

Grundzustand besser darstellt als der ruhende. In unserer Theorie kommt die kollektive Rotation durch das Hinzutreten der Operatoren \mathcal{H}_z , \mathcal{H}_a , \mathcal{H}_{ia} zu \mathcal{H}_0 zum Ausdruck; der in \mathcal{H}_z enthaltene Anteil mit $\Pi_{2,\pm 1}$ liefert einen erheblichen negativen Beitrag

und schafft die Möglichkeit der Energieerniedrigung infolge der kollektiven Rotation.

Der Verfasser dankt Dr. H. KÜMMEL für eine wertvolle Diskussion, insbesondere für den Hinweis auf die Bedeutung der Paarungsenergie.

Untersuchungen an Steinmeteoriten mit extrem hohem Edelgasgehalt

I. Der Chondrit Pantar

Von H. KÖNIG, K. KEIL, H. HINTENBERGER, F. WLOTZKA und F. BEGEMANN

Aus dem Max-Planck-Institut für Chemie (Otto-Hahn-Institut), Mainz

(Z. Naturforschg. 16 a, 1124–1130 [1961]; eingegangen am 4. August 1961)

Large amounts of excessive helium and neon have been found in the veined chondrite Pantar. The absolute amounts as well as the isotopic compositions are similar to those found in Staroye Pesyanoe and Kapoeta.

The meteorite shows light areas which are surrounded by dark regions. The dark color is caused by tiny veins mainly consisting of newly formed troilite, which presumably has been produced during a thermometamorphism and simultaneous addition of material.

An investigation of the separated fractions shows the excessive helium and neon to be contained almost completely within the dark fraction, i. e. the part of the meteorite which has undergone severe metamorphic changes.

The ammonium content of Pantar is the same as that of other chondrites.

Problems related to the existence of primordial gases in meteorites are discussed in view of the results presented.

Bis vor wenigen Jahren konnten die in Meteoriten gefundenen geringen Edelgasmengen als ausschließlich durch radioaktiven Zerfall oder durch die Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit dem Meteoritenmaterial entstanden erklärt werden. Als erste fanden GERLING und LEVSKIJ¹ jedoch in dem Achondriten Staroye Pesyanoe außergewöhnlich große Mengen an Helium, Neon und Argon mit Isotopenzusammensetzungen ähnlich den irdischen, die nicht auf diese Weise entstanden sein konnten. Sie zogen den Schluß, daß diese Edelgase Reste einer Uratmosphäre seien, in welcher die ursprüngliche Meteoritenmaterie kondensierte. Während dieser Fall zunächst als große Ausnahme galt, wurden in jüngster Zeit jedoch die Ergebnisse von weiteren Untersuchungen an Steinmeteoriten veröffentlicht, die zeigen, daß auch andere Meteorite große Mengen von Edelgasen enthalten, die als Urgase angesehen wurden. So fand REYNOLDS² große Mengen eingeschlossenen Urgases in dem kohligen Chondriten Murray und geringere Mengen in dem Chondriten Richardton, während ZÄHRINGER und GENTNER³ ähn-

liche Beobachtungen an den beiden Chondriten Kapoeta und Abee machten. Über größere Mengen „überschüssigen“ Neons und Argons in fünf kohligen Chondriten und einem Ureiliten, einem diamantenthaltigen Achondriten, berichtet STAUFFER⁴.

Jetzt fanden wir in dem Chondriten Pantar ebenfalls große Mengen der leichten Edelgase, und es scheint, als ob die Anwesenheit von überschüssigen Edelgasmengen in Meteoriten eine weit häufigere Erscheinung ist, als zunächst allgemein und auch von uns selbst auf Grund mehrerer negativ verlaufener Nachforschungen an Howarditen (Achondriten vom gleichen Typ wie Staroye Pesyanoe) angenommen wurde.

I. Mineralogisch-petrographische Untersuchung

Am 16. Juni 1938, 8.45 Uhr, ging bei Pantar, Lanao, Philippinen ($8^{\circ}04'N$; $124^{\circ}17'E$) ein Chondritenregen nieder. Es wurden 16 Meteorite aufgesammelt, deren Gesamtgewicht in der Literatur nicht angegeben ist^{5–7}.

¹ E. K. GERLING u. L. K. LEVSKIJ, Dokl. Akad. Nauk, SSSR **110**, 750 [1956].

² J. H. REYNOLDS, Phys. Rev. Letters **4**, 351 [1960].

³ J. ZÄHRINGER u. W. GENTNER, Z. Naturforschg. **15 a**, 600 [1960].

⁴ H. STAUFFER, Geochim. Cosmochim. Acta **24**, 70 [1961].

⁵ H. J. DETRIE, Pop. Astron., Northfield, Min. **54**, 191 [1946].

⁶ H. H. NININGER, Pop. Astron., Northfield, Min. **46**, 578 [1938].

⁷ H. H. NININGER, Pop. Astron., Northfield, Min. **54**, 252 [1946].



Für die vorliegenden Untersuchungen stand ein vollständig von schwarzer Rinde umhülltes Exemplar mit einem ursprünglichen Gewicht von 1,033 kg zur Verfügung.

Es wurden zwei Dünnschliffe von 3,4 und 4,0 cm² und ein Großanschiff von 21 cm² Fläche angefertigt.

Mineralbestand:

Die Hauptmasse des Nickeleisens ist Kamazit, daneben tritt mit diesem verwachsen Tänit in kleinen Körnern auf.

