

# Das Alter des Urans<sup>1</sup>

Von F. G. HOUTERMANS

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Göttingen  
(Z. Naturforsch. **2a**, 322–328 [1947]; eingegangen am 8. November 1946)

*Stefan Meyer zum 75. Geburtstag gewidmet*

Aus den Daten von Nier über die Isotopenzusammensetzung des „gewöhnlichen“ Bleis wird auf Grund der schon von ihm formulierten Arbeitshypothese, das gewöhnliche Blei sei als durch radiogenes Blei der Eruptivgesteine verunreinigtes „natürliches Blei“ aufzufassen, versucht, die ursprüngliche Isotopenzusammensetzung des letzteren zu extrapolieren und eine ziemlich scharfe Abschätzung für das Alter des terrestrischen Urans zu gewinnen. Dabei ergibt sich für das Verhältnis der Atomzahlen des natürlichen Bleis die Zusammensetzung  $Pb^{204} : Pb^{206} : Pb^{207} : Pb^{208} = 1 : 11,52 : 14,03 : 31,6$  und das Alter des Urans zu  $w = 2,9 \pm 0,3 \cdot 10^9$  Jahren. Hieraus läßt sich ferner die ursprüngliche Zusammensetzung des Urans und das heutige Verhältnis von Pb/U und Th/U in den als Muttergestein der Bleimineralien aufzufassenden Primärgesteinen in guter Übereinstimmung mit den für Granite experimentell gefundenen Zahlen berechnen. Es wird ferner diskutiert, unter welchen Voraussetzungen  $w$  als Alter der Erdkruste oder als Alter der Entstehung der Elemente selbst aufzufassen ist.

Die Tatsache der Radioaktivität des Urans ist schon häufig zur Abschätzung des Alters der Welt herangezogen worden<sup>2</sup>, wobei ein wesentliches Hindernis derartiger Berechnungen in der Unkenntnis des ursprünglichen Isotopenverhältnisses des „natürlichen“ Bleis lag, dessen Isotope  $Pb^{206}$ ,  $Pb^{207}$  und  $Pb^{208}$  die Endprodukte der Zerfallsreihen des  $U^{238}$ ,  $AcU^{235}$  und des  $Th^{232}$  sind.

A. O. Nier<sup>3</sup> und Mitarbeiter haben durch massenspektrometrische Analyse des Urans und durch Vergleich des Gehalts an AcD und RaG an einer Anzahl gut daterter Uranmineralien die Zerfallskonstante des  $AcU^{235}$   $\lambda'$  zu  $139 \cdot 0,046 \cdot \lambda$  bestimmt, wo  $\lambda$  die Zerfallskonstante des UI ist, für die er als zur Zeit besten Wert  $\lambda = 1,535 \cdot 10^{-10} a^{-1}$  benutzt. Wird ein radioaktives Element zur Zeit  $t = 0$  von seinem Endprodukt getrennt, so ist nach einer Zeit  $t$  die Atomzahl  $N(t)$  des stabilen Endproduktes gegeben durch

$$N(t) = M(t) \cdot (e^{\lambda' t} - 1), \quad (1)$$

wo  $M(t)$  die Atomzahl des radioaktiven Mutterelements bedeutet. Wendet man diese Gleichung auf  $AcU$  und  $UI$  und deren Endprodukte an, so wird, wenn die eingeklammerten Isotopensymbole

<sup>1</sup> Vorgetragen auf der Tagung der Dtsch. physik. Ges. in Göttingen am 4. Okt. 1946, eine kurze Mitteilung erschien in den „Naturwissenschaften“.

<sup>2</sup> Vergl. z. B. St. Meyer, Wien. Mitt. Inst. Radiumforschg. Nr. 393 u. Nr. 407.

Atomzahlen bedeuten, zur Zeit  $t$  das Isotopenverhältnis des entstandenen radioigenen Bleis gegeben durch

$$\frac{(AcD)_t}{(RaG)_t} = \frac{(AcU)_t}{(U \cdot I)_t} \cdot \frac{e^{\lambda' t} - 1}{e^{\lambda t} - 1}, \quad (2)$$

so daß also in die Altersbestimmung gar nicht mehr der Gehalt an Uran, sondern nur das Isotopenverhältnis des entstandenen radioigenen Bleis eingeht. Nier hat zuerst von dieser Möglichkeit der Altersbestimmung von Uranmineralien mit großem Erfolg Gebrauch gemacht, die wegen ihrer großen Unempfindlichkeit gegen Uran- und Bleiverluste sehr zuverlässige Werte liefert. Das Verhältnis AcD/RaG wird dabei aus dem tatsächlich gemessenen Verhältnis  $Pb^{207}/Pb^{206}$  dadurch ermittelt, daß der Gehalt des im Uranmineral gefundenen Bleis an dem nicht radioigen entstandenen Isotop  $Pb^{204}$  bestimmt und auf Grund der bekannten Zusammensetzung des „gewöhnlichen“ Bleis nicht radioaktiver Herkunft für Verunreinigung des Uranbleis durch dieses korrigiert wird. Nier<sup>4</sup> und Mitarbeiter haben ferner 25 Isotopenanalysen an „gewöhnlichem“ Blei verschiedener Herkunft durchgeführt und fanden, daß dessen Isotopenzusammensetzung in auffälliger Weise weit über das

<sup>3</sup> A. O. Nier, Physic. Rev. **55**, 150, 153 [1939]; —, R. W. Thompson u. B. F. Murphy, Physic. Rev. **60**, 112 [1940].

