

cens beim (n, γ) -Prozeß. Wie SUTIN und DODSON fanden¹³, beträgt die Retention des Ferrocens ca. 12% und kann durch Erhitzen auf 110 °C noch auf ca. 20% gesteigert werden. Bestimmt man die Retention des Ruthenocens durch Sublimation der bestrahlten Probe bei 120 °C — was einem kurzzeitigen Tempern gleichkommt —, so beträgt sie ca. 20 bis 25%¹⁴. Die im Vergleich damit sehr viel höhere Ausbeute bei der Anwendung des Spaltprozesses läßt folgern, daß die Bildungswahrscheinlichkeit der Verbindungen nach dem (n, γ) -Prozeß beträchtlich kleiner ist. Vielleicht steht das im Zusammenhang

mit der Konversion niederenergetischer γ -Quanten und der möglicherweise damit verbundenen Zerstörung des gesamten Moleküls beim (n, γ) -Prozeß, wie es von NEFEDOV und TOROPOVA diskutiert wurde¹⁵, um in der Verbindungsreihe $\text{Cr}(\text{CO})_6$, $\text{Mo}(\text{CO})_6$, $\text{W}(\text{CO})_6$ den starken Retentionsabfall vom $\text{Cr}(\text{CO})_6$ zum $\text{W}(\text{CO})_6$ zu erklären.

Unser besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. J. BORN, der diese Untersuchungen so freundlich gefördert hat. Ebenso danken wir der Betriebsleitung und der Bestrahlungsgruppe des Forschungs-Reaktors München, besonders Herrn Dr. MARTH, für die durchgeführten Bestrahlungen.

¹³ N. SUTIN u. R. W. DODSON, J. Inorg. Nucl. Chem. **6**, 91 [1958].

¹⁴ F. BAUMGÄRTNER, E. O. FISCHER u. U. ZAHN, Chem. Ber. **91**, 2336 [1958].

¹⁵ V. D. NEFEDOV u. M. A. TOROPOVA, Zh. Neorg. Khim. **3**, 175 [1958].

Das Strahlungsalter der Eisenmeteorite aus Chlor-36-Messungen

Von ELSE VILCSEK und H. WÄNKE

Aus dem Max-Planck-Institut für Chemie (Otto-Hahn-Institut), Mainz
(Z. Naturforsch. **16 a**, 379—384 [1961]; eingegangen am 30. Januar 1961)

Chlorine 36, which is produced by the interaction of cosmic ray particles with nuclei in meteorites, was measured in seven iron meteorites and in one stone meteorite. The decay rates for chlorine-36 in iron meteorites varied between 6.5 and 20.2 dpm/kg. From these and from the concentration of stable spallation products, the exposure ages of these meteorites were calculated. In this way we found for six of the meteorites exposure ages close to 500 million years. Only for the Sikhote Alin meteorite the quite different exposure age of 60 million years was measured. As this value is also definitely lower than that found by other authors for this meteorite, it is suggested that the Sikhote Alin had been part of a bigger meteorite which was broken into pieces about 60 million years ago by a collision with another meteorite.

Unter den radioaktiven Spallationsprodukten, die durch die Höhenstrahlung in Meteoriten erzeugt werden, nimmt Chlor-36 eine besondere Stellung ein. Tritium, das mit dem weitaus größten Erzeugungsquerschnitt entsteht, kann wegen der relativ kurzen Halbwertszeit von 12,3 Jahren nur in solchen Meteoriten gemessen werden, deren Fall nicht mehr als einige Jahrzehnte zurückliegt. Im Gegensatz zu den Steinmeteoriten, in denen Tritium in neuerer Zeit von verschiedenen Autoren sehr reproduzierbar gemessen wurde¹⁻⁶, ergaben Tritiumanalysen von Eisenmeteoriten bisher offenkundig wesentlich zu geringe Werte, wie durch Vergleich mit anderen radioaktiven Spallationsprodukten in einigen Me-

teoriten bewiesen werden konnte^{4, 7}. Es ist zur Zeit noch ungeklärt, ob Tritium aus Eisenmeteoriten durch Diffusion entweicht, oder ob es bisher nicht gelang, Tritium aus den Eisenmeteoriten vollständig zu extrahieren. Auch Argon-39 ($T_{1/2} = 325$ Jahre) konnte bisher nur in solchen Meteoriten nachgewiesen werden, deren Fall bekannt ist^{4, 8-10}. Bei den Eisenmeteoriten handelt es sich jedoch zum Großteil um Funde, die, wie von FIREMAN und DE FELICE⁴ sowie von WÄNKE und VILCSEK⁹ festgestellt werden konnte, in den meisten Fällen kein Argon-39 mehr enthalten, woraus man schließen muß, daß ihr Fall mehr als 1000 – 1500 Jahre zurückliegt.

