

**GMELIN HANDBUCH DER
ANORGANISCHEN CHEMIE**

8. AUFLAGE

RADIUM

ERGÄNZUNGSBAND 1

GESCHICHTLICHES

KOSMOCHEMIE · GEOCHEMIE

Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie

Achte völlig neu bearbeitete Auflage

Main Series, 8th Edition

RADIUM

Ergänzungsband 1

Ergänzungsband 1

Ergänzungsband 1

Mit 1 Figur

BEARBEITER
(AUTHORS)

Isa Kubach, Gmelin-Institut, Frankfurt am Main
(Kosmochemie, Geochemie)
Fritz Weigel, Universität München

REDAKTEURE
(EDITORS)

Isa Kubach (Kosmochemie, Geochemie)
Kurt Swars, Gmelin-Institut, Frankfurt am Main

System-Nummer 31



Springer-Verlag
Berlin · Heidelberg · New York 1977

ENGLISCHE FASSUNG DER STICHWÖRTER NEBEN DEM TEXT;

ENGLISH HEADINGS ON THE MARGINS OF THE TEXT;

E. LELL, LINZ, ÖSTERREICH

DIE LITERATUR IST BIS ENDE 1975 AUSGEWERTET

LITERATURE CLOSING DATE: END OF 1975

Die vierte bis siebente Auflage dieses Werkes erschien im Verlag von
Carl Winter's Universitätsbuchhandlung in Heidelberg

Library of Congress Catalog Card Number: Agr 25-1383

ISBN 3-540-93333-6 Springer-Verlag, Berlin · Heidelberg · New York
ISBN 0-387-93333-6 Springer-Verlag, New York · Heidelberg · Berlin

Die Wiedergabe von Gebrauchsnamen, Handelsnamen, Warenbezeichnungen usw. im Gmelin Handbuch berechtigt auch ohne besondere Kennzeichnung nicht zu der Annahme, daß solche Namen im Sinne der Warenzeichen- und Markenschutz-Gesetzgebung als frei zu betrachten wären und daher von jedermann benutzt werden dürften.

Das Werk ist urheberrechtlich geschützt. Die dadurch begründeten Rechte, insbesondere die der Übersetzung, des Nachdruckes, der Entnahme von Abbildungen, der Funksendung, der Wiedergabe auf photomechanischem oder ähnlichem Wege und der Speicherung in Datenverarbeitungsanlagen bleiben, auch bei nur auszugsweiser Verwertung, vorbehalten.

Printed in Germany. — All rights reserved. No part of this book may be reproduced in any form—by photoprint, microfilm, or any other means—with or without written permission from the publishers.

© by Springer-Verlag, Berlin · Heidelberg 1977

LN-Druck Lübeck

abdruckt die von dem Verlag verordneten Abdruckrechte.

Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie

(bis 1960 erschienen) 1. Auflage 1934-1942
Durchgutachten 1943-1948 2. Auflage 1949-1952

Achte völlig neu bearbeitete Auflage

Durchgutachten 1954-1960 3. Auflage 1961-1968

Main Series, 8th Edition

Wasserstoff und Wasserstoffverbindungen 1. Auflage 1969-1972
Sauerstoffverbindungen 2. Auflage 1973-1978

Grundlagen und Methoden 1. Auflage 1979-1982
Metalle und Metallverbindungen 2. Auflage 1983-1988

Abkömmlinge des Wasserstoffs 1. Auflage 1989-1992
(2. Aufl. 1993) 1. Auflage
Abkömmlinge des Sauerstoffs 1. Auflage 1993-1996
(2. Aufl. 1997) 1. Auflage
Abkömmlinge des Wasserstoffs 1. Auflage 1997-2000
(2. Aufl. 2001) 1. Auflage
(2. Aufl. 2002) 1. Auflage
(2. Aufl. 2003) 1. Auflage
(2. Aufl. 2004) 1. Auflage
Abkömmlinge des Sauerstoffs 1. Auflage 2004-2007
(2. Aufl. 2008) 1. Auflage
Abkömmlinge des Wasserstoffs 1. Auflage 2008-2011
(2. Aufl. 2012) 1. Auflage
Abkömmlinge des Sauerstoffs 1. Auflage 2012-2015
(2. Aufl. 2016) 1. Auflage
Abkömmlinge des Wasserstoffs 1. Auflage 2016-2019
(2. Aufl. 2020) 1. Auflage
Abkömmlinge des Sauerstoffs 1. Auflage 2020-2023
(2. Aufl. 2024) 1. Auflage