<sup>4</sup> A. O. Nier, J. Amer. chem. Soc. **60**, 1571 [1938] u. Physic. Rev. **60**, 112 [1940]. \*

Maß hinaus variiert, das infolge etwaiger Isotopen-trennung durch natürliche Vorgänge erwartet werden könnte. Da aber glücklicherweise die meisten untersuchten Uran- und Thormineralien nur wenig gewöhnliches Blei enthalten, spielt dessen genaue Isotopenzusammensetzung für die Korrektur keine Rolle. Anders wird es, wenn wir es mit Blei zu tun haben, das mehr als einige Prozent „gewöhnliches“ Blei enthält. Es ist daher von großer Bedeutung,

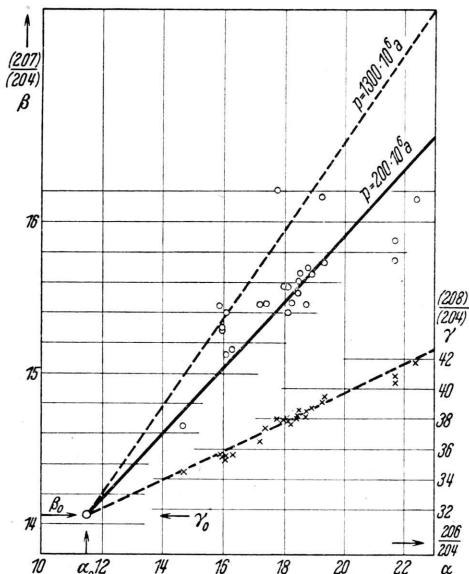


Abb. 1. Blei-Diagramm nach Nier. Im  $(\alpha, \beta)$ -Diagramm sind die Isochronen für Mineralalter  $p = 200$  und  $p = 1300$  Mill. Jahre eingezeichnet, die sich im Punkt  $(\alpha_0, \beta_0)$  schneiden, der dem „natürlichen“ Blei entspricht. Im  $(\alpha, \gamma)$ -Diagramm (rechte Ordinate) ist der Isochronen-„Fächer“ viel enger; daß die Punkte annähernd auf einer Geraden liegen, bedeutet Konstanz des Th/U-Verhältnisses. Der Punkt  $(\alpha_0, \gamma_0)$  ist durch geeignete Maßstabsverschiebung der beiden Diagramme mit dem Punkt  $(\alpha_0, \beta_0)$  zur Koinzidenz gebracht.

die wahre Isotopenzusammensetzung des nicht radiogenen „natürlichen“ Bleis zu kennen.

Abb. 1 zeigt den im Verhältnis zu  $\text{Pb}^{204}$  gemessenen Gehalt an  $\text{Pb}^{207}$  und  $\text{Pb}^{208}$  in Abhängigkeit von dem relativen Gehalt an  $\text{Pb}^{206}$ . Wie man sieht, besteht zweifellos ein gewisser Zusammenhang in dem Sinne, daß erhöhter Gehalt an dem Isotop 206 auch mit erhöhtem Gehalt an den beiden anderen Isotopen, die die durch radioaktiven Zerfall von  $\text{AcU}$  und  $\text{Th}$  entstehen können, verbunden ist. Nier sagt ausdrücklich, daß sich dieser Befund qualitativ verstehen lasse, wenn alles „gewöhnliche“ Blei als „natürliches“ Blei aufgefaßt wird,

das durch radiogenes Blei der Eruptivgesteine „verunreinigt“ ist, wobei sich aus dem Verhältnis des Überschusses der Bleiisotope  $\text{Pb}^{208}$  zu  $\text{Pb}^{206}$  über das natürliche Blei ein heutiges Verhältnis Th/U im Muttergestein des Bleis berechnen läßt, das experimentell gut in Einklang mit dem heutigen Th/U-Verhältnis von ca. 3 steht, wie es etwa für Granite gefunden wird<sup>5</sup>. Er schließt daraus im Gegensatz zu A. Holmes<sup>6</sup>, daß das gewöhnliche Blei aus den Eruptivgesteinen oder deren Magmen auskristallisiert ist. Holmes verwirft demgegenüber diese Meinung, weil sich dann ein Zusammenhang zwischen geologischem Alter und mittlerer Massenzahl der gewöhnlichen Bleisorten müsse erkennen lassen, der ihm auf Grund der damals vorliegenden sehr unvollständigen Daten nicht vorzuliegen schien. Nier hatte zunächst versuchsweise das Blei des Bleiglances von Ivigtut (Nr. 13) als natürliches Blei aufzufassen gesucht, und dann ist in der Tat kein deutlicher quantitativer Zusammenhang zwischen Alter und Zusammensetzung zu erkennen.