Obwohl ein exakter Beweis noch fehlt, so ist doch

¹ F. BEGEMANN, J. GEISS u. D. C. HESS, Phys. Rev. **107**, 540 [1957].

² F. BEGEMANN, P. EBERHARDT u. D. C. HESS, Z. Naturforsch. **14 a**, 500 [1959].

³ K. GOEBEL u. P. SCHMIDLIN, Geochim. Cosmochim. Acta **17**, 342 [1959].

⁴ E. L. FIREMAN u. J. DE FELICE, Geochim. Cosmochim. Acta **18**, 183 [1960].

⁵ K. GOEBEL u. P. SCHMIDLIN, Z. Naturforsch. **15 a**, 79 [1960].

⁶ J. GEISS, B. HIRT u. H. OESCHGER, Helv. Phys. Acta, im Druck.

⁷ E. L. FIREMAN, private Mitteilung.

⁸ E. L. FIREMAN, Nature, Lond. **181**, 1613 [1958].

⁹ H. WÄNKE u. E. VILCSEK, Z. Naturforsch. **14 a**, 929 [1959].

¹⁰ K. GOEBEL, Conference on the Use of Radioisotopes in the Physical Sciences and Industry, Copenhagen 1960, RICC/49.



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

zu vermuten, daß zumindest in den meisten Fällen das „irdische Alter“ der Meteorite (Zeit, die seit dem Auftreffen auf die Erde vergangen ist) klein ist gegenüber der Halbwertszeit von Chlor-36 ($T_{1/2} = 310\,000$ Jahre). Der Erzeugungsquerschnitt für die Bildung von Chlor-36 als Spallationsprodukt des Eisens ist für alle Energien etwa gleich groß wie der von Argon-39. Die ersten Chlor-36-Messungen in Meteoriten wurden von GFELLER, HERR, HOUTERMANS und OESCHGER¹¹ sowie von SPRENKEL^{12, 13} beschrieben. In letzter Zeit haben auch ARNOLD et al.^{14, 15} Chlor-36 in den Eisenmeteoriten gemessen.

Messungen von radioaktiven Spallationsprodukten der Höhenstrahlung in Meteoriten sind aus zwei Gründen von großem Interesse. Erstens werden durch solche Messungen direkte Aussagen über die Intensität der Höhenstrahlung im freien Weltraum sowie über deren zeitlichen Verlauf möglich, und zweitens können zusammen mit Messungen stabiler Spallationsprodukte die sogenannten Strahlungsalter der Meteorite berechnet werden (das ist die Zeit, während der der Meteorit der Höhenstrahlung ausgesetzt war, also die Zeit, die seit dem Ausbrechen des Meteoriten aus einem größeren Mutterkörper vergangen ist).

Besonders für die Bestimmung des Strahlungsalters hat Chlor-36 viele Vorteile; Chlor-36 zerfällt zu über 98% in Argon-36, und zwar entstehen in den Meteoriten 80% von Argon-36 durch β -Zerfall von Chlor-36 und nur 20% direkt durch Spallation*. Hingegen wird beispielsweise Helium-3 nur zu etwa 40% aus Tritium und zu 60% direkt gebildet¹⁹. Da diese Verhältnisse nur relativ ungenau bekannt und außerdem sicherlich noch energieabhängig sind, wird es verständlich, daß das Verhältnis Argon-36/Chlor-36 die genauesten Absolutwerte für das Strahlungsalter zu liefern imstande sein sollte. Manche Eisenmeteorite scheinen etwas Chlor zu enthalten (um 10^{-2} % und darunter), so daß Chlor-36 auch noch durch Neutroneneinfang aus Chlor-35 entstehen könnte. Wir sind jedoch sicher, daß dieser

Prozeß bei den meisten Meteoriten nur eine sehr unbedeutende Rolle spielt. Selbst wenn alles Chlor-36 auf diese Weise entstehen würde, ergäbe sich nach dem oben Gesagten für das aus dem Argon-36/Chlor-36-Verhältnis berechnete Strahlungsalter nur ein Fehler von 25%.

