sonnenaktivität und atmosphärischen Vorgängen unerlässlich. Sie sind Voraussetzung für eine erfolgreiche Modellierung des Schicksals von ^{36}Cl und ^{10}Be in der Atmosphäre und können Aufschluss darüber geben, ob die beobachteten $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Maxima tatsächlich durch eine atmosphärische Verstärkung eines anfänglichen schwachen Produktionssignals im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis zustande kommen.

Bedeutung von ^{10}Be und ^{36}Cl für die Untersuchung solar-terrestrischer Beziehungen

In der vorliegenden Arbeit wurde gezeigt, dass durch ^{10}Be - und ^{36}Cl -Analysen im Eis die Sonnenaktivität der Vergangenheit auf verschiedenen Zeitskalen bis weit über die direkten Beobachtungen hinaus mit gleichbleibender Verlässlichkeit verfolgt werden kann. Sollte sich der Zusammenhang zwischen der Sonnenaktivität und der Solarkonstanten über längere Zeit bestätigen, so stellen ^{10}Be - und ^{36}Cl -Messungen heute die einzigen bekannten Instrumente dar, um die Geschichte der Solarkonstanten zu studieren. Die zeitliche Auflösung erlaubt über mehrere hundert Jahre Beobachtungen von Ereignissen mit einer Dauer von wenigen Jahren. Durch den Vergleich von Isotopenzeitreihen verschiedener Stationen ist eine Unterscheidung von lokalen und globalen Signalen möglich. Darüberhinaus wurden Anhaltspunkte gefunden, dass im $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis in oder am Rande von solaren Minimumperioden hohe Maxima auftreten, die sowohl solare als auch atmosphärische Ursachen haben dürften. Sollte sich dies in weiteren Arbeiten bewahrheiten, so stehen mit ^{10}Be und ^{36}Cl zusätzlich Instrumente für die Untersuchung der Auswirkungen solarer Schwankungen auf die Atmosphäre zur Verfügung. Damit entsprechen sie in fast idealer Weise den Anforderungen für das Studium der noch fast unbekannt solar-terrestrischen Beziehungen in der Vergangenheit.

Anhang

Anhang 1

10Be- und 36Cl-Daten von Milcent und Dye 3

A.1.1 Die Daten von Milcent, Grönland

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
BMC 260/261	396.44	1181.1	1.1	10	2.67	6.4
BMC 258/259	393.48	1188.7	1.14	15	2.18	9.8
BMC 256/257	390.46	1195.9	1.02	9	2.66	9.7
BMC 254/255	387.45	1202.9	0.9	5	1.65	10.8
BMC 252/253	384.46	1209.5	0.94	11	1.88	12.2
BMC 250/251	381.46	1215.8	0.91	7		
BMC 248/249	378.46	1222.4	1.12	5	2.61	11
BMC 246/247	375.46	1229.7	1.09	10	2.39	12
BMC 244/245	372.47	1237.2	0.91	7	1.71	13.2
BMC 242/243	369.46	1244.9	1.01	6	2.86	8.6
BMC 240/241	366.46	1252.8	0.94	6	2.17	10.9
BMC 238/239	363.46	1260.9	0.94	6	1.95	10.8
BMC 236/237	360.46	1267.9	1.32	12	1.91	13.6
BMC 234/235	357.46	1274.2	1.07	5		
BMC 232/233	354.43	1281.2	1.14	5	1.97	11.3
BMC 230/231	351.4	1288.6	1.31	8	2.02	11.7
BMC 228/229	348.42	1296.2	1.04	5	2.04	7.9
BMC 226/227	345.43	1303.4	1.36	5	2.39	11.4
BMC 223/224	340.93	1311.9	1.05	5	1.55	8.4
BMC 221/222	337.93	1320.4	1.11	6	2.02	10
BMC 219/220	334.93	1327.2	1.04	6	1.9	7.9
BMC 217/218	331.93	1334	1.08	6	1.85	11.3
BMC 215/216	328.93	1340.7	1	6	2.12	9.1
BMC 213/214	325.93	1347.2	1.1	5	2.7	8
BMC 211/212	322.93	1353.8	0.9	15	1.72	7.6
BMC 209/210	319.93	1360.7	0.9	9	1.63	9.5
BMC 207/208	316.93	1368	1	6	2.16	13.2

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
BMC 205/206	313.93	1374.9	0.89	20		
BMC 203/204	310.95	1381.8	1.09	5	2.05	12.9
BMC 201/202	307.89	1388.9	0.99	6	1.79	8.9
BMC 199/200	304.76	1395.6	0.98	6	2.26	12.4
BMC 197/198	301.71	1401.8	1.28	6	1.78	9.9
BMC 195/196	298.73	1408.2	0.84	6	1.76	7.7
BMC 193/194	295.77	1414.7	1.23	6	1.7	27.5
BMC 191/192	292.8	1421.2	0.94	6	1.75	15
BMC 190	290.55	1425.9	1.13	5		
BMC 188/189	288.3	1431	1.26	13	2.29	30
BMC 186/187	285.3	1437.6	1.38	6	2.14	30
BMC 184/185	282.29	1444.2	0.87	5	2.24	8.5
BMC 182/183	279.28	1450.6	1.04	9	1.94	7
BMC 180/181	276.29	1456.7	1.1	7	2.14	8.2
BMC 178/179	273.13	1463.3	1.09	6		
BMC 176/177	269.96	1470.3	1.17	5		
BMC 174/175	266.96	1477.1	1.02	5	1.9	9.4
BMC 172/173	263.86	1484.2	1.05	5	2.1	15
BMC 170/171	260.77	1490.9	1.16	11	1.67	11.9
BMC 168/169	257.75	1497.1	1.14	7	1.96	8.2
BMC 166/167	254.74	1503.5	1.04	5	1.32	20
BMC 164/165	251.59	1510.1	1.22	15	2.4	7.8
BMC 162/163	248.34	1516.8	1.1	5	1.89	8.3
BMC 160/161	245.29	1523.9	1.15	5	2.01	8.2
BMC 158/159	242.33	1530.4	1.11	5	1.93	7.8
BMC 156/157	239.33	1536.6	1.27	6	2.07	14
BMC 154/155	236.32	1543.2	1.1	5	2.81	10
BMC 152/153	233.29	1550.6	1.12	6	1.84	28.2
BMC 150/151	230.35	1556.8	1.57	6		
BMC 148/149	227.46	1562.3	0.87	10		
BMC 146/147	224.5	1568.8	0.94	12		
BMC 144/145	221.51	1575.1	0.92	7	1.76	7.3
BMC 142/143	218.63	1581.1	0.88	11	1.58	8.5
BMC 140/141	215.68	1587.2	0.99	12	1.87	7.2
BMC 138/139	212.65	1593.9	0.72	8	2.33	14.6
BMC 137	210.38	1599.1	1.3	6	1.6	6.6
BMC 136	208.85	1602.3	1.13	6	1.21	7.5
BMC 135	207.33	1605.7	0.94	5	1.33	26.2
BMC 134	205.83	1609.2	1.31	10		
BMC 133	204.33	1612.3	0.81	6	1.61	8.8
BMC 132	202.82	1615.7	0.83	6		
BMC 131	201.31	1619.2	1.14	8		
BMC 130	199.85	1622.3	1.47	6	2.24	6.2

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
BMC 129	198.47	1625.2	0.87	7	2.01	7.4
BMC 128	197.03	1628.7	0.54	9		
BMC 127	195.52	1632.2	0.73	8	1.2	15
BMC 126	194.04	1635.6	1.11	20	2.06	20
BMC 125	192.57	1638.7	1.21	5	1.95	25
BMC 124	191.07	1641.8	1.46	8	1.56	7.1
BMC 123	189.57	1645.2	1.33	5		
BMC 122	188.07	1648.8	1.37	5	1.36	7.5
BMC 121	186.59	1651.9	1.32	5	2.39	10
BMC 119/120	184.32	1656.1	1.1	20	1.84	8.3
BMC 118	182.07	1661.3	1.26	5	2.22	25
BMC 116	179.1	1666.8	1.17	7	2.81	7
BMC 115	177.62	1670.2	1.5	5	1.98	10
BMC 114	176.13	1673.3	1.29	6	2.13	7.1
BMC 113	174.65	1676.3	2	6	1.92	5.8
BMC 112	173.17	1679.1			2.46	6.3
BMC 111	171.67	1682	1.64	6	2.61	5.6
BMC 110	170.18	1685				
BMC 109	168.69	1687.9	1.45	5	2.11	4.9
BMC 108	167.2	1690.8			1.95	5.9
BMC 107	165.69	1693.4	1.79	8	2.6	4.2
BMC 106	164.19	1696.2	2.24	8	2.43	4.3
BMC 105	162.69	1699.6	1.77	8	2.56	4.4
BMC 104	161.22	1702.8	1.41	6	2.14	4.6
BMC 103	159.75	1706.1	1.52	6		
BMC 102	158.24	1709.2	1.26	6		
BMC 101	156.74	1712.1	1.46	5	2.18	5.8
BMC 100	155.24	1714.9	1.36	5	2.02	10.3
BMC 99	153.74	1717.8	1.32	6		
BMC 98	152.23	1720.8	1.33	6		
BMC 97	150.8	1723.8	1.54	5	1.95	8.9
BMC 96	149.38	1726.6	1.53	6	1.68	10.7
BMC 95	147.93	1729.2	1.03	6		
BMC 94	146.5	1731.8	1.04	5	1.78	10
BMC 93	145.01	1734.9	1.11	6	1.79	10.6
BMC 92	143.51	1738	1.18	5	1.51	9.2
BMC 91	142.02	1740.5	1.13	6		
BMC 90	140.54	1742.8	0.92	6		
BMC 89	139.03	1745.7	1.08	7	1.39	7.2
BMC 88	137.53	1748.8	0.97	6	1.56	7.4
BMC 87	136.02	1751.9	1.21	5	1.82	7.2
BMC 86	134.53	1755.3	1.25	5	1.57	7.7
BMC 84/85		1759.2			1.62	14.6

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ⁸ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
BMC 85	133.04	1758.4	1.24	6		
BMC 84	131.54	1761.4	1.09	6		
BMC 80	125.46	1773.9	1.38	10	1.3	59.6
BMC 78/79	123.25	1778.2	0.51	10	2.53	8.3
BMC 76	119.56	1786.1	1.28	6	2.3	12.1
BMC 74/75	117.29	1790.6	0.74	5	1.35	13.4
BMC 72/73	114.29	1796.7	1	22	2.34	10
BMC 70/71	111.3	1802.4	0.78	20	2	11.4
BMC 67/68/69	107.57	1809	0.88	5	1.92	6
BMC 65/66	103.84	1815.9			2.06	6.5
BMC 63/64	100.85	1821.5	0.83	15	1.88	7.6

A.1.2 Die Daten von Dye 3, Grönland

Beim von uns gemessenen Kern handelt es sich nicht um den langen Hauptkern, der bis in die letzte Eiszeit zurückreicht, sondern um einen parallelen Flachkern.

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 1	0.975	1985.5	0.46	9.2	1.49	25.6
DCS 2	1.9	1984.5	0.49	9.1	2.97	17.8
DCS 3	2.975	1983.5	1.01	5.5	5.04	11.9
DCS 4	4.325	1982.5	0.66	5	2.71	12.6
DCS 5	5.75	1981.5	0.65	7.6	2.85	12.6
DCS 6	6.875	1980.5	0.61	7.5	3.81	13
DCS 7	7.775	1979.5	0.62	7.8		
DCS 8	8.8	1978.5	0.64	6.7	2.65	12.7
DCS 9	9.95	1977.5	0.57	6.9	4.20	10.7
DCS 10	10.95	1976.5	0.59	6.9	4.27	11.6
DCS 11	11.975	1975.5			14.90	6.4
DCS 12	12.975	1974.5	1.00	4.5	11.50	6.4
DCS 13	13.9	1973.5	0.69	5.5	8.42	6.1
DCS 14	15.15	1972.5	0.35	6.2	9.95	6.6
DCS 15	16.275	1971.5	0.50	7.2	32.50	4.8
DCS 16	16.95	1970.5	0.41	9	28.10	4.5
DCS 17	17.65	1969.5	0.49	6.5	45.00	4
DCS 18	18.375	1968.5	0.46	7	75.60	1.7
DCS 19	19.1	1967.5	0.85	5.5	67.10	3.8
DCS 20	19.775	1966.5	0.61	6.5	127.00	3.4
DCS 21	20.35	1965.5	1.05	5.5	76.40	3.9
DCS 22	21.225	1964.5	0.69	5.1	164.00	3.9
DCS 23	22.1	1963.5	0.64	7.8	198.00	3.8
DCS 24	22.8	1962.5	0.49	7.7	293.00	3.7
DCS 25	23.65	1961.5	0.40	8.7	362.00	3.7
DCS 26	24.65	1960.5	0.41	7.2	339.00	3.7
DCS 27	25.725	1959.5	0.48	6.3	470.00	3.7
DCS 28	26.6	1958.5	0.40	8	706.00	3.7
DCS 29	27.3	1957.5	0.90	5	347.00	3.7
DCS 30	28.1	1956.5	0.56	6.5	306.00	3.7
DCS 31	28.925	1955.5	1.01	5.1	111.00	3.8
DCS 32	29.75	1954.5	0.76	5.5	19.80	4.9
DCS 33	30.575	1953.5	1.24	4.4	11.30	6.5
DCS 34	31.275	1952.5	1.01	7.2	3.50	10.1