Es liegt nun nahe, der Analyse folgende einfache Arbeitshypothese zugrunde zu legen. Wir wollen annehmen, daß die einseitige Auskristallisation von reinen Blei- oder Uranverbindungen aus dem primären Eruptivgestein ein verhältnismäßig seltes Ereignis ist, und uns im übrigen auf den von Nier hervorgehobenen Standpunkt stellen, daß alles gewöhnliche Blei als natürliches Blei aufzufassen ist, das durch den Gehalt dieser Gesteine an radiogenem Blei „verunreinigt“ ist. Es wird dann unwahrscheinlich sein, daß ein bestimmtes Probestück, das uns z. B. als Bleiglanz vorliegt, aus einem Muttergestein auskristallisiert ist, das schon lange vorher sein Blei oder sein Uran durch eine frühere Auskristallisation verloren hat. Unter dieser Voraussetzung wird man erwarten dürfen, daß für den radiogenen Überschuß über das natürliche Blei die Gl. (2) anwendbar ist, wobei wir für  $t$  die Zeit einzusetzen haben, während der das radiogene Blei aus dem Uran entstanden ist, d. h. die Zeit von der Entstehung des Urans selbst bis zur Auskristallisation unserer Bleiprobe. Ist  $\alpha$  und  $\beta$  der Gehalt der Bleiprobe (in Atomzahlen) an  $\text{Pb}^{206}$  bzw.  $\text{Pb}^{207}$ , dividiert durch dessen Gehalt an  $\text{Pb}^{204}$ ,  $\alpha_0$  und  $\beta_0$  die

<sup>5</sup> Vergl. weiter unten die eingehendere Diskussion dieser Zahl.

<sup>6</sup> A. Holmes, Econ. Geol. 32, 764 [1937] u. 33, 829 [1938].

entsprechende Größe für das natürliche Blei, sei ferner  $w$  das Alter des Urans bis heute und  $p$  die von der Bildung des Bleiminerals bis heute verflossene Zeit, so muß demnach gelten, daß, da  $t = w - p$ ,

$$\frac{\beta - \beta_0}{\alpha - \alpha_0} = \frac{1}{139} \cdot \frac{e^{\lambda' w} - e^{\lambda' p}}{e^{\lambda w} - e^{\lambda p}}, \quad (3)$$

d. i. für konstantes  $p$  die Gleichung einer Geraden in einem  $\alpha, \beta$ -Diagramm, da ja  $w$  eine mindestens für die Erdoberfläche universelle Konstante sein muß.

Wir müssen also erwarten, daß in einem solchen Diagramm gleichaltrigen Mineralien entsprechende Punkte auf einer durch den Punkt  $(\alpha_0, \beta_0)$  gehenden Geraden liegen, der dem natürlichen Blei entspricht. Die Lage eines Punktes auf der seinem Alter entsprechenden Geraden, die wir als Isochrone bezeichnen wollen, ist dann durch den Grad der Verunreinigung des Urbleis durch radiogenes Blei gegeben, also einmal durch den Uran gehalt des Muttergestein sowie durch die Menge Muttergestein, dessen radiogenes Blei von 1 g Urblei aufgenommen wurde. Zur Ermittlung der drei Unbekannten  $\alpha_0, \beta_0$  und  $w$  sind also drei gut datierte Bleiproben nötig, für die  $p$  bekannt ist, und zwar müssen mindestens zwei davon möglichst verschieden alt sein. Praktisch verfährt man am besten so, daß man durch die Punkte einer Anzahl gleichaltriger Mineralien zunächst eine Isochrone konstruiert und aus deren Neigung zuerst  $w$  durch Einsetzen des bekannten  $p$  in die rechte Seite von (3) ermittelt, wobei es, wenn es sich um einigermaßen junge Proben handelt, gar nicht auf eine sehr genaue Kenntnis von  $p$  ankommt. Ist dadurch  $w$  festgelegt, so kann aus (3) die Neigung für ein anderes möglichst altes Mineral, z. B. die Probe Nr. 1 (vergl. Tab. 1), berechnet und die dessen Alter entsprechende Isochrone konstruiert werden. Der gesuchte Punkt  $\alpha_0, \beta_0$  liegt dann auf dem Schnittpunkt der beiden Isochronen. Auf diese Art wurden die Werte  $w = 2,9 \pm 0,3 \cdot 10^9$  a,  $\alpha_0 = 11,52 \pm 0,60$  und  $\beta_0 = 14,03 \pm 0,20$  ermittelt, wobei die Auswahl der Punkte zur Konstruktion der rezenten bzw. der karbonischen Bleiproben ( $p=0$ , bzw. ca.  $200 \cdot 10^6$  a) dadurch eine starke Beschränkung erleidet, daß der dem Bleiglanz von Ivigtut entsprechende Punkt (Nr. 13) nach Möglichkeit nicht unterhalb der rezenten Isochrone liegen darf.

