

Durch Spallationsreaktionen und Neutroneneinfang erzeugtes ^{36}Cl in Meteoriten und die prae-atmosphärische Größe von Steinmeteoriten

F. BEGEMANN und E. VILCSEK

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

(Z. Naturforschg. **20 a**, 533–540 [1965]; eingegangen am 21. Januar 1965)

The ^{36}Cl produced by spallation reactions and neutron capture on ^{35}Cl has been measured separately in three stone meteorites and one iron meteorite.

The spallation produced ^{36}Cl activities—given in dpm per kg (Fe+Ni+10×Ca)—have been found to be (20.5 ± 2) for Abee-Centre, (21.8 ± 2) for Abee-Surface, $(21.3–26.2)$ for Leedey, and $\leq (22 \pm 10)$ for Norton County-Surface. They are in good agreement with those found in iron meteorites of comparable size and known terrestrial age.

The neutron induced activities in the same samples are (0.21 ± 0.2) , (0.08 ± 0.17) , (1.7 ± 1) , and $\leq (30 \pm 15)$ dpm/100 mg Cl. In spite of the large uncertainties highly significant conclusions can be drawn from these data regarding the mass loss of the meteorites during approximately the last million years, either by space erosion or due to ablation during the passage through the terrestrial atmosphere. Based on calculations of EBERHARDT, GEISS, and LUTZ the ratio of post-atmospheric to pre-atmospheric radius derived for the three meteorites is Abee: $r_M/R=0.86$ or $r_M/R > 0.7$ on the 3σ significance level, Leedey (meteorite shower): $r_M/R=0.5$, and Norton County: $r_M/R=0.77$ or $r_M/R > 0.63$ (3σ level).

No neutron induced activity could be detected in the iron meteorite Cranbourne (Nr. 4). The total and spallation produced ^{36}Cl of two adjacent samples—although differing in their Cl content by more than a factor of twenty—was the same within the experimental limits of error (4.7 ± 0.2) dpm/kg. The low value is attributed to a high terrestrial age and/or the size of this meteorite. ^{39}Ar could not be detected (< 0.64 dpm/kg, 3σ level).

In den vergangenen Jahren haben verschiedene Autoren in einer großen Zahl von Arbeiten über Messungen von solchen radioaktiven und stabilen Isotopen berichtet, die in Meteoriten durch die Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit dem Meteoritenmaterial erzeugt wurden. In fast allen Fällen hat man dabei Reaktionsprodukte untersucht, die durch Spallationsreaktionen oder Kernverdampfung entstehen. Nur selten wurde der Versuch gemacht, durch Neutroneneinfang induzierte Isotope zu messen bzw. die durch Neutroneneinfang und Spallationsreaktionen erzeugten Anteile zu trennen, wenn beide Reaktionen zum selben Isotop führen^{1–3}.

Als besonderer Nachteil erscheint dabei das Fehlen von Daten über eventuell durch Neutroneneinfang am ^{35}Cl erzeugtes ^{36}Cl in Steinmeteoriten. Einmal wird in letzteren häufig ein $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ -Verhält-

nis beobachtet, das größer ist als das des in Eisenmeteoriten gefundenen kosmogenen Argons. Dabei ist bisher nicht klar, ob diese Erhöhung durch geringe Anteile von Ur-Argon bedingt ist oder aber darauf hindeutet, daß in manchen Steinmeteoriten außer durch Spallations- und Verdampfungsreaktionen an Elementen schwerer als Chlor zusätzlich eine gewisse Menge ^{36}Cl durch Neutroneneinfang am ^{35}Cl erzeugt wird⁴.

Zum anderen ist gelegentlich der Versuch gemacht worden, die relativ zu Eisenmeteoriten kurzen Strahlungsalter der Steinmeteorite durch einen mehr oder weniger kontinuierlichen Massenverlust der Meteorite im Weltraum (space erosion) zu erklären^{5,6}. Zwar sind eine Reihe von ernsthaften Einwänden gegen diese Theorie vorgebracht worden^{7–9}, es fehlen jedoch direkte experimentelle Daten, sie zu widerlegen. EBERHARDT, GEISS und LUTZ¹⁰ haben

¹ M. HONDA, S. UMEMOTO u. J. R. ARNOLD, J. Geophys. Res. **66**, 3541 [1961].

