

wenn die Wechselwirkungsglieder durch den Grenzübergang $G_3 \rightarrow \infty$ wieder eliminiert werden.

$$\frac{\Delta r}{3} G_3 = \arccos \left[A \cos \left(\alpha + \frac{\pi n}{3} + \frac{r_0'}{6} G_3 \right) \right] - \beta - \frac{\pi n}{3} - \frac{r_0'}{6} G_3. \quad (\text{A.6})$$

Das nullte Glied der FOURIER-Entwicklung von $(\Delta r/3) G_3$ ergibt sich zu

$$F_0 = -\alpha - \beta - (2\pi n/3). \quad (\text{A.7})$$

$(\Delta r/3) G_3$, das dem früheren $\Delta r G_3$ für einen Stapelfehler entspricht, führt also zum gleichen F_0 wie früher, nur daß bei einem Zweigwechsel $2\pi n/3$ an die Stelle von $2\pi n$ tritt.

Herrn Prof. Dr. A. SEEGER danke ich sehr für die Anregung dieser Arbeit und für viele wertvolle Ratschläge bei der Durchführung der Arbeit. Herrn Prof. Dr. U. DEHLINGER danke ich für sein stets förderndes Interesse an der vorliegenden Arbeit. Ferner sei den Herren Dr. SCHOTTKY und Dr. BROSS für zahlreiche Diskussionen und Ratschläge gedankt. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft hat in dankenswerter Weise die elektronischen Rechenmaschinen Zuse Z 22 und Standard ER 56 zur Durchführung der numerischen Rechnungen zur Verfügung gestellt. Im Zusammenhang damit danke ich auch Herrn Dipl.-Math. Roos für seine Beratung bei der Anwendung der Monte-Carlo-Methode.

γ -spektroskopische Untersuchungen an Steinmeteoriten

Von C. MAYER-BÖRICKE, M. M. BISWAS und W. GENTNER

Aus dem Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg

(Z. Naturforschg. 17 a, 921–924 [1962]; eingegangen am 7. August 1962)

Cosmic ray produced Al^{26} and Na^{22} activities in chondrites have been studied by nondestructive γ (511 keV)– γ coincidence spectroscopy. The values of the Al^{26} specific activities of the four measured hypersthene chondrite samples are nearly equal, and have a mean value of 0.061 Al^{26} e^+ -decays/min. g.

The Na^{22} specific activity of the Bruderheim chondrite was found to be 0.094 Na^{22} disint./min. g in agreement with the results obtained by other authors using different methods. From the Na^{22} activity and the Ne^{22} content of our sample we have calculated a cosmic ray exposure age of 26×10^6 y for Bruderheim. Exposure ages of other chondrites are discussed.

Single crystal γ -spectroscopy of Bruderheim shows in addition to Al^{26} and Na^{22} the presence of Mn^{54} and K^{40} .

I. Einleitung

Meteoriten sind auf ihrer Bahn im Weltraum der primären kosmischen Strahlung ausgesetzt, die dauernd Kernreaktionen in dem Meteoritenmaterial auslöst. Einige der Reaktionsprodukte sind radioaktive Kerne, die durch Positronenemission und anschließenden γ -Übergang zerfallen. So entstehen die Positronenstrahler Al^{26} ($t_{1/2} = 7,4 \cdot 10^5$ a) und Na^{22} ($t_{1/2} = 2,6$ a) in Steinmeteoriten hauptsächlich durch Spallationsreaktionen aus Si, Mg und Al.

EHMANN und KOHMAN¹ konnten 1958 erstmalig Al^{26} in Steinmeteoriten nachweisen. Dabei haben sie die Meteoriten chemisch aufgearbeitet und die gewonnene Substanz dann in einer low-level Anlage mit GEIGER-Zählern untersucht. 1960 führte ANDERS² die Methode der $\gamma\gamma$ -Koinzidenzspektrometrie zur (zer-

störungsfreien) Bestimmung von e^+ -Aktivitäten in Meteoriten ein und fand eine spezifische Al^{26} -Aktivität von $(0,058 \pm 0,005)$ Positronen/min g im Plainview Chondriten, die gut mit den entsprechenden Werten von EHMANN und KOHMAN übereinstimmte [$(0,054 \pm 0,005)$ Positronen/min g für Plainview; $(0,063 \pm 0,004)$ Zerfälle/min g für Richardton]. Ähnliche Resultate erhielten VAN DILLA et al.³ aus den γ -Spektren der Chondriten Cavour ($\cong 0,065$ Zerfälle/min g) und Pinto Mountain [$(0,05 \pm 0,01)$ Zerfälle/min g].