Gleichung (3) gilt auch dann, wenn die von A. Holmes<sup>6</sup> vertretene Hypothese richtig ist, daß das „Erzblei“ der Bleimineralien zum großen Teil dem Urblei einer tieferen, inaktiven oder jedenfalls wesentlich weniger Uran und Thorium enthaltenden Schicht und nicht dem „Gesteinsblei“ der magmatischen Gesteine selbst entstammt. Denn auch dann wird man erwarten müssen, daß bei den zur Auskristallisation der Bleimineralie führenden Vorgängen oder auf dem Wege aus der Tiefe das radiogene Blei aus dem Muttergestein in mehr oder minder hohem Grade mitgerissen wurde und mit zur Ausscheidung gelangt ist. Bleisorten mit hohem Gehalt an solchem Urblei müßten sich dadurch auszeichnen, daß sie auf der ihrem Alter entsprechenden Isochrone relativ nahe dem Punkte liegen müssen, der dem Urblei selbst entspricht. Möglicherweise haben wir im Bleiglanz von Ivigtut (Nr. 13) einen solchen Fall zu vermuten.

Leider sind von den 25 von Nier untersuchten Bleisorten nur 12 datiert, während 5 weitere sich auf Grund mir zugänglicher Daten geologisch ungefähr einordnen ließen. Auf 3 der untersuchten Erze, und zwar den der alpinen Trias aus Österreich entstammenden Bleiglanz (Nr. 25), die 3 Joplinproben (Nr. 7, 8 und 14) und den Bleiglanz von Ivigtut (Nr. 13) scheinen die Voraussetzungen unserer Arbeitshypothese nicht oder nur mangelhaft zuzutreffen. Tab. 1 gibt einen Vergleich zwischen den gemessenen und den auf Grund des angenommenen Alters und der obigen Daten berechneten Werten von  $\beta$ , wobei die Übereinstimmung so gut ist, wie man auf Grund der spärlichen Daten und der sicher nur in erster Näherung richtigen Gültigkeit unserer Arbeitshypothese erwarten darf. Der Zweck der vorliegenden Mitteilung ist weniger eine genaue Angabe endgültiger Werte von  $\alpha_0, \beta_0$  und  $w$ , als der Hinweis darauf, daß schon die wenigen vorliegenden Daten Niers eine gewisse, verhältnismäßig scharfe Abschätzung dieser Zahlen, besonders von  $w$ , gestatten.

Bezeichnen wir mit  $\gamma$  das Verhältnis  $(\text{Pb}^{208})/(\text{Pb}^{204})$ , so liegen, wie Abb. 1 zeigt, auch die Punkte eines  $(\alpha, \gamma)$ -Diagramms für die jüngeren Gesteine auf einer ungefährten Geraden, deren Rückverlängerung bis zu der oben gefundenen Abszisse  $\alpha_0$  des Urbleis den Gehalt desselben an  $\text{Pb}^{208}$  zu  $\gamma_0 = 31,6 \pm 0,6$  ergibt. Damit erhalten wir für die wahrscheinliche Zusammensetzung des wahren

Niers Nr.	Herkunft	Alter	gemessen		berechnet $\beta$	gemessen $\gamma$
			$\alpha$	$\beta$		
1	Blg. Gr. Bärensee, Canada . . .	1300	15,93	15,30	15,30	35,3
2	Blg. Broken Hill, N.S.W. . . .	950	16,07	15,40	15,24	35,5
3	Cer. Broken Hill, N.S.W. . . .	950	15,93	15,29	15,20	35,25
4	Blg. Yancey Co. N.C. U.S.A. . . .	600	18,43	15,61	15,68	38,2
5	Blg. Nassau, Deutschland . . . .	240	18,10	15,57	15,48	37,85
6	Cer. Eifel, Deutschland . . . .	240	18,21	15,46	15,50	37,7
7	Blg. I Joplin, Missouri . . . .	230	21,65	15,88	16,25!	40,8
8	Blg. II Joplin, Missouri . . . .	230	21,65	15,74	16,25!	40,36
9	Blg. Metalline Falls, Wash. . . .	80	19,30	15,73	15,68	39,50
10	Cer. Wallace, Idaho . . . .	80	16,04	15,12	14,99	35,26
11	Wulf. u. Van. Tucson Mts. Ariz. .	25	18,40	15,53	15,47	38,1
12	Blg. Sachsen, Deutschland . . . .	(20)	17,36	15,46	15,31	37,38
13	Blg. Ivigtut, Grönland . . . .	—	14,65	14,65	—	34,47
14	Blg. III Joplin, Missouri . . . .	230	22,38	16,15	16,41!	41,6
15	Blg. Tetreault Mine, Canada . . .	[ber. 580]	16,27	15,16	—	35,6
16	Bournon. Casapalca, Peru . . . .	—	18,67	15,45	—	38,15
17	Blg. Casapalca, Peru . . . .	—	18,85	15,66	—	38,63
18	Blg. Claus hal, Harz . . . .	(220)	18,46	15,66	15,55	38,6
19	Blg. Przibram, Č.S.R. . . .	(220)	17,95	15,57	15,44	37,9
20	Blg. Franklin, New Jersey . . . .	[ber. 810!]	17,15	15,45	—	36,53
21	Blg. Mexiko . . . .	—	18,71	15,70	—	38,5
22	gedieg. Blei, Langban, Schweden .	[ber. 1730]	15,83	15,45	—	35,6
23	Blg. Sonora Mine, Arizona . . . .	—	19,22	16,17	—	39,15
24	Blg. Freiberg, Sachsen . . . .	(220)	18,07	15,40	15,46	38,0
25	Blg. Alp. Trias, Österreich . . . .	(180)	17,75	16,21	15,38!!	38,05

Tab. 1. Niers Analyse gewöhnl. Bleisorten.

