

Natrium 22 im Meteorit Breitscheid

VON ELSE VILCSEK UND H. WÄNKE

Aus dem Max-Planck-Institut für Chemie (Otto-Hahn-Institut), Mainz
(Z. Naturforsch. 15 a, 1004—1007 [1960]; eingegangen am 24. August 1960)

Es gelang erstmalig, Natrium 22 in einem Meteoriten zu messen. Der Meteorit Breitscheid, an dem wir unsere Untersuchungen ausführten, fiel am 11. August 1956. Aus einer gefundenen Zählrate von $0,21 \pm 0,03$ Impulsen/min errechneten wir für den Zeitpunkt des Falles eine Zerfallsrate von $0,089 \pm 0,015$ Zerfällen/min·g. Wegen der relativ kurzen Halbwertszeit von 2,6 Jahren erscheint Natrium 22 besonders geeignet, um Schwankungen der Intensität der Höhenstrahlung im Zusammenhang mit der Sonnenfleckperiode zu untersuchen.

Aus der ermittelten Zählrate folgt für die Jahre 1954—1956 eine mittlere Intensität der Höhenstrahlung von $I_0 = 0,68$ Teilchen/cm² sec sterad. Dieser Wert berücksichtigt Teilchen mit Energien bis herunter zu etwa 100 MeV. Natrium 22 zerfällt in Neon 22. Zusammen mit dem Gehalt an Neon 22 erhielten wir aus der Zerfallsrate von Natrium 22 für diesen Meteoriten ein Strahlungsalter von etwa 30 Mill. Jahren.

Nachdem PANETH, REASBECK und MAYNE¹ 1952 bewiesen hatten, daß das schon seit vielen Jahren in Eisenmeteoriten aufgefundenen Helium durch die Einwirkung der Höhenstrahlung auf die Atomkerne der Meteorite entsteht, wurden in den folgenden Jahren die Isotope des Neon² und des Argon³ sowohl in Eisenmeteoriten als auch in Steinmeteoriten^{4—6} als Reaktionsprodukte der Höhenstrahlung nachgewiesen. Kürzlich wurde gezeigt, daß auch Scandium⁷ in Eisenmeteoriten zum größten Teil durch die Höhenstrahlung entsteht.

Als erstes radioaktives Spallationsprodukt wurde Tritium⁸ (Halbwertszeit = 12,3 Jahre) in Meteoriten aufgefunden; andere in Meteoriten bisher gemessene radioaktive Kerne sind Beryllium 10⁹ ($T/2 = 2,7 \cdot 10^6$ Jahre), Aluminium 26⁹ ($T/2 = 7,5 \cdot 10^5$ Jahre), Chlor 36¹⁰ ($T/2 = 3,1 \cdot 10^5$ Jahre), Argon 39¹¹ ($T/2 = 325$ Jahre), Kalium 40^{12,13} ($T/2 = 1,3 \cdot 10^9$ Jahre) und Mangan 53¹³ ($T/2 = 2 \cdot 10^6$ Jahre). Während für Tritium Zerfallsraten von etwa 0,5 Zerfällen/min g gefunden wurden, liegen die Zerfallsraten der anderen erwähnten Kerne bis über 100-mal tiefer, so daß zur Messung dieser kleinen Aktivitäten ganz extreme Anforderungen erfüllt werden müssen.

Tritium zerfällt in Helium 3; kennt man daher die Tritiumzerfallsraten und den Helium 3-Gehalt pro Gramm Meteorit, so kann man daraus das Strahlungsalter berechnen. Man hat nur noch zu berücksichtigen, daß ein Teil des Helium 3 direkt entsteht. Unter dem Strahlungsalter ist die Zeit zu verstehen, die seit dem Ausbrechen des Meteoriten aus einem größeren Mutterkörper vergangen ist und seit der Meteorit der Höhenstrahlung ausgesetzt ist. Ähnlich wie der Zerfall von Tritium in Helium 3 kann auch der Zerfall von Chlor 36 in Argon 36 zur Bestimmung des Strahlungalters dienen. Darüber hinaus läßt sich im Prinzip durch Kombination der Menge irgend eines stabilen Spallationsproduktes und der Zerfallsrate eines beliebigen radioaktiven Kernes das Strahlungsalter berechnen, wenn man die Erzeugungsquerschnitte dieser beiden Kerne in Abhängigkeit von der Energie der die Spallation auslösenden Teilchen sowie deren Energieverteilung im Meteoriten kennt. Das Strahlungsalter T ergibt sich dann zu¹⁴