Wie an anderer Stelle näher ausgeführt wurde⁹, läßt sich im Prinzip durch Vergleich jedes beliebigen radioaktiven Spallationsprodukts mit irgend einem stabilen Spallationsprodukt das Strahlungsalter berechnen.

$$T = \bar{\sigma}_k N_i / \bar{\sigma}_i A_k.$$

$\bar{\sigma}_i$ und $\bar{\sigma}_k$ bedeuten die effektiven, also über alle vorkommenden Teilchenenergien gemittelten Erzeugungsquerschnitte und N_i die Zahl der Atome des stabilen Kernes i pro Gramm Meteorit und A_k die Zerfallsrate des Kernes k pro Gramm Meteorit. Für σ_i und σ_k hat man dabei stets die Summe der Erzeugungsquerschnitte des direkt durch Spallation gebildeten Kernes i bzw. k und der ebenfalls durch Spallation entstehenden isobaren Kerne einzusetzen, die nachträglich durch β -Zerfall in den betrachteten Kern i bzw. k übergehen. Um die effektiven Erzeugungsquerschnitte für die Kerne i und k berechnen zu können, muß man im allgemeinen das Energiespektrum der erzeugenden Teilchen kennen. Die Kenntnis des Energiespektrums der erzeugenden Teilchen ist jedoch nicht notwendig, falls die Erzeugungsquerschnitte der beiden betrachteten Kerne i und k die gleiche Energieabhängigkeit besitzen. Wie an anderer Stelle gezeigt werden konnte²⁰, ändert sich die mittlere Energie der die Spallation auslösenden Teilchen sowohl innerhalb eines Meteoriten als auch für verschiedene Meteorite nur sehr wenig. In erster Näherung können somit durch Vergleich eines radioaktiven mit irgend einem stabilen Spallationsprodukt zumindestens relative Angaben bezüglich des Strahlungsalters der untersuchten Proben gemacht werden.

Messungen stabiler Reaktionsprodukte sind, ob-

¹¹ G. GFELLER, W. HERR, F. G. HOUTERMANS u. H. OESCHGER, *Helv. Phys. Acta* **32**, 277 [1959].

¹² E. L. SPRENKEL, Thesis "University of Rochester" 1959.

¹³ E. L. SPRENKEL, R. DAVIS u. E. O. WIG, *Bull. Amer. Phys. Soc. Ser. II*, **4**, 223 [1959].

¹⁴ M. HONDA, J. P. SHEDLOVSKY u. J. R. ARNOLD, *Geochim. Cosmochim. Acta* [1961], im Druck.

¹⁵ M. HONDA u. J. R. ARNOLD, private Mitteilung.

* SCHAEFFER und ZÄHRINGER¹⁶ und FISHER und SCHAEFFER¹⁷ fanden bei der Bestrahlung von Eisen mit Protonen zwischen 700 MeV und 6 GeV für das Verhältnis $\sigma_{A36}/\sigma_{A38}$

den konstanten Wert von 0,125. Das Mengenverhältnis Argon 36/Argon 38 in den Meteoriten beträgt jedoch nach SIGNER und NIER¹⁸ 0,63. Somit folgt $\sigma_{Cl36}/\sigma_{A36} = 4$, d. h. es entsteht 4-mal soviel Argon-36 durch β -Zerfall von Chlor-36 als direkt.

¹⁶ O. A. SCHAEFFER u. J. ZÄHRINGER, *Phys. Rev.* **113**, 674 [1959].

¹⁷ D. E. FISHER u. O. A. SCHAEFFER, *Geochim. Cosmochim. Acta* **20**, 5 [1960].

¹⁸ P. SIGNER u. A. O. NIER, *J. Geophys. Res.* **65**, 1063 [1960].

¹⁹ K. GOEBEL u. J. ZÄHRINGER, *Z. Naturforschg.* **16 a**, 231 [1961].

²⁰ H. WÄNKE, *Z. Naturforschg.* **15 a**, 953 [1960].

wohl die Konzentrationen außerordentlich gering sind (z. B. enthält Treysa^{20, 21} $24,8 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ He NTP/g}$ und $21,8 \cdot 10^{-8} \text{ Ne NTP/g}$ und $2,1 \cdot 10^{-9} \text{ g Sc/g}$), mit Hilfe moderner Analysenmethoden relativ einfach durchzuführen und man erreicht selbst für Probenmengen von weniger als ein Gramm Genauigkeiten von 2–5%.

Für die Messungen radioaktiver Spallationsprodukte braucht man beträchtlich größere Proben von zumindest etwa 100 g; nur Tritium, das von allen radioaktiven Kernen den höchsten Erzeugungsquerschnitt besitzt, kann schon in Proben von einigen Gramm mit ausreichender Genauigkeit gemessen werden.

a) Experimenteller Teil

Da Meteorite sehr wertvolle Untersuchungsobjekte sind, haben wir die Aufarbeitung der Proben so vorgenommen, daß mehrere radioaktive Spallationsprodukte aus einer Einwaage isoliert werden konnten. Der hier beschriebene Arbeitsgang wurde an Proben von Eisenmeteoriten ausgeführt, aus denen bereits Argon-39 abgetrennt worden war und die, außer auf Chlor-36, auch noch auf Aluminium-26 und Beryllium-10 aufgearbeitet werden sollen.