² M. M. CHAKRABARTY, P. J. CRESSY, P. S. GOEL, J. H. KAYE u. J. P. SHEDLOVSKY, Carnegie Inst. Technol., Nucl. Chem. Res., Progr. Rep. 1961–62.

³ P. S. GOEL, *ibid.*

⁴ J. GEISS u. D. C. HESS, Astrophys. J. **127**, 224 [1958].

⁵ F. L. WHIPPLE u. E. L. FIREMAN, Nature, Lond. **183**, 1315 [1959].

⁶ E. L. FIREMAN u. J. DEFELICE, Geochim. Cosmochim. Acta **18**, 183 [1960].

⁷ H. C. UREY, J. Geophys. Res. **64**, 1721 [1959].

⁸ J. GEISS u. H. OESCHGER, Space Research, Proc. 1. Intern. Space Sci. Symp., Herausg. H. K. KALLMANN, BIJL, North-Holland Publ. Co., Amsterdam 1960.

⁹ E. ANDERS, Meteorite Ages in: The Moon, Meteorites, and Comets, Ed. BARBARA M. MIDDLEHURST und G. P. KUIPER, The Univ. of Chicago Press, Chicago 1963.

¹⁰ P. EBERHARDT, J. GEISS u. H. LUTZ, Earth Science and Meteoritics, North-Holland Publ. Co., Amsterdam 1963.



jetzt in einer theoretischen Arbeit gezeigt, daß die aus dem Neutroneneinfang zu erwartenden ^{36}Cl -Aktivitäten sehr stark von der Größe der Meteoriten abhängen, da die Produktion fast ausschließlich durch thermische und epithermische Neutronen ($E \lesssim 3 \text{ keV}$) geschieht, deren Existenz eine gewisse Mindestgröße der Meteoriten voraussetzt. In Chondriten optimaler Größe ($R \approx 90 \text{ cm}$) sollte bei einem Chlorgehalt von 100 ppm z. B. im Zentrum etwa siebenmal mehr ^{36}Cl durch Neutroneneinfang erzeugt werden (30 Atome/min kg) als durch Spallationsreaktionen an Fe, Ni und Ca, während bei einem Radius kleiner als 20 cm nur noch weniger als 0,1 Zerfälle/min kg zu erwarten sind.

Das (n,γ) -produzierte ^{36}Cl ist also für Radien von 20–90 cm ein sehr empfindlicher Indikator für die prae-atmosphärische Größe der Meteoriten während etwa der letzten Millionen Jahre. Da die geforderten Erosionsraten von $(1-10) \cdot 10^{-6} \text{ cm/Jahr}$ jedoch relativ klein sind und die Halbwertszeit des ^{36}Cl von $T_{1/2} = 3 \cdot 10^5$ Jahre kurz ist verglichen mit dem Strahlungsalter der meisten Steinmeteoriten, wird man nur in günstigen Fällen (kleines Strahlungsalter, hoher Chlorgehalt) allein auf Grund von ^{36}Cl -Messungen die Hypothese widerlegen können, „space erosion“ sei der das „Strahlungsalter“ bestimmende Faktor.

Nimmt man andererseits an, „space erosion“ sei zu vernachlässigen, so erlaubt die Messung des durch Neutroneneinfang erzeugten ^{36}Cl Aussagen über den Massenverlust der Meteoriten beim Durchgang durch die Atmosphäre, worüber es bei Steinmeteoriten im Gegensatz zu Eisenmeteoriten im Augenblick keine direkte Information gibt.

Der Versuch, (n,γ) -produziertes ^{36}Cl nachzuweisen, erschien daher sinnvoll, da selbst ein negatives Ergebnis eine Reihe von interessanten Aussagen zu den erwähnten Problemen ermöglichen sollte.