$$T = \frac{\bar{\sigma}_k}{\bar{\sigma}_i} \frac{N_i}{A_k},$$

wobei σ_i und σ_k die effektiven Erzeugungsquerschnitte des stabilen und des radioaktiven Kernes

- ¹ F. A. PANETH, P. REASBECK u. K. I. MAYNE, Geochim. Cosmochim. Acta **2**, 300 [1952].
- ² P. REASBECK u. K. I. MAYNE, Nature, Lond. **176**, 733 [1955].
- ³ W. GENTNER u. J. ZÄHRINGER, Z. Naturforsch. **10 a**, 498 [1955].
- ⁴ P. REASBECK u. K. I. MAYNE, Nature, Lond. **176**, 186 [1955].
- ⁵ E. K. GERLING u. L. K. LEVSKI, Dokl. Akad. Nauk SSSR **110**, 750 [1956].
- ⁶ J. GEISS u. D. C. HESS, Astrophys. J. **127**, 224 [1958].
- ⁷ H. WÄNKE, Z. Naturforsch. **13 a**, 645 [1958].
- ⁸ E. L. FIREMAN u. D. SCHWARZER, Geochim. Cosmochim. Acta **11**, 252 [1957].

- ⁹ W. D. EHMANN u. T. P. KOHMAN, Geochim. Cosmochim. Acta **14**, 340 [1958].
- ¹⁰ E. L. SPRENKEL, R. DAVIS JR. u. E. O. WIGG, Bull. Amer. Phys. Soc. II, **4**, 223 [1959].
- ¹¹ E. L. FIREMAN, Nature, Lond. **181**, 1613 [1958].
- ¹² H. VOSHAGE u. H. HINTENBERGER, Z. Naturforsch. **14 a**, 194 [1959].
- ¹³ M. HONDA, J. P. SHEDLOVSKY u. J. R. ARNOLD, private Mitteilung.
- ¹⁴ H. WÄNKE u. ELSE VILCSEK, Z. Naturforsch. **14 a**, 929 [1959].



bedeuten. N_i ist die Konzentration des stabilen Spallationsproduktes i und A_k die Aktivität des radioaktiven Spallationsproduktes k pro Gramm Meteorit. Hierbei ist vorausgesetzt, daß das Strahlungsalter T groß gegen die Halbwertszeit des Kernes k ist; d. h., daß Sättigung erreicht wurde. Letzteres ist mit Ausnahme von Kalium 40 wohl fast immer der Fall.

Alle bisherigen Messungen an radioaktiven Reaktionsprodukten beschränken sich auf relativ langlebige Kerne. Tritium hat mit 12,3 Jahren unter allen oben erwähnten Kernen noch die geringste Halbwertszeit. Für die Bestimmung des Strahlungsalters der Meteorite ist die Halbwertszeit des gemessenen radioaktiven Kernes von untergeordneter Bedeutung. Die Meteorite haben sich jedoch, wie bereits 1947 von SINGER¹⁵ vorgeschlagen wurde, als ausgezeichnete Objekte für die Messung der Höhenstrahlung im freien Weltraum erwiesen. Die Intensität der Höhenstrahlung scheint nun gewissen Schwankungen unterworfen zu sein. So wurde der sogenannte FORBUSH-Zyklus aufgefunden¹⁶. Hierbei handelt es sich um eine periodische Schwankung der Intensität, wobei das Maximum zur Zeit des Sonnenfleckenminimums erreicht wird. SIMPSON¹⁷ postuliert hingegen hohe, von der Sonne kommende Teilchenströme mit Energien unter 1 GeV im Sonnenfleckenmaximum.