Beim Lösen der Meteoritfrässpäne in einer schwefelsauren Quecksilber(II)-sulfatlösung war neben metallischem Quecksilber das als Träger zugesetzte Chlorid als schwerlösliches Quecksilber(I)-salz ausgefallen. Um sicher das gesamte Chlor-36 zu erfassen, wurde die Trägermenge (etwa 1 mg NaCl pro Gramm Meteorit) geteilt und je eine Hälfte vor, bzw. nach beendeter Auflösung der Probe, nebst einigen Gramm Eisen zugesetzt. Durch Zentrifugieren und anschließendes Dekantieren trennten wir den Rückstand ab. Dieser wurde mehrmals mit verdünnter Schwefelsäure und Wasser gewaschen, wobei sich der suspendierte Niederschlag gut von der Hauptmenge des metallischen Quecksilbers abtrennen ließ. Der Niederschlag wurde in konzentrierter Salpetersäure gelöst und das Chlor mit einer gesättigten Silbernitratlösung gefällt. Das dabei erhaltene AgCl reinigten wir durch Umfällen und schlossen es dann mit der dreifachen Menge Natriumcarbonat bei 950 °C auf. Die Schmelze wurde in Wasser aufgenommen, vom metallischen Silber abfiltriert und die überschüssige Soda durch Ansäuern zerstört. Die schwach schwefelsaure Lösung wurde einige Zeit unter Rückfluß gekocht um das Kohlendioxid zu entfernen und anschließend mit Natronlauge neutralisiert. Zur Abtrennung des Natriumsulfates wurde die Lösung in einem Kölbchen zur Trockene gebracht. Aus dem dabei erhaltenen Salzkrückstand wurde in einer Zersetzungsapparatur der Chlorwasserstoff durch Zutropfen von konzen-

trierter Schwefelsäure in Freiheit gesetzt und in Wasser aufgefangen. Die so erhaltene wäßrige HCl-Lösung neutralisierten wir mit Natronlauge und engten sie weitgehend ein. Ein Blindversuch ohne Trägerzusatz ergab, daß durch die verwendeten Reagenzien kein Chlor eingeschleppt wurde. Ebenso wurde die radiochemische Reinheit der Reagenzien durch entsprechende Versuche überprüft. Zur Zählung konzentrierten wir die NaCl-Lösung auf einem flachen Goldschälchen (innerer ϕ 25 mm) und füllten das Natriumchlorid mit Aceton aus. Auf diese Weise erhielten wir sehr homogene und feinkristalline Schichten. Die Verwendung der Goldschälchen brachte infolge der hohen Rückstreuung eine Erhöhung der Zählausbeute von ca. 25% gegenüber der Zählausbeute wie sie mit Plexiglasschälchen gemessen wurde. Im Falle des Steinmeteoriten Bruderheim wurde die feingepulverte Probe mit verdünnter Salpetersäure ausgelaugt, die Lösung vom Rückstand abgetrennt und mit Silbernitratlösung versetzt. Das ausgefällte AgCl wurde den gleichen Reinigungsoperationen, wie oben beschrieben, unterworfen.

Die Aktivitätsbestimmungen erfolgten mittels eines Glockenzählrohrs (Fenster Mylar $0,9 \text{ mg/cm}^2$), das zur Verringerung des Nulleffektes in Antikoinzidenz mit einem umgebenden Kranz von Schirmzählrohren geschaltet war. Der Nulleffekt unserer Zählordnung betrug ca. 0,5 Impulse/min.

Anschließend an die Messung der Natriumchloridproben wurden diese wieder von dem Schälchen abgespült und mit dem leeren Schälchen der Nullwert gezählt. Ebenso wurde vor der Messung der Proben der Nullwert bestimmt. Das abgelöste Natriumchlorid wurde wieder eingedampft, nochmals in die Zersetzungsapparatur gebracht und durch Überführen in Chlorwasserstoffgas die Reinigung wiederholt. Wie aus Tab. 1 ersichtlich, stimmen die Werte der Zerfallsraten der ersten Messungen mit denen der Messungen nach der Nachreinigung sehr gut überein. Für einen Teil der Proben konnten wir durch Absorptionsmessungen zeigen, daß deren Strahlung mit der von Chlor-36 identisch war.

b) Diskussion der Meßergebnisse

Die gemessenen Chlor-36-Zerfallsraten sind in Tab. 1 aufgeführt. Eine gewisse Unsicherheit entstand bei der Bestimmung der chemischen Ausbeute, da der Chlorgehalt der Meteorite nicht bekannt ist. Die Chlor-Ausbeute bei der ersten AgCl-Fällung lag mit einer Ausnahme (Carbo) stets um 90%; den gleichen Wert erhielten wir auch bei Versuchen mit chemisch reinem Eisen. Wir können daher annehmen, daß der Fehler in der chemischen Ausbeute auf Grund des Chlorgehalts der Meteorite im Mittel nicht größer ist als etwa 5%. Es wäre somit möglich, daß unsere auf Grund der chemischen Ausbeute berechneten absoluten Zerfallsraten teilweise um etwa 5% zu niedrig sind. Unsere Trägermenge entsprach