Na^{22} wurde zuerst von VILCSEK und WÄNKE⁴ 1960 nachgewiesen (Breitscheid: 0,089 Na^{22} -Zerfälle/min g am Falldatum). Ähnliche vorläufige Resultate erhielten GFELLER et al.⁵ für den Meteoriten Kandahar und BISWAS und MAYER-BÖRICKE⁶ für den Bruderheim-Chondriten.

¹ W. D. EHMANN u. T. P. KOHMAN, Geochim. Cosmochim. Acta **14**, 340, 364 [1958].

² E. ANDERS, Geochim. Cosmochim. Acta **19**, 53 [1960].

³ M. A. VAN DILLA, J. R. ARNOLD u. E. C. ANDERSON, Geochim. Cosmochim. Acta **20**, 115 [1960].

⁴ E. VILCSEK u. H. WÄNKE, Z. Naturforschg. **15 a**, 1007 [1960].

⁵ CHR. GFELLER, F. G. HOUTERMANS, H. OESCHGER u. U. SCHWARZ, Helv. Phys. Acta **34**, 466 [1961].

⁶ M. M. BISWAS u. C. MAYER-BÖRICKE, Conf. on Fission and Spallation Phenomena, CERN 1961.



Bei unseren Untersuchungen haben wir die Methode der $\gamma\gamma$ -Koinzidenzspektroskopie an Chondriten benutzt, um weitere Daten über Art und Intensität der Positronenstrahler zu erhalten.

II. Experimentelles

Die beiden beim Positronenzerfall auftretenden Vernichtungsquanten laufen im Meteoriten in entgegengesetzter Richtung auseinander und werden in zwei in Koinzidenz geschalteten Szintillationszählern nachgewiesen (der Meteorit ist zwischen den beiden Kristallen aufgestellt). Zusammen mit dem Kern γ -Quant entstehen so bei jedem Zerfall von Al^{26} oder Na^{22} drei koinzidente γ -Strahlen. Im einen Zweig der Apparatur werden die Impulse in einem Einkanaldiskriminator verarbeitet, dessen Kanal auf die Photolinie der 511 keV-Vernichtungsstrahlung eingestellt ist $[(511 \pm 30) \text{ keV}]$. Im anderen Zweig mißt man mit einem Vielkanaldiskriminator das γ -Spektrum, das mit der Vernichtungsstrahlung aus dem ersten Zweig koinziiert. Im $\gamma(511) - \gamma$ -Koinzidenzspektrum findet man hauptsächlich die Photolinie des zweiten 511 keV-Vernichtungsquants und außerdem, mit kleinerer Intensität, die Photospitzen des Kern- γ -Quants und der Summationslinie dieser beiden Strahlungen.

Die beiden NaJ(Tl)-Szintillationskristalle hatten Abmessungen von $7,6 \text{ cm } \Phi \times 3,8 \text{ cm}$. Die Zähler waren in eine kombinierte Fe-Pb-Abschirmung von 1,5 t Gewicht eingebaut. Es wurde ein volltransistorisierter TMC-Vielkanalanalysator benutzt. Die Apparatur befand sich in einem Raum konstanter Temperatur. Die untersuchten Meteoritenstücke hatten ein Gewicht zwischen 40 und 80 g.