I. Abtrennung, Reinigung und Messung der Aktivität von Natrium 22

Wir haben nun versucht, Natrium 22 in dem 1956 gefallenen Steinmeteoriten Breitscheid zu messen. Natrium 22 besitzt eine Halbwertszeit von 2,6 Jahren, wäre also zur Auffindung einer Periodizität von 11 Jahren sehr gut geeignet. Wegen der geringen zu erwartenden Zerfallsraten müssen relativ große Proben aufgearbeitet werden, wodurch man bei der Aktivitätsmessung zu sehr großen Schichtdicken gelangt, da Steinmeteorite leider etwa 1% Natrium enthalten. Überdies besitzen die Positronen von Natrium 22 nur eine Maximalenergie von 0,54 MeV. Um nicht extrem kleine Zählausbeuten zu erhalten, ist man daher auf die Verwendung eines Zählrohres mit möglichst großer ausnutzbarer Fläche angewiesen.

Bei der Aufarbeitung einer Einwaage von 82,40 g des Meteoriten erhielten wir eine Chloridlösung, in der neben den Alkalien nur noch Erdalkalien und Magnesium vorhanden waren. Nachdem die Erdalkalien durch

Ausfällung mit Ammoniumcarbonat entfernt worden waren, wurde das Natrium durch Einleiten von gasförmigem Chlorwasserstoff als Natriumchlorid isoliert. Zur radiochemischen Reinigung wurden Eisenchlorid- und Calciumchloridlösung als Träger zugesetzt; das Eisenhydroxyd wurde mit wenig überschüssigem kohlensäurefreien Ammoniak gefällt. Dann wurde mit einer Tetraphenyl-bor-natrium-Lösung, deren Gehalt genau bekannt war, das Ammoniumsalz gefällt. Das Ammonium diente dabei als Träger für Kalium.

Anschließend wurde mit Ammoniumcarbonat das Calcium gefällt. Aus dem Filtrat wurde das Natriumchlorid durch Versetzen mit Butanol, das mit Chlorwasserstoffgas gesättigt war, ausgefällt, der Niederschlag abzentrifugiert, gelöst und in einem Platintiegel bis zur Gewichtskonstanz getrocknet und gewogen. Zur Aktivitätsbestimmung wurde das so erhaltene Natriumchlorid gelöst, mit Butanol-Chlorwasserstoff ausgefällt (diese Fällung ist in konzentrierter Lösung praktisch quantitativ) und mit Hilfe einer Sinternutsche auf ein Papierfilter aufgebracht.

Zu den letzten Reinigungsoperationen wurden Quarzgefäße verwendet, um das Einschleppen von Kalium zu verhindern. Die chemische Analyse¹⁸ des Breitscheid hatte einen Natriumgehalt von 0,764% ergeben. Daraus folgt für unsere Einwaage eine Natriumchloridmenge von 1,605 g. Unter Berücksichtigung der durch das Tetraphenyl-bor-natrium eingebrachten Natriummenge ergab sich eine Ausbeute von 41,6%. Das Filter wurde samt Niederschlag getrocknet, gewogen und in ein Plexiglasschälchen eingelegt. Die Aktivitätsmessung erfolgte mit einem Glockenzählrohr mit einem Fensterdurchmesser von 51 mm. Das eigentliche Meßzählrohr war zur Verringerung des Nulleffektes mit einem Kranz von in Antikoinzidenz geschalteten Schirmzählrohren umgeben. Der Nulleffekt des Meßzählrohres betrug im Mittel etwa 1,1 Imp/min. Nach der ersten Meßserie wurde das Präparat gelöst und die oben beschriebene radiochemische Reinigung wiederholt. Dabei gingen 1,7% des Natriumchlorids verloren. Zur Kontrolle wurde der gleiche Analysengang mit einer Testmischung ausgeführt; das hier von abgetrennte Natriumchlorid erwies sich als inaktiv. Die radiochemische Reinheit unseres Präparates wurde außerdem noch durch Absorptionsmessungen sichergestellt. Die Zählausbeute unserer Meßanordnung wurde durch Eichpräparate gleicher Schichtdicke bestimmt. Diese Eichpräparate waren kleine Mengen von künstlichem Natrium 22 aus einer Standardlösung zugesetzt, deren absolute Zerfallsrate mit einem 4π -Zähler bestimmt worden war. Der Übergang von Natrium 22 in Neon 22 erfolgt zu 89% durch Positronenemission und zu 11% durch K-Einfang. Da wir im 4π -Zähler die K-Strahlung mitmessen, ist deren Nichterfassung bei der Messung der Präparate bereits in der Zählausbeute berücksichtigt. Aus den gemessenen Zählraten (s. Tab. 1) erhielten wir rückgerechnet für den Zeitpunkt des Falles eine Zerfallsrate von $0,089 \pm 0,015$ Zerfällen/min g.