²¹ H. WÄNKE, in Vorbereitung.

| Meteorit | Einwaage | Chlor- ausbeute | Zähl- ausbeute | Chlor-36 Nettozählrate/min | Chlor-36 Zerfallsrate/kg min |
|-------------------------|----------|--------------------|-------------------|-------------------------------|---------------------------------|
| Treysa I | 103 g | 86,7% | 46,4% | $0,837 \pm 0,019$ | $20,2 \pm 0,9$ |
| Treysa I (Nachr.) | | 74,8% | 47,8% | $0,762 \pm 0,022$ | $20,6 \pm 0,9$ |
| Treysa I (Mittelw.) | | | | | $20,4 \pm 0,7$ |
| Treysa II | 97 g | 61,2% | 48,6% | $0,580 \pm 0,013$ | $20,1 \pm 0,8$ |
| Treysa II (Nachr.) | | 52,8% | 49,8% | $0,501 \pm 0,020$ | $19,7 \pm 0,9$ |
| Treysa II (Mittelw.) | | | | | $19,9 \pm 0,7$ |
| Aroos | 91 g | 65,8% | 49,3% | $0,547 \pm 0,014$ | $18,5 \pm 0,8$ |
| Aroos (Nachr.) | | 57,3% | 50,7% | $0,491 \pm 0,021$ | $18,6 \pm 1,0$ |
| Aroos (Mittelw.) | | | | | $18,6 \pm 0,8$ |
| Carbo | 102 g | 63,5% | 48,2% | $0,251 \pm 0,016$ | $8,1 \pm 0,6$ |
| Carbo (Nachr.) | | 59,2% | 49,0% | $0,238 \pm 0,013$ | $8,1 \pm 0,6$ |
| Carbo (Mittelw.) | | | | | $8,1 \pm 0,4$ |
| San Angelo | 86 g | 71,8% | 47,3% | $0,190 \pm 0,018$ | $6,5 \pm 0,7$ |
| San Angelo (Nachr.) | | 58,0% | 49,1% | $0,173 \pm 0,016$ | $7,1 \pm 0,7$ |
| San Angelo (Mittelw.) | | | | | $6,8 \pm 0,5$ |
| Narraburra | 81 g | 74,6% | 46,4% | $0,167 \pm 0,017$ | $6,0 \pm 0,7$ |
| Narraburra (Nachr.) | | 69,0% | 48,7% | $0,188 \pm 0,017$ | $6,9 \pm 0,7$ |
| Narraburra (Mittelw.) | | | | | $6,5 \pm 0,5$ |
| Toluca | 111 g | 79,8% | 46,6% | $0,409 \pm 0,022$ | $9,9 \pm 0,6$ |
| Toluca (Nachr.) | | 67,5% | 48,6% | $0,389 \pm 0,021$ | $10,6 \pm 0,7$ |
| Toluca (Mittelw.) | | | | | $10,3 \pm 0,5$ |
| Sikhote Alin | 167 g | 72,8% | 41,1% | $0,473 \pm 0,021$ | $9,5 \pm 0,5$ |
| Sikhote Alin (Nachr.) | | 70,7% | 42,3% | $0,465 \pm 0,023$ | $9,3 \pm 0,6$ |
| Sikhote Alin (Mittelw.) | | | | | $9,4 \pm 0,4$ |
| Bruderheim | 88,8 g | 80,8% | 47,8% | $0,187 \pm 0,017$ | $5,5 \pm 0,5$ |
| Bruderheim (Nachr.) | | 64,3% | 50,0% | $0,166 \pm 0,016$ | $5,8 \pm 0,6$ |
| Bruderheim (Mittelw.) | | | | | $5,7 \pm 0,4$ |

Tab. 1.

stets etwa 1 mg NaCl/g Meteorit. HONDA et al.¹⁴ geben zwar für Odessa und Canon Diablo Chlorkonzentrationen von 0,02% an, bei den von uns untersuchten Meteoriten handelte es sich jedoch stets um Objekte von großer Reinheit, d. h. diese Meteorite zeigen sehr reine Metallphase mit nur wenigen Einschlüssen, die wir außerdem so weit wie möglich absonderten. Eine gewisse Ausnahme bildete die Probe von Sikhote-Alin, die einige Troilit-Einschlüsse zeigte.