Blg. = Bleiglanz, Cer. = Cerussit, Nr. 11 Wulfenit u. Vanadinit. Die Altersangaben sind den Originalarbeiten entnommen, in () aus geolog. Daten geschätzt, in [ ] nach Formel (2) berechnet, die mit ! versehenen Zahlen für  $\beta$  zeigen, daß diese Proben den Voraussetzungen der Bildungshypothese nicht zu entsprechen scheinen.

„natürlichen“ Bleis die Werte

(Pb)	204	206	207	208
%	$1,72 \pm 0,05$	$19,81 \pm 1,9$	$24,13 \pm 0,43$	$54,34 \pm 1,10$

(4)

Diese Werte sind vom Standpunkt der Isotopensystematik durchaus mit unseren sonstigen Erfahrungen für schwere Elemente vereinbar.

In Umkehrung der hier angewandten Methode ergibt aber Gl. (3) die Möglichkeit einer Altersbestimmung von Bleiproben, wenn die Kenntnis von  $\alpha_0$ ,  $\beta_0$  und  $w$  vorausgesetzt wird. So können wir z. B. die Probe Nr. 22 (Native Lead, Langban, Schweden) zu ca.  $1730 \cdot 10^6$  a, die von Nr. 15 (Tetreault Mine, Canada) zu etwa  $580 \cdot 10^6$  a und Nr. 20 (Franklin, N.J.) zu etwa  $810 \cdot 10^6$  a datieren, während alle anderen Proben (Nr. 16, 17, 21 und 23) sich als jung, d. h. rezent oder höchstens etwa karbonisch erweisen dürften, wenn für sie unsere Arbeitshypothese zutrifft. Es lohnt vielleicht, darauf hinzuweisen, daß diese neue Me-

thode der Altersbestimmung genau die Ergänzung der Altersbestimmung an zur Zeit der Auskristallisation des Bleiminerals gleichzeitig ausgeschiedenen Uranmineralien darstellt. Im ersten Fall wird das von der Entstehungszeit des Urans bis zur Ausscheidung entstandene Blei, im letzteren Fall das inzwischen im separierten Uran nachentstandene Blei untersucht und sein Alter nach (1) bzw. (2) berechnet.

Erst eine Durcharbeitung eines größeren statistischen Materials wird die experimentelle Entscheidung der Frage erlauben, ob entgegen der von A. Holmes vertretenen Ansicht sich alle oder wenigstens ein großer Teil der Bleierze als Auskristallisationen von Eruptivgesteinen deuten lassen, wie dies von L. C. Graton<sup>7</sup>, N. B. Keevil<sup>8</sup> u. a. vertreten wird. In diesem Falle müssen nämlich über Gl. (2) hinaus noch weitere Beziehungen gelten, die die Lage des dem betreffenden Erz entsprechenden Punktes im  $(\alpha, \beta)$ -bzw. in einem  $(\alpha, \gamma)$ -Diagramm festlegen.

<sup>7</sup> L. C. Graton, Econ. Geol. 33, 251 [1938].

<sup>8</sup> N. B. Keevil, Econ. Geol. 33, 685 [1938].

Bezeichnet man mit  $\mu$  bzw.  $\mu'$  und  $\mu''$  das heutige Atomzahlverhältnis von UI bzw. AcU und Th zu Pb<sup>204</sup> in dem Muttergestein, aus dem das betreffende Erz auskristallisiert ist, so muß, wenn sich wie oben das Erz als primär auffassen läßt und keine Intrusion von natürlichem Blei stattgefunden hat, gelten

$$\mu = \frac{a - a_0}{e^w - e^p}. \quad (5)$$

Analoge Beziehungen gelten entsprechend zwischen den  $\mu'$  bzw.  $\mu''$ , den  $\beta$  bzw.  $\gamma$  und den  $\lambda'$  und  $\lambda''$  bei richtiger Datierung und Gültigkeit unserer — spezialisierten — Arbeitshypothese, daß vor der Erzbildung keine Vermischung mit „natürlichem“ oder anderem Blei stattgefunden hat. Außerdem muß natürlich gelten

$$\mu = 139 \cdot \mu'. \quad (6)$$

Als Mittelwert für  $\mu$  der Muttergesteine aller datierten Bleiproben der Tab. 1 erhält man  $\mu = 13,5$ . Die für die heutige Zusammensetzung des Bleis der Muttergesteine maßgebenden Atomzahlverhältnisse  $a$ ,  $b$  und  $c$  der Blei-Isotopen 206, 207 bzw. 208 zu 204 lassen sich nach (5) und den analogen Gleichungen (5') und (5'') aus den  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Werten für den heutigen Zeitpunkt extrapoliieren, indem darin  $p = 0$  gesetzt wird. Einfacher ist es jedoch, zur Berechnung von  $b$  nicht (5') und damit das aus dem  $\beta$  folgende  $\mu'$  zu verwenden, sondern  $\mu'$  direkt aus (6) zu entnehmen. Beide Berechnungsarten geben nicht sehr verschiedene Resultate, hier wurde durchweg die letztere angewandt. Das Atomzahlverhältnis (Pb)/(UI) =  $(1 + a + b + c)/\mu$  gibt dann, über die gleichen Proben gemittelt, in den auf heute extrapolierten Muttergesteinen der Bleierze den Wert 5,7, und aus den entsprechenden  $a$ ,  $b$  und  $c$  folgt als mittleres Verhältnis des Atomgewichts dieses Bleis zu dem des heutigen Urangemisches 0,8705 mit sehr geringer Streuung. Damit ergibt sich für die Muttergesteine das heutige Gewichtsverhältnis Pb/U = 5,0.