Da die aufgefundenen Massen aller Steinmeteorite wesentlich kleiner sind als der von EBERHARDT et al.¹⁰ berechneten optimalen Größe entspricht, war nicht zu erwarten, daß eine Messung des Gesamt- ^{36}Cl die Berechnung des durch Neutroneneinfang produzierten kleinen Beitrages gestatten würde. Es erschien daher wünschenswert, den Spallationsanteil möglichst quantitativ von dem (n,γ) -Anteil zu trennen, d. h. das ^{36}Cl in zwei Schritten zu gewinnen. Einmal sollte möglichst viel Eigenchlor der Meteoriten extrahiert und wenig Fe, Ni und Ca als die für die Erzeugung von Spallations- ^{36}Cl wesentlichen Aus-

gangselemente gelöst werden. Sodann mußten die die letzteren Elemente enthaltenden Phasen in Lösung gebracht werden, und zwar möglichst quantitativ, damit der Fehler minimal wird, der durch ein eventuelles Auslaugen von ^{36}Cl aus den nicht gelösten Anteilen entstehen könnte.

Ein Eisenmeteorit mit hohem Chlorgehalt sollte schließlich auf (n,γ) -produziertes ^{36}Cl getestet werden, da GOEL³ an einer Probe des Canyon Diablo (Chlorgehalt 360 ppm) ein Verhältnis $(n,\gamma)^{36}\text{Cl}/\text{Spallations-}^{36}\text{Cl} \approx 1$ fand, ein Wert, der für Eisenmeteorite unerwartet hoch ist.

Experimenteller Teil und Ergebnisse

A. Proben

1. Abee

Enstatit-Chondrit, Falldatum 9. Juni 1952, aufgefunden Masse 107 kg (1 Stück). Die Proben, deren Lage im Meteoriten Abb. 1 zeigt, wurden freundlicherweise von Dr. K. R. DAWSON, Geological Survey of Canada, Ottawa, zur Verfügung gestellt.

2. Leedey

Chondrit, Falldatum 25. November 1943, Meteoriten-schauer, 26 Stücke im Gesamtgewicht von etwa 50 kg wurden gefunden. Untersucht wurde ein Stück einer 2,5 cm dicken Scheibe, deren Rand teilweise von Schmelzkruste umgeben war (American Meteorite Laboratory Nr. 498.17).

3. Norton County

Achondrit, Falldatum 18. Februar 1948, Gesamtgewicht $\geq 1,1 \text{ t}$. Dank dem Entgegenkommen von Dr. CARLETON B. MOORE, Nininger Meteorite Collection, standen 101 g von der Oberfläche der Hauptmasse zur Verfügung.

4. Cranbourne

Grober Oktaedrit, gefunden wurden 1854 und später 11 Stücke im Gesamtgewicht von mehr als 7,5 t. Beide Proben stammen von der Masse Cranbourne No. 4 (1250 kg), wir verdanken sie der Großzügigkeit des Direktors des National Museum of Victoria, Melbourne, Mr. C. W. BRACENOR.

B. Chemie

Die Proben der Steinmeteorite Abee, Leedey und Norton County wurden pulverisiert (Korngröße $< 0,25 \text{ mm}$) und unter ständigem Rühren etwa 20 Stunden mit bidestilliertem Wasser bei Zimmertemperatur ausgelaugt. Die Suspensionen wurden zentrifugiert, das Pulver wiederholt gewaschen und unmittelbar anschließend nach Zugabe von Trägerchlor mit zunächst

2-n., dann 4-n. HNO_3 behandelt, wobei die Hauptmengen des Fe und Ni in Lösung gingen. Der säureunlösliche Rückstand des Leedey wurde unter erneuter Zugabe von Trägerchlor in ein $\text{HF}-\text{HNO}_3$ -Gemisch eingetragen und abschließend mit verdünnter HNO_3 behandelt. Auf diese Weise konnten mehr als 99% des Meteoriten gelöst und somit sowohl die totale ^{36}Cl -Aktivität als auch — da die letzte Fraktion das Ca angereichert enthielt — das Verhältnis der Produktionsraten von ^{36}Cl an Fe und Ca gemessen werden (BEGEMANN, VILČEK und WÄNKE¹¹).

Im Falle des Norton County war die Chlormenge im wäßrigen Extrakt zu klein ($\lesssim 0,1$ mg) für die anschließenden Reinigungsoperationen, so daß 10 g des ausgelaugten Pulvers mit Soda aufgeschlossen und gelöst sowie weitere 20 g mit 4-n. HNO_3 behandelt wurden. Das Chlor aller drei Fraktionen wurde in diesem Falle gemeinsam weiterverarbeitet.