¹⁵ S. F. SINGER, Phys. Rev. **90**, 168 [1953].

¹⁶ SCOTT E. FORBUSH, J. Geophys. Res. **59**, 525 [1954].

¹⁷ J. A. SIMPSON, J. Geophys. Research **65**, 1615 [1960].

¹⁸ ELSE VILCSEK, Geochim. Cosmochim. Acta **17**, 320 [1959].

	Chemische Ausbeute	NaCl	Zählrate + NE Imp/min	Nulleffekt Imp/min	Nettozählrate Imp/min	Zähl-Ausbeute
Breitscheid	41,6%	717 mg	1,32 \pm 0,02	1,11 \pm 0,02	0,21 \pm 0,03	16%
Breitscheid (Nachreinigung)	40,8%	720 mg	1,34 \pm 0,02	1,13 \pm 0,02	0,21 \pm 0,03	16%
Testmischung	—	733 mg	1,16 \pm 0,02	1,14 \pm 0,02	0,02 \pm 0,03	16%

Tab. 1. Zählraten für Natrium 22 aus Breitscheid. Gezählt wurde jeweils 10×1400 min; die angegebenen Fehler sind die experimentellen Fehler dieser 10 Messungen. Der Nulleffekt wurde vor und nach den Proben gemessen, der angegebene Wert ist der Mittelwert beider Messungen. Der Durchmesser der NaCl-Proben betrug 43 mm, der Durchmesser des Zählrohrfensters 51 mm.

II. Strahlungsalter, Intensität der Höhenstrahlung

Die bisher einzige Messung eines anderen radioaktiven Spallationsproduktes im Meteoriten Breitscheid stammt von GOEBEL und SCHMIDLIN¹⁹. Diese beiden Autoren fanden für Tritium eine Zerfallsrate von 0,54 Zerfällen/min g. Für das Verhältnis der Zerfallsraten (Tritium/Natrium 22) ergibt sich somit ein Wert von 6,1. KÖNIG, WÄNKE und MAYNE²⁰ haben an diesen Meteoriten unter anderem Helium 3 und Neon 22 gemessen. Das Verhältnis Helium 3 zu Neon 22 ergibt sich aus dieser Arbeit zu 4,4. Wenn man in erster Näherung annimmt, daß das Produktionsverhältnis Tritium zu Helium 3 gleich 1 ist, daß also ebensoviel Helium 3 direkt entsteht wie durch den Zerfall von Tritium, und wenn man das Produktionsverhältnis Neon 22 zu Natrium 22 ebenfalls gleich 1 annimmt, so sollte man für das Verhältnis Tritium zu Natrium 22 ebenfalls einen Wert von 4,4 erwarten. Irgendwelche Schlüsse über eine Zeitabhängigkeit der Höhenstrahlung kann man aus diesen ersten Messungen jedoch nicht ziehen; hierzu sind die Werte für die Erzeugungsquerschnitte viel zu unsicher. Wesentlich günstiger wird es hierzu sein, Natrium 22 in einigen weiteren Meteoriten zu messen, die später gefallen sind, und diese Werte mit Messungen eines langlebigen Höhenstrahlungsproduktes zu vergleichen. Am vorteilhaftesten wäre vermutlich ein Vergleich mit Aluminium 26 oder Beryllium 10.

Aus dem Gehalt des Meteoriten Breitscheid an Neon 22 von $10,6 \cdot 10^{-8}$ cm³/g(NTP)²⁰ errechnet sich wiederum unter der Annahme eines Produktionsverhältnisses Natrium 22 zu Neon 22 gleich 1 ein Strahlungsalter von $30 \cdot 10^6$ Jahren. GOEBEL und

SCHMIDLIN geben für diesen Meteoriten ein Tritium-Helium 3-Strahlungsalter von $11,5 \cdot 10^6$ bis $26,0 \cdot 10^6$ Jahren an.