Das zweithäufigste Erzmineral, der Troilit, ist meist lamellar verzwillingt.

Selten ist Ilmenit, der an seiner Zwillingsstreifung und dem Pleochroismus erkennbar ist.

Etwas gleich häufig wird Chromit beobachtet.

Der Hauptteil der Silikatmasse wird durch Olivin gebildet, der in Körnern und idiomorphen Kristallen im Bindemittel und in den Chondren auftritt.

Orthopyroxen ist häufiger Bestandteil der Chondren (vorwiegend der exzentrisch-strahligen) und des Bindemittels.

Selten findet man Klinopyroxen.

Wenig verbreitet ist röthlichbraunes Glas als Zwickelfüllung in manchen mikroporphyrischen Olivinchondren.

Sowohl in den Zwickeln der Olivinkristalle mancher Chondren als auch in kleinen Kristallchen in der Grundmasse wurde Plagioklas beobachtet.

Chondren sind sehr häufig und vielfältig zusammengesetzt. Es konnten mindestens neun im Mineralbestand und/oder Gefüge unterschiedliche Typen festgestellt werden (Abb. 1 * und 2).

Aderung

Der Chondrit von Pantar zeichnet sich durch eine bemerkenswert reiche Aderung aus **. Sowohl an Bruchflächen wie besonders schön an polierten Anschliffen (Abb. 3) kann beobachtet werden, daß der Meteorit von einem feinsten Netzwerk grauer Adern durchzogen ist, die an manchen Stellen gehäuft, an anderen nur vereinzelt auftreten. Manche Bezirke sind davon völlig frei. Diese nicht geaderten Partien besitzen eine helle Farbe, und es entsteht so der Eindruck, als lägen helle Bruchstücke in einer grauen Masse, mit anderen Worten, als handele es sich um ein echt breccioses Gestein, in dessen dunkler Hauptmasse helle Bruchstücke eines anderen Me-

teoritengesteins liegen. Tatsächlich wurden in der Vergangenheit manche Chondrite auf Grund ähnlicher Verhältnisse als echt breccios angesprochen. HENTSCHEL⁸ hat aber bei der Untersuchung des Chondriten von Breitscheid darauf hingewiesen, daß dieses „pseudobrecciose“ Gefüge nur durch die Verfärbung auf Grund der Aderung mancher Teile des Chondriten vorgetäuscht wird. Dieser Befund konnte bei Pantar wie auch bei anderen Chondriten bestätigt werden.

Die Aderung ist auf stoffliche Veränderungen nach der Bildung des Chondritengesteins zurückzuführen⁹. In letzter Zeit wiesen besonders ANDERS und GOLES¹⁰ darauf hin, daß diese Aderung nicht erst beim Durchgang der Meteoriten durch die Atmosphäre entstanden sein kann, sondern daß sie bereits auf dem Meteoritenmutterkörper bei kurzeitiger Durchgasung gebildet wurde.

Von einem von uns (K. K¹¹) wurden in den letzten Jahren rund 100 verschiedene Chondrite, darunter zahlreiche geaderte (einschließlich Pantar), erzmikroskopisch untersucht, um die Rolle und Bedeutung der Erzmineralien und ihrer Verwachsungen bei der Metamorphose der Chondrite zu verfolgen. Dabei konnten die Ergebnisse von ANDERS und GOLES¹⁰ bestätigt werden, obwohl diese Autoren von anderen Überlegungen ausgingen. Unsere erzmikroskopischen Untersuchungen zeigten, daß die Adern ihre Entstehung einer intensiven Metamorphose verdanken, die an den Meteoritenmutterkörper gebunden war. Diese unter Stoffzufuhr entstandenen Adern enthalten als charakteristischen Bestandteil neugebildeten Troilit. Die meist feinen, oft aber auch bis zu etwa 1 mm großen, schlanken und schnurförmigen Troilitkörner wurden dort abgeschieden, wo bei der Metamorphose diese Stoffmobilisate transportiert wurden. Das sind vorwiegend die Grenzen Chondren Bindemittel, die Intergranulare sowie manchmal Klüfte und Risse. Die festen Chondren bilden Hindernisse, die von dem neugebildeten Troilit nicht durchsetzt, sondern umhüllt werden. Diese Mineralneubildungen bringen darüber hinaus charakteristische Mineralverdrängungen, Umhüllungen und Verwachsungen mit sich¹¹.

* Abb. 1 bis 4 auf Tafel S. 1126 a.

** Es sei ausdrücklich betont, daß die im folgenden kurz beschriebene Aderung zum sog. Typ 1 gehört. An dieser Stelle soll nicht näher auf die Unterschiede zwischen Aderung vom Typ 1 und Typ 2 eingegangen werden. Einzelheiten siehe KEIL¹¹.

⁸ H. HENTSCHEL, Geochim. Cosmochim. Acta 17, 323 [1959].

⁹ E. COHEN, Meteoritenkunde, Stuttgart 1903, H. 2, 119.

¹⁰ E. ANDERS u. G. G. GOLES, J. Chem. Education 38, 58 [1961].

¹¹ K. KEIL, Geochim. Cosmochim. Acta, im Druck.

Im Rahmen dieser Arbeit möge die Feststellung genügen, daß auch die Aderung dieses Chondriten auf Mineralneubildung während der Metamorphose unter Stoffzufuhr zurückzuführen ist. Die hellen, nicht geaderten Partien (Abb. 1 und 2) sind dabei die praktisch unveränderten, von Erzmineralneubildungen freien Anteile des ursprünglichen Chondritgesteins.