Cranbourne I wurde als ganzes Stück ohne Zugabe von Trägerchlor in HNO_3 gelöst, Cranbourne II in Form von Frässpänen mit kaltem Wasser behandelt sowie anschließend mit Trägerchlor in $\text{HgSO}_4-\text{H}_2\text{SO}_4$ unter Vakuum gelöst¹², um in derselben Probe das ^{39}Ar zu messen.

Die Bestimmung des Chlors geschah in allen Fällen als AgCl , das anschließend in NaCl übergeführt und als solches wiederholt gezählt und gereinigt wurde¹².

Die Ergebnisse der chemischen Analysen zeigt Tab. 1. Es sei ausdrücklich darauf hingewiesen, daß es sich bei den Steinmeteoriten um Minimalwerte für den wahren

Gehalt an diesen Elementen handelt, da die Proben (außer Leedey, wo die bestimmten Elemente gut mit den von KÖNIG¹³ in einer Gesamtanalyse gefundenen übereinstimmen) nicht quantitativ gelöst wurden. Die gefundenen Chlormengen allerdings können aus demselben Grunde zu niedrig oder aber durch das Einschleppen von Chlor zu hoch sein; und zwar wird man wegen der umfangreichen chemischen Operationen zu hohe Werte am ehesten bei Leedey und Norton County erwarten. In der letzten Spalte sind daher zum Vergleich die von v. GUNTEN durch Neutronenaktivierung mit einem Fehler von etwa 10% bestimmten Chlorgehalte angegeben¹⁴. Beim Norton County wurden die Messungen an einem Aliquot der mit Wasser ausgelaugten Probe durchgeführt; der Gehalt von 5,5 ppm ist also eine untere Grenze für den wahren Chlorgehalt dieser Probe. In einer anderen, unbehandelten Probe fand v. GUNTEN jedoch nur etwa 2 ppm Cl, von dem etwa 10% mit heißem Wasser ausgelaugt werden konnten. Wir glauben, daß die höhere Konzentration in der mit H_2O behandelten Probe nicht auf das Einschleppen von Chlor, sondern eine inhomogene Verteilung in dem Meteoriten hindeutet. Dann sollte der höhere Wert repräsentativer sein, da er an dem Aliquot einer größeren Probe bestimmt wurde.

Wie erwartet, wurde bei beiden Proben des Abee das Chlor nicht quantitativ extrahiert, während bei Leedey die chemisch gefundene Chlormenge gut mit der durch Neutronenaktivierung bestimmten übereinstimmt. Bei Norton County dagegen wurde offen-

Meteorit	Einwaage (g)	Cl (mg)	Fe (g)	Ni (g)	Ca (g)	Cl (ppm)	Cl (ppm)
Abee I (Zentrum)	—	—	—	—	—	—	530
H_2O	100,0	26,1	$< 10^{-3}$	—	0,220	261	—
HNO_3	100	8,8	28,91	0,956	0,571	88	—
Abee II (außen)	—	—	—	—	—	—	472
H_2O	100,0	34,0	$< 10^{-3}$	—	0,295	340	—
HNO_3	100	9	28,87	1,495	0,543	90	—
Leedey	—	—	—	—	—	—	110
H_2O	654,2	3,87	$< 10^{-3}$	—	0,067	5,9	—
$\text{HNO}_3, \text{HNO}_3-\text{HF}$	314,7	30,8	69,6	3,57	3,750	98	—
Norton County	—	—	—	—	—	—	5,5
H_2O	84,66	} 0,60	$< 10^{-3}$	—	0,061	—	—
Aufschluß	10,0		—	—	—	—	—
HNO_3	20,0		—	—	0,038	—	—
Cranbourne I	33,4	37,8	33,4		—	1130	—
Cranbourne II	—	—	—	—	—	—	—
H_2O	70,0	12,8	$\sim 8 \cdot 10^{-3}$	—	—	180	—
$\text{H}_2\text{SO}_4-\text{HgSO}_4$	70,0	3,6	70,0	—	—	51	—

Tab. 1. Ergebnisse der chemischen Analysen. Von den Steinmeteoriten wurde nur Leedey vollständig ($> 99\%$) gelöst; in allen anderen Fällen sind die angegebenen Mengen Minimalwerte für den wahren Gehalt der