Gmelin Handbuch-Bände über Radium und Actinide

Syst.-Nr. 31	Radium Hauptband	
Syst.-Nr. 31	Radium Erg.-Bd. 1	(vorliegender Band)
Syst.-Nr. 31	Radium Erg.-Bd. 2	(Element und Verbindungen)
Syst.-Nr. 44	Thorium Hauptband	
Syst.-Nr. 44	Thorium Erg.-Bd C 2	(Ternäre und polynäre Oxide)
Syst.-Nr. 51	Protactinium Hauptband	
Syst.-Nr. 55	Uran Hauptband	
Syst.-Nr. 55	Uran Erg.-Bd. C 3	(Ternäre und polynäre Oxide)
Transurane	Erg.-Werk-Bände	
	Teil A 1, I (Bd. Nr. 7a)	
	Teil A 1, II (Bd. Nr. 7b)	
	Teil A 2 (Bd. Nr. 8)	
	Teil B 1 (Bd. Nr. 31)	
	Teil B 2 (Bd. Nr. 38)	
	Teil B 3 (Bd. Nr. 39)	
	Teil C (Bd. Nr. 4)	
	Teil D 1 (Bd. Nr. 20)	
	Teil D 2 (Bd. Nr. 21)	

Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie

BEGRÜNDET VON

Leopold Gmelin

Achte völlig neu bearbeitete Auflage

ACHTE AUFLAGE

begonnen im Auftrage der Deutschen Chemischen Gesellschaft

von R. J. Meyer

E. H. E. Pietsch und A. Kotowski

fortgeführt von
Margot Becke-Goehring

HERAUSGEgeben VOM

Gmelin-Institut für Anorganische Chemie

der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften



Springer-Verlag

Berlin · Heidelberg · New York 1977

Gmelin-Institut für Anorganische Chemie
der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften

KURATORIUM (ADVISORY BOARD)

Dr. J. Schaafhausen, Vorsitzender (Hoechst AG, Frankfurt/Main-Höchst), Dr. G. Breil (Ruhrchemie AG, Oberhausen-Holten), Prof. Dr. R. Brill (Lenggries), Prof. H. J. Emeléus, Ph. D., D. Sc., FRS (University of Cambridge), Prof. Dr. G. Fritz (Universität Karlsruhe), Prof. Dr. E. Gebhardt (Max-Planck-Institut für Metallforschung, Stuttgart), Prof. Dr. W. Gentner (Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg), Prof. Dr. O. Glemser (Universität Göttingen), Prof. Dr. Dr. E. h. O. Haxel (Heidelberg), Prof. Dr. Dr. E. h. H. Hellmann (Chemische Werke Hüls AG, Marl), Prof. Dr. R. Hoppe (Universität Gießen), Stadtkämmerer H. Lingnau (Frankfurt am Main), Prof. Dr. R. Lüst (Präsident der Max-Planck-Gesellschaft, München), Prof. Dr. H. Schäfer (Universität Münster)

DIREKTOR

Prof. Dr. Dr. E.h. Margot Becke

LEITENDE MITARBEITER (SENIOR MANAGEMENT)

Dr. W. Lippert, Stellvertretender Direktor

Dr. K.-C. Buschbeck, Ständiger Hauptredakteur

HAUPTREDAKTEURE (EDITORS IN CHIEF)

Dr. H. Bergmann, Dr. H. Bitterer, Dr. H. Katscher, Dr. R. Keim, Dipl.-Ing. G. Kirschstein, Dipl.-Phys. D. Koschel, Dr. U. Krüerke, Dr. I. Kubach, Dr. H. K. Kugler, Dr. E. Schleitzer-Rust, Dr. A. Slawisch, Dr. K. Swars, Dr. R. Warncke

MITARBEITER (STAFF)