Nachdem in einer ersten Probe große Gasmengen nichtradiogenen und nichtkosmogenen Ursprungs gefunden wurden, schien es sinnvoll, die hellen und dunklen Anteile sowie eine magnetisch separierte Fraktion getrennt zu untersuchen, da ein Zusammenhang zwischen überschüssigem Edelgasgehalt und Neubildung von Troilit und der Aderung und Metamorphose vermutet wurde.

Eine ausführliche mineralogisch-petrographische Beschreibung des Mineralbestandes, des Gefüges, der Chondren und der Aderung (es wurde noch eine jüngere Generation von Adern vom sog. Typ 2 festgestellt) ist in Vorbereitung¹².

II. Probenahme

Vom Originalexemplar wurden zwei Stücke abgeschlagen, die dann getrennt grob gepulvert wurden. Die Probe von 103 g enthielt Teile der Schmelzrinde, während für die 80 g-Probe die Rinde sowie die 4 bis 5 mm unter der Rinde gelegenen Partien sorgfältig entfernt wurden. Diese „Durchschnitts“-Proben brauchen nicht dem Mittel der hellen und dunklen Anteile zu entsprechen. Die Beschaffenheit dieses stark geaderten Chondriten lässt wegen der ungleichen Verteilung der Adern in dieser Hinsicht auch bei noch größeren Gewichtsmengen keine absolut repräsentative Probenahme zu.

Die Proben der hellen, nicht geaderten und der grauen, stark geaderten Anteile wurden sorgfältig aus dem Originalexemplar herauspräpariert. Es war möglich, die hellen Anteile praktisch rein zu gewinnen, während die dunklen naturgemäß nicht nur aus den Adern, sondern auch aus dem zwischen den Adern liegenden helleren Material bestanden.

Die magnetisch abgetrennte Fraktion bestand aus vielen kleinen Körnern (1–2 mm Durchmesser), die einem Teil der 103 g-„Durchschnitts“-Probe entnommen wurden. Es handelt sich dabei nicht um

reines Nickeleisen; die Analyse zeigte vielmehr, daß diese Fraktion etwa 15% Silikatanteil enthielt.

III. Durchführung der Edelgasanalysen

Die zerkleinerten, aber nicht fein pulverisierten Meteoritproben wurden zunächst im Hochvakuum ca. 50 h bei Zimmertemperatur entgast, bevor sie in einen unter Hochvakuum ausgeheizten Molybdänriegel mit Degussit-Einsatz (Aluminumoxyd) eingegeben und aufgeschmolzen wurden. Dabei wurde das Vakuum nicht unterbrochen. Die Proben wurden mindestens eine Stunde lang induktiv auf etwa 1550 °C erhitzt und dabei Helium und Neon ausgetrieben. Nacherhitzungen ergaben stets Edelgasmengen, die kleiner als 1% der im Hauptversuch gefundenen Mengen waren. Um Gasentladungen und eventuell damit verbundene Verluste an Helium und Neon zu vermeiden, wurde in das Extraktionsgefäß sorgfältig gereinigter Wasserstoff von etwa 20 Torr gegeben. Der größte Teil dieses Wasserstoffs und der in Freiheit gesetzten Gase (außer den leichten Edelgasen) wurde anschließend an mit siedendem Stickstoff gekühlter Aktivkohle adsorbiert. Helium und Neon sowie die nicht adsorbierten Reste der anderen Gase wurden mit etwa 20 cm³ NTP reinstem, elektrolytisch im Vakuum hergestelltem Sauerstoff in eine Apparatur zur Mikroanalyse von Edelgasen übergeführt, wie sie von CHACKETT et al.¹³ beschrieben worden ist. Hier wurden an einem auf 400 °C erhitzten Palladiumkontakt die Reste des noch vorhandenen Wasserstoffs zu Wasser verbrannt; darauf wurden in einer 15-stufigen Trennkolonne Helium und Neon durch fraktionierte Adsorption und Desorption an Aktivkohle bei der Temperatur des siedenden Stickstoffs von allen anderen Gasen und voneinander getrennt. Die Edelgasmengen wurden mit Hilfe eines Wärmeleitfähigkeitsmanometers nach Pirani gemessen und dann zur weiteren massenspektrometrischen Analyse abgefüllt.

In regelmäßiger zwischen den Analysen durchgeführten Testversuchen ohne Meteorite wurde der Blindwert des Analysenverfahrens bestimmt; dieser Blindwert schließt eventuelle Verunreinigungen der zugesetzten Wasserstoff- und Sauerstoffmengen an Helium und Neon ein. Selbst für die geringsten gefundenen Heliummengen betrug diese Blindwert-Korrektur weniger als 1%. Im Falle der geringen Neonmenge des hellen Anteils (Tab. 1) machte wegen der kleinen Einwaage die Korrektur etwa 60%, bei den wesentlich größeren Mengen der anderen Proben etwa 5% aus. Weitere experimentelle Einzelheiten werden an anderer Stelle ausführlich beschrieben werden.

Die Isotopenhäufigkeiten wurden in einem 60°-Ganzmetall-Massenspektrometer in statischem Betrieb ohne Ionenquellenmagnet mit einem Auffänger und Schwingkondensatorelektrometer gemessen.

Die gefundenen Edelgasmengen und deren Isotopenverhältnisse zeigt Tab. 1.

¹² K. KEIL, in Vorbereitung.

¹³ K. F. CHACKETT, P. REASBECK u. J. E. WILSON, Geochim. Cosmochim. Acta 3, 261 [1953].