Die im $\gamma\gamma$ -Spektrum stark ausgeprägte 511 keV-Photolinie wurde zur Bestimmung der totalen spezifischen Positronenaktivität der Meteoriten benutzt. Zur Ermittlung der Koinzidenznachweiswahrscheinlichkeit D_c^{511} dieser Linie bei Positronenzerfall wurde eine dünnwandige Hohlform aus Araldit hergestellt, welche die Gestalt des Meteoriten genau wiedergab. Die Form wurde dann mit feinkörnigem Eisenpulver gefüllt, das genau dieselbe Dichte wie das Meteoritenmaterial hatte. Das Eisenpulver war vor dem Einfüllen mit einer kalibrierten Na^{22} -Aktivität gleichmäßig vermischt worden. Dieses „Meteoritenmodell“ hatte wegen der Gleichheit der in Frage kommenden Massenabsorptionskoeffizienten dieselben γ -Absorptionseigenschaften wie der Originalmeteorit. D_c^{511} konnte daher ohne weiteres aus Messungen mit diesem Modell ermittelt werden. Die (Einzel-Kristall) γ -Nachweiswahrscheinlichkeit D_e^{511} für die 511 keV-Linie kann ebenfalls mit dem Meteoritenmodell bestimmt werden.

Meteorit und Untergrund wurden abwechselnd je 2000 min gemessen. Im Falle der Messungen am Bruderheim-Chondriten betrug die Gesamtmeßzeit je 12 000 min. Die Konstanz von D_c^{511} und die Einstellung des $(511 \pm 30) \text{ keV}$ -Kanals wurden alle 2000 min überprüft. Die jeweiligen Daten lagen dabei stets in-

nerhalb der Meß- bzw. Einstellgenauigkeit. Zur Messung des Untergrundes benutzten wir ein mit Eisenpulver gefülltes Meteoritenmodell, das an Stelle des Meteoriten zwischen die beiden Szintillationskristalle gebracht wurde.

III. Resultate und Diskussion

Die $\gamma\gamma$ -Koinzidenzspektren des Bruderheim- und des Ramsdorf-Chondriten sind in Abb. 1 und 2 dargestellt. Der Untergrund ist jeweils subtrahiert. Die Photospitze der Vernichtungsstrahlung und diejenigen der Kern- γ -Strahlungen von Na^{22} und Al^{26} sind deutlich ausgeprägt. Die Spitze bei 1,82 MeV ent-

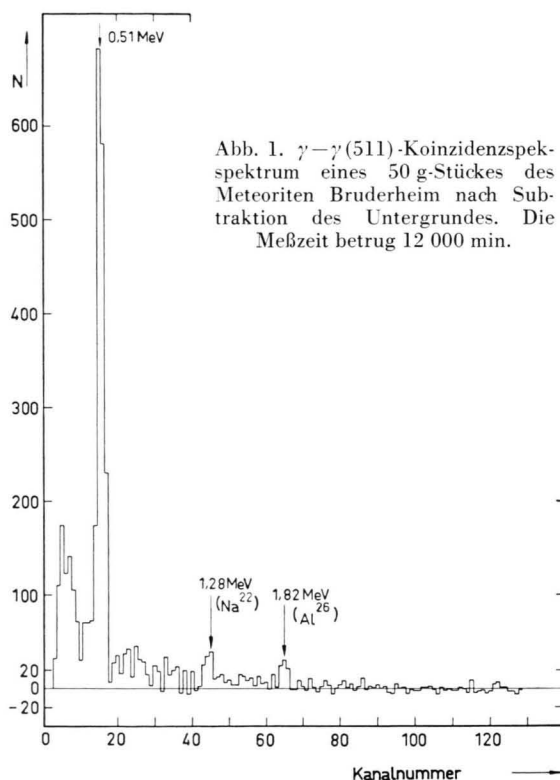


Abb. 1. $\gamma - \gamma(511)$ -Koinzidenzspektrum eines 50 g-Stückes des Meteoriten Bruderheim nach Subtraktion des Untergrundes. Die Meßzeit betrug 12 000 min.

hält einen Beitrag von der Summationslinie der Na^{22} -Strahlungen. Bei etwa 0,74 MeV tritt eine etwas erhöhte Zählrate auf, die auch im Spektrum des Na^{22} -dotierten Meteoritenmodells zu sehen ist. Der Effekt kann als Summationslinie von 511 keV-Quanten und rückgestreuten Kern- γ -Quanten verstanden werden. Unterhalb von 500 keV findet man noch einmal einen steilen Anstieg in der Zählrate, der vom COMPTON-Kontinuum der 511 keV-Linie herrührt.