Z. Amerl, Dr. K. v. Baczko, D. Barthel, I. Baumhauer, R. Becker, Dr. K. Beeker, Dr. W. Behrendt, Dr. L. Berg, Dipl.-Chem. E. Best, Dipl.-Phys. E. Bienemann, M. Brandes, E. Brettschneider, E. Cloos, Dipl.-Phys. G. Czack, I. Deim, L. Demmel, Dipl.-Chem. H. Demmer, I. Dölz, R. Dombrowsky, Dipl.-Chem. A. Drechsler, Dipl.-Chem. M. Drößmar, I. Eifler, M. Engels, V.-F. Fabrizek, I. Fischer, Dr. I. Flachsbart, J. Füssel, Dipl.-Ing. N. Gagel, Dipl.-Chem. H. Gedtschold, E. Gerhardt, Dipl.-Phys. D. Gras, Dr. V. Haase, E. Hamm, H. Hartwig, B. Heibel, Dipl.-Min. H. Hein, G. Heinrich-Sterzel, H. W. Herold, U. Hettwer, Dr. I. Hinz, Dr. W. Hoffmann, Dipl.-Chem. K. Holzapfel, Dr. L. Iwan, Dr. W. Kästner, E.-M. Kaiser, Dipl.-Chem. W. Karl, H.-G. Karrenberg, Dipl.-Phys. H. Keller-Rudek, H. Klein, Dr. E. Koch, H. Koch, Dipl.-Chem. K. Koeber, H. Köppe, Dipl.-Chem. H. Köttelwesch, R. Kolb, E. Kranz, L. Krause, Dipl.-Chem. I. Kreuzbichler, Dr. P. Kuhn, Dr. I. Leitner, M.-L. Lenz, Dr. A. Leonard, Dipl.-Chem. H. List, E. Meinhard, Dr. P. Merlet, K. Meyer, M. Michel, Dr. A. Mirtsching, A. Moulik, M. Sc., K. Nöring, D. Picht, C. Pielenz, E. Preißer, I. Rangnow, Dipl.-Phys. H.-J. Richter-Ditten, Dipl.-Chem. H. Rieger, E. Rudolph, G. Rudolph, Dipl.-Chem. S. Ruprecht, Dipl.-Chem. D. Schneider, Dr. F. Schröder, Dipl.-Min. P. Schubert, Dipl.-Ing. H. Somer, E. Sommer, Dr. P. Stieß, M. Teichmann, Dr. W. Töpper, Dr. B. v. Tschirschnitz-Geibler, Dipl.-Ing. H. Vanecek, Dipl.-Chem. P. Velić, Dipl.-Ing. U. Vetter, Dipl.-Phys. J. Wagner, R. Wagner, Dipl.-Chem. S. Waschk, Dr. G. Weinberger, Dr. H. Wendt, H. Wiegand, Dipl.-Ing. I. v. Wilucki, C. Wolff, K. Wolff, B. Wullert, Dr. A. Zelle, U. Ziegler, G. Zosel

FREIE MITARBEITER (CORRESPONDENT MEMBERS OF THE SCIENTIFIC STAFF)

Dr. A. Bohne, Dr. G. Hantke, Dr. L. Roth, Dr. K. Rumpf, Prof. Dr. W. Stumpf, Dr. U. Trobisch

AUSWÄRTIGE WISSENSCHAFTLICHE MITGLIEDER
(CORRESPONDENT MEMBERS OF THE INSTITUTE)

Prof. Dr. Dr. A. Haas, Sc. D. (Cantab.)

Prof. Dr. Dr. h.c. E. Pietsch

Vorwort

Neben einem kurzen Überblick über die Geschichte des Radium, der an den Radium-Band innerhalb der 8. Auflage des Gmelin Handbuchs, erschienen 1928, anschließt, umfaßt der vorliegende Band die Kosmochemie und die Geochemie des Radium. Unter der Überschrift „Vorkommen“ wurden in dem 1928 erschienenen Radium-Band, der Herkunft von Ra aus U und Th entsprechend, nur deren Mineralien zusammengestellt; seither haben vorliegende Untersuchungen gezeigt, daß Ra unabhängig von diesen Elementen seine eigene Geochemie aufzuweisen hat.

Angaben für Radium in der Sonne und in Sternatmosphären liegen nicht vor und auch für Gesteine vom Mond fehlen Angaben über Gehalte und Verhalten dieses Elements. Nur für Meteorite und Tektite gibt es vereinzelte Bestimmungen über Ra-Gehalte.

Von den instabilen 4 Ra-Isotopen der Uran-, Actinium- und Thorium-Reihe ist ^{226}Ra , das Zerfallsprodukt von ^{238}U , das wichtigste, dessen Geochemie den wesentlichen Inhalt dieses Bandes ausmacht.

Tabellarische Zusammenstellungen der Ra-Gehalte in Mineralien, Magmatiten, Sedimenten, Metamorphiten und Wässern geben Auskunft über die Verteilung von Ra in der Erdkruste und auf der Erdoberfläche und zeigen in Verbindung mit den Daten für das Verhältnis $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$, die die Abweichungen vom säkularen Gleichgewicht zwischen Ra und U angeben, den eigenen geochemischen Weg von Ra.