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 35	31.95	1951.5	1.03	5.7	1.24	18.4
DCS 36	32.65	1950.5	1.17	5.5	1.21	18.5
DCS 37	33.325	1949.5	0.63	6.8	1.45	16
DCS 38	33.95	1948.5	0.92	5.6	0.90	15.7
DCS 39	34.8	1947.5	0.57	5.3	2.00	9.9
DCS 40	35.925	1946.5	0.67	4.9	1.64	12.9
DCS 41	36.925	1945.5	0.63	6.5		
DCS 42	37.65	1944.5	0.57	7.1		
DCS 43	38.375	1943.5	1.11	4.5		
DCS 44	39.225	1942.5	0.89	5		
DCS 45	40.125	1941.5	0.65	4.8		
DCS 46	41.025	1940.5	0.56	6		
DCS 47	41.925	1939.5	0.51	5.5		
DCS 48	42.775	1938.5	1.01	4.6		
DCS 49	43.55	1937.5	0.67	5.8		
DCS 50	44.25	1936.5	0.70	8		
DCS 51	44.9	1935.5	1.11	6.4		
DCS 52	45.725	1934.5	0.85	6		
DCS 53	46.5	1933.5	0.56	8.8		
DCS 54	47.25	1932.5	0.85	6.5		
DCS 55	48.225	1931.5	1.08	6.5		
DCS 56	49.225	1930	0.57	7.3		
DCS 57	50.225	1928.5	0.68	8		
DCS 58	51.1	1927.5	0.85	7.4		
DCS 59	51.825	1926.5	0.81	7.7		
DCS 60	52.55	1925.5	1.20	5		
DCS 61	53.1	1924.5	1.19	7.2		
DCS 62	53.725	1923.5	0.94	5.9		
DCS 63	54.575	1922.5	0.85	7.1		
DCS 64	55.325	1921.5	1.14	7		
DCS 65	55.95	1920.5	1.02	9.4		
DCS 66	56.525	1919.5	0.97	10.7		
DCS 67	57.15	1918.5	0.57	9.6		
DCS 68	57.825	1917.5	0.82	7.9		
DCS 69	58.575	1916.5	0.72	7.8		
DCS 70	59.375	1915.5	0.92	6.5		
DCS 71	60.05	1914.5	1.25	7.4		
DCS 72	60.675	1913.5			1.41	10.3
DCS 73	61.425	1912.5	0.79	5.9		
DCS 74	62.075	1911.5	1.06	6.6		
DCS 75	62.675	1910.5	1.03	7.5	2.68	38.4
DCS 76	63.275	1909.5	1.03	7		
DCS 77	63.925	1908.5	0.91	5.9	1.67	28.4

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 78	64.6	1907.5	0.72	7.7		
DCS 79	65.1	1906.5	0.94	7	3.00	73
DCS 80	65.675	1905.5			1.25	16.5
DCS 81	66.325	1904.5	1.01	6.4	1.43	9.8
DCS 82	66.95	1903.5	1.44	5.7	1.40	8.7
DCS 83	67.525	1902.5	0.87	7.2	1.31	17.9
DCS 84	68.2	1901.5	1.19	5.8	1.81	8.8
DCS 85	68.925	1900.5	0.94	6.5	1.77	21.8
DCS 86	69.575	1899.5	1.03	6.4	1.94	10.3
DCS 87	70.325	1898.5	0.66	8.7		
DCS 88	71.1	1897.5	0.85	7.4		
DCS 89	71.925	1896.2	0.85	7.1		
DCS 90	72.775	1894.7	1.59	5.3		
DCS 91	73.5	1893.5	1.46	5.5		
DCS 92	74.1	1892.5	1.49	6.2		
DCS 93	74.575	1891.5	1.12	9.3		
DCS 94	75.1	1890.5	1.50	6.3	1.22	16.6
DCS 95	75.825	1889.5	1.30	5	1.15	13.8
DCS 96	76.55	1888.5	1.19	6.5	1.18	13.7
DCS 97	77.075	1887.5	1.10	7.7	1.67	11.1
DCS 98	77.575	1886.5	1.21	7.1	1.25	12.8
DCS 99	78.05	1885.5	1.19	7.9	1.32	30.1
DCS 100	78.55	1884.5	1.26	6.4		
DCS 101	79.175	1883.5	0.82	6.9		
DCS 102	79.75	1882.5	0.95	7.7	0.96	14.4
DCS 103	80.3	1881.5	1.16	5.8	1.43	29.9
DCS 104	80.8	1880.5	0.99	8.3	0.72	30
DCS 105	81.3	1879.5	1.13	6.1	1.44	12.2
DCS 106	81.9	1878.5	1.00	5.8	2.00	7.1
DCS 107	82.45	1877.5	1.08	6.4	1.37	21.5
DCS 108	82.975	1876.5	0.81	9.4	2.01	16
DCS 109	83.55	1875.5	0.81	7.3	1.88	26.2
DCS 110	84.15	1874.5	0.69	9.8	1.14	31.1
DCS 111	84.8	1873.5	0.90	6	1.22	9.3
DCS 112	85.5	1872.5	0.78	5.5	0.97	19.8
DCS 113	86.15	1871.5	0.64	7.5	1.36	8.4
DCS 114	86.675	1870.5	0.85	7.4	1.10	10.5
DCS 115	87.15	1869.5	1.28	6	1.68	8.7
DCS 116	87.7	1868.5	1.05	5.9	1.79	7.1
DCS 117	88.375	1867.5	1.26	5.1	1.87	13.9
DCS 118	88.975	1866.5	1.18	8.7	1.43	10.7
DCS 119	89.475	1865.5	1.47	5.5	2.75	11
DCS 120	89.95	1864.5	0.87	7.9	1.36	10.8

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 121	90.4	1863.5	0.62	8.7	1.64	8.6
DCS 122	90.9	1862.5				
DCS 123	91.475	1861.5	0.91	5.8	1.13	15.9
DCS 124	92	1860.5	0.89	7.1	1.21	11.3
DCS 125	92.45	1859.5	1.13	8	1.63	54.6
DCS 126	92.95	1858.5	1.09	9.4	1.30	9.5
DCS 127	93.475	1857.5	0.96	11.1	1.82	7
DCS 128	94.025	1856.5	0.98	10.5	1.11	10.8
DCS 129	94.575	1855.5	0.78	13.4	0.95	12.3
DCS 130	95.1	1854.5	1.02	10.5	1.03	9.8
DCS 131	95.625	1853.5	0.65	15.6	0.87	21.7
DCS 132	96.15	1852.5	0.85	12.1	0.99	9.6
DCS 133	96.725	1851.5	0.76	11.3	1.47	7.3
DCS 134	97.3	1850.5	1.14	9.7	1.41	10.6
DCS 135	97.725	1849.5	1.11	12		
DCS 136	98.1	1848.5	0.82	16.9		
DCS 137	98.55	1847.5	0.78	12.6		
DCS 138	99.1	1846.5	0.89	6.8	1.13	13.9
DCS 139	99.65	1845.5	0.67	12.2	0.79	10
DCS 140	100.15	1844.5	1.14	5.4	1.65	6.8
DCS 141	100.58	1843.5	1.16	7.5	1.54	22.2
DCS 142	101	1842.5	1.60	5	1.90	7.7
DCS 143	101.58	1841.5	0.72	6	1.18	9.5
DCS 144	102.25	1840.5	1.08	4.5		
DCS 145	102.72	1839.5	0.84	7	1.86	25
DCS 146	103.15	1838.5	0.66	6	0.81	15
DCS 147	103.57	1837.5	1.35	6.4	2.15	8.6
DCS 148	103.9	1836.5	1.40	4.1	1.02	14.7
DCS 149	104.35	1835.5	0.91	5.6	1.19	9.1
DCS 150	104.88	1834.5	1.30	5.1	1.87	10
DCS 151	105.38	1833.5	1.31	5.7	1.44	12.2
DCS 152	105.92	1832.5	1.23	4.6	1.29	7.1
DCS 153	106.6	1831.5	0.62	6.3	1.04	8.2
DCS 154	107.22	1830.5	0.61	6.9	1.30	8
DCS 155	107.75	1829.5	0.71	6	1.03	10
DCS 156	108.35	1828.5	0.79	9.6	1.24	13.6
DCS 157	109.07	1827.5	0.86	9	0.94	23.7
DCS 158	109.72	1826.5	1.16	7	1.70	9.3
DCS 159	110.22	1825.5	1.04	5.9	1.77	7.9
DCS 160	110.63	1824.5	1.45	5.7	2.10	7.7
DCS 161	111.08	1823.5	1.28	5	1.48	8.3
DCS 162	111.58	1822.5	1.03	6.9	1.61	8.3
DCS 163	112.08	1821.5	1.13	5.5	1.27	9.8

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁸ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁸ Cl-Fehler (%)
DCS 164	112.67	1820.5	1.03	8	1.32	7.7
DCS 165	113.3	1819.5	1.03	5.2	1.50	15.1
DCS 166	113.85	1818.5	1.29	6	1.33	10
DCS 167	114.35	1817.5	1.38	5	1.50	7.7
DCS 168	114.9	1816.5	1.52	4.1	1.64	6.7
DCS 169	115.47	1815.5	1.27	5	1.22	7.9
DCS 170	116.08	1814.5	1.03	5	1.31	9
DCS 171	116.63	1813.5	1.49	6.5	1.61	10.1
DCS 172	117.03	1812.5	0.85	7.4	0.78	23.4
DCS 173	117.47	1811.5	1.54	5		
DCS 174	117.95	1810.5	1.56	5.9	2.01	11.3
DCS 175	118.42	1809.5	1.27	6	1.23	12.4
DCS 176	118.95	1808.5	1.09	6.7	1.15	17.9
DCS 177	119.35	1807.5	1.31	7.3	2.75	12.1
DCS 178	119.72	1806.5	0.94	6.7	1.76	6.4
DCS 179	120.25	1805.5	1.03	5.2	1.51	7.2
DCS 180	120.8	1804.5	0.96	4.8	1.32	5.8
DCS 181	121.28	1803.5	1.00	4	1.21	6.1
DCS 182	121.7	1802.5	0.89	4.5	1.12	6.7
DCS 183	122.1	1801.5	1.07	5.6	1.72	6.1
DCS 184	122.6	1800.5	1.30	3.8	2.17	4.2
DCS 185	123.1	1799.5	1.12	5	2.19	4.9
DCS 186	123.55	1798.5	1.30	8.1	2.14	4.4
DCS 187	124.08	1797.5	1.15	5.6	1.65	6
DCS 188	124.63	1796.5	1.00	4.7	1.43	6
DCS 189	125.15	1795.5	1.18	7.3	1.39	6.7
DCS 190	125.65	1794.5	1.17	5.5	1.76	7.4
DCS 191	126.13	1793.5	0.95	7.2	0.99	13.7
DCS 192	126.6	1792.5	0.73	7.6	0.85	8.9
DCS 193	127.08	1791.5	1.24	5.7	1.34	8.5
DCS 194	127.53	1790.5	0.85	7.3	0.89	10
DCS 195	128	1789.5	0.57	10.1	0.52	22
DCS 196	128.55	1788.5	0.82	6.5	0.83	8.5
DCS 197	129.18	1787.5	0.84	5.5	0.75	9
DCS 198	129.88	1786.5	0.54	8.3	0.62	9
DCS 199	130.57	1785.5	1.19	8.2	1.19	12
DCS 200	131.14	1784.5	1.04	7.3	1.62	7
DCS 201	131.53	1783.5	0.96	8.9	2.01	13.9
DCS 202	131.88	1782.5	1.09	8.2	0.82	20
DCS 203	132.3	1781.5	1.09	7.8	1.09	15
DCS 204	132.75	1780.5	0.80	7.8	0.94	10.6
DCS 205	133.2	1779.5	0.91	6.5	2.13	6.5
DCS 206	133.57	1778.5	1.01	8.1	1.41	8.3