Die starke Photolinie der Vernichtungsstrahlung in Abb. 1 setzt sich aus Beiträgen von Na^{22} und Al^{26}

zusammen. Sie wurde zur Bestimmung der totalen spezifischen Positronenstrahleraktivität im Meteoriten Bruderheim benutzt. Die zwei in der Tabelle angegebenen Werte wurden zu verschiedenen Zeiten und mit verschiedener Geometrie bestimmt (10. 8.

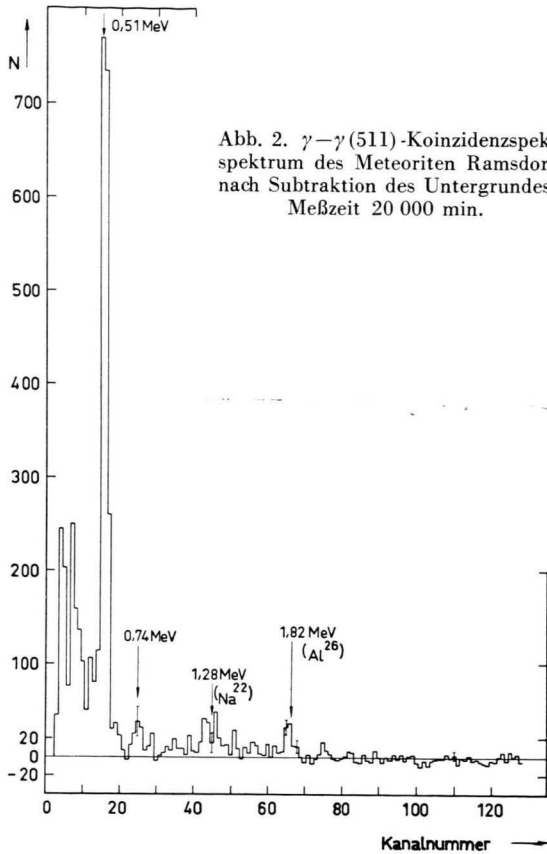


Abb. 2. γ - $\gamma(511)$ -Koinzidenzspektrum des Meteoriten Ramsdorf nach Subtraktion des Untergrundes. Meßzeit 20 000 min.

1961; 22. 6. 1962). Die in der Tabelle angegebenen Werte von D_c^{511} geben die Koinzidenznachweiswahrscheinlichkeiten für $\gamma(511 \pm 30) - \gamma(511 \pm 65)$ -Koinzidenzen. Aus technischen Gründen mußte auf die Bestimmung der absoluten spezifischen e^+ -Aktivität des Meteoriten Ramsdorf verzichtet werden. Die Tabelle enthält auch die Al^{26} -Meßergebnisse von vier anderen Meteoritenstücken, die, wie auch Bruderheim, alle zur Gruppe der Hypersthen-Chondrite gehören. Diese Stücke haben daher in engen Grenzen dieselbe chemische Zusammensetzung⁷. Sie sind schon vor so langer Zeit gefallen, daß die Na^{22} -Aktivität inzwischen verschwunden ist. Ihre spezifischen Al^{26} -Aktivitäten stimmen innerhalb der Fehlergrenzen gut überein. Dies deutet darauf hin, daß der (hochenergetische) Fluß der kosmischen Strahlung in den von den Meteoriten durchquerten Gebieten des Weltraums räumlich im wesentlichen konstant war. Das gewichtete Mittel aus den Einzelergebnissen ist $0,061 \text{ } Al^{26}\text{-}e^+\text{-Zerfälle/min g}$. Es stimmt gut überein mit den Al^{26} -Werten, die von anderen Autoren gemessen wurden (siehe Einleitung), und kann als Approximation für den allgemeinen Wert der spezifischen Al^{26} -Aktivität in Chondriten betrachtet werden. Somit kann die spezifische Na^{22} -Aktivität von Bruderheim aus der totalen spezifischen Positronenstrahleraktivität dieses Meteoriten erhalten werden (siehe Tabelle). Unser Resultat stimmt gut überein mit denjenigen von HONDA et al.⁸ und ROWE und VAN DILLA⁹, die mit anderen Methoden gewonnen worden waren. Die von VILČSEK und WÄNKE gemessene Na^{22} -Aktivität von $0,089 \text{ } Na^{22}\text{-Zerfällen/min g}$ für den Breitscheid-Chondriten (Fall 1956) stimmt in-