Bei der Trennung von Ra von seinem Mutterelement U spielen Auslaugungsvorgänge eine besondere Rolle. Durch sie gelangt Ra in zirkulierende Wässer, so daß im Bereich der Hydrosphäre die Trennung von Ra und U besonders ausgeprägt ist. Die Ursachen für das daraus resultierende Ungleichgewicht zwischen diesen beiden Elementen, das je nach Art der Wässer bald zugunsten von Ra und bald zugunsten von U verschoben ist, werden im einzelnen aufgezeigt.

Vor allem für Tiefseesedimente spielen auch die Beziehungen von ^{226}Ra zu ^{230}Th (Ionium), seinem Vorgänger in der Uranzerfallsreihe, eine Rolle, da sie zur Klärung der Frage nach der Herkunft von Ra in diesen Sedimenten beitragen können und unter bestimmten Voraussetzungen dazu dienen, die Sedimentationsgeschwindigkeit der Sedimente zu bestimmen.

Die Herkunft von Ra in den natürlichen Wässern und seine Beziehung zum Chemismus dieser Wässer und zu ihren Nebengesteinen sind vielfach untersucht und werden in eigenen Abschnitten beschrieben.

Schließlich wird noch das Verhältnis von Ra zu anderen Elementen, zu weiteren Radionukliden der Uranreihe und zu den anderen Ra-Isotopen aufgezeigt.

Frankfurt, im Januar 1977

Isa Kubach

Preface

The present volume covers the cosmochemistry and geochemistry of radium in addition to a short review of the history of radium, which follows the radium volume in the 8th edition of the Gmelin Handbuch, published in 1928. Under the heading "Occurrence" the 1928 volume listed only U and Th minerals in accordance with the origin of Ra from these elements. In the meantime newer investigations have shown that radium has its own geochemistry, independent of U or Th.

No data for Ra in solar and stellar atmospheres have been reported, also, no data regarding content and behavior of this element in lunar rocks have been given. Occasional determinations of the Ra content are available only for meteorites and tektites.

Of the four instable Ra isotopes, derived from the uranium, actinium and thorium decay chain, ^{226}Ra , the decay product of ^{238}U , is the most important, whose geochemistry covers the major portion of this volume.

Tables of the Ra content of minerals, magmatites, sediments, metamorphites and waters inform about the distribution of Ra in the earth's crust and on its surface. In combination with data for the $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ ratio they show deviations from the secular equilibrium between Ra and U and indicate Ra's own geochemical path.

During the separation of Ra from its parent element U, leaching processes play a significant role. They transport Ra into circulating waters so that the separation of Ra from U is particularly evident in the hydrosphere. The resulting non-equilibrium may sometimes favor Ra and sometimes U depending on the type of water. The reasons for this are discussed separately for each case.

The relationship between ^{226}Ra and ^{230}Th (ionium), its predecessor in the uranium decay chain, is of importance in deep-sea sediments, because it may contribute to clarify the question of the origin of Ra in these sediments. Under certain conditions it may even serve to determine the rate of sedimentation.

The origin of Ra in natural waters and its relation to the chemistry of these waters and their country rocks, have been frequently investigated and are treated in separate chapters.

Finally, the relation of Ra to other elements, to further radionuclides of the uranium series and to other Ra isotopes is described.

Frankfurt, January 1977

Isa Kubach

Inhaltsverzeichnis

(Table of Contents see page IV)

	Seite
Einführung	1
1 Geschichtliches	2
2 Kosmochemie	3
2.1 Radium im Kosmos	3
2.2 Radium in Meteoriten	3
2.3 Radium in Tektiten	4
2.4 Radium auf dem Mond	4
3 Geochemie	5
Überblick	5
3.1 Radium in Mineralien	7
3.1.1 Art des Auftretens	7
3.1.2 Beziehungen von Ra zu den Hauptelementen	8
3.1.3 Einwirkung von Ra auf Einschlüsse	8
3.1.4 Höhe der Ra-Gehalte in Mineralien	8
3.1.5 Radioaktives Gleichgewicht zwischen Ra und U in Mineralien	18
3.1.6 Verhältnis von ^{226}Ra zu weiteren Radionukliden der Uranreihe	20
3.1.7 Verhältnis von ^{226}Ra zu Actinium	20
3.1.8 Isotopenzusammensetzung von Ra in Mineralien	21
3.2 Radium in magmatischen Gesteinen	22
3.2.1 Art des Auftretens	22
3.2.2 Höhe der Ra-Gehalte in Magmatiten	23
Ra-Gehalte in Standardgesteinen	23
Ra-Gehalte in Einzelgesteinen	23
Gesamtmittel und Verteilung von Ra	33
3.2.3 Verhalten von Ra bei der Differentiation	35
3.2.4 Beziehungen von Ra zu den Hauptelementen der Magmatite	35
3.2.5 Beziehungen von ^{226}Ra zu ^{238}U in Magmatiten	36
3.2.6 Beziehungen zwischen Ra-Gehalt und Alter von Eruptivgesteinen	38
3.2.7 Hydrothermale Einwirkungen	39
3.3 Verwitterung, Transport und Abscheidung	39
3.3.1 Verhalten von Ra bei Verwitterungsvorgängen	39