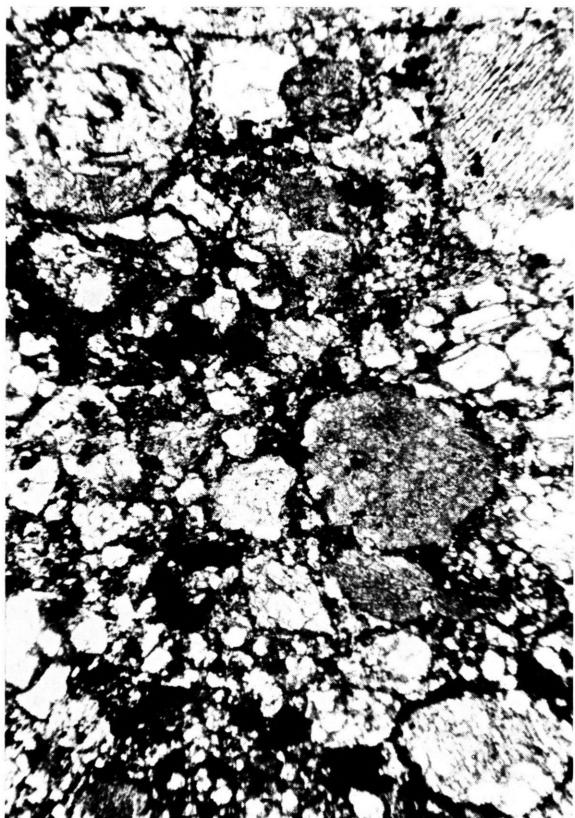


Abb. 1. Übersichtsaufnahme. $M = 30 : 1$. Chondren verschiedener Typen, Kristalle des Bindemittels sind überwiegend Olivin. Schwarz = Erz. Die Chondren werden von nachträglich abgeschiedenem, bei der Durchaderung entstandenen Troilit (schwarz) umhüllt.

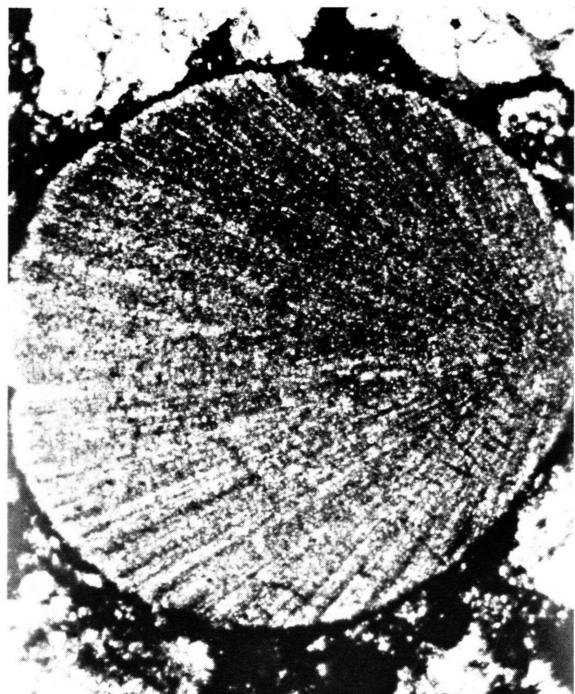


Abb. 2. Exzentrisch-strahlige Orthopyroxen-Chondre, die von neugebildetem Troilit (schwarz) umhüllt wird. $M = 120 : 1$.

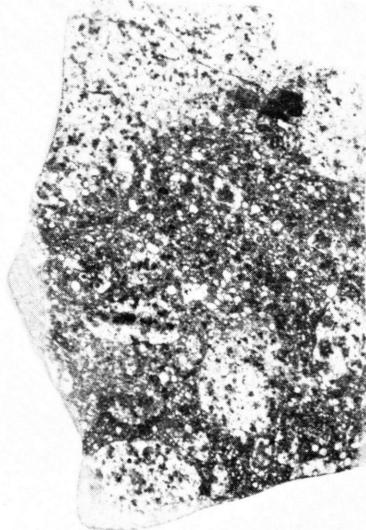


Abb. 3.

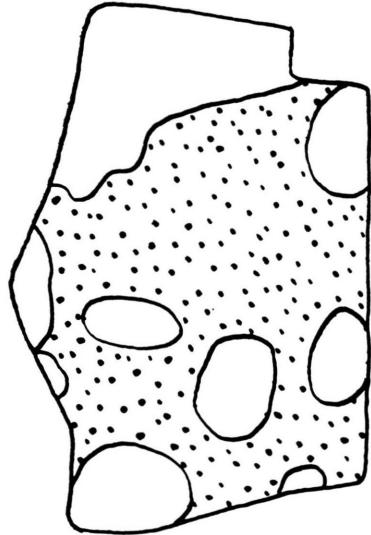


Abb. 4.

Abb. 3. Polierter Anschliff. Von Adern freie Anteile sind hell, geäderte Anteile dunkel, Adierung von Typ 1, siehe Fußnote. $M = 1 : 1$.

Abb. 4. Skizze des Anschliffs von Abb. 1, punktiert = dunkle, geäderte Anteile, unpunktiert = helle Anteile.