Bei der Berechnung des Strahlungsalters für diesen Meteoriten ist jedoch einige Vorsicht geboten, da KÖNIG, WÄNKE und MAYNE²⁰ große Schwankungen des Helium- und Neongehaltes fanden, deren Ursache noch ungeklärt ist.

Natrium 22 entsteht in Steinmeteoriten in erster Linie durch Spallation von Magnesium, Silicium, Aluminium und Natrium. Alle diese Elemente liegen nur wenige Masseneinheiten oberhalb Natrium 22, so daß zu dessen Erzeugung Teilchenenergien von etwa 40 MeV ausreichen²¹. So beträgt z. B. der Erzeugungsquerschnitt von Natrium 22 bei der Bestrahlung von Aluminium mit Protonen von 100 MeV 27 mb²²; für höhere Protonenenergien sinkt der Erzeugungsquerschnitt dann etwas ab und beträgt bei 1 GeV etwa 17 mb. Demgegenüber bleibt die Produktion von Natrium 22 aus Eisen, Nickel, Kobalt und Calcium, — den weiteren Hauptbestandteilen des Meteoriten —, selbst für Teilchen sehr hoher Energien klein^{23, 24}. Für Eisen beträgt der Erzeugungsquerschnitt für 2 GeV-Protonen etwa 2 mb. Unter Berücksichtigung der chemischen Zusammensetzung des Meteoriten gelangt man zu einem mittleren Erzeugungsquerschnitt von 7,5 mb. Hierbei wurde ein Energiespektrum von der Form $F(E) dE \sim E^{-1,9} dE$ für einen Bereich von 200 MeV bis ∞ ²⁵ zugrunde gelegt. Bei der Kleinheit des Meteoriten Breitscheid (Gesamtmasse ca. 1,5 kg) braucht man Sekundärteilchen nicht zu berücksichtigen und man erhält aus der Natrium 22-Zerfallsrate von 0,089 Zerfällen/min g und einem effektiven Erzeugungsquerschnitt von

¹⁹ K. GOEBEL u. P. SCHMIDLIN, Geochim. Cosmochim. Acta **17**, 342 [1959].

²⁰ H. KÖNIG, H. WÄNKE u. K. I. MAYNE, Geochim. Cosmochim. Acta **17**, 339 [1959].

²¹ N. M. HINTZ u. N. F. RAMSEY, Phys. Rev. **88**, 19 [1953].

²² G. FRIEDLANDER, J. HUDIS u. R. L. WOLFGANG, Phys. Rev. **99**, 263 [1955].

²³ A. A. CARETTO, J. HUDIS u. G. FRIEDLANDER, Phys. Rev. **110**, 1130 [1958].

²⁴ D. W. BARR, „Thesis“, University of California 1957.

²⁵ H. WÄNKE, Z. Naturforsch. **15a**, 953 [1960].

7,5 mb für die Intensität der Höhenstrahlung einen Wert von $I_0 = 0,68$ Teilchen/cm² sec sterad. Dieser Wert ist als Mittelwert für die Jahre 1954–1956 anzusehen. (Der Meteorit Breitscheid fiel am 11. August 1956²⁶.) GOEBEL und SCHMIDLIN²⁷ errechneten aus der Tritiumaktivität des Meteoriten Breitscheid ein $I_0 = 0,78$ Nukleonen/cm² sec sterad bzw. 0,58 Teilchen/cm² sec sterad. Die Unterscheidung zwischen Nukleonen und Teilchen erscheint uns jedoch bei einem so kleinen Meteoriten wie Breitscheid nicht zulässig, da nur wenige zusammengesetzte Teilchen aufsplittern werden. Das Aufsplittern der zusammengesetzten Teilchen könnte höchstens in großen Meteoriten eine kleine Rolle spielen; doch erleiden Teilchen mit höherer Kernladungszahl beim Durchgang durch kompakte Materie sehr große Ener-

gieverluste durch Ionisation, so daß nur ein Teil dieser Teilchen Spallationsprozesse auslösen wird.