Zum Vergleich mit den Daten wirklicher Eruptivgesteine wäre es nötig, Mittelwerte des Blei/Uran-Verhältnisses zu kennen, während leider nur Mittelwerte des Blei- und des Urangehalts

<sup>9</sup> G. Hevesy u. R. Hobbie, Nature [London] 128, 1038 [1931].

<sup>10</sup> V. M. Goldschmidt, Geochem. Verteilungsgesetze IX, Oslo 1938.

getrennt bekannt sind, die aber an verschiedenen Gesteinen gewonnen wurden. Da die Einzelwerte sehr stark streuen<sup>4,5,6</sup>, ist es bedenklich, zum Vergleich das Verhältnis der Mittelwerte einzusetzen. Der Mittelwert für 58 granitische Gesteine an Blei von G. Hevesy und R. Hobbie<sup>9</sup> von 30 g/t dürfte etwas zu hoch sein, wie auch Holmes<sup>6</sup> annimmt. Legt man statt dessen den von V. M. Goldschmidt<sup>10</sup> angenommenen Wert von 16 g/t Blei zugrunde, so erhält man mit Keevils Mittelwerten<sup>8</sup> von 2,77 g/t Uran für Granite das Verhältnis Pb/U zu 5,8, und mit dem Wert von E. D. Evans und C. Goodman<sup>11</sup> von 3,82 g/t Uran das Verhältnis Pb/U für saure Gesteine zu 4,2. Man sieht, daß die Größenordnung daher mit der Hypothese in Einklang ist, daß die Bleierze im wesentlichen Eruptivgesteinen und deren Magmen entstammen, und zwar wahrscheinlich am ehesten sauren Gesteinen.

Besser wird die Vergleichsmöglichkeit, wenn wir die gewonnenen Daten über das natürliche Blei (4) dazu benutzen, um das heutige Verhältnis Th/U für die Muttergesteine der von Nier untersuchten datierten Proben zu berechnen. Ist  $k = (\text{Th})/(\text{UI})$  (in Atomzahlen), so wird analog zu (2), wenn  $\lambda''$  die Zerfallskonstante des Th ist, die zu  $4,99 \cdot 10^{-11} \text{a}^{-1}$  angenommen wurde<sup>3</sup>, genau analog zu (3)

$$k = \frac{\gamma - \gamma_0}{a - a_0} \frac{e^{\lambda w} - e^{\lambda' p}}{e^{\lambda'' w} - e^{\lambda'' p}}. \quad (7)$$

Wir erhalten also für festes  $k$  im  $(\alpha, \gamma)$ -Diagramm wieder einen Fächer von Isochronen, die durch den Punkt  $(\alpha_0, \gamma_0)$  gehen, der aber sehr viel schmäler ist als im Fall des  $(\alpha, \beta)$ -Diagramms, weil die in Betracht kommenden Zeiten noch nicht vergleichbar mit den Halbwertszeiten von Th und Uran sind. Beschränkt man sich nämlich auf lineare Glieder auch in  $\lambda$  und  $\lambda'$ , so wird der zweite Bruch auf der rechten Seite von (7) =  $\lambda/\lambda''$ , man erhält also für festes  $k$  eine strenge Gerade. Nimmt man noch quadratische Glieder in  $\lambda$  mit, so erhält man als sehr gute Näherung

$$k = \frac{\lambda}{\lambda''} \frac{\gamma - \gamma_0}{a - a_0} [1 + \lambda \cdot (w + p)/2] \\ = 3,761 \cdot \frac{\gamma - \gamma_0}{a - a_0} (1 + 0,628 \cdot 10^{-10} p) \quad (8)$$

und das heutige Gewichtsverhältnis der Mutter-

<sup>11</sup> E. D. Evans u. C. Goodman, Bull. geol. Soc. America 52, 458 [1941]. Diese Arbeit war mir leider nicht im Original, sondern nur als Zitat zugänglich.

gesteine der Bleierze

$$\text{Th/U} = 3,64 \cdot \frac{\gamma - \gamma_0}{a - a_0} (1 + 0,628 \cdot 10^{-10} p). \quad (9)$$

Bildet man das Mittel über alle datierten Proben der Tab. 1 (für Nr. 15, 20 und 22 sind die oben aus der AcD/RaG-Methode berechneten Alter eingesetzt), so erhält man als heutiges Verhältnis Th/U den Wert 3,5 in befriedigender Übereinstimmung mit dem Keevilschen Mittel<sup>8</sup> des gleichen Verhältnisses von 3,2.