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ⁸ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 207	133.95	1777.5	0.66	8.3	0.91	12.1
DCS 208	134.31	1776.7	0.70	10.1	0.99	13.3
DCS 209	134.61	1776	0.91	8.7	0.89	18.1
DCS 210	134.96	1775.4	0.83	7.8	1.09	7.5
DCS 211	135.46	1774.8	1.16	6	1.98	15.7
DCS 212	135.95	1773.8	1.06	7.5	1.98	8.8
DCS 213	136.37	1772.8	1.01	7.3	1.68	7.7
DCS 214	136.71	1771.7	1.18	7.4	1.39	11.7
DCS 215	136.97	1770.8	1.44	7.3	1.09	20
DCS 216	137.28	1770.4	0.92	8.1	1.34	9.5
DCS 217	137.7	1769.8	0.77	7.1	0.95	9
DCS 218	138.2	1768.9	0.94	6.5	0.94	13.6
DCS 219	138.7	1767.8	1.63	4.9	2.00	6.2
DCS 220	139.2	1767	1.15	5.7	1.50	7.7
DCS 221	139.7	1766	0.75	8.1	1.30	8
DCS 222	140.2	1764.8	1.07	6	1.43	8.8
DCS 223	140.7	1763.5	0.65	7.6	1.12	8.4
DCS 224	141.2	1762.3	1.20	6.4	1.25	20
DCS 225	141.7	1761.3	0.93	10	1.66	6.7
DCS 226	142.2	1760.4	0.81	7.9	1.71	7.9
DCS 227	142.7	1759.5	1.10	5.6	1.11	9.7
DCS 228	143.2	1758.6	0.86	8.8	1.23	8.4
DCS 229	143.7	1757.6	1.14	6.5	1.44	15.8
DCS 230	144.2	1756.6	0.74	9.1	0.86	12.8
DCS 231	144.7	1755.7	0.78	11.4	1.73	8.4
DCS 232	145.2	1754.8	0.98	8.7	1.98	8.6
DCS 233	145.7	1753.8	1.06	6.5	2.18	6.5
DCS 234	146.2	1752.8	1.30	5.3	1.57	8.4
DCS 235	146.7	1751.6	0.87	7.9	0.99	20
DCS 236	147.2	1750.3	0.69	10.1	1.15	9.2
DCS 237	147.7	1749.1	0.88	7.9	1.49	12.8
DCS 238	148.2	1748	1.09	7.2	1.89	9.9
DCS 239	148.7	1747.3	0.78	9.9	1.20	8
DCS 240	149.2	1746.4	0.80	7.6	1.52	10
DCS 241	149.7	1745.4	0.82	7.6	1.40	8.5
DCS 242	150.2	1744.3	0.84	8	1.24	12.5
DCS 243	150.7	1743	0.81	7.4	1.60	6.9
DCS 244	151.2	1742.1	0.78	9.4	1.07	9
DCS 245	151.7	1741.2	0.86	7.3	1.22	8.3
DCS 246	152.2	1740.2	0.93	6	1.24	9.4
DCS 247	152.7	1739.3	0.77	13.4	1.19	8
DCS 248	153.2	1738.3	0.84	11.3	1.29	10.1
DCS 249	153.7	1737	1.08	9.8	1.55	7.7

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ⁸ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 250	154.2	1735.8	0.91	11	1.77	6.6
DCS 251	154.7	1734.8	0.74	9.7	1.33	8.1
DCS 252	155.2	1733.7	0.51	11.1	0.94	9.1
DCS 253	155.7	1732.6	0.77	9.8	1.41	7.5
DCS 254	156.2	1731.7	0.46	16.2	1.06	9.4
DCS 255	156.7	1730.6	0.79	7.7	1.13	10.4
DCS 256	157.2	1729.6	0.65	10.9	1.44	15
DCS 257	157.7	1728.6	0.82	7.1	1.30	7.8
DCS 258	158.2	1727.6	0.97	6.7	1.32	8.5
DCS 259	158.7	1726.4	0.86	8	1.12	7.7
DCS 260	159.2	1725.2	0.81	8.4	1.17	12.3
DCS 261	159.7	1724.1	0.85	14.3	1.07	12.1
DCS 262	160.2	1723	1.10	7.5	1.45	13.2
DCS 263	160.7	1721.9	0.93	7.4	1.60	6.3
DCS 264	161.2	1720.9	0.81	10.8	1.16	7.8
DCS 265	161.7	1719.9	1.09	6.9	0.99	7.7
DCS 266	162.2	1718.9	1.16	5.9	1.32	8.9
DCS 267	162.7	1717.8	1.07	7.9	1.60	8.1
DCS 268	163.2	1716.7	1.73	12.3	1.32	8.7
DCS 269	163.7	1715.6	1.03	11.2	1.21	10.7
DCS 270	164.2	1714.5	1.30	6.9	1.02	11.1
DCS 271	164.7	1713.4	1.41	6.4	1.23	8.6
DCS 272	165.2	1712.3	1.61	4.1	1.55	7.5
DCS 273	165.7	1711.3	1.25	7	1.03	10.8
DCS 274	166.2	1710.2	1.06	7.3	1.34	8.5
DCS 275	166.7	1709.3	1.30	7.8	1.35	8.6
DCS 276	167.2	1708.3	1.34	5.6	1.47	11.2
DCS 277	167.7	1707.3	2.14	7.2	2.19	11
DCS 278	168.2	1706.2	1.59	5.3	1.98	13.2
DCS 279	168.7	1704.9	1.32	5.9	2.20	10
DCS 280	169.2	1703.7	1.64	5	2.16	9.9
DCS 281	169.7	1702.4	1.50	5	1.67	5.1
DCS 282	170.2	1701.2	1.51	5.6	1.83	4.7
DCS 283	170.7	1700	1.38	6.8	1.23	6
DCS 284	171.2	1698.8	1.66	10.1	1.70	5.1
DCS 285	171.7	1697.7	2.13	3.9	2.40	8.3
DCS 286	172.2	1696.7	1.13	5.5	1.57	5.1
DCS 287	172.7	1695.3	1.33	6.1	2.06	4.3
DCS 288	173.2	1693.7	1.28	6.4	1.86	5.2
DCS 289	173.7	1692.7	1.15	4.1	1.79	4.5
DCS 290	174.2	1691.7	0.97	5.6	1.59	4.5
DCS 291	174.7	1690.6	1.08	7.3	2.11	4.5
DCS 292	175.2	1689.7	1.03	7	1.00	11.5

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 293	175.7	1688.5	0.90	7.7	1.45	5.5
DCS 294	176.2	1687.4	0.87	6.5	1.99	3.9
DCS 295	176.7	1686.4	1.15	5.2	2.26	4
DCS 296	177.2	1685.3	1.11	8	1.41	5.2
DCS 297	177.7	1684.1	0.86	8.7	1.68	5
DCS 298	178.2	1683	0.91	4.7	1.56	4.2
DCS 299	178.7	1682	1.53	3.7	2.07	4.8
DCS 300	179.2	1681.1	0.77	5.1	0.95	5.6
DCS 301	179.7	1680	0.82	6.4		
DCS 302	180.2	1678.9	0.98	5.7	1.68	4.2
DCS 303	180.7	1677.9	1.19	5.1	2.00	3.9
DCS 304	181.2	1676.9	1.41	3.6	1.41	4.6
DCS 305	181.7	1675.8	1.58	4	1.98	4.8
DCS 306	182.2	1674.7	1.06	4.4	2.01	4.4
DCS 307	182.7	1673.6	0.88	4.8	1.35	4.8
DCS 308	183.2	1672.4	1.12	4.6	1.51	4.6
DCS 309	183.7	1671.3	1.33	4.3	1.79	5.2
DCS 310	184.2	1670.2	0.81	12.3	1.59	5
DCS 311	184.7	1668.9	0.53	7.8	0.55	9.5
DCS 312	185.2	1667.6	1.34	6.3		
DCS 313	185.7	1666.3	1.08	4.4	0.92	8.4
DCS 314	186.2	1664.9	1.05	4.1	1.95	5.8
DCS 315	186.7	1663.7	1.38	3.5	1.33	7.1
DCS 316	187.2	1662.7	1.39	3.8	1.82	6.6
DCS 317	187.7	1661.5	0.98	6.4	1.41	8.4
DCS 318	188.2	1660.3	1.08	4.4	1.41	8.5
DCS 319	188.7	1659.3	1.03	4.6	1.71	11.6
DCS 320	189.2	1658.3	0.95	5.7	1.46	7.4
DCS 321	189.7	1657.2	0.60	5.9	0.80	9.7
DCS 322	190.2	1655.7	1.02	4.4	1.00	7.7
DCS 323	190.7	1654.6	0.71	5.9	1.00	10
DCS 324	191.2	1653.7	0.98	5.8	1.68	6.8
DCS 325	191.7	1652.5	1.19	3.7	2.15	5.8
DCS 326	192.2	1651.2	1.15	4.3	1.52	7.7
DCS 327	192.7	1649.9	0.86	8.4	1.35	7.9
DCS 328	193.2	1648.8	1.37	4.8	1.79	11.4
DCS 329	193.7	1647.8	0.83	5.1	0.79	11.7
DCS 330	194.2	1646.8	1.29	5.2	2.81	6.5
DCS 331	194.7	1645.8	0.70	5.2	1.00	9.3
DCS 332	195.2	1644.7	0.86	7.6	1.03	10.5
DCS 333	195.7	1643.5	1.17	6	1.53	7
DCS 334	196.2	1642.4	1.07	6.2	0.92	12.3
DCS 335	196.7	1641.2	0.94	11.5	0.67	11.5

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 336	197.2	1639.9	1.25	5.2	0.90	9.1
DCS 337	197.7	1638.7	1.35	4.5	1.72	8.1
DCS 338	198.2	1637.5	1.32	4.6	1.49	13
DCS 339	198.7	1636.2	1.30	4.4	2.00	6
DCS 340	199.2	1634.9	1.30	4.4	1.76	12.3
DCS 341	199.7	1633.5	0.78	7.3	0.80	10.2
DCS 342	200.2	1632.2	0.91	5.8	1.31	6.7
DCS 343	200.7	1631	1.06	5.7	1.81	7.8
DCS 344	201.2	1630.1	0.67	6.8	0.89	15
DCS 345	201.7	1628.9	0.84	5.7	1.14	10.6
DCS 346	202.2	1627.6	1.01	5.6	1.00	9
DCS 347	202.7	1626.6	0.87	5.7	1.23	6.7
DCS 348	203.2	1625.7	0.88	5.1	1.08	13.2
DCS 349	203.7	1624.7	0.70	10.8	0.74	15.4
DCS 350	204.2	1623.8	1.22	5.9	2.09	5.2
DCS 351	204.7	1622.9	0.84	6.5		
DCS 352	205.2	1622.2	1.44	4.3		
DCS 353	205.7	1621.1	1.66	5.7		
DCS 354	206.2	1619.7	0.67	7.9	0.91	15
DCS 355	206.7	1618.4	0.73	11.1	1.15	7.7
DCS 356	207.15	1617.3	0.69	7.1		
DCS 357	207.55	1616.5	0.69	7.2	0.85	11.6
DCS 358	207.95	1615.8	0.96	5.8		
DCS 359	208.35	1615.3	0.77	6.7	1.64	7.5
DCS 360	208.75	1614.6	0.97	5.6	1.49	10.2
DCS 361	209.15	1613.7	1.09	4.3	1.30	15
DCS 362	209.55	1612.8	0.95	5.8	1.22	15
DCS 363	209.95	1611.8	0.91	8.6		
DCS 364	210.35	1610.8	0.95	12.8	1.46	10
DCS 365	210.75	1609.9	0.91	5.8	1.46	13.7
DCS 366	211.15	1609.3	0.94	4.6	1.67	7.9
DCS 367	211.55	1608.6			1.47	10.3
DCS 368	211.95	1607.7	0.76	5.8	1.24	8
DCS 369	212.35	1606.5	0.97	4.9	1.11	9
DCS 370	212.75	1605.6	1.09	5.4	1.51	5.9
DCS 371	213.15	1604.9	0.87	6.8		
DCS 372	213.55	1604.4	0.87	6.2	1.37	8.2
DCS 373	213.95	1603.9	0.90	6.1	1.28	13.7
DCS 374	214.35	1603.3	0.73	6.8	1.03	7.3
DCS 375	214.75	1602.6	2.08	6.1	1.31	7.3
DCS 376	215.15	1601.5	0.87	11.2	0.67	21
DCS 377	215.55	1600.3	0.97	6.5		
DCS 378	215.95	1599.4	1.48	5.1	1.28	7.3