Die angeführten Fehler der Nettozählrate beziehen sich nur auf die theoretischen statistischen Fehler, doch konnten wir in mehreren Versuchen sicherstellen, daß der experimentelle Zählfehler tatsächlich mit dem theoretischen Fehler übereinstimmte. Bei der Berechnung der absoluten Zerfallsrate wurden neben den Zählfehlern noch andere Fehler berücksichtigt. Solche Fehler sind: Ungleichheiten beim Aufbringen des Natriumchlorids auf die Goldschälchen, sowie Fehler bei der Bestimmung der Zähl- ausbeute. Die Zähl- ausbeute wurde für verschiedene Schichtdicken bestimmt. Die so erhaltenen Selbst-

absorptionskurven verliefen in dem in Frage kommenden Bereich praktisch linear, so daß leicht interpoliert werden konnte. Die zu diesen Versuchen verwendete Chlor-36-Standardlösung wurde in einem 4 π -Zähler absolut geeicht (mittlerer Fehler 2,8%). Die Aktivität dieser Standardlösung wurde außerdem mit einer in Harwell standardisierten Lösung (angegebener Fehler 3%) verglichen, die Zerfallsraten stimmten auf 2,1% überein. Zur Berechnung der Zerfallsraten unserer Meteoritproben haben wir den Mittelwert aus beiden Standardlösungen verwendet. Bei der Aufbringung des NaCl auf die Goldschälchen ergab sich infolge von Ungleichheiten und der Schichtdicke ein mittlerer Fehler von 3%. Zu diesen Fehlern kommt jedoch, wie oben erwähnt, wegen des unbekannten Chlorgehaltes der Meteorite noch ein Fehler bei der Bestimmung der chemischen Ausbeute, der nur sehr schwer abzuschätzen ist. Wir glauben jedoch, daß der mittlere Gesamtfehler unserer Chlor-36-Messungen zumindest für die Proben mit hohen Chlor-36-Zählraten einen Wert von 10% nicht überschreitet.

Bei einigen von uns untersuchten Meteoriten ist ein Vergleich mit früheren Chlor-36-Bestimmungen anderer Autoren möglich. Hierbei zeigen sich leider ziemliche Diskrepanzen. Die beste Übereinstimmung findet sich für Aroos; HONDA, SHEDLOVSKY und ARNOLD¹⁴ fanden für diesen Meteoriten eine Chlor-36-Zerfallsrate von 14 Zerfällen/kg min. Der relativ kleine Unterschied gegenüber unserem Wert konnte zumindestens teilweise auf einen Tiefeneffekt im Meteoriten zurückzuführen sein. Für Carbo fand SPRENKEL¹² 3,6 Zerfälle Chlor-36/kg min, also weniger als die Hälfte gegenüber unseren Messungen. Ebenso groß ist die Diskrepanz bei Sikhote Alin, hier fanden GFELLER, HERR, HOUTERMANS und OESCHGER¹¹ 5,8 Zerfälle Chlor-36/kg min, und zwar für eine Probe die nahe unserer Probe lag.

c) Strahlungsalter der Meteorite

Über das Strahlungsalter der Eisenmeteorite sind in der letzten Zeit sehr unterschiedliche Ergebnisse bekannt geworden. So geben UREY²² sowie vor allem SCHAEFFER und FISHER²³ große Variationen der Strahlungsalter der einzelnen Eisenmeteorite an. Wir haben hingegen seit langer Zeit die Ansicht vertreten, daß der überwiegende Teil der Eisenmeteorite größenordnungsmäßig dasselbe Strahlungsalter haben müsse^{20, 24}. Durch Vergleich der Menge des „kosmogenen“ Neons mit der aufgefundenen Masse der Meteorite konnten wir in letzter Zeit zeigen²⁵, daß tatsächlich der Großteil aller Eisenmeteorite, und zwar alle reinen Oktahedrite (mit Ausnahme der größten Oktahedrite) Strahlungsalter besitzen müssen, die sich untereinander um kaum mehr als einen Faktor 2 unterscheiden. Hingegen scheinen Hexahedrite, Ataxite und Oktahedrite mit Silikateinschlüssen zum Teil um mehr als eine Größenordnung jünger. Leider sind unsere Argon-36-Messungen, die zusammen mit den Chlor-36-Werten exakte Angaben über das Strahlungsalter der untersuchten Meteorite ermöglichen, erst in Vorbereitung. Wir müssen uns somit darauf beschränken, unsere Chlor-36-Werte mit einem anderen stabilen Spallationsprodukt zu vergleichen. Am exaktesten erschien uns ein Vergleich mit dem Neongehalt. Für den Meteoriten Treysa liegen bereits drei Bestimmungen des Strah-