Obwohl diese gute Übereinstimmung sicher als wesentliche Stütze der oben vorausgesetzten Arbeitshypothese über die Entstehung der Bleierze aus primären Gesteinen im genannten Sinn wird gelten können, erlaubt sie noch keine endgültige Entscheidung darüber, ob die Holmessche Intrusionshypothese zugunsten einer reinen Differenziationshypothese fallen gelassen werden kann, also ob über (3) hinaus auch Gl. (5) gilt. Eine experimentelle Entscheidung dieser Frage ist möglich, wenn die Streuung von  $\mu_U$  und  $k$  für Bleierze mit der natürlichen Streuung dieser Zahlen für natürliche Gesteine verglichen werden kann, wozu aber bisher zu wenig Daten sowohl von der geochemischen wie auch von der Seite der Isotopieuntersuchungen vorliegen. Hierbei wird besonders die Kenntnis der Streuung von  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$  für verschiedene Proben des gleichen Materials wichtig sein — bislang liegen nur von dem Joplin-Bleiglanz 3 Isotopenanalysen vor — sowie eine eingehende Berücksichtigung der geologisch-petrographischen Befunde z. B. des Pb/U- und Th/U-Verhältnisses der umgebenden Gesteine bzw. derjenigen Schichten, die als Muttergestein in Frage kommen. Es besteht daher durchaus begründete Hoffnung, durch direkten Vergleich der Werte von  $\mu$  und  $k$  bzw. der Verhältnisse Pb/U und Th/U an bestimmten Gesteinen mit den rechnerisch aus den Erzen ermittelten Werten wichtige Aufschlüsse über das so schwer zugängliche Problem der Genese der Erzlagerstätten zu erhalten.

Zuletzt wollen wir das gefundene Alter des Urans  $w = 2,9 \pm 0,3 \cdot 10^9$  mit anderen Daten für das Alter der Welt vergleichen. Vorerst aber wollen wir genau bedenken, wie  $w$  definiert ist. Wir haben dabei zwei Möglichkeiten zu unterscheiden. Entweder hat bei der Bildung der Erdkruste eine mehr oder weniger vollständige chemische Abtrennung des Urans vom Blei in den obersten Schichten der Erdkruste stattgefunden, wofür die

Tatsache spricht, daß die Häufigkeit von Uran relativ zum Blei nach Goldschmidt<sup>10</sup> in Eisenmeteoriten etwa 112-mal kleiner ist als in Eruptivgesteinen; in diesem Falle haben wir anzunehmen, daß das Blei in der Zusammensetzung, die zur Zeit der Bildung der Erdkruste bestand, weitgehend in die Tiefe abgesunken ist und die Restkristallisation praktisch eine — wenngleich nicht vollständige — Uranabspaltung bedeutet. Hierfür spricht auch der bekannte, bisher noch völlig unaufgeklärte Tatbestand des „geothermischen Paradoxons“, die Tatsache nämlich, daß die geothermische Tiefenstufe nur dann die richtige Größenordnung hat, wenn angenommen wird, daß nur der oberste Teil der Silikathülle einen Gehalt an Uran und Thorium aufweist, wie wir ihn in den Eruptivgesteinen finden. Wird also angenommen, daß vom Zeitpunkt der Weltentstehung etwa in gasförmiger Phase Uran und Blei völlig durchmischt waren und erst mit der Bildung der obersten Silikathülle eine, wenngleich unvollständige, Separation des Urans stattgefunden hat, gibt (4) nicht die Zusammensetzung des „Urbleis“, sondern die des „Erdbleis“, d. h. diejenige, die das Blei zum Zeitpunkt dieser Separation hatte, und  $w$  bedeutet die seit diesem Zeitpunkt bis heute verflossene Zeit. Hat andererseits eine solche Separation nicht stattgefunden oder ist anzunehmen, daß keine längere Periode völliger Durchmischung der Bildung der festen Erdkruste vorangegangen ist, so gibt (4) das Urblei selbst und  $w$  das wirkliche „Alter des Urans“.

Mit den aus astrophysikalischen Daten gefundenen Zeitskalen scheint  $w$  in Einklang zu sein; vielleicht ist unser Wert auch gerade noch mit dem aus dem Hubble-Effekt folgenden Wert vereinbar<sup>12</sup>. Ebenso liegt  $w$  innerhalb der früher aus radioaktiven Daten gewonnenen Abschätzungen von St. Meyer<sup>13</sup>. Wefelmeier<sup>13</sup> hatte umgekehrt aus isotopensystematischen Gründen geschlossen, daß das Verhältnis UI/AcU ursprünglich nicht kleiner als etwa 0,3 sein konnte, und hatte hieraus

<sup>12</sup> H. Kienle, Naturwiss. 31, 149 [1943].