Nr	Name des Chondriten	Gewicht der Probe [g]	Fall-datum	Totale spez. e^+ -Aktivität [e^+ -Zerfälle/min.g]	$(511 \pm 30)(511 \pm 65)$ Koinzidenz-Zahlrate [min^{-1}]	Abstand zwischen den Kristallen [cm]	D_c^{511} [%]	Al^{26} spez. Aktivität [e^+ -Zerfälle/min.g]	Na^{22} spez. Aktivität zur Fallzeit [Zerfälle/min.g]	Bestrahlungsalter [10^6 a]	Mess-zeit [min]
1	Mezö-Madaras	44.22	4.9.1852	0.059 ± 0.011	0.043	3.5	1.66	0.059 ± 0.011	-	-	3000
2	Holbrook (I)	77.34	19.7.1912	0.058 ± 0.008	0.059	3.8	1.32	0.058 ± 0.008	-	-	3000
3	Holbrook (II)	67.68	19.7.1912	0.061 ± 0.007 0.063 ± 0.005	0.074 0.067	2.95 3.5	1.79 1.56	0.061 ± 0.007 0.063 ± 0.005	-	-	4000 7000
4	Knyahinya	67.48	9.6.1866	0.057 ± 0.009	0.056	3.5	1.45	0.057 ± 0.009	-	-	3000
								Gewichtetes Mittel 0.0607 ± 0.0030			
5	Bruderheim	49.56	4.3.1960	0.120 ± 0.006 0.102 ± 0.011	0.145 0.088	2 3.5	2.44 1.74	(0.0607 ± 0.0030) (0.0607 ± 0.0030)	0.097 ± 0.011 0.083 ± 0.022 0.094 ± 0.010	25.0 29.3 25.8 ± 6	12000 3000
6	Ramsdorf		26.7.1958		0.099	4			Gewichtetes Mittel	Gew. Mittel	20000

Tab. 1. Ergebnisse der Messungen nach der $\gamma\gamma(511)$ -Koinzidenzmethode mit Angaben über die Ausführung der Experimente. Es sind die einfachen statistischen Fehler angegeben außer im Falle des Strahlungsalters (doppelter statistischer Fehler).

⁷ B. MASON, American Museum Novitates Nr. 2085 [1962].

⁸ M. HONDA, S. UNEMOTO u. J. R. ARNOLD, J. Geophys. Res. **66**, 3541 [1961].

⁹ M. W. ROWE u. M. A. VAN DILLA, J. Geophys. Res. **66**, 3553 [1961].

nerhalb der Fehlergrenzen gut überein mit dem von uns bestimmten Na^{22} -Wert für Bruderheim (Fall 1960). Die beträchtliche solare Modulation des niederenergetischen Flusses der kosmischen Strahlung (1958–59 verglichen mit 1954–56) macht sich hier also nicht in bedeutenden Unterschieden in den Na^{22} -Aktivitäten bemerkbar. Dies kann mit dem Abbrand der Meteoriten zusammenhängen: Die untersuchten Stücke werden gewöhnlich wohl von den inneren Teilen des ursprünglichen Meteoriten stammen, deren Aktivität hauptsächlich durch die höherenergetische kosmische Strahlung produziert wird, die im Mittel keinen großen Intensitätsschwankungen unterworfen zu sein scheint; man kann daher bei Chondriten stets etwa dieselbe Na^{22} -Sättigungsaktivität erwarten.

ZÄHRINGER¹⁰ hat den Ne^{22} -Gehalt unseres Bruderheimstückes zu $9,5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{g}$ bestimmt. Zusammen mit unserem Na^{22} -Wert ergibt sich hieraus ein Bestrahlungsalter von $25,8 \cdot 10^6$ Jahren. Bei der Rechnung wurde angenommen, daß die direkte Erzeugungsrate von Ne^{22} und Na^{22} gleich groß ist. HONDA et al.⁸ und CHARALAMBUS und GOEBEL¹¹ erhielten ähnliche Werte ($30 \cdot 10^6$ Jahre bzw. $28 \cdot 10^6$ Jahre).