	Seite
3.3.2 Auslaugung und Transport von Ra	41
Allgemeines	41
Primäre Migration, Auslaugung	41
Sekundäre Migration, Transport	42
3.3.3 Abscheidung von Ra aus Wässern	44
Chemische Ausfällung	44
Adsorption	46
Biologische Prozesse	47
3.3.4 Dispersionsaureolen um Uranerzvorkommen und Bitumenvorkommen	47
3.4 Radium in Sedimenten	48
3.4.1 Herkunft und Art des Auftretens von Ra in Sedimenten	48
Herkunft	48
Art des Auftretens	51
3.4.2 Höhe der Ra-Gehalte in Sedimenten	52
Sandsteine, Tone, Kalksteine	52
Tiefsedimente und Küstenablagerungen	57
Atlantischer Ozean	57
Pazifischer Ozean	58
Indischer Ozean	59
Nördliches Eismeer und Bering-Meer	59
Antarktik	59
Mittelmeer	60
Schwarzes Meer und Asowsches Meer	60
Kaspisches Meer	60
Absätze von Seen und Flüssen	61
Manganknollen	62
Bauxite, Phosphorite, Konglomeratische Schwefelerze, Salze	64
Absätze von Mineralquellen	64
Organismenschalen	67
Kohlen und Torf	68
Erdöl	68
Gesamtmittel für Ra in Sedimenten	69
3.4.3 Beziehungen des Ra-Gehaltes zur Korngröße der Sedimente und Verteilung von Ra in den Sedimenten	70
3.4.4 Vertikale Verteilung von Ra in Tiefseedsedimenten	71
3.4.5 Verteilung von Ra in Manganknollen	73
3.4.6 Bestimmung der Sedimentationsgeschwindigkeit nach der Ra-Methode	73
3.4.7 Beziehungen von Ra zu einigen Haupt- und Spurenelementen der Sedimente	74
3.4.8 Beziehungen von Ra zu anderen Radionukliden in Sedimenten	75
Verhältnis zwischen ^{226}Ra und ^{238}U in Sedimenten	76
Klastische und chemische präholozäne Sedimente	76
Tiefseedsedimente und Manganknollen	77
Sedimentäre Erze	78
Quellabsätze	78
Erdöl	78
Verhältnis zwischen ^{226}Ra und Io in Sedimenten	79
Tiefseedsedimente und Manganknollen	79
Erdöl	79
Verhältnis von ^{226}Ra und ^{228}Ra zu weiteren Radionukliden in Sedimenten	80