Wir hoffen, in naher Zukunft noch in einigen weiteren frischgefallenen Meteoriten Natrium 22 zu messen, um dann zusammen mit einem langlebigen Kern Aussagen über eine zeitliche Abhängigkeit der Intensität der Höhenstrahlung machen zu können. Auf jeden Fall konnte mit dieser Arbeit gezeigt werden, daß Natrium 22 in Steinmeteoriten mit hinreichender Genauigkeit gemessen werden kann, wenn eine Probe von ca. 50 g zur Verfügung steht und der Fall des Meteoriten nicht weiter als etwa eine Halbwertszeit von Natrium 22 (2,6 Jahre) zurückliegt.

Fräulein U. SCHEERER danken wir herzlich für ihre Mithilfe an dieser Arbeit.

Die Arbeit wurde unterstützt durch Sachbeihilfe des Bundesministeriums für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft.

NOTIZEN

Bemerkungen über die adiabatische Invarianz des Bahnmomentes geladener Teilchen

Von G. BACKUS

Department of Applied Mathematics, M. I. T., Cambridge, Mass., U.S.A.

A. LENARD und R. KULSRUD

Project Matterhorn, Princeton University, Princeton, New Jersey, U.S.A.

(Z. Naturforsch. 15 a, 1007–1009 [1960]; eingegangen am 1. August 1960)

In der Arbeit von HERTWECK und SCHLÜTER¹ ist eine Methode vorgeschlagen, die relativen Änderungen des Bahnmomentes eines geladenen Teilchens in einem sich zeitlich langsam ändernden homogenen Magnetfeld approximierend zu berechnen. Die Grundidee der Methode ist die Linearisierung einer Differentialgleichung, die die Zeitabhängigkeit einer sehr kleinen Größe beschreibt². Nun scheint diese Näherung zwar gerechtfertigt zu sein, solange es sich um Größen von der Ordnung der Änderungsgeschwindigkeit des Feldes handelt, doch ist dies hier keineswegs der Fall, denn die gesamte Änderung der fraglichen Größe in einer Zeitspanne, in der das Feld überhaupt variiert, ist klein von einer Größenordnung, die höher als eine beliebige Potenz der Feldänderungsgeschwindigkeit ist. Es tritt ein eigenständliches Wegheben ein, und man interessiert sich für das sehr kleine Residuum, das noch übrig bleibt. Daher ist

es durchaus möglich, daß das quadratische Glied der fraglichen Differentialgleichung einen Beitrag zu diesem Residuum gibt, der nicht klein ist im Vergleich zu dem Beitrag, den man durch die Linearisierung der Gleichung erhält.

Da man also die Formel von HERTWECK und SCHLÜTER wohl anzweifeln kann, scheint es uns von Interesse zu sein, daß es *eine Klasse von Feldänderungen gibt, für welche die Bewegungsgleichungen exakt integrierbar sind*. Wir wollen die aufgeworfene Frage an Hand dieses Beispiels diskutieren.

Es handelt sich um die Lösung der Differentialgleichung

$$\frac{d^2r}{dt^2} + i h \frac{dr}{dt} + \frac{i}{2} \frac{dh}{dt} r = 0, \quad (1)$$

wo $r = x + iy$ die komplexe Ortskoordinate und $h = h(t)$ die Gyrofrequenz des Teilchens im Magnetfeld ist. Durch die Transformation

$$r = z \exp \left\{ -\frac{i}{2} \int_0^t h dt \right\} \quad (2)$$

erhält man für z

$$\frac{d^2z}{dt^2} + \frac{h^2}{4} z = 0. \quad (3)$$

Wir wählen für die Größe h eine Zeitabhängigkeit, definiert durch

$$h^2 = h_0^2 (1 - u) + h_1^2 u - (\eta^2 + \alpha^2) u (1 - u), \quad (4)$$

¹ F. HERTWECK u. A. SCHLÜTER, Z. Naturforsch. 12 a, 844 [1957].

² Vgl. Anm. 1, Gl. (9).