Probe		Einwaage (g)	He (10^{-6} cm 3 /g)	$^{4}\text{He}/^{3}\text{He}$	^{3}He (10^{-8} cm 3 /g)	Ne (10^{-8} cm 3 /g)	$^{20}\text{Ne}/^{21}\text{Ne}$	$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	He/Ne
Nr.	Beschreibung								
1	1 Stück, ohne Rinde, willkürlich entnommen	11,351	≥ 350	2070	≥ 17	96	74	10,5	≥ 365
2	Durchschnitt von 103 g Pulver (mit Rinde)	0,872	530	2300	23	—	—	—	—
3	Durchschnitt von 80 g Pulver (ohne Rinde)	1,022	740	2500	30	205	127	11,2	360
4	Heller Anteil (1 Stück)	0,912	14,5	360	4,0	8,4	3,7	2,5	170
5	Dunkler Anteil (1 Stück)	0,646	1100	2600	42	430	155	12,1	260
6	Magnetischer abgetrennter Teil	2,059	~ 300	1700	~ 18	—	—	—	—
	Luft	—	—	770000	—	—	355	10,3	0,3

Tab. 1. Die angegebenen Helium- und Neonmengen sowie deren Isotopenverhältnisse sind für Luftbeimischungen korrigiert.

IV. Ammonium-Gehalt

Nach den Vorstellungen von UREY¹⁴ spielte bei der Bildung von Protoplaneten kondensierendes Ammoniak neben Wasser eine besondere Rolle, indem es die Agglomeration von Staubpartikeln ermöglichte. Auch in der Uratmosphäre soll Stickstoff vorwiegend in der Form von Ammoniak vorhanden gewesen sein, das erst später zu Stickstoff reduziert wurde. Für eine Deutung der Prozesse, die zu dem Vorhandensein von „Urgasen“ in Pantar geführt haben, erschien es interessant, diesen Meteoriten auch auf Ammonium zu untersuchen.

Die Bestimmung des Ammoniums wurde nach dem von WLOTZKA¹⁵ angegebenen Verfahren durchgeführt, das für die Bestimmung in Meteoriten etwas abgeändert wurde. Bei diesem Verfahren wird auch etwa vorhandener Nitrid-Stickstoff mit als Ammonium bestimmt. Eine Beschreibung der Methode soll später zusammen mit weiteren Stickstoffbestimmungen an Meteoriten veröffentlicht werden. Neben dem Gesamt-Ammonium wurde derjenige Anteil bestimmt, der aus dem feingemahlenen Meteoritenpulver mit Wasser auswaschbar war. Ebenso wurde auch der wasserlösliche Nitrat-Stickstoff bestimmt. Die Nachweisbarkeitsgrenze lag für Ammonium bei 1 ppm, für Nitrat bei 0,1 ppm, der maximale Fehler beträgt 30%. Zum Vergleich mit Pantar wurden noch einige andere Chondrite untersucht.

Meteorit	Gesamt-Ammonium-Stickstoff ppm	wasserlös. Ammonium-Stickstoff ppm	wasserlös. Nitrat-Stickstoff ppm
Pantar, gederter Chondrit Fall 1938			
Durchschnittsprobe	11	~ 1	$\sim 0,1$
heller Anteil	8	~ 1	$\sim 0,1$
dunkler Anteil	14	~ 1	$\sim 0,1$
magnetischer Anteil	~ 1	n. b.	n. b.
L'Aigle, gederter Chondrit Fall 1803	10	~ 1	$\sim 0,1$
New Concord, gederter Chondrit, Fall 1860	10	~ 1	$\sim 0,1$
Akaba, Chondrit, Fall 1949	9	~ 1	$\sim 0,1$
Alfianello, Hypersthen-Chondrit, Fall 1883	4	~ 1	$\sim 0,1$
Mocs, gederter Hypersthen-Chondrit, Fall 1882	3	~ 1	n. b.

Tab. 2. Ammonium- und Nitrat-Gehalt einiger Chondrite. Spalte 2 gibt den Gesamtgehalt an gebundenem Stickstoff an, der analytisch als Ammonium bestimmt wurde, aber in den Meteoriten sowohl als Ammonium als auch als Nitrid vorliegen kann.

Die Ergebnisse (Tab. 2) zeigen, daß sich die Ammonium-Gehalte der untersuchten Chondrite nur wenig unterscheiden. Sie liegen etwas unter dem Gehalt irdischer magmatischer Gesteine, die im Mittel 20 ppm Ammonium-Stickstoff enthalten (WLOTZKA¹⁵). Offenbar enthält Pantar kein oder nur geringe Reste von „Urammonium“.

¹⁴ H. C. UREY, The Planets, Yale University Press, 1952.

¹⁵ F. WLOTZKA, Geochim. Cosmochim. Acta **24**, 106 [1961].

V. Ergebnisse

Schon die in den drei ersten Proben – die nicht repräsentativ für den ganzen Meteoriten waren – gefundenen großen Mengen Helium und Neon sowie deren Isotopenverhältnisse beweisen eindeutig, daß dieser Meteorit große Edelgasmengen nichtradiogenen und nichtkosmogenen Ursprungs enthält. Die Ergebnisse der Messungen an den separierten hellen und dunklen Anteilen zeigen ferner:

1. Der Gesamtheliumgehalt des hellen Anteils von $14,5 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ NTP/g}$ ist etwa normal für Chondrite, bei denen bisher Heliummengen von $(1,6 \text{ bis } 18,5) \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ NTP/g}$ gefunden wurden^{1, 3, 16–21}. Das ${}^4\text{He}/{}^3\text{He}$ -Verhältnis von 360 ist zwar höher als es normalerweise in Chondriten gefunden wird, doch ist zu bedenken, daß kleine Beimischungen des dunklen Anteils eine Erhöhung des ${}^4\text{He}/{}^3\text{He}$ -Verhältnisses verursachen werden. Man kann daher annehmen, daß der helle Anteil des untersuchten Chondriten sich sowohl der Menge als auch der Isotopenhäufigkeit nach wie ein normaler Chondrit verhält.