lungsalters nach verschiedenen Methoden vor. WÄNKE und VILCSEK⁹ fanden aus dem Scandium-45/Argon-39-Verhältnis für Treysa ein Strahlungsalter von $6 \cdot 10^8$ Jahren. Genau denselben Wert erhielten VOSHAGE und HINTENBERGER^{26, 27} aus dem Verhältnis Kalium-41/Kalium-40, schließlich berechneten FIREMAN und DE FELICE⁴ aus dem von ihnen gemessenen Verhältnis Helium-3/Argon-39 ein Strahlungsalter von $4,2 \cdot 10^8$ Jahren. FECHTIG, GENTNER und KISTNER²⁸ haben an mehreren Punkten des Meteoriten Treysa Helium-, Neon- und Argon-Bestimmungen durchgeführt. Aus dieser Arbeit errechnet sich für unsere Probe durch Vergleich des Helium- bzw. Neongehaltes ein Argon-36-Gehalt von $19 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ NTP/g}$. Zusammen mit der von uns gefundenen Chlor-36-Zerfallsrate erhält man daraus ein Strahlungsalter von etwa $4 \cdot 10^8$ Jahren. Wir haben daher für Treysa ein Strahlungsalter von $5 \cdot 10^8$ Jahren als Eichwert zugrunde gelegt und über das Verhältnis Neon/Chlor-36 für die übrigen Meteorite die Strahlungsalter berechnet (Tab. 2). Allerdings kommt auf diese Weise wegen der wohl etwas verschiedenen Energieabhängigkeit der Erzeugungsquerschnitte von Chlor-36 und Neon ein weiterer Fehler von etwa 10% hinzu.

Wie aus der Tabelle ersichtlich, haben die Meteorite Treysa, Aroos, Toluca, San Angelo und Narraburra alle das gleiche Strahlungsalter, lediglich Carbo fällt etwas heraus. VOSHAGE und HINTENBERGER^{26, 27} fanden für Carbo nach ihrer Kalium-41/Kalium-40-Methode etwa das doppelte Strahlungsalter als für Treysa. Man hat gerade bei diesen beiden Meteoriten zu bedenken, daß Vergleiche verschiedener Reaktionsprodukte zur Bestimmung des Strahlungsalters mit einem überdurchschnittlichen Fehler behaftet sein können, da, wie aus den extremen Helium/Neon- und Scandium/Neon-Verhältnissen²⁰, wie sie für Treysa gemessen wurden, hervorgeht, daß dieser Meteorit mit wesentlich höheren mittleren Teilchenenergien bestrahlt wurde als Carbo. Dieser Unterschied ist der verschiedenen Größe dieser beiden Meteorite und dem damit verbundenen unterschiedlichen Anteil der Sekundärteilchen an der Auslösung der Spallationsprodukte zuzuschreiben (vgl. WÄNKE²⁰).

²² H. C. UREY, J. Geophys. Res. **64**, 1721 [1959].

²³ O. A. SCHAEFFER u. D. E. FISHER, Nature, Lond. **186**, 1040 [1960].

²⁴ K. H. EBERT u. H. WÄNKE, Z. Naturforsch. **12 a**, 766 [1957].

²⁵ H. WÄNKE, in Vorbereitung.

²⁶ H. VOSHAGE u. H. HINTENBERGER, Z. Naturforsch. **14 a**, 828 [1959].

²⁷ H. VOSHAGE u. H. HINTENBERGER, Nature, Lond. **185**, 88 [1960].

²⁸ H. FECHTIG, W. GENTNER u. K. KISTNER, Geochim. Cosmochim. Acta **18**, 72 [1960].

| Meteorit | Typ | Chlor-36 Zerfälle/min kg | Neon in 10^{-8} cm ³ NPT/g | Strahlungsalter in 10^6 Jahren |
|--------------|----------------|-----------------------------|--|-------------------------------------|
| Treysa | Mittl. Oktah. | 20,2 | 21,8 | 500 |
| Aroos | ? | 18,6 | 21,8 | 540 |
| Carbo | Mittl. Oktah. | 8,1 | 12,2 | 700 |
| San Angelo | Mittl. Oktah. | 6,8 | 7,00 | 480 |
| Narraburra | Mittl. Oktah. | 6,5 | 6,55 | 470 |
| Toluca | Mittl. Oktah. | 10,3 | 12,2 | 550 |
| Sikhote Alin | Größter Oktah. | 9,4 | 1,25 | 60 |

Tab. 2.

Die von SCHAEFFER und FISHER²³ aus stabilen Spallationsprodukten berechneten Strahlungsalter für Toluca, Carbo und Treysa, differieren von den in dieser Arbeit gefundenen Werten beträchtlich. Wir haben bereits an anderer Stelle dargelegt²⁹, warum wir die Gültigkeit des Verfahrens von SCHAEFFER und FISHER zur Abschätzung des Strahlungsalters allein aus stabilen Spallationsprodukten bezweifeln.