Nimmt man den Mittelwert der Na^{22} -Messungen an Bruderheim und Breitscheid ($91,5 \text{ Na}^{22}$ -Zerfälle pro min kg) als typischen Wert für Chondrite, so kann man aus den bekannten Ne^{22} -Werten (KIRSTEN, KRANKOWSKY und ZÄHRINGER¹²) das Strahlungsalter von etwa 60 verschiedenen Chondriten berechnen. Die resultierende Altersverteilung ist in Abb. 3 dargestellt. Die im Bereich von 20–30 Millionen Jahren auftretende Gruppierung von Alterswerten ist auffällig, kann aber statistisch noch nicht als vollkommen gesichert betrachtet werden.

Abb. 4 gibt das γ -Spektrum unseres 50 g-Bruderheimstückes nach Abzug des Untergrundes wieder. Zur Messung wurde der in Abschnitt II beschriebene Szintillationskristall im Spektroskopierzweig der Apparatur benutzt. Das Spektrum stimmt in allen wesentlichen Zügen mit demjenigen eines 2,15 kg-Bruderheimstückes überein, das von ROWE und VAN DILLA⁹ mit einem sehr großen NaJ-Kristall ausgemessen wurde. Im Spektrum sind die Photospitzen der Vernichtungsstrahlung und der Mn^{54} , K^{40} und Al^{26} - γ -Strahlungen zu erkennen (0,51; 0,84;

1,46; 1,83 MeV). Die aus der Intensität der 511-keV-Linie bestimmte spezifische e^+ -Aktivität stimmte gut mit den Resultaten aus den $\gamma\gamma$ -Koinzidenzmessungen überein ($0,11 \pm 0,03 e^+/\text{min g}$). Zur Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit der Photolinie wurde wieder das „ Na^{22} -Meteoritenmodell“ benutzt.

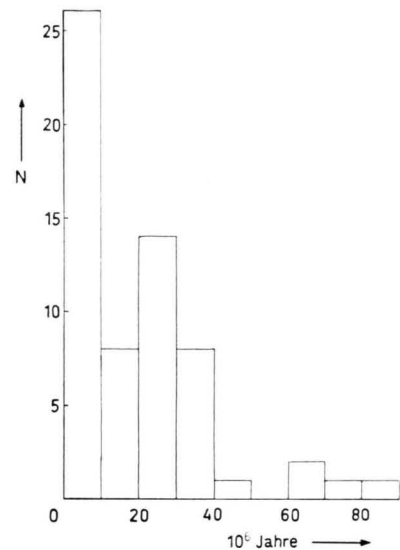


Abb. 3. Häufigkeitsverteilung der Strahlungsalter von 61 Chondriten. N =Zahl der Fälle.

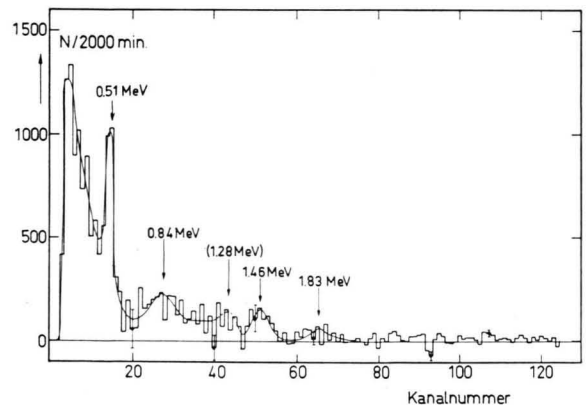


Abb. 4. γ -Spektrum eines 50 g-Stückes des Meteoriten Bruderheim. Meßzeit 2000 min.

Wir danken Herrn Prof. SCHÜLLER und Herrn Dr. FRENZEL vom Institut für Mineralogie der Universität Heidelberg für die leihweise Überlassung der vier alten Chondritenstücke. Wir danken ferner Herrn Dr. ZÄHRINGER für die Überlassung des Bruderheimstückes und für wertvolle Diskussionen.

¹⁰ J. ZÄHRINGER, private Mitteilung.

¹¹ ST. CHARALAMBUS u. K. GOEBEL, *Geochim. Cosmochim. Acta* 26, 659 [1962].

¹² T. KIRSTEN, D. KRANKOWSKY u. J. ZÄHRINGER, *Geochim. Cosmochim. Acta*, im Druck.