Aus dem an Probe 4 gemessenen Häufigkeitsverhältnis der Heliumisotope sowie der absoluten Heliummenge ergeben sich für die im hellen Anteil vorhandene ${}^3\text{He}$ -Menge $4 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ NTP/g}$. Diesen Wert wird man trotz der Möglichkeit, daß diese Probe geringe Mengen des dunklen Anteils enthielt, als im wesentlichen kosmogen ansehen können.

Die beobachteten Isotopenhäufigkeiten des Neons zeigen zwar einen beträchtlichen Anteil an kosmogenem Neon im hellen Anteil an, doch scheint auch hier eine Beimischung von Neon aus geringen Spuren des dunklen Anteils gegeben zu sein. Gerade hier – bei einer Blindwertkorrektur von etwa 60% – macht sich aber die prinzipielle Unsicherheit stark bemerkbar, die darin liegt, daß für diese Blindwertkorrektur der Neonwert des Nacherhitzungsversuches benutzt wurde. Versuchsserien haben zwar gezeigt, daß die gefundenen Neonmengen bei wiederholten Nacherhitzungen nicht mehr kleiner werden, d. h. daß die Gasextraktion im Hauptversuch quantitativ ist, andererseits zeigte sich aber auch, daß die Blindwerte um etwa einen Faktor 2 schwanken. Die in diesem Falle recht große Korrektur läßt sich daher nicht mit der gewünschten

¹⁶ P. REASBECK u. K. F. MAYNE, Nature, Lond. **176**, 186 [1955].

¹⁷ W. GENTNER u. J. ZÄHRINGER, Geochim. Cosmochim. Acta **11**, 60 [1957].

¹⁸ K. GOEBEL u. P. SCHMIDLIN, Z. Naturforschg. **14a**, 996 [1959].

Genaugkeit anbringen. Aus diesem Grunde läßt sich für die Menge des kosmogenen erzeugten ${}^{21}\text{Ne}$ im hellen Anteil (Probe 4), nur ein oberer Grenzwert von ${}^{21}\text{Ne} < 1,4 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ NTP/g}$ angeben.

Für das Verhältnis der Produktionsraten für ${}^3\text{He}$ und ${}^{21}\text{Ne}$ ergibt sich daher $P_3/P_{21} \geq 4/1,4 = 2,8$, während an den bisher untersuchten Chondriten Werte zwischen 2,9 und 4,1 gefunden wurden²².

2. Der dunkle Anteil enthält $1100 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ NTP/g}$ Helium und $430 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ NTP/g}$ Neon, d. h. etwa hundertmal mehr Helium und fünfzigmal mehr Neon pro Gramm als der helle Anteil. Nimmt man für den dunklen Anteil die gleichen Mengen radiogenen und kosmogenen Heliums an wie im hellen Anteil, so sind mehr als 98% des im dunklen Anteil gefundenen Heliums überschüssig, und das Isotopenverhältnis in diesem überschüssigen Helium ist ${}^4\text{He}/{}^3\text{He} = 2900$. In gleicher Weise ergibt sich für die Isotopenverhältnisse des überschüssigen Neons

$155 < {}^{20}\text{Ne}/{}^{21}\text{Ne} < 350$ und $12,1 < {}^{20}\text{Ne}/{}^{22}\text{Ne} < 12,7$. (Für die Produktionsverhältnisse des kosmogenen Neons wird dabei angenommen: ${}^{20}\text{Ne} : {}^{21}\text{Ne} : {}^{22}\text{Ne} = 0,92 : 0,95 : 1,00$ ²².)

Die Isotopenzusammensetzung des überschüssigen Neons ist der des Luftneons sehr ähnlich. Auf diese Frage und auf das Strahlungsalter soll jedoch erst nach Abschluß genauerer Messungen an den Edelgasen, besonders auch der schweren Edelgase und nach Durchführung der Tritium-Bestimmungen näher eingegangen werden.

3. Die in den Proben 1 und 3 gefundenen Neonmengen lassen sich erklären, wenn man annimmt, daß die Probe 1 etwa 20% und die Probe 3 etwa 50% des dunklen Anteils enthielt. Dasselbe gilt für die Heliummengen nur dann, wenn der Heliumgehalt des dunklen Anteils nicht 1100, sondern $1600 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ NTP/g}$ wäre. In diesem Fall stimmten gleichzeitig die gemessenen Helium-Isotopenverhältnisse genau mit den zu erwartenden überein. Ein weiterer Hinweis für einen Verlust von etwa 30% der Heliummenge in Probe 5 ist das He/Ne-Verhältnis von 260, verglichen mit 360 und ≥ 365 bei Proben 3 und 1. Verglichen mit dem dunklen Anteil (Probe 5) enthalten die Proben 3 und 1 zwar relativ größere Mengen radiogenen Heliums, die

¹⁹ P. EBERHARDT u. D. C. HESS, Astrophys. J. **131**, 38 [1960].

²⁰ J. GEISS, B. HIRT u. H. OESCHGER, Helv. Phys. Acta **33**, 590 [1960].

²¹ J. GEISS u. H. OESCHGER, Z. Naturforschg. **15a**, 1016 [1960].