Eine große Überraschung bedeutete für uns das Ergebnis für Sikhote-Alin. FIREMAN und DE FELICE fanden für diesen Meteorit nach dem Helium-3/Argon-39-Verhältnis ein Strahlungsalter von $4,2 \cdot 10^8$ Jahren (das gleiche Strahlungsalter fanden diese Autoren wie oben erwähnt auch für Treysa). FISHER und SCHAEFFER finden sowohl aus dem Verhältnis Argon-36/Chlor-36 als auch nach dem Argon-38/Argon-39-Verhältnis ein Strahlungsalter von $170 \cdot 10^6$ Jahren, während sich aus unseren Messungen ein Strahlungsalter von nur $60 \cdot 10^6$ Jahren ergibt. Wir können nicht glauben, daß diese Unterschiede durch Meßfehler bedingt sind, sondern wir vermuten, daß es sich dabei um tatsächlich verschiedene Strahlungsalter handelt. Sikhote-Alin ist möglicherweise ebenso alt wie Treysa, auf jeden Fall scheint der Wert von $170 \cdot 10^6$ Jahren, der von FISHER und SCHAEFFER an ein und derselben Probe nach zwei Methoden gemessen wurde, das minimale Strahlungsalter darzustellen. Vor maximal 60 Millionen Jahren (unser Wert) ist dieser Meteorit, der ursprünglich wohl noch wesentlich größer war, durch Zusammenstoß mit einem anderen Meteoriten zerbrochen und nur eines dieser Bruchstücke ist Sikhote-Alin. Bei diesem Zusammenstoß wurde natürlich teilweise eine neue Oberfläche geschaffen. Unsere Probe muß, wie der hohe Chlor-36-Wert beweist, sehr nahe der neuen Oberfläche gelegen haben, andererseits aber vor dem Zerbrechen ziemlich weit im Inneren gewesen sein, sonst wäre der geringe Neon-Gehalt von $1,25 \cdot 10^{-8}$ cm³ Ne NPT/g nicht erklärlich. GERLING und LEVSKI³⁰

sowie VINOGRADOV et al.³¹ fanden für verschiedene Proben dieses Meteoriten Neon-Gehalte von unter $1,2 \cdot 10^{-8}$ bis $7,5 \cdot 10^{-8}$ NTP/g.

Die Zeit zwischen dem Zerbrechen und dem Aufschlag auf die Erde muß aber klein sein gegenüber dem ursprünglichen Alter (höchstes Strahlungsalter) des Meteoriten, da sonst auch mehr Neon in unserer Probe enthalten sein müßte. Unser Wert von $60 \cdot 10^6$ Jahren ist sicherlich nur eine obere Grenze hierfür, da wir nicht wissen, welcher Anteil am Gesamt-Neongehalt vor dem Zerbrechen und welcher nach dem Zerbrechen gebildet wurde. Wegen der großen Bedeutung dieser Entdeckung, insbesondere im Zusammenhang mit der Frage nach der Häufigkeit solcher katastrophischer Zusammenstöße, wollen wir versuchen, andere Proben von Sikhote-Alin zu bekommen, um selbst an möglichst verschiedenen Stellen des Meteoriten Strahlungsalter messen zu können.

Fräulein U. SCHEERER danken wir herzlich für ihre Mithilfe an dieser Arbeit. Besonderen Dank möchten wir auch an dieser Stelle für die Überlassung der Meteoritproben aussprechen. Die Proben der Meteorite Aroos und Sikhote-Alin verdanken wir Herrn Dr. E. L. KRINOV (Meteoritenkomitee, Moskau) durch Vermittlung von Herrn Prof. H. E. SUESS sowie Herrn Prof. W. HERR. Die Probe des Meteoriten Treysa erhielten wir von Herrn Prof. H. WINKLER (Marburg), die Probe des Meteoriten Bruderheim von Herrn Prof. R. E. FÖRNSBEE durch Vermittlung von Herrn Prof. SUESS; alle übrigen Meteoritproben entstammen der Sammlung Prof. F. A. PANETH. Die Arbeit wurde unterstützt durch Sachbeihilfen des Bundesministeriums für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft.

The research reported in this document has been sponsored in part by Air Force Research Division of the Air Research and Development Command, United States Air Force, through its European Office.

²⁹ H. WÄNKE, Nature, Lond. **188**, 1101 [1960].

³⁰ E. K. GERLING u. L. K. LEVSKI, Dokl. Akad. Nauk, USSR **123**, 420 [1958].

³¹ V. P. VINOGRADOV, I. K. ZADROSHNYI u. K. P. FLORENSKII, Geokhimiya **6**, 443 [1957].