Inhalt	Seite
3.5 Radium in Metamorphiten	81
3.6 Radium in der Hydrosphäre	82
3.6.1 Herkunft von Ra in den verschiedenen natürlichen Wässern	82
Meerwasser	82
Grundwässer, einschließlich Erdölwässer	83
Oberflächenwässer	85
Mineralwässer	85
3.6.2 Art des Auftretens von Ra in Wässern	86
3.6.3 Höhe der Ra-Gehalte in Wässern	87
Meerwasser	87
Gesamtittel	87
Einzelwerte und Vergleich der Ra-Gehalte in verschiedenen Meeren	88
Grundwasser und Quellen	91
Allgemeines	91
Grundwässer, Schichtwässer und Quellen	92
Grundwässer aus Erdöl-Lagerstätten, Gas-Lagerstätten und Schlammvulkanen	95
Grubenwässer	97
Oberflächenwässer	97
Trinkwasser	102
Mineralwässer	103
3.6.4 Beziehungen des Ra-Gehalts zum Chemismus der Wässer	112
Meerwasser	112
Grundwasser	112
Oberflächenwässer	115
Trinkwasser	116
Mineralwässer	116
3.6.5 Beziehungen des Ra-Gehalts zur Tiefe	116
Meerwasser	116
Grundwasser	119
3.6.6 Beziehung der Ra-Gehalte in Grundwässern zum Nebengestein	119
Alter der Nebengesteine	119
Lithologie der Nebengesteine	120
3.6.7 Beziehungen des Ra-Gehalts von Grundwässern zu ihrem räumlichen Vorkommen	121
3.6.8 Beziehungen der Ra-Gehalte in Oberflächenwässern und Mineralquellen zum Jahresablauf	123
3.6.9 Beziehungen von Ra zu anderen Elementen und zu seinen Isotopen in verschiedenen Wässern	123
Beziehungen von Ra zu Haupt- und Spurenelementen der Wässer	123*
Beziehungen von Ra zu anderen radioaktiven Elementen	124
Verhältnis ^{226}Ra zu ^{238}U	124
Meerwasser	125
Grundwasser	125
Oberflächenwässer	127
Mineralwässer	128
Verhältnis ^{226}Ra zu weiteren Elementen der ^{238}U -Reihe in verschiedenen Wässern	128
$^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$ (Ionium)	128
$^{226}\text{Ra}/^{222}\text{Rn}$	128
$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	129
Verhältnis ^{226}Ra zu anderen Ra-Isotopen in verschiedenen Wässern	130
Actinium-Reihe	130
Thorium-Reihe	130
3.7 Atmosphäre	131

Table of Contents

(Inhaltsverzeichnis s. S. I)

	Page
Introduction	1
1 History	2
2 Cosmochemistry	3
2.1 Radium in Cosmos	3
2.2 Radium in Meteorites	3
2.3 Radium in Tektites	4
2.4 Radium on the Moon	4
3 Geochemistry	5
Review	6
3.1 Radium in Minerals	7
3.1.1 Type of Occurrence	7
3.1.2 Relationship between Ra and Main Group Elements	8
3.1.3 Influence of Ra on Inclusions	8
3.1.4 Ra Content of Minerals	8
3.1.5 Radioactive Equilibrium between Ra and U in Minerals	18
3.1.6 Relationship between ^{226}Ra and Other Radionuclides of the Uranium Series	20
3.1.7 Relationship between ^{226}Ra and Actinium	20
3.1.8 Isotopic Composition of Ra in Minerals	21
3.2 Radium in Magmatic Rocks	22
3.2.1 Type of Occurrence	22
3.2.2 Ra Content of Magmatites	23
Ra Content of Standard Rocks	23
Ra Content of Individual Rocks	23
Total Average and Distribution of Ra	33
3.2.3 Behavior of Ra during Differentiation	35
3.2.4 Relationship between Ra and the Main Elements of Magmatites	35
3.2.5 Relationship between ^{226}Ra and ^{238}U in Magmatites	36
3.2.6 Relationship between Ra Content and Age of Eruptive Rocks	38
3.2.7 Hydrothermal Influence	39
3.3 Weathering, Transport, and Sedimentation	39
3.3.1 Behavior of Ra during Weathering	39

	Page
3.3.2 Leaching and Transport of Ra	41
General	41
Primary Migration. Leaching	41
Secondary Migration. Transport	42
3.3.3 Removal of Ra from Water	44
Chemical Precipitation	44
Adsorption	46
Biological Processes	47
3.3.4 Dispersion Halos around Uranium and Bitumen Deposits	47
 3.4 Radium in Sediments	48
3.4.1 Origin and Type of Occurrence of Ra in Sediments	48
Origin	48
Type of Occurrence of Ra in Sediments	51
3.4.2 Ra Content of Sediments	52
Sandstones. Clays. Limestones	52
Ra Content of Deep-Sea Sediments and Littoral Deposits	57
Atlantic Ocean	57
Pacific Ocean	58
Indian Ocean	59
Arctic Ocean and Bering Sea	59
Antarctica	59
Mediterranean Sea	60
Black Sea and Sea of Azov	60
Caspian Sea	60
Deposits from Lakes and Rivers	61
Manganese Nodules	62
Bauxites. Phosphorites. Conglomeratic Sulfur Ores. Salts	64
Deposits from Mineral Springs	64
Organism Shells	67
Coals and Peat	68
Petroleum	68
Total Average of Ra in Sediments	69
3.4.3 Relationship between Ra Content and Grain Size of Sediments.	
Distribution of Ra in Sediments	70
3.4.4 Vertical Distribution of Ra in Deep-Sea Sediments	71
3.4.5 Distribution of Ra in Manganese Nodules	73
3.4.6 Determination of the Rate of Sedimentation by the Ra Method	73
3.4.7 Relationship between Ra and Some Main and Trace Elements of Sediments	74
3.4.8 Relationship between Ra and Other Radionuclides in Sediments	75
^{226}Ra to ^{238}U Ratio in Sediments	76
Clastic and Chemical Preholocene Sediments	76
Deep-Sea Sediments and Manganese Nodules	77
Sedimentary Ores	78
Spring Deposits	78
Petroleum	78
^{226}Ra to Io Ratio in Sediments	79
Deep-Sea Sediments and Manganese Nodules	79
Petroleum	79
^{226}Ra and ^{228}Ra Ratio to Other Radionuclides in Sediments	80