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ⁸ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 379	216.35	1598.7	1.24	5.5	1.16	5.6
DCS 380	216.75	1597.9	1.43	5	1.16	12.7
DCS 381	217.15	1597.1	1.23	15.4		
DCS 382	217.55	1596.2	1.05	6.7	0.55	17.8
DCS 383	217.95	1595.1	1.19	14	0.88	9.2
DCS 384	218.35	1594.2	0.91	11.7	1.19	8.3
DCS 385	218.75	1593.3	0.58	16.6	0.45	11.9
DCS 386	219.15	1592.6	0.60	12.7	0.60	12.1
DCS 387	219.55	1591.9	0.82	10.4	0.92	11.7
DCS 388	219.95	1591.4	0.51	15.1	0.73	19.8
DCS 389	220.35	1590.9	0.62	8	0.85	11.8
DCS 390	220.75	1590.3	1.18	7.4	1.14	9
DCS 391	221.15	1589.6	1.25	6.6	2.10	9.6
DCS 392	221.55	1588.7	0.95	8	1.16	8.4
DCS 393	221.95	1587.7	0.95	12.1		
DCS 394	222.35	1586.6	1.48	13		
DCS 395	222.75	1585.3	1.43	5.6	1.53	7.5
DCS 396	223.15	1584.2	1.02	6.5	1.56	60
DCS 397	223.55	1583.1	1.27	7.5	1.29	6.3
DCS 398	223.95	1581.9	1.21	11.4	1.72	6.8
DCS 399	224.35	1580.9	1.52	9	1.97	8.7
DCS 400	224.75	1580	0.49	28.7	0.75	17.8
DCS 401	225.15	1578.9	0.99	12.2	1.23	8.2
DCS 402	225.55	1577.9	1.04	5.6	1.36	7.6
DCS 403	225.95	1577.2	1.07	6	1.75	8
DCS 404	226.35	1576.4	1.60	4	1.84	6.8
DCS 405	226.75	1575.5	1.19	5.7	1.55	6.1
DCS 406	227.15	1574.6	1.05	7.9	1.18	7.6
DCS 407	227.55	1573.8	1.17	5.9	2.25	5.5
DCS 408	227.95	1572.8	1.07	6.4	2.04	5.8
DCS 409	228.35	1571.8	1.11	7.3	1.61	6.1
DCS 410	228.75	1570.9	1.20	5.8	1.27	9.1
DCS 411	229.15	1570.3	0.77	7.4	1.31	6.8
DCS 412	229.55	1569.7	0.96	6.2	1.35	7.3
DCS 413	229.95	1568.8	0.74	6.1	1.42	8.7
DCS 414	230.35	1567.8	0.83	6.3		
DCS 415	230.75	1566.8	0.79	8.8		
DCS 416	231.15	1565.9	0.75	5		
DCS 417	231.55	1565.1	1.07	4.7		
DCS 418	231.95	1564.4	0.68	5.9		
DCS 419	232.35	1563.7	1.20	3.8		
DCS 420	232.75	1562.8	0.85	4.2		
DCS 421	233.15	1561.9	0.68	5.8		

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ⁸ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 422	233.55	1561.1	0.68	7.3		
DCS 423	233.95	1560.1	0.95	4.2		
DCS 424	234.35	1559.2	1.02	3.9		
DCS 425	234.75	1558.5	1.25	3.6		
DCS 426	235.15	1557.8	1.02	5		
DCS 427	235.55	1556.8	0.81	4.9		
DCS 428	235.95	1555.8	0.83	4.7		
DCS 429	236.35	1554.9	0.97	5.2		
DCS 430	236.75	1554.1	1.23	5.1		
DCS 431	237.15	1553.3	1.06	4.6		
DCS 432	237.55	1552.8	0.65	15.6		
DCS 433	237.95	1552.2	1.12	4.2		
DCS 434	238.35	1551.4	1.02	5.8		
DCS 435	238.75	1550.3	0.91	7.7		
DCS 436	239.15	1549.3	1.01	4.5		
DCS 437	239.55	1548.6	0.91	4.6		
DCS 438	239.95	1547.8	1.13	4.2		
DCS 439	240.35	1546.9	0.93	5.6		
DCS 440	240.75	1546.3	0.78	5.9		
DCS 441	241.15	1545.6	0.91	5.2		
DCS 442	241.55	1544.8	1.33	3.5		
DCS 443	241.95	1544.2	1.39	3.9		
DCS 444	242.35	1543.3	1.29	4.3		
DCS 445	242.75	1542.6	0.70	7.1		
DCS 446	243.15	1541.8	1.30	6.8		
DCS 447	243.55	1541.1	1.09	5.7		
DCS 448	243.95	1540.4	1.08	4.3		
DCS 449	244.35	1539.7	0.87	5.1		
DCS 450	244.75	1538.8	1.17	4.3		
DCS 451	245.15	1538	0.96	6.6		
DCS 452	245.55	1537.2	1.07	4.2		
DCS 453	245.95	1536.3	1.16	4.5		
DCS 454	246.35	1535.3	1.17	7.3		
DCS 455	246.75	1534.6	1.38	8.6		
DCS 456	247.15	1533.8	1.48	8.4		
DCS 457	247.55	1532.8	1.36	4.1		
DCS 458	247.95	1532	1.73	3.7		
DCS 459	248.35	1531.2	1.49	5.3		
DCS 460	248.75	1530.6	1.82	3.8		
DCS 461	249.15	1529.9	1.13	5.2		
DCS 462	249.55	1529.1	1.37	4.4		
DCS 463	249.95	1528.2	1.38	16.8		
DCS 464	250.35	1527.3	1.56	4.2		

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 465	250.75	1526.2	1.42	3.7		
DCS 466	251.15	1525.5	1.54	3.8		
DCS 467	251.55	1524.8	1.47	4.2		
DCS 468	251.95	1524.1	1.28	3.9		
DCS 469	252.35	1523.3	1.09	4.1		
DCS 470	252.75	1522.5	1.30	3.7		
DCS 471	253.15	1521.6	1.74	3.5		
DCS 472	253.55	1520.6	1.15	4.3		
DCS 473	253.95	1519.8	1.64	3.5		
DCS 474	254.35	1519.1	1.02	4.8		
DCS 475	254.75	1518.2	1.39	4		
DCS 476	255.15	1517.2	0.73	4.3		
DCS 477	255.55	1516.4	1.19	3.9		
DCS 478	255.95	1515.7	1.68	3.4		
DCS 479	256.35	1514.7	1.20	5.7		
DCS 480	256.75	1513.8	0.92	4.4		
DCS 481	257.15	1513.2	1.07	4.6		
DCS 482	257.55	1512.5	1.54	3.3		
DCS 483	257.95	1511.7	1.23	4		
DCS 484	258.35	1511.1	1.96	3.8		
DCS 485	258.75	1510.3	0.93	6.3		
DCS 486	259.15	1509.5	1.52	4.4		
DCS 487	259.55	1508.7	1.25	3.9		
DCS 488	259.95	1507.8	1.60	3.3		
DCS 489	260.35	1506.8	1.78	3		
DCS 490	260.75	1505.9	0.75	5.2		
DCS 491	261.15	1505.1	0.53	7.9		
DCS 492	261.55	1504.3	1.69	2.9		
DCS 493	261.95	1503.4	0.61	4.4		
DCS 494	262.35	1502.6	0.74	3.3		
DCS 495	262.75	1501.8	0.72	4.1		
DCS 496	263.15	1501.1	0.76	3.6		
DCS 497	263.55	1500.3	0.80	3.8		
DCS 498	263.95	1499.6	0.66	3.7		
DCS 499	264.35	1498.7	0.55	6.8		
DCS 500	264.75	1497.7	0.66	4.3		
DCS 501	265.15	1496.8	0.93	3.5		
DCS 502	265.55	1496.1	0.71	3.7		
DCS 503	265.95	1495.3	0.83	3.7		
DCS 504	266.35	1494.6	0.77	3.5		
DCS 505	266.75	1493.9	1.40	2.9		
DCS 506	267.15	1493.2	1.28	3.5		
DCS 507	267.55	1492.3	1.05	3.1		

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 508	267.95	1491.4	1.10	3.1		
DCS 509	268.35	1490.6	1.45	2.7		
DCS 510	268.75	1489.5	1.33	3		
DCS 511	269.15	1488.5	1.01	5.5		
DCS 512	269.55	1487.8				
DCS 513	269.95	1487.1	1.21	3.3		
DCS 514	270.35	1486.2	0.93	3.6		
DCS 515	270.75	1485.3	1.48	3.3		
DCS 516	271.15	1484.6	1.25	4		
DCS 517	271.55	1483.6	1.12	3		
DCS 518	271.95	1482.7	1.26	5.2		
DCS 519	272.35	1481.9	0.87	3.9		
DCS 520	272.75	1481	0.85	5.3		
DCS 521	273.15	1480.1	0.83	5.5		
DCS 522	273.55	1479.2	1.18	3.1		
DCS 523	273.95	1478.2	1.97	3		
DCS 524	274.35	1477.3	1.43	4.3		
DCS 525	274.75	1476.4	1.42	3.1		
DCS 526	275.15	1475.6	1.12	3.7		
DCS 527	275.55	1474.7	1.07	3.5		
DCS 528	275.95	1473.9	1.55	3.6		
DCS 529	276.35	1473.1	1.26	3.5		
DCS 530	276.75	1472.2	1.65	6.2		
DCS 531	277.15	1471.2				
DCS 532	277.55	1470.3	1.33	12.6		
DCS 533	277.95	1469.4	1.44	4.7		
DCS 534	278.35	1468.3	0.90	9.4		
DCS 535	278.75	1467.3	1.54	4.2		
DCS 536	279.15	1466.3	1.03	4.9		
DCS 537	279.55	1465.6	1.34	5.3		
DCS 538	279.95	1464.8	1.27	7.7		
DCS 539	280.35	1464.2	1.33	11.3		
DCS 540	280.75	1463.3	1.30	6.6		
DCS 541	281.15	1462.3	1.61	3.4		
DCS 542	281.55	1461.3	2.13	3.8		
DCS 543	281.95	1460.2	1.65	6.5		
DCS 544	282.35	1459.3	1.12	5.4		
DCS 545	282.75	1458.8	5.57	2.8		
DCS 546	283.15	1458.3	0.88	6.1		
DCS 547	283.55	1457.6				
DCS 548	283.95	1456.8	1.65	3.3		
DCS 549	284.35	1455.8	1.62	3.2		
DCS 550	284.75	1454.9	1.16	4.5		

Anhang 1: Die Daten von Milcent und Dye 3

Label	Tiefe (m)	Alter (AD)	¹⁰ Be-Konz. (10 ⁴ At/g)	¹⁰ Be-Fehler (%)	³⁶ Cl-Konz. (10 ³ At/g)	³⁶ Cl-Fehler (%)
DCS 551	285.15	1454.1	1.19	6.4		
DCS 552	285.55	1453.3				
DCS 553	285.95	1452.3	1.07	16.2		
DCS 554	286.35	1451.4	1.32	17.8		
DCS 555	286.75	1450.4	1.51	4.2		
DCS 556	287.15	1449.6	1.32	4.6		
DCS 557	287.55	1448.7	1.12	7.2		
DCS 558	287.95	1447.8	1.64	3.8		
DCS 559	288.35	1447.1	1.50	3.9		
DCS 560	288.75	1446.2	1.24	12.1		
DCS 561	289.15	1445.1	1.05	4.6		
DCS 562	289.55	1444.2	1.25	6.3		
DCS 563	289.95	1443.2				
DCS 564	290.35	1442.3	1.63	4.9		
DCS 565	290.75	1441.3	1.65	5.7		
DCS 566	291.15	1440.5	1.18	8.6		
DCS 567	291.55	1439.7	0.92	4.5		
DCS 568	291.95	1438.9	1.37	5.7		
DCS 569	292.35	1438.1	1.27	5.1		
DCS 570	292.75	1437.2	1.30	4.5		
DCS 571	293.15	1436.3	1.23	8.3		
DCS 572	293.55	1435.6	1.15	5		
DCS 573	293.95	1434.8	1.02	9.4		
DCS 574	294.35	1433.9	1.43	5.2		
DCS 575	294.75	1432.9				
DCS 576	295.15	1432.2	0.20	38.1		
DCS 577	295.55	1431.6	1.43	7.1		
DCS 578	295.95	1430.8	1.14	6.3		
DCS 579	296.35	1430.1				
DCS 580	296.75	1429.2	1.23	5.6		
DCS 581	297.15	1428.3	1.14	4.4		
DCS 582	297.55	1427.5	0.88	7.9		
DCS 583	297.95	1426.8	1.35	6		
DCS 584	298.35	1426.3	1.44	5.6		
DCS 585	298.75	1425.5				
DCS 586	299.15	1424.7				
DCS 587	299.55	1423.9	1.08	5.7		
DCS 588	299.88	1423	1.46	4.5		

Bemerkung

Für diese Arbeit wurden nur die Daten von DCS 94 bis DCS 413 verwendet. Der Bombenpeak im ^{36}Cl nach 1950 AD wurde zum Beispiel von Synal (1990) untersucht.

Anhang 2

Summit: Die Säulenmethode im Feld

Dieser Abschnitt ist eng mit dem Kapitel 2 "Eisproben-Aufbereitung" verknüpft.

A.2.1 Einführung

Die Idee, die Spurenstoffe im Eis auf Ionentauscher-Säulen zu nehmen, entstand aus den Schwierigkeiten beim Transport und bei der Lagerung des Eises. Die Säulenmethode ist überall da unerlässlich, wo nur kleine Transportkapazitäten vorhanden sind oder wo keine Möglichkeit besteht, Eis oder Schnee während des Transports ständig gefroren zu halten.