<sup>13</sup> Private Mitteilung. Da Hr. Wefelmeier leider im April 1945 gestorben ist und kein druckfertiges Manuskript über diesen Gedanken von ihm vorliegt, sei noch besonders hervorgehoben, daß diese schöne Idee eine sehr scharfe Abschätzung der oberen Grenze des Alters der Elementverteilung bzw. des Urans erlaubt. Schon ein Alter von  $9,10^9$  Jahren würde bedeuten, daß das jetzt seltene Uranisotop zu Beginn der „Weltgeschichte“ 92,5% alles Urans ausgemacht hat, was mit allen Erfahrungen über ungeradzahlige Isotope in Widerspruch steht.

auf  $w \leq 7,4 \cdot 10^9$  a geschlossen. F. F. Koszy<sup>14</sup> hat eine obere Grenze  $w \leq 5,3 \cdot 10^9$  a durch Anwendung von (2) auf gewöhnliches Blei angegeben, indem er  $\alpha_0$  und  $\beta_0$  beide gleich Null gesetzt hatte, also angenommen hatte, daß das Urblei die Isotopen 206 und 207 überhaupt nicht enthalten hatte.

Hingegen besteht, wenn  $w$  als das Weltalter selbst aufzufassen ist, eine scharfe Diskrepanz mit dem Befund von Paneth und Mitarbeitern<sup>15</sup>, der an einigen Eisenmeteoriten nach der Heliummethode auf Alter bis zu  $7,8 \cdot 10^9$  a geschlossen hatte. Eine Aufklärung dieser Diskrepanz scheint vorerst, wenn sie nicht auf experimentellen Fehlern beruht, nur möglich, indem entweder ein Uranverlust im Material dieser Meteoriten, etwa in dem oben für den Erdkern angedeuteten Sinne, angenommen wird, oder aber eine Kondensation derselben in einer Atmosphäre, die sehr viel Helium enthielt, was bei extraplanetarischem Ursprung dieser Meteore nicht unmöglich erscheinen mag, da wir aus astrophysikalischen Daten wissen, daß Helium ein sehr häufiges Element und nur in der Erdkruste sehr stark verarmt ist. Doch besteht diese Diskrepanz zwischen dem Panethschen Wert auch gegenüber der Abschätzung von Koszy, denn bei solchem Alter müßte das entstandene Zerfallsblei ein Verhältnis  $AcD/RaG = 6,57$  aufweisen, und das ursprüngliche Verhältnis  $AcU/U$  I muß vor  $7,8 \cdot 10^9$  a 4,59 betragen haben. Eine experimentelle Aufklärung wäre jedenfalls durch massenspektrometrische Untersuchung des Bleis aus den genannten und anderen Meteoriten zu erwarten sowie durch deren Untersuchung auf Neon-

und Wasserstoffgehalt. Bleibt dann die Diskrepanz bestehen, so spräche dies für die erwähnte Hypothese einer chemischen Separation des terrestrischen Urans im oben erwähnten Sinne oder an dessen spätere Entstehung, die nicht mit der Entstehung der Elementverteilung zusammenfällt.

#### Nachtrag b. d. Korrektur.

Leider wurde mir erst nach Drucklegung vorliegender Arbeit eine Arbeit von A. Holmes (Nature [London] 157, 680 [1946]) bekannt, in der Holmes ebenfalls auf Grund der Daten Niers und unter Benutzung z. Tl. vollständigerer Angaben über die Datierung der benutzten Bleiproben zu praktisch den gleichen Schlüssen gelangt wie vorliegende Arbeit. Er erhält dabei  $w = 3,0 \cdot 10^9$  a, bezeichnet dies freilich als „Alter der Erde“ und stellt sich damit auf den Standpunkt, daß mit der Bildung der festen Erdkruste eine mindestens teilweise Trennung des Urans vom Blei stattgefunden hat, eine Frage, die hier absichtlich offen gelassen ist.

Für  $\alpha_0$ ,  $\beta_0$  und  $\gamma_0$  erhielt er 12,50, 14,28 und 31,82, was ebenfalls innerhalb der hier gegebenen Fehlergrenzen liegt. Besonders bedeutsam ist, daß Holmes seine frühere, hier zitierte Hypothese über die Annahme einer Durchmischung des „Gesteinsbleis“ mit „natürlichem“ Blei aus dem Erdinnern durch das Niersche Zahlenmaterial als widerlegt ansieht, in Übereinstimmung mit den hier gezogenen Schlüssen. Die Berechnung von  $w$ ,  $\alpha_0$  und  $\beta_0$  ist jedoch von dieser Annahme frei, wie oben betont wurde. Die Dispersion der Meßpunkte im  $(\alpha, \beta)$ -Diagramm längs einer Isochrone für gleichaltrige Bleisorten verschiedener Zusammensetzung muß also entweder auf falscher Datierung oder auf einer Streuung der Werte von  $\mu$  in den Muttergesteinen beruhen, also einer Streuung des Verhältnisses von Uran zu natürlichem Blei in den Gesteinen, die schon zur Zeit der Entstehung der festen Erdkruste sich eingestellt haben muß. Die Gewinnung weiterer Daten, besonders auch an Meteoritenblei, scheint deswegen von besonderem Interesse.

Göttingen, im Dezember 1946.

<sup>14</sup> F. F. Koszy, Nature [London] 151, 24 [1943].

<sup>15</sup> W. J. Arrrol, R. B. Jacob i u. F. A. Paneth, 149, 235 [1942].