	Page
3.5 Radium in Metamorphites	81
3.6 Radium in the Hydrosphere	82
3.6.1 Origin of Ra in Various Natural Waters	82
Sea Water	82
Ground Waters, Including Oil Field Waters	83
Surface Waters	85
Mineral Waters	85
3.6.2 Type of Occurrence of Ra in Waters	86
3.6.3 Ra Content of Waters	87
Sea Water	87
Total Average	87
Individual Values and Comparison of Ra Content of Various Oceans	88
Ground Water and Springs	91
General	91
Ground Waters, Formation Waters, and Springs	92
Ground Waters from Petroleum Deposits, Gas Deposits, and Mud Volcanos	95
Mine Waters	97
Surface Waters	97
Ra Content of Drinking Water	102
Ra Content of Mineral Waters	103
3.6.4 Relationship between Ra Content and Chemism of Waters	112
Sea Water	112
Ground Waters	112
Surface Waters	115
Drinking Water	116
Mineral Waters	116
3.6.5 Relationship between Ra Content and Depth	116
Sea Water	116
Ground Waters	119
3.6.6 Relationship between Ra Content of Ground Waters and Their Country Rocks	119
Age of Country Rocks	119
Lithology of Country Rocks	120
3.6.7 Relationship between Ra Content of Ground Waters and Their Spatial Occurrence	121
3.6.8 Annual Dependence of Ra Content of Surface Waters or Mineral Springs	123
3.6.9 Relationship between Ra and Other Elements between Ra and Its Isotopes in Various Waters	123
Relationship between Ra and Main and Trace Elements in Waters	123
Relationship between Ra and Other Radioactive Elements	124
$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ Ratio	124
Sea Water	125
Ground Water	125
Surface Waters	127
Mineral Waters	128
Ratio of ^{226}Ra to Other Elements of the ^{238}U Series in Various Waters	128
$^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$ (Ionium)	128
$^{226}\text{Ra}/^{222}\text{Rn}$	128
$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	129
Ratio of ^{226}Ra to Other Ra Isotopes in Various Waters	130
Actinium Series	130
Thorium Series	130
3.7 Atmosphere	131

Radium und Isotope

Allgemeine Literatur:

General Literature

- O. Hahn, Applied Radiochemistry, Cornell University Press, Ithaca, N.Y., 1936.
- S. B. Schwind, F. E. Croxton, Radium: A Bibliography of Unclassified Literature, TID-363 [1950]; N.S.A. 5 [1951] No. 2114; 745 References from the period 1898 through 1950. Henceforth quoted as TID-363.
- A. C. Wahl, N. Bonner, Radioactivity Applied to Chemistry, John Wiley and Sons Inc., New York, N.Y., Chapman and Hall Ltd., London 1951, p. 210ff., henceforth quoted as W-B.
- G. Dupuy, Radium, Radioactivité, Energie Nucléaire, 3rd Ed., Presses Univ., Paris 1954, p. 128.
- K. W. Bagnall, The Chemistry of the Rare Radioelements, Butterworth, London 1957, Academic Press, New York, N.Y. 1957, p. 131/49, chapter 11.
- S. E. Bresler, Die radioaktiven Elemente, VEB Verlag Technik, Berlin 1957, chapter V, p. 159.
- H. W. Kirby, The Radiochemistry of Radium, NAS-NS-3057 [1964], henceforth quoted as H. W. Kirby.
- A. Trinkl, Die Kristallchemie des Radiums, Diss. München 1967, henceforth quoted as A. Trinkl.
- USAEC, Office of Information Services, Technical Information Center, Radium. A Bibliography, TID-3345 [1974]; N.S.A. 30 [1974] No. 6105, henceforth quoted as TID-3345.
- V. M. Vdovenko, I. Dubasov, The Analytical Chemistry of Radium, J. Wiley & Sons, New York – Toronto – Jerusalem – London 1975.