Wir haben Harze und Säulen der Firma Biorad verwendet (siehe Tabelle A.2.B). Diese Säulen wiegen wenige Gramm und sind weder wärme- noch kälteempfindlich, ja, die Harze können sogar gefrieren, ohne Schaden zu nehmen (der Hersteller rät hier allerdings zur Vorsicht). Dadurch hat man wesentlich weniger Volumen zu transportieren und die Lagerung ist viel einfacher. Falls die Säulen grossen Druckschwankungen ausgesetzt sind (ca. 3000 Meter Höhendifferenz), sollte der Deckel der Kationensäulen vorsichtshalber gesichert werden, damit die Säulen keinesfalls auslaufen. Im Feld sind die Anforderungen an die Logistik bei grösseren Probenmengen etwas höher als bei der alten Methode. Zunächst braucht man ein ca. 2 m hohes Zelt (in Grönland ein speziell dickwandiges Polarzelt), in dem die Beladung bei Temperaturen über dem Gefrierpunkt stattfinden kann. In Figur A.2.1 ist die Beladungslinie gezeigt. In Tabelle A.2.A sind die für die verschiedenen Schritte benötigten Geräte aufgelistet. Die Grösse der Linie hängt von der Bohrgeschwindigkeit ab sowie vom eingesetzten Personal. Während der Arbeit kann die Heizung je nach Witterung, Ort und Zeltyp fast vollständig von den

Anhang 2: Summit

Mikrowellenöfen und vom Fön übernommen werden. Während der Nacht haben sich elektrische Oefen am besten bewährt.

Arbeitsgang	Benötigte Geräte und Einrichtungen
Allgemeines	Raum > 10° C mit Tisch + Stromversorgung, tot. ca. 10 m ² , ca. 2 m hoch
Sägen	1 Inka-Bandsäge
Transport	1 Rucksackgestell mit Transportrohren
Reinigen	1 Industriefön, Waschgitter 1 kW Stromversorgung
Schmelzen	2-3 Mikrowellenöfen Schmelzkübel 2 kW Stromversorgung
Carrierzugabe	2-3 Pipetten
"Wägen"	2 Messzylinder
Ionentauscher	Anionen- + Kationensäulen Systemzubehör wie Bretter, Schlauch, Klammern, Klebbänder etc.
Verpackung	1 Schweissgerät mit Zange, ca. 1 kW (alternierend mit Fön) Plastikschlauch
Hin- und Rücktransport	stabile Kisten, am besten Aluminium

Tab. A.2.A Bedarf an Geräten und Versorgung im Feld

	Kationen	Anionen
Harztyp	AG 50W-X8	AG 4-X4
Spezifikationen		
- Gitterweite	100-200	100-200
- Ion. Form	H ⁺	Free Base
- Kapazität	1.7 (meq/ml nominal)	1.6 (nass)
- Durchmesser (µm)	108-250	75-150
- Dichte (g/ml)	0.8	0.7
Harz-Füllmenge	2 ml	10 ml

Tab. A.2.B Spezifikationen der verwendeten Harze

A.2.2 Arbeitseinteilung

Die **Reinigung** von 10 Eiskernen dauert ca. 1 Stunde.

Als Engpass hat sich das **Schmelzen** erwiesen (2 Mikrowellenöfen). Ein Kilogramm Eis benötigt auf 3250 Meter über Meer in Grönland ca. 17 Minuten zum Schmelzen (dies entspricht ca. 3800 Metern über Meer in Zentraleuropa wegen der schnelleren Temperaturabnahme mit der Höhe über Grönland und der grösseren Gravitationskonstante).

Die **Durchlaufzeit durch die Säulen** brauchte für 1 Liter Wasser ungefähr 3 Stunden. Die Durchlaufgeschwindigkeit differiert etwas von System zu System. Einzelne Systeme brauchten 4-5 Stunden.

Die **Verschweissung** der Säulen in Plastikschauch war ebenfalls zeitaufwendig (ca. 1.5 Stunden für 20 Säulen inkl. Montage von 20 ungebrauchten Säulen am Brett).

Das **Sägen** unseres Eisstück (was eigentlich nicht zu der Systembedienung gehört) erwies sich zeitweise als Full time job. Da es in die Verarbeitungslinie des Kerns integriert war, musste dem Sägen Priorität eingeräumt werden.

Beschreibung des Verarbeitungsablaufs

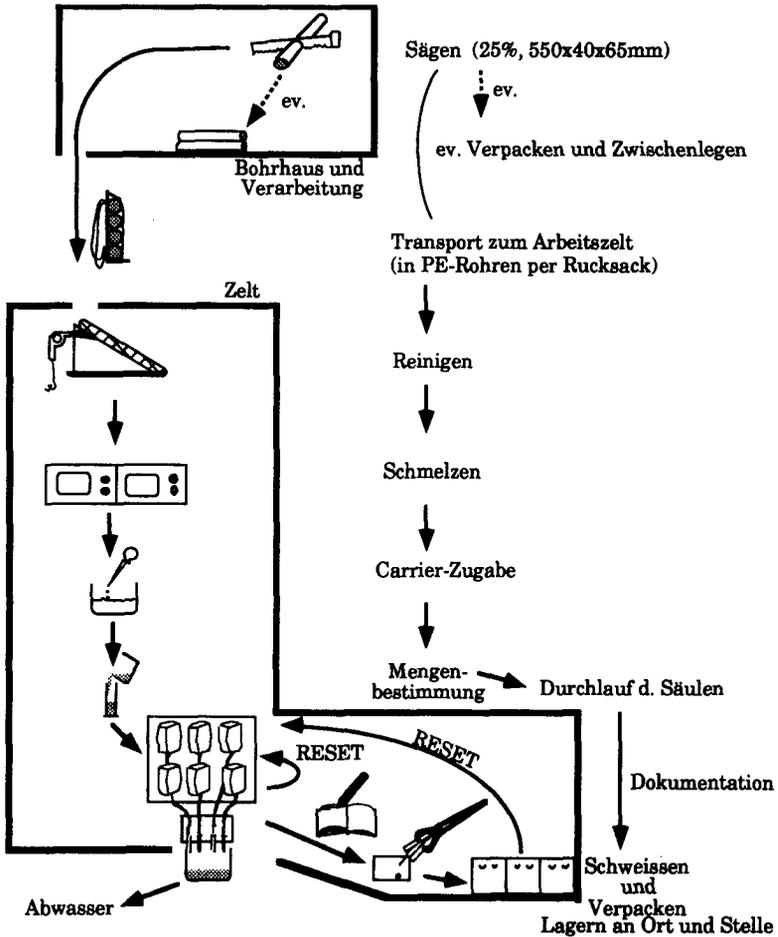


Fig. A.2.1 Schematische Darstellung des Verarbeitungsablaufs bei der Säulenbeladung in Summit.

Fazit

Zusammen mit dem Sägen und dem Antransport der Proben ergab sich oft ein gestörter Arbeitsrhythmus. Es wäre zweifellos effizienter, 2 Personen einsetzen zu können, so dass eine Person ständig die Säulenlinie bedienen kann. Trotzdem läuft die Verarbeitung flüssiger ab als bei der alten Methode, wo das Eindampfen die Aufarbeitung unheimlich verzögerte oder dann viel zu viel Platz in Anspruch nahm. Das Eindampfen muss zudem vor allem gegen Schluss überwacht werden, die Säulen nur am Anfang.

A.2.3 Vergleich von Organisation und Kosten der beiden Methoden

Eine Kostenaufstellung und ein Vergleich ist ausserordentlich schwierig. Es kommt sehr darauf an, was die Logistik im Camp schon zur Verfügung stellt. Die Kosten für Transport und Kühlhäuser variieren stark, ebenso die Spesen für eine nachträgliche Bearbeitung des Eises.

Wir gingen beim Vergleich immer von der gleichen Eismenge aus. Die Transportkosten wurden für die Strecke Schweiz-Grönland per Flugzeug berechnet (hin und zurück). Das Campmaterial beinhaltet nur Zubehör zum System, kein Zelt, keine Heizung etc. Die Kosten für eine Person im Camp konnte ich nur grob schätzen. Die nachträglichen Bearbeitungskosten gelten für Schweizer, die nach Kopenhagen reisen. Die Kühlhauskosten konnte ich nicht angeben, da meist eigene Kühlhäuser benützt werden, deren Betriebskosten ich nicht kenne. Die Lagerung erfolgt bei -25°C in speziell abgesicherten Kühlhäusern. Ein Teil des Kerns (mind. 25%) wird immer aufbewahrt.

Alle Angaben sind als Richtwerte zu verstehen.

Anhang 2: Summit

Posten	Kosten (SFr.)		Organisation + Bem.
	alte Meth.	neue Meth.	
Vorbereitung	-	viel Detailarbeit, Zeit je nach Erfahr.	
Feldmaterial	-	5'000	ohne Zelt, nur Zubehör
Säulenmaterial	-	17'000	für je 1500 Säulen
Transport	4-5'000	4'000 für 310 kg	stark fallabhängig Transp.vol. a.M:n.M=2:1
Manpower	sei X	ca. 2X	ungefähre, relat. Ang.
Campvoraus.	Säge	zus. 1/2 Zeit, 3 kW Elek.	
Lagerung	aufwendig	±keine	
Nachtr. Bearb. d. Eis. im Kühhl.	10'000	-	2 Pers. ca. 4 Wochen
Verarb. im Labor	5-6 Y	sei Y	je nach Arrangement von Pers. und/od. Mat

Tab. A.2.C *Kostenaufstellung beider Aufbereitungsmethoden*

Bei grossen Projekten wird die Säulenmethode umso günstiger, je mehr Proben verarbeitet werden. Ein Grossteil der Kosten und des Transportvolumens sind Einrichtungsgegenstände, die immer den gleichen Umfang haben unabhängig von der Anzahl der Proben.

A.2.4 Gegenüberstellung der beiden Methoden

Die Säulenmethode konnte sowohl in einem grossen Projekt (Summit) wie auch in einem einfachen Kleinprojekt mit eingeschränkten Transportmöglichkeiten auf einem Himalaya-Gletscher (durch U. Schotterer, Bern) erprobt werden. Letzteres wurde durch die Säulenmethode wesentlich erleichtert, da während des Transports keine Kühlung zur Verfügung stand. Bei Expeditionen, wo die Ausrüstung getragen werden muss, sind mehrere Kilogramm Wasserproben unhandlich respektive unzumutbar.

Auch im Summit-Projekt sind die Erfahrungen gut. Ueber die Resultate kann noch nichts Definitives ausgesagt werden. Jedoch zeigen erste Testmessungen, dass alles Chlor von der Säule eluiert werden kann und die Konsistenz des Pulvers normal ist. Bei solch grossen Projekten lohnt sich eine ausführlichere Diskussion von Kosten und Nutzen. Als Beispiel nehmen wir immer obiges Projekt.

Man kann die Ansicht vertreten, dass das Camp so klein als möglich gehalten werden sollte, das heisst, dass man möglichst wenig Leute und Ausrüstung ins Feld transportiert. Nur die absolut notwendigen Messungen werden noch vor Ort durchgeführt. Das vereinfacht die Organisation im Feld. Am Lagerort hingegen wird der Aufwand erheblich grösser, denn die Eiskerne müssen wieder ausgepackt und die verschiedenen Gruppen koordiniert werden. Das ist im Kühlhaus, das mitten in der Stadt liegt, häufig kaum möglich, da nicht genug Platz zur Verfügung steht. Das wiederum bedeutet, dass die Kerne mehrmals hintereinander ausgepackt werden müssen, was mit ziemlichem Aufwand verbunden ist. Es gibt also zwei Ansichten: Die eine legt wert auf einen minimalen Aufwand im Feld, die andere bevorzugt die rationellere Verarbeitung des Kerns im Feld. Die Benutzergruppen finden es oft angenehmer, den Kern in einem Male zu bearbeiten. In unserem Falle ersparen uns die Säulen viel Zeit und vereinfachen unsere Arbeit im Labor erheblich. Wie man aus der Tabelle oben abschätzen kann, erkaufen wir das mit einem etwas höheren finanziellen Aufwand.

Welchem Aspekt man mehr Gewicht beimessen will, muss von Projekt zu Projekt abgeklärt werden. Das nachträgliche Sägen im Kühlhaus scheint uns umständlich und auch finanziell nicht lohnend zu sein. Wenn man sich dafür entscheidet, das Eis nicht im Feld auf die Säulen zu nehmen, so scheint es doch auf jeden Fall sinnvoll, die Stücke für die verschiedenen Gruppen bereits im Feld zu separieren. Nur so ist nachher eine rationelle Versendung möglich. Nach unseren Erfahrungen in Summit braucht nur Sägen für unser Projekt etwa 1 Person, die nicht ganz ausgelastet ist. Das hängt allerdings stark von der Bohrgeschwindigkeit ab (Summit: Bis

Anhang 2: Summit

30 m/ Tag). Mit ca. 2 - 3 Personen hätte man in Summit sämtliches Eis auf Säulen abfüllen können.

Bibliografie

- Attolini, M. R., Galli, M., und Nanni, T. (1988): Long and Short Cycles in Solar Activity During the Last Millenia. In: *Secular Solar and Geomagnetic Variations in the Last 10,000 Years.*, F. R. Stephenson und A. W. Wolfendale, Eds. Dordrecht, Kluwer Academic Publishers, C 236, 49-68.
- Baltensperger, U., Schwikowski, M., Gäggeler, H. W., Jost, D. T., Beer, J., Siegenthaler, U., Wagenbach, D., Hofmann, H. J., und Synal, H. A. (1993): Transfer of Atmospheric Constituents into an Alpine Snow Field. *Atmospheric Environment*, 27A, No. 12, 1881-1890.
- Balunias, S., und Jastrow, R. (1993): Evidence on the Climate Impact of Solar Variations. *Energy: The International Journal*. eingereicht.
- Bascom Purdy, C. (1991): *Isotopic and Chemical Tracer Studies of Ground Water in the Aquia Formation, Southern Maryland: Including ^{36}Cl , ^{14}C , ^{18}O and ^3H* . Dissertation, University of Maryland.
- Beer, J., Siegenthaler, U., Oeschger, H., Andrée, M., Bonani, G., Suter, M., Wölfli, W., Finkel, R. C., und Langway, C. C. (1983): Temporal ^{10}Be Variations. *18th International Cosmic Ray Conference. Bangalore India*, 9, 317-320. Tata Institute of Fundamental Research, Bombay.
- Beer, J., Andrée, M., Oeschger, H., Siegenthaler, U., Bonani, G., Hofmann, H., Morenzoni, E., Nessi, M., Suter, M., Wölfli, W., Finkel, R., und Langway Jr., C. (1984): The Camp Century ^{10}Be Record: Implications for Long-Term Variations of the Geomagnetic Dipole Moment. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 233 B5, 380-384.

Bibliografie

- Beer, J., Bonani, G., Hofmann, H. J., Suter, M., Synal, H. A., Wölfli, W., Oeschger, H., Siegenthaler, U., und Finkel, R. C. (1987): ^{10}Be Measurements on Polar Ice: Comparison of Arctic and Antarctic Records. In: *4th Intl. Symp. on Acc. Mass Spectrometry*, 203-206.
- Beer, J., Siegenthaler, U., und Blinov, A. (1988): Temporal ^{10}Be Variations in Ice: Information on Solar Activity and Geomagnetic Field Intensity. In: *Secular Solar and Geomagnetic Variations in the Last 10,000 Years*. F. R. Stephenson und A. W. Wolfendale, Eds.. Dordrecht, Kluwer Academic Publishers, 297-313.
- Beer, J., Blinov, A., Bonani, G., Finkel, R. C., Hofmann, H. J., Lehmann, B., Oeschger, H., Sigg, A., Schwander, J., Staffelbach, T., Stauffer, B., Suter, M., und Wölfli, W. (1990): Use of ^{10}Be in Polar Ice to Trace the 11-Year Cycle of Solar Activity. *Nature*, **347**, 164-166.
- Beer, J., Finkel, R. C., Bonani, G., Gäggeler, H., Görlach, U., Jacob, P., Klockow, D., Langway, C. C., Jr., Neftel, A., Oeschger, H., Schotterer, U., Schwander, J., Siegenthaler, U., Suter, M., Wagenbach, D., und Wölfli, W., (1991): Seasonal Variations in the Concentration of ^{10}Be , Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , H_2O_2 , ^{210}Pb , ^3H , Mineral Dust, and $\delta^{18}\text{O}$ in Greenland Snow. *Atmospheric Environment*, **25A**, No. 5/6, 899-904.
- Beer, J., Baumgartner, S., Hannen-Dittrich, B., Hauenstein, J., Kubik, P., Lukaczyk, Ch., Mende, W., Stellmacher, R., und Suter, M. (eingereicht): Solar Variability Traced by Cosmogenic Isotopes.
- Blinov, A. (1988): The Dependence of Cosmogenic Isotope Production Rate on Solar Activity and Geomagnetic Field Variations. In: *Secular Solar and Geomagnetic Variations in the Last 10,000 Years*. F. R. Stephenson and A. W. Wolfendale, Eds., Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 329-340.
-

Bibliografie

- Blinov, A. (1993a): Formation of Chlorine-36 in the Atmosphere by Solar Protons. EAWAG, Dübendorf, nicht publiziert.
- Blinov, A. (1993b): Memory Note on ^{10}Be Fall-out in Rain Water. EAWAG, Dübendorf, nicht publiziert.
- Blinov, A., und Kremliovskij, M. N. (1991): Formation of Chlorine-36 Under the Action of Cosmic Rays in the Earth's Atmosphere. *Bull. Acad. of Sci. USSR, Phys. series*, **55**, 190-192.
- Brown, L., Stensland, G. J., Klein, J., und Middleton, R. (1989): Atmospheric Deposition of ^7Be and ^{10}Be . *Geochimica et Cosmochimica Acta*. **53**, 135-142.
- Bucha, V. (1983): *Magnetic Field and the Processes in the Earth's Interior*. Academia Press, Prag.
- Conard, N. J., Kubik, P. W., Gove, H. E., und Elmore, D. (1989): A ^{36}Cl Profile in Greenland Ice from AD 1265 to 1865. *Radiocarbon*, **31**, 585-591.
- Dicke, R. H. (1978): "Is there a chronometer hidden deep in the Sun?". *Nature*. **276**, 676-680.
- Eddy, J. A. (1976): The Maunder Minimum. *Science*, **192**, 1189-1201.
- Elmore, D., Tubbs, L. E., Newman, D., Ma, X. Z., Finkel, R., Nishiizumi, K., Beer, J., Oeschger, H., und Andree, M. (1982): The ^{36}Cl Bomb Pulse Measured in a 100m Ice Core from Dye 3, Greenland. *Nature*, **300**, 735-737.
- Elmore, D., Conard, N. J., Kubik, P. W., Gove, H. E., Wahlen, M., Beer, J., und Suter, M. (1987a): ^{36}Cl and ^{10}Be in Greenland Ice: Dating and Production Rate Variations. In: *4th Intl. Symp. on Acc. Mass Spectr.*, 207-210.

Bibliografie

- Elmore, D., und Phillips, F. M. (1987b): Accelerator Mass Spectrometry for Measurements of Long-Lived Radioisotopes. *Science*, **236**, 543-550.
- Eugster, O., Beer, J., Burger, M., Finkel, R. C., Hofmann, H. J., Krähenbühl, U., Michel, T., Synal, H. A., und Wölfli, W. (1991): History of the Paired Meteorites MAC88104 and MAC88105 Derived from Noble Gas Isotopes, Radionuclides, and Some Chemical Abundances. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **55**, 3139-3148.
- Fabian, P. (1989): *Atmosphäre und Umwelt*. Springer Verlag, Berlin.
- Finkel, R. C., Langway, C. C., und Clausen, H. B. (1986): Changes in Precipitation Chemistry at Dye 3, Greenland. *J. Geophys. Res.*, **91 D9**, 9849-9855.
- Friedman, H. (1987): *Die Sonne - Aus der Perspektive der Erde*. Spektrum der Wissenschaft, Heidelberg.
- Friis-Christensen, E., und Lassen, K. (1991): Length of the Solar Cycle: An Indicator of Solar Activity Closely Associated with Climate. *Science*, **254**, 698-700.
- Groveman, B. S., und Landsberg, H. E. (1979a): Reconstruction of Northern Hemisphere Temperature. 1579 - 1880. *University of Maryland, College Park, MD, Publication*, 79-181.
- Groveman, B. S., und Landsberg, H. E. (1979b): Simulated Northern Hemisphere Temperature Departures 1579-1880. *Geophys. Res. Letters*, **6**, 767-769.
- Gwinn, E., und Sarmiento, J. L. (1984): *A Model for Predicting Strontium-90 Fallout in the Northern Hemisphere (1954-1974)*. Ocean Tracers Laboratory Technical Report #3, Depart. Geol. Geophys. Sciences, Princeton University.

Bibliografie

- Hammer, C. U. (1977): Past Volcanism Revealed by Greenland Ice Sheet Impurities. *Nature*, **270**, 482-486.
- Hammer, C. U., Clausen, H. B., Dansgaard, W., Gundestrup, N., Johnsen, S. J., und Reeh, N. (1978): Dating of Greenland Ice Cores by Flow Models, Isotopes, Volcanic Debris, and Continental Dust. *Journal of Glaciology*, **20**, 3-26.
- Hammer, C. U., Clausen, H. B., und Dansgaard, W. (1980): Greenland Ice Sheet Evidence of Post-Glacial Volcanism and its Climatic Impact. *Nature*, **288**, 230-235.
- Haubold, H. J., und Beer, J. (1992): Solar Activity Cycles Revealed by Time Series Analysis of Argon-37, Sunspot-Number, and Beryllium-10 Records. In: *Solar-Terrestrial Variability and Global Change*, IUGG/IAGA Assembly Vienna 1991, Ed. W. Schröder und J. P. Legrand, 11-34.
- Hauglustaine, D., und Gérard, J.-C. (1990): Possible Composition and Climatic Changes due to Past Intense Energetic Particle Precipitation. *Annales Geophysicae*, **8**, 87-96.
- Holton, J. R. (1990): On the Global Exchange of Mass between the Stratosphere and Troposphere. *J. of Atmospheric Sciences*, **47**, 392-395.
- Holton, J. R. (eingereicht): The Quasi-Biennial Oscillation in the Earth's Atmosphere and its Links to Longer Period Variability.
- Hoyt, D. V. (1993): A Discussion of Plausible Solar Irradiance Variations, 1700-1992. *Journal of Geophysical Research (Special Issue on Solar Total Irradiance and Sun-Climate 1993)*.

Bibliografie

- Johnsen, S. J., Dansgaard, W., und White, J. W. C. (1989): The Origin of Arctic Precipitation under Present and Glacial Conditions. *Tellus*, **41B(1989)**, 452-468.
- Jones, P. D., Raper, S. C. B., Bradley, R. S., Diaz, H. F., Kelly, P. M., und Wigley, T. M. L. (1986): Northern Hemisphere Surface Air Temperature Variations, 1851-1984. *J. Clim. Appl. Met*, **25**, 161-179.
- Junge, C. E. (1977): Processes Responsible for the Trace Content in Precipitation. In: *Grenoble Symposium Isotopes and Impurities in Snow and Ice*, **118(1977)**, 63-77.
- Kelly, P. M., und Wigley, T. M. L. (1992), Solar Cycle Length, Greenhouse Forcing and Global Climate. *Nature*, **360**, 328-330.
- Labitzke, K., und Chanin, M.-L. (1988): Changes in the Middle Atmosphere in Winter Related to the 11-Year Solar Cycle. *Annales geophysicae*, **6**, 643-644.
- Labitzke, K., und van Loon, H. (1987): Associations Between the 11-Year Cycle, the QBO, and the Atmosphere. Part 1: The Troposphere and Stratosphere on the Northern Hemisphere in Winter. *J. Atmos. Terr. Phys.*, **50**, 197-206.
- Lal, D., und Peters, B. (1967): Cosmic Ray Produced Radioactivity on the Earth. In: *Handbuch der Physik*, Ed. S. Flügge, Springer, Berlin, 551-612.
- LAPETH/IGW (1989): *Rigi - Wechselwirkung zwischen Luftfremdstoffen und Niederschlägen*. Mitteilungen der Naturforschenden Gesellschaft Luzern, 30. Band 1988.
- Lean, J. (1991): Variations in the Sun's Radiative Output. *Reviews of Geophysics*, **29**, 505-535.
-

Bibliografie

- Legrand, J.-P., Le Goff, M., Mazaudier, C., und Schröder, W. (1991): L'activité solaire et l'activité aurorale au XVIIe siècle. *La vie des Sciences, Comptes rendus, série générale*. 8.
- Lomb, N. R. (1976): *Astrophys. Space Sci.*, **39**, 447-462.
- Luder, R. (1986): *^{10}Be und ^7Be in Niederschlägen und Luftfiltern*. Diplomarbeit, Universität Bern.
- Manley, G. Q. (1974): Central England Temperatures: Monthly Means 1659 - 1973. *Quart. J. R. Met. Soc.*, **100**, 389-405.
- Mayewski, P. A., Spencer, M. J., Lyons, B. W., und Twickler, M. S. (1987): Seasonal and Spatial Trends in South Greenland Snow Chemistry. *Atmospheric Environment*, **21**, 863-869.
- McElhinny, M. W., und Senanayake, W. E. (1982): Variations in the Geomagnetic Dipole 1: The Past 50,000 Years. *J. Geomag. Geoelectr.*, **34**, 39-51.
- Monaghan, M. C. (1987): Greenland Ice ^{10}Be Concentrations and Average Precipitation Rates north of 40°N to 45°N . *Earth and Planetary Science Letters*, **84**(1987), 197-203.
- Monaghan, M. C. (1988): The Origin of ^{10}Be in Island-Arc Volcanic Rocks. *Earth and Planetary Science Letters*, **89**(1988), 288-298.
- Newkirk, G., Jr. (1984): What Accelerator Mass Spectrometry can do for Solar Physics. In: *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research*, **233 (B5) No.2**, 404-410.
- O'Brien, K. (1979): Secular Variations in the Production of Cosmogenic Isotopes in the Earth's Atmosphere. *J. Geoph. Res.*, **84**, **A2**, 423-431.

Bibliografie

- O'Sullivan, D., und Salby, M. L. (1990): Coupling of the Quasi-biennial Oscillation and the Extratropical Circulation in the Stratosphere through Planetary Wave Transport. *J. of Atmospheric Sciences*, **47**, 650ff.
- Oeschger, H., Houtermans, J., Loosli, H., und Wahlen, M. (1970): *Radiocarbon Variations and Absolute Chronology. 12th Nobel Symposium, New York*. Ed. I.U Olsson, Almquist & Wiksell, Stockholm, 471-498.
- Paterson, W. S. B., und Hammer, C. U. (1987): Ice Core and Other Glaciological Data. *The Geology of North America*, **K-3**, 91-109.
- Reiter, E. R. (1975): Stratospheric-Tropospheric Exchange Processes. *Reviews of Geophysics and Space Physics*, **13**, 459-474.
- Roberts, W. O., und Olson, R. H. (1973): Geomagnetic Storms and Wintertime 300-mb Trough Development in the North Pacific-North America Area. *J. of the Atmospheric Sciences*, **30**, 135-140.
- Scargle, J. D. (1982): *Astrophys. J.*, **263**, 835-853.
- Scheffel, C. (1992): *Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{36}Cl zur Bestimmung des globalen ^{36}Cl -Niederschlags*. Diplomarbeit, Techn. Universität München.
- Schlesinger, M. E., und Ramankutty, N. (1992): Implications for Global Warming of Intercycle Solar Irradiance Variations. *Nature*, **360**, 330-333.
- Schove, D. J. (1983): *Sunspot Cycles*. Benchmark Papers in Geology, **68**. Hutchinson Ross Publishing Company, Stroudsburg, Pennsylvania.
- Schumann, T. (1989): *Precipitation Scavenging of Aerosol Particles: A Winter Time Field Study*. Dissertation Nr. 8843, ETH Zürich.

Bibliografie

- Schwander, J. (1988): The Transformation of Snow to Ice and the Occlusion of Gases. *The Dahlem Workshop on The Environmental Record in Glaciers and Ice Sheets*, 53-68.
- Shapira, D., Devries, R. M., Fulbright, H. W., Tönke, J., und Clover, M. R. (1975): The Rochester Heavy Ion Detector. *Nucl. Instr. Meth.*, **129**(1975), 123-130.
- Siegenthaler, U., Heimann, M., und Oeschger, H. (1980): ^{14}C Variations Caused by Changes in the Global Carbon Cycle. *Radiocarbon*, **22**, 177-191.
- Stauffer, B. (1993): Ist ein über mehrere Jahrtausende stabiles Klima die Ausnahme? *Spektrum der Wissenschaft*, Jan. 93, 16-18.
- Stix, M. (1991): *The Sun - An Introduction*. Astronomy and Astrophysics Library. Springer Verlag, Berlin.
- Stuiver, M., und Quay, P. D. (1980): Changes in Atmospheric Carbon-14 Attributed to a Variable Sun. *Science*, **207**, 11-19.
- Stuiver, M., und Braziunas, T. F. (1993): Sun, Ocean, Climate and Atmospheric $^{14}\text{CO}_2$, an Evaluation of Causal and Spectral Relationships. *The Holocene*, **3**, Dez. 93.
- Suter, M., Balzer, R., Bonani, G., und Wölfli, W. (1984): A Fast Beam Pulsing System for Isotope Ratio Measurements. *3rd International Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, Nuclear Instruments and Methods*, **233**(B5), 242-246.
- Suter, M., Beer, J., Bonani, G., Hofmann, H. J., Michel, D., Oeschger, H., Synal, H. A., und Wölfli, W. (1987): ^{36}Cl Studies at the ETH/SIN-AMS Facility. *AMS 87*, **B29**, 211-215.

Bibliografie

- Synal, H. A., Beer, J., Bonani, G., Hofmann, H. J., Suter, M., und Wölfli, W. (1987): Detection of ^{32}Si and ^{36}Cl with the ETH/SIN EN-Tandem. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, **B29**, 146-150.
- Synal, H.-A. (1989): *Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{36}Cl* . Dissertation Nr. 8987, ETH Zürich.
- Synal, H.-A., Beer, J., Bonani, G., Suter, M., und Wölfli, W. (1990): Atmospheric Transport of Bomb-Produced ^{36}Cl . *5. internat. Conf. on AMS*, **1**, 483-488.
- Tinsley, B. A., Brown, G. M., und Scherrer, P. H. (1989): Solar Variability Influences on Weather and Climate: Possible Connections Through Cosmic Ray Fluxes and Storm Intensification. *J. Geophys. Res.*, **94 D12**, 14783-14792.
- Turekian, K. K., und Volchok, H. L. (1979): *The Natural Radioactive Isotopes of Beryllium in the Environment*. Abstracts and a report from a meeting at the Yale University, New Haven.
- Venne, D. E., und Dartt, D. G. (1990): An Examination of Possible Solar Cycle-QBO Effects in the Northern Hemisphere Troposphere. *J. of Climate*, **3**, 272-281.
- Wahlen, M., Deck, B., Weyer, H., Kubik, P., Sharma, P., und Gove, H. (1991): ^{36}Cl in the Stratosphere. *14th International Radiocarbon Conference*, **33/2/1991**, 257-258.
- Watson, L. R., Van Doren, J. M., Davidovits, P., Worsnop, D. R., Zahniser, M. S., und Kolb, C. E. (1990): Uptake of HCl Molecules by Aqueous Sulfuric Acid Droplets as a Function of Acid Concentration. *J. Geophys. Res.*, **95 D5**, 5631-5638.

Figurenverzeichnis

Nummer	Titel	Seite
1. Seite	Bohrstationen in Grönland nach Johnsen (1989)	
Fig. 2.1.1	Flussdiagramm der ^{36}Cl -Probenverarbeitung	10
Fig. 2.2.1	Querschnitt durch eine Bohrkuppel im Eis	11
Fig. 2.2.2	Säulenbeladungsplatz in Summit	16
Fig. 2.3.1	Skizze der Presseinrichtung und des Targets von ^{36}Cl	24
Fig. 4.1.1	Die AMS-Anlage an der ETH Zürich in der ^{36}Cl -Konfiguration	44
Fig. 4.1.2	Schema der Quelle der AMS-Anlage	46
Fig. 4.4.1	Energieverlustcharakteristiken von ^{36}S und ^{36}Cl im Detektorgas	54
Fig. 4.4.2	Energieverlustspektren einer ^{36}Cl -Probe	56
Fig. 4.4.3	$\Delta E_1 + \Delta E_2$ vs. ΔE_{tot} -Plot einer ^{36}Cl -Probe	57
Fig. 5.1.1	^{36}Cl -Zeitreihe von Camp Century nach Conard (1989)	62
Fig. 5.2.1	^{36}Cl -Zeitreihe von Milcent mit Messfehlern	66
Fig. 5.2.2	^{10}Be -Zeitreihe von Milcent mit Messfehlern	67
Fig. 5.2.3	$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis von Milcent mit Messfehlern	67
Fig. 5.2.4	Normierte ^{10}Be und ^{36}Cl -Konz. von Milcent	69
Fig. 5.2.5	Normiertes $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis von Milcent	69
Fig. 5.2.6	Lomb-Scargle Periodogramme der ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konz. und deren Verhältnis von Milcent	72
Fig. 5.2.7	Lomb-Scargle Periodogramme von $\delta^{18}\text{O}$ und der Akkumulationsrate von Milcent	73
Fig. 5.2.8	^{36}Cl -Konzentrationen von Dye 3	76
Fig. 5.2.9	^{10}Be -Konzentrationen von Dye 3	77
Fig. 5.2.10	$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis von Dye 3	77
Fig. 5.2.11	tiefpassgefilterte ^{36}Cl -Konz. von Dye 3 ($T_L=6y$)	79
Fig. 5.2.12	tiefpassgefilterte ^{10}Be -Konz. von Dye 3 ($T_L=6y$)	79
Fig. 5.2.13	tiefpassgefiltertes $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verh. von Dye 3 ($T_L=6y$)	79
Fig. 5.2.14	Lomb Scargle Periodogramme der ^{36}Cl - und ^{10}Be -Konz. von Dye 3	82
Fig. 5.2.15	Lomb-Scargle Periodogramm des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -	

Figurenverzeichnis

	Verhältnisses von Dye 3	82
Fig. 5.2.16	Lomb-Scargle Periodogramme von $\delta^{18}\text{O}$ und der Akkumulationsrate von Dye 3	83
Fig. 5.2.17	Zeitliche Entwicklung des Lomb-Scargle Diagramms der ^{10}Be -Konz. von Dye 3	85
Fig. 5.2.18	Zeitliche Entwicklung des Lomb-Scargle Diagramms der ^{36}Cl -Konz. von Dye 3	85
Fig. 5.2.19	Zeitliche Entwicklung des Lomb-Scargle Diagramms des $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisses von Dye 3	86
Fig. 5.2.20	Zeitliche Entwicklung des Lomb-Scargle Diagramms von $\delta^{18}\text{O}$ von Dye 3	86
Fig. 5.3.1	^{36}Cl -Konzentrationen von Milcent und Camp Century	90
Fig. 5.3.2	norm. ^{36}Cl -Konzentrationen von Milcent und Camp Century	90
Fig. 5.3.3	norm. ^{36}Cl -Konzentrationen von Dye 3 und Camp Century	90
Fig. 5.3.4	norm. ^{10}Be -Konzentrationen von Dye 3 und Milcent	92
Fig. 5.3.5	norm. ^{36}Cl -Konzentrationen von Dye 3 und Milcent	92
Fig. 5.3.6	$^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisse von Dye 3, Milcent und Camp Century	94
Fig. 5.3.7	norm. ^{10}Be -Flüsse von Milcent und Dye 3	96
Fig. 5.3.8	norm. ^{36}Cl -Flüsse von Milcent und Dye 3	96
Fig. 5.3.9	Erwartete Breitenverteilung in der Deposition von atmosphärisch produzierten Isotopen nach Lal und Peters (1967)	100
Fig. 5.4.1	Isotopenflüsse im Gewitter von 1988	106
Fig. 5.4.2	normierte Isotopenkonzentrationen im Gewitter 1988	106
Fig. 5.4.3	norm. $^7\text{Be}/^{10}\text{Be}$ -Verh. und Niederschlagsintensität im Gewitter 1988	107
Fig. 5.4.4	norm. Isotopenverhältnisse und Niederschlags- intensität im Gewitter 1988	107
Fig. 5.4.5	norm. Isotopenflüsse im Gewitter 1991	109
Fig. 6.1.1	Postuliertes Wirkungsschema auf die Isotope in der Atmosphäre mit Ueberblick über Kapitel 6	113
Fig. 6.1.2	Aufbau der Sonne und ihrer Atmosphäre	114

Figurenverzeichnis

Fig. 6.1.3	Der Weg von ^{10}Be und ^{36}Cl in der Atmosphäre	121
Fig. 6.2.1	^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen von Dye 3 mit den Säurepeaks nach Vulkanausbrüchen im Eis von Crête	132
Fig. 6.3.1	$\Delta^{14}\text{C}$ und die Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl von Milcent	136
Fig. 6.3.2	$\Delta^{14}\text{C}$ und die Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl von Dye 3	138
Fig. 6.3.3	$\Delta^{14}\text{C}$ und die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisse von Dye 3 und Milcent	139
Fig. 6.3.4	Die Aurorae und die Konzentrationen von ^{10}Be und ^{36}Cl in den Eiskernen von Milcent, Dye 3 und Camp Century	141/42
Fig. 6.3.5	Die Aurorae und die $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnisse in den Eiskernen von Milcent, Dye 3 und Camp Century	143
Fig. 6.3.6	Vergleich der gemessenen mit der synthetischen ^{10}Be -Konzentration von Dye 3	146
Fig. 6.3.7	Vergleich des Schwabezyklus in den Sonnenflecken mit dem in den Konzentrationen von ^{36}Cl und ^{10}Be von Dye 3 nach 1750 AD	148
Fig. 6.3.8	Vergleich des Schwabezyklus in den Sonnenflecken mit dem in den Konzentrationen von ^{36}Cl und ^{10}Be von Dye 3 vor 1750 AD	149
Fig. 6.3.7	Vergleich des Schwabezyklus in den Sonnenflecken mit dem in den kombinierten Konzentrationen von ^{36}Cl und ^{10}Be von Dye 3	150
Fig. 6.3.10/11	Vergleich der Bandfilterungen der ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen von Dye 3 und der Sonnenflecken	155
Fig. 6.3.12	Die Sonnenmelodie in der ^{10}Be -Konzentration	156
Fig. 6.3.13	Vergleich der Sonnenflecken mit dem $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis von Dye 3	163
Fig. 6.3.14/15	Vergleich der Schockwellen mit den ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen und ihrem Verhältnis von Dye 3	164
Fig. 6.3.16	^{36}Cl -Produktionsrate aus niederenergetischen Termen	171
Fig. 6.4.1	Akkumulationsrate und $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ -Verhältnis von	

Figurenverzeichnis

	Milcent	183
Fig. 6.4.2	Flüsse, korrigierte und unkorrigierte Konzentrationen und deren Verhältnisse von Dye 3	184/85
Fig. 6.4.3	^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen und ihr Verhältnis von Dye 3 verglichen mit der nordhemisphärischen Temperatur	189
Fig. 6.4.4	^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen und ihr Verhältnis von Milcent verglichen mit der nordhemisphärischen Temperatur	190
Fig. 6.4.5	Vergleich von $\delta^{18}\text{O}$, den ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen und ihrem Verhältnis von Milcent	192
Fig. 6.4.6	Gleissbergzyklus im ^{10}Be und ^{36}Cl von Dye 3, im $\Delta^{14}\text{C}$ von Baumringen und in der nordhemisphärischen Temperatur	194
Fig. 6.4.7	Die Köhler-Gleichung	199
Fig. 6.4.8	HCl-Aufnahmekoeffizient in $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Tröpfchen	202
Fig. 6.5.1	Klimaauffällige Zeiten im Dye 3 Kern um 1800 AD	210
Fig. 6.5.2	Die ^{10}Be - und ^{36}Cl -Konzentrationen, ihr Verhältnis und $\delta^{18}\text{O}$ von Dye 3	211
Fig. 6.5.3	Schema der mittleren meridionalen Zirkulation und den hypothetischen Transportwegen von ^{10}Be und ^{36}Cl	215
Fig. 7.1.1	Postuliertes Wirkungsschema auf ^{10}Be und ^{36}Cl in der Atmosphäre	225
Fig. A.2.1	Schema der Eisverarbeitung mit Säulen in Summit	250

Tabellenverzeichnis

Tab.	Titel	Seite
Tab. 2.3.A	Kontaminationsquellen für Chlorproben im Labor	22/23
Tab. 3.2.A	Testprobenaufstellung	35
Tab. 4.1.A	^{36}Cl -Kenngrößen des ETH/PSI-Tandem- beschleunigers in Zürich	45
Tab. 5.2.A	Mittelwerte der Isotopenkonzentrationen von Milcent	68
Tab. 5.2.B	Mittelwerte der Isotopenkonzentrationen von Dye 3	80
Tab. 5.3.A	Zusammenstellung der wichtigsten Eiskerne	89
Tab. 5.3.B	Vergleich der Mittelwerte der Isotopenkonzentrationen von Camp Century, Dye 3 und Milcent	97
Tab. 5.3.C	Vergleich der Mittelwerte der Isotopenflüsse von Camp Century, Dye 3 und Milcent	98
Tab. 5.3.D	Geschätzte global gemittelte Isotopenflüsse verschiedener Autoren	99
Tab. 5.4.A	Werte des Gewitters vom 15.8.88	104
Tab. 5.4.B	Werte des Gewitters vom 11.9.91	105
Tab. 6.2.A	Test auf Isotopenpeaks in Dye 3 nach Vulkan- eruptionen	133
Tab. 6.3.A	Daten der Minima in den Isotopenreihen von Dye 3	152/53
Tab. 6.4.A	Korrelationen der hochfrequenten Anteile in Milcent	180
Tab. 6.4.B	Korrelationen der niederfrequenten Anteile in Milcent	180
Tab. 6.4.C	Korrelationen der hochfrequenten Anteile in Dye 3	181
Tab. 6.4.D	Korrelationen der niederfrequenten Anteile in Dye 3	181
Tab. 6.4.E	Korrelationen der Isotopenflüsse und -konzentra- tionen in Milcent	187
Tab. 6.4.F	Korrelationen der Isotopenflüsse und -konzentra- tionen in Dye	187
Anh. A.1.1	Numerische ^{10}Be - und ^{36}Cl -Daten von Milcent	228
Anh. A.1.2	Numerische ^{10}Be - und ^{36}Cl -Daten von Dye 3	232
Tab. A.2.A	Gerätebedarf für die Säulenaufbereitung im Feld	248
Tab. A.2.B	Spezifikationen der verwendeten Harze	249
Tab. A.2.C	Kostenaufstellung beider Aufbereitungsmethoden	252



*

Die fünf Jahre an der EAWAG waren reich an Erlebnissen. In der angenehmen Atmosphäre gedieh nicht nur die Arbeit über das sagenhafte ^{36}Cl , sondern auch der Entschluss, etwas Neues zu wagen. Die Herausforderungen, die sich in dieser Zeit stellten, hätte ich ohne die Hilfe von vielen Seiten nicht zu bewältigen vermocht. Deshalb danke ich allen, die mich während des Uebergangs von der ETH-Welt in die Welt des Dolmetschens geduldig unterstützt haben.

Diesseits der Brücke danke ich Silvia, Alfi, Ivo, Klaus und Stephan für die gute Zusammenarbeit im Labor und beim Eis- und Brettersägen. Die AMS-Crew an der ETH auf dem Höggerberg, speziell Hans-Arno Synal, hat mit ihrem phänomenalen Einsatz bei der Entwicklung und dem

* mit freundlicher Genehmigung des Schweiz. Gehörlosenbundes (SGB)

wochenlangen Betrieb der ^{36}Cl -Messung einen Grundstein für diese Arbeit gelegt. Heidi Bolliger wurde nicht müde, lächelnd bei der Illustration meiner Arbeit zu helfen, und Annette Johnson verlieh nicht nur der EAWAG eine wohlthuende englische Note, sondern auch meinem Abstract. Die familiäre Atmosphäre, die MU und Jürg Schlatter in den Doktorandenstall brachten, und Vreni's fröhlicher Aufruf immer zur Kaffeezeit wirken nachhaltig wärmend. Desgleichen gilt für den lebendigen Austausch mit allen MitdoktorandInnen der Umwelphysik. Ein spezieller Dank geht an Martin für seine kontinuierliche Versorgung mit vitaminreichem Obst, an Irka, der es beinahe gelungen wäre, mir bei echt polnischen Pan Cakes meinen Namen echt polnisch aussprechen zu lehren, und an Tissi, einerseits für seine fachliche Beratung bei der Analyse meiner Zeitreihen und andererseits für seinen Leitsatz 'Mach deine Diss fertig, bevor sie dich fertig macht', der mir stets ein Ansporn war, die Oberhand zu behalten.

Ein herzliches Dankeschön geht an Bob Finkel und Alexander Blinov für die interessanten Diskussionen und den feinen Humor, an R. Stellmacher und W. Mende für die Zusammenarbeit und die Tips bei der Datenauswertung, an das geophysikalische Institut in Kopenhagen, speziell an Kristian und Jørgen-Peder für den Kulturaustausch und die unkomplizierte Unterstützung beim Eissägen der Beryllium-people, an alle Eisfritzen des physikalischen Instituts der Uni Bern für die freundschaftliche Zusammenarbeit in Summit, ganz besonders an Markus Möll für seinen selbstlosen Einsatz, ohne den ich im wahrsten Sinne des Wortes in der Eiswüste gestanden wäre. Die Mitglieder des LAPETH's verhalfen uns mit ihren Erläuterungen zum Geschehen in den Wolken und mit der Organisation des Gewitterexperiments zu wesentlich konkreteren Vorstellungen über das Schicksal "unserer" Isotope in der Atmosphäre, genauso wie die Gruppe von H. Gäggeler am PSI mit der Einführung in die geheimnisvolle Welt der Atmosphärenchemie. Der von ihnen in dünner Luft erbohrte und zusammengeschaufelte Schnee dürfte noch für mehrere Doktoranden reichen. Margit hat darüberhinaus mit ihren sehr treffenden

Bemerkungen zu einer frühen Version dieser Arbeit die Diss in eine gute Richtung gelenkt.

Herrn Prof. Waldvogel danke ich für die Annahme des Korreferats, die Durchsicht der Diss und für die Bemerkungen zu unseren Ergebnissen aus der Sicht eines Atmosphärenfachmannes.

Zwei riesige Dankeshände gebühren Jürg Beer für die kollegiale Zusammenarbeit im Drop in-Stil, die unermüdlichen Korrekturen der Arbeit sowie die unzähligen Diskussionen und Anregungen, und Dieter Imboden für die finanzielle Unterstützung und die aufgeschlossene Art. Mit ihrer positiven Haltung gegenüber meiner Entscheidung, eine neue Brücke zum Dolmetschen zu schlagen, erleichterten sie mir den grossen Schritt und die Beendigung dieser Arbeit. Dies empfand ich nie als selbstverständlich, zumal die Umstellung nur mit einem reduzierten Engagement in der UP zu bewältigen war.

Den offenen Empfang auf der anderen Seite der Brücke werde ich Benno, Brigitt, Claudia und Patrick (der jetzt wohl untätig zu Hause sitzt, weil ich auf seinem Computer die Diss schreibe), Tanja und Alfredo, Andreas Kolb, Andreas Janner, Boris, Dani, Ruedi und Katja, Felix und Annemarie, Christian und Sandra, Inge, Heidi, Peter Hemmi und Zimi nie vergessen. Die Thematik meiner Arbeit interessierte mich, in der zauberhaften Sprache der Gebärden aber wohnte das Herz. Es brauchte eine ganze Weile, bis ich mit diesem Zwiespalt zurechtkam. Erst die Annahme im Kreis der Gehörlosen gab mir die Ruhe, meine Diss fertigzuschreiben.

Stark verbunden fühle ich mich jenen Leuten an der ETH, die sich selber in beide Welten hineingefühlt haben. Ihr Verständnis war mir eine grosse Erleichterung und bestärkte mich in meinem Weg. Mein grosser Dank geht an Herrn Prof. H.P. Schreiber, Herrn M. Landolt vom Rektorat, auch für die finanzielle Unterstützung, und an Ruedi Signer.

Schliesslich möchte ich all meinen Freunden mitteilen, zu wieviel Motivation mir ihre Aufmunterungen, Telefone, Karten, Wetten, Einladungen, Halstücher, Geburtstagsessen (und und und...) verholfen haben, auch wenn ich monatelang nichts von mir hören liess. Ein Riesenschmatz an Marco und Kuki, Stöff, Jüge und Peter, Erika, Ruth Helfenstein, Ruth Luginbühl, Myrta, Silvia, Biber's, Regenscheit's, Locher's, Jacqueline, Alexandros, Stefan und Brigitte, Kaspar und Vera, Stefan und Vera, Forti und Rahel, Susanne, Markus Ammann, Urs Liebing, Dagmar und Familie, Peter, Heidi und Lilly, Dani Matter, Christoph und Familie, Ursula Nook, Silvio und Karin und an R. Schweizer, deren Einsatz weit über das hinausging, was ich je erwartet hätte.

Meiner Familie bin ich zutiefst dankbar für ihre liebevolle Aufmerksamkeit und die grosszügige Unterstützung in allen Belangen, die mir die Freiheit gab, mich ganz meinen Interessen widmen zu können.

Lebenslauf

von Christian Lukasczyk

26. Februar 1963 Geboren in Shepton Mallet (GB) als Sohn von Erna und Peter Lukasczyk-Gloor
- Sommer 1963 Uebersiedlung nach Buchs (AG)
Aufgewachsen in Buchs
- 1970 - 1975 Primarschule in Buchs
- 1975 - 1979 Bezirksschule in Buchs
- 1979 - 1982 Kantonsschule in Aarau mit naturwissenschaftlich-mathematischem Abschluss (Matur Typus C)
- 1982 - 1987 Studium der Atmosphärenphysik an der ETH Zürich (Abt. XB4)
- Schlussdiplomprüfung in Atmosphärenphysik, Geophysik, Festkörperphysik und Oekologie
- Diplomarbeit in Atmosphärenphysik bei Herrn Prof. H.C. Davies zum Thema "Numerische Untersuchung des Kräftegleichgewichts zwischen einem stationären Kaltluftsee und dem Fallwind im Gebirgslee"
- 1987 - 1988 Arbeit bei einer westschweizer Charterfluggesellschaft.
Reisen nach Afrika und Island
- seit 1988 Dissertation am Institut für Umweltp Physik an der ETH Zürich bei Herrn Prof. D. Imboden
- Sommer 1991 Mitarbeit bei der europäischen Eisbohrung in Summit, Grönland
- 1991 - 1993 Berufsbegleitende Ausbildung zum Gebärdendolmetscher für Gehörlose am Heilpädagogischen Seminar (HPS) in Zürich.
Abschluss des ersten Ausbildungsteils mit dem Zertifikat
- April 1994 Abschluss der vorliegenden Arbeit