²² P. u. A. EBERHARDT, Z. Naturforschg. **16a**, 236 [1961].

aber, absolut gesehen, doch so gering sind, daß sie eine starke Veränderung des He/Ne-Verhältnisses nicht bewirken können (s. Probe 4). Es ist jedoch bisher nicht klar, ob und wie bei dieser Probe Helium verloren gegangen sein kann.

In ähnlicher Weise lassen sich auch bei den Proben 2 und 6 die Heliummengen und ihre Isotopenverhältnisse dadurch erklären, daß diese Proben gewisse Zusätze von dunklem Anteil enthielten.

Zur vergleichenden Übersicht sind in Tab. 3 die im dunklen Anteil von Pantar gefundenen Edelgase mit denen der beiden Meteorite mit ähnlichen Edelgasverhältnissen zusammengestellt, die bisher in der Literatur beschrieben worden sind.

VI. Diskussion

Obwohl die Analysen der schweren Edelgase noch nicht abgeschlossen sind, soll doch bereits an Hand des vorliegenden Materials eine vorläufige Deutung der Ergebnisse versucht werden.

Das wichtigste Ergebnis scheint uns zu sein, daß die überschüssigen Helium- und Neon-Mengen nicht in dem hellen Anteil, sondern in dem metamorph stark veränderten, dunklen Anteil des Meteoriten zu finden sind. Wie schon oben erwähnt, wird die dunkle Färbung durch feinste Adern hervorgerufen, die durch Thermo-Metamorphose unter Materialzufuhr entstanden sind. Ein Gasstrom von Schwefel oder Schwefelverbindungen gemeinsam mit den Edelgasen könnte den Meteoriten teilweise durch-

setzt haben, und bei der Kristallisation des Troilit könnten die Edelgase eingeschlossen worden sein*. Daß diese Durchgasung offenbar zu einem relativ späten Zeitpunkt in der Geschichte des Meteoritengesteins erfolgte, zeigt die Tatsache, daß die Chondren zwar oft von dem neugebildeten Troilit umhüllt sind, selbst aber kaum verändert erscheinen (Abb. 2). Sie waren also offenbar bereits so weit verfestigt, daß sie ein wesentliches Hindernis für die Durchgasung darstellten.

Damit aber ist es sehr zweifelhaft, ob es sich bei den gefundenen Edelgasen um eigentliche Urgase handelt. Bisher wurde allgemein angenommen, daß sowohl die Isotopenhäufigkeiten der in Meteoriten gefundenen überschüssigen Edelgase als auch deren Häufigkeiten relativ zueinander die Verhältnisse am Ende der Nukleosynthese wiedergeben. Liegt aber ein beträchtlicher Zeitraum zwischen dem Ende der Nukleosynthese und der teilweisen Durchgasung der Meteoritenmaterie, so erscheint es denkbar, daß bereits zu diesem Zeitpunkt eine merkliche Fraktionierung der Edelgase stattgefunden hat oder auch radiogenes Helium und Argon hinzugekommen sind.

Falls man voraussetzen darf, daß der Xenon-Gehalt – und besonders der an eventuell vorhandenem überschüssigen ^{129}Xe – dem Gehalt an leichten Edelgasen parallel verläuft, so würden die aus dem Überschuß an ^{129}Xe ^{2, 3, 25, 26} berechneten Zeiträume zwischen Ende der Nukleosynthese und der Verfestigung der Meteoritenmaterie^{2, 25, 27, 28}

Meteorit	He ($10^{-6} \text{ cm}^3/\text{g}$)	$^{4}\text{He}/^{3}\text{He}$	^{3}He ($10^{-8} \text{ cm}^3/\text{g}$)	Ne ($10^{-8} \text{ cm}^3/\text{g}$)	$^{20}\text{Ne}/^{21}\text{Ne}$	$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$	He/Ne	Literatur
Pantar (dunkler Anteil)	1100	2600	42	430	155	12,1	260	
(dunkler Anteil, korr. f. Spall. Anteil*)	1100	2900	38	425	155–350	12,1–12,7	260	
Staroye Pesyanoe	6500	> 3000	< 220	2420	110	11	270	¹
Kapoeta	1370	3200	43	2580	350	13,9	53	³
Norm. Chondrit (Holbrook)	18,6	65	28	20,1	0,965	0,92	92,5	^{19, 20, 23}

* Die bei der Korrektur für Spallationsprodukte benutzten Werte sind:

$^{3}\text{He} = 4 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ NTP/g}$; $^{21}\text{Ne} \leq 1,4 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ NTP/g}$; $^{20}\text{Ne} : ^{21}\text{Ne} : ^{22}\text{Ne} = 0,92 : 0,95 : 1,00$.

Tab. 3.

* DUFRESNE und ANDERS²⁴ wiesen auf Grund ihrer Untersuchungen am Staroye Pesyanoe bereits auf diesen Prozeß als eine der Möglichkeiten hin, das Vorhandensein von Urgasen in Meteoriten zu erklären.

²³ J. GEISS u. D. C. HESS, Astrophys. J. **127**, 224 [1958].

²⁴ E. R. DUFRESNE u. E. ANDERS, Geochim. Cosmochim. Acta, im Druck.

²⁵ J. H. REYNOLDS, Phys. Rev. Letters **4**, 8 [1960].

²⁶ P. SIGNER, Z. Naturforsch. **15a**, 748 [1960].

²⁷ G. J. WASSERBURG, W. A. FOWLER u. F. HOYLE, Phys. Rev. Letters **4**, 112 [1960].

²⁸ G. G. GOLES u. E. ANDERS, J. Geophys. Res. **65**, 418 [1960].

keine direkte Bedeutung mehr haben. Die Erklärung von EBERHARDT und GEISS²⁹ erschien dann einleuchtend, daß nämlich das ¹²⁹Xe nicht in situ aus dem ¹²⁹I entstanden ist, sondern daß es sich dabei um Reste einer Uratmosphäre handelt, wobei es – wie gesagt – sogar zweifelhaft erscheint, daß diese eingeschlossenen Gase die Verhältnisse in der wahren Uratmosphäre richtig wiedergeben.

Wir hoffen, daß die noch nicht abgeschlossenen Versuche an abgetrennten einzelnen Mineralen weitere Aufschlüsse zu diesen Fragen geben werden.

Herrn Professor Dr. E. BAIER danken wir für den im Mineralogischen Institut der Universität Mainz zur

²⁹ P. EBERHARDT u. J. GEISS, Z. Naturforschg. 15 a, 547 [1960].

Verfügung gestellten Arbeitsplatz, den Herren Dr. A. HELKE und Dr. J. PENSE für Hilfe bei der Beschaffung des für die mineralogischen Untersuchungen notwendigen Instrumentariums und besonders Herrn Präparator HOWE für die Herstellung der Schlitte.

Für Mithilfe bei der Ausführung der experimentellen Arbeiten danken wir herzlich Fräulein U. HOFFMANN, H. LÜCKERT und M. GÖRRES sowie den Herren B. SPETTEL und B. WELLNER.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft haben wir für die leihweise Überlassung eines HF-Generators zu danken, für weitere Sachbeihilfen dem Bundesministerium für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft.

The research reported in this paper has been sponsored in part by the Office of Aerospace Research, Air Force Cambridge Research Laboratories, U.S. Air Force, through its European Office under Contract No. AF 61 (052)-465.

Zur Berechnung der Diffusion von radioaktiven Gasen I

(Edelgasdiffusion in Festkörpern 6)*

Von H. GAUS

Aus dem HAHN-MEITNER-Institut für Kernforschung, Sektor Kernchemie, Berlin
(Z. Naturforschg. 16 a, 1130–1135 [1961]; eingegangen am 11. Juli 1961)

Die Diffusion radioaktiver Gase aus Probekörpern wird mit der elementaren Diffusionsgleichung berechnet. In diesem Teil I wird das Zeitverhalten der resultierenden Aktivität in Fortsetzung einer Arbeit von INTHOFF und ZIMEN für Kugel, Zylinder und Quader berechnet, wenn keine Neuproduktion stattfindet. Etwaige Diffusion vor Meßbeginn wird streng berücksichtigt. Es wird mit zeitabhängiger Diffusionskonstanten gerechnet und das Verhalten des resultierenden Gasstromes diskutiert. In einem folgenden Teil II wird die Diffusion bei Neuproduktion in entsprechender Weise betrachtet.

Die Diffusion eines radioaktiven Gases aus einem Probekörper kann untersucht werden, indem das Gas durch Bestrahlung mittels Kernreaktion in dem Körper hergestellt wird¹. Häufig ist die Diffusion bei Zimmertemperatur zu vernachlässigen, so daß, wenn die Probe bei dieser Temperatur mit vernachlässigbarer Absorption bestrahlt und erst während der Messung erhitzt wird, mit einer gleichmäßigen Verteilung des Gases über den Körper als Anfangsbedingung gerechnet werden kann. Für diesen Fall ist in einer Arbeit von INTHOFF und ZIMEN² der Gasinhalt des Körpers bzw. die entsprechende Aktivität (damit auch die Aktivität des herausdiffundierten Gases sowie der austretende Gasstrom) als Funktion der Zeit berechnet worden. Das zeitliche Verhalten ist dabei erstens durch die Zerfallskonstante der radioaktiven Atome und zweitens durch

eine Abklingkonstante der Diffusion, bei der Kugel etwa $\pi^2 D/R$ (D = Diffusionskonstante, R = Kugelradius) bestimmt. Die strenge Lösung läßt sich für einfache Körper aus der FOURIER-Zerlegung leicht als Reihe darstellen, wobei für große Zeiten (bezüglich der Diffusion) nur der erste Summand eine Rolle spielt³. Für sehr kleine Zeiten (wieder bezüglich der Diffusion) haben INTHOFF und ZIMEN eine einfache Näherungsformel erhalten, die in vielen Fällen die Bestimmung der Diffusionskonstante durch Messung ermöglicht.

In Teil I der vorliegenden Untersuchung werden diese Rechnungen, die die sogenannte Post-Aktivierungs-Diffusion⁵ betreffen, verallgemeinert. Auch der mittlere Zeitbereich wird für Kugel, Zylinder und Quader durch Approximationen überdeckt, die für alle Zeiten gültig sind. Die Randverarmung durch

* Vorausgehende Publikationen siehe Anm. 1–5.

¹ K. E. ZIMEN, Trans. Chalmers Univ. Techn., Gothenburg, No. 175 [1956].

² W. INTHOFF u. K. E. ZIMEN, Trans. Chalmers Univ. Techn., Gothenburg, No. 176 [1956].

³ K. E. ZIMEN u. L. DAHL, Z. Naturforschg. 12 a, 167 [1957].

⁴ F. FELIX, Nukleonik 1, 66 [1958].

⁵ K. E. ZIMEN, HMI-B 16, Mai 1961.