Einführung

Alle Nuklide des Elements 88 werden mit dem Namen Radium bezeichnet, der ursprünglich dem Nuklid ^{226}Ra vorbehalten war. Bezeichnungen wie Mesothorium I für ^{228}Ra , Thorium X für ^{224}Ra und Actinium X für ^{223}Ra werden gelegentlich noch gebraucht, haben aber nur geringe Bedeutung. Von ihrem Gebrauch ist zugunsten der Nomenklatur der einzelnen Nuklide abzuraten.

In der 8. Auflage des Gmelin Handbuchs geht diesem Band die System-Nr. 31 „Radium“ voraus, erschienen 1928 im Verlag Chemie, Berlin.

Introduction

Introduction

All nuclides of element 88 are referred to by the name of radium, which was originally reserved to the nuclide ^{226}Ra . Terms like mesothorium I for ^{228}Ra , thorium X for ^{224}Ra , and actinium X for ^{223}Ra are occasionally still used, but are of little importance at present. Their use therefore should be discouraged in favor of the nomenclature for the respective nuclides.

The previous radium volume in the 8th edition of the Gmelin Handbuch is System-No. 31, Radium, published in 1928 by Verlag Chemie, Berlin.

History**1 History**

Fritz Weigel

Institut für Anorganische Chemie der Universität München

On the history on the discovery of Radium cf Gmelin Handbuch "Radium", p. 3, on the discovery of mesothorium (^{228}Ra) cf Gmelin Handbuch "Radium", p. 64.

Radium metal was first prepared by M. Curie and A. Debierne [1]. Some other attempts to prepare the metal were made by E. Ebler [2], and H. Herchfinkel [3]. According to F. Weigel [4], neither Ebler nor Herchfinkel have obtained metallic radium but prepared a nitride. F. Weigel and A. Trinkl [5, 6] prepared radium metal on the microgram scale in 1967 inside an X-ray capillary. They succeeded in determining the crystal structure and some solid state constants of the metal.

Preparative chemistry of radium and its compounds was done mainly in the early years of this century, before World War I. After World War I, only very few papers were published, dealing with the synthesis and characterization of well-defined radium compounds. The most prominent study along this line was the determination of the atomic weight of radium by O. Höningschmid and R. Sachtleben [7]. In the course of this work, precision techniques for preparation and analysis of RaCl_2 and RaBr_2 were developed. More recently (1967), F. Weigel and A. Trinkl [5, 8] resumed preparative studies on radium and its compounds. They were able to identify and characterize 23 radium compounds by means of their X-ray powder patterns.

Accounts of the early history of radium are given by C. E. Iredell [9], E. Curie [10] and H. W. Kirby [11], the report of Kirby being the most detailed study at present (1975).

In a review of his father's work, B. Brauner Jr. made an attempt to give the priority to the discovery of Ra to B. Brauner Sr. [12], this claim was rejected by F. Běhounek [13], pointing out numerous errors in Brauner's claim.

References:

- [1] M. Curie, A. Debierne (Compt. Rend. **151** [1910] 523; Radium **7** [1910] 309; Chemiker-Ztg. **34** [1910] 969). — [2] E. Ebler (Ber. Deut. Chem. Ges. **43** [1910] 2613). — [3] H. Herchfinkel (Radium **8** [1911] 299). — [4] F. Weigel (unpublished). — [5] A. Trinkl (Diss. München 1967). — [6] F. Weigel, A. Trinkl (Radiochim. Acta **10** [1968] 78/82). — [7] O. Höningschmid, R. Sachtleben (Z. Anorg. Allgem. Chem. **221** [1934] 65). — [8] F. Weigel, A. Trinkl (Radiochim. Acta **1968** [36/41, 140/4; **12** [1969] 29/31; **19** [1973] 199/202). — [9] C. E. Iredell (Proc. Roy. Soc. Med. **44** [1951] 207/9; C. **1951** II 2141). — [10] E. Curie (Brit. J. Radiol. **23** [1950] 409/12; C. **1951** I 285).
- [11] H. W. Kirby (MLM-1960 [1972] 125 pp; N.S.A. **26** [1972] No. 58633). — [12] B. Brauner (Chemiker-Ztg. **83** [1959] 372/4). — [13] F. Běhounek (Chemiker-Ztg. **84** [1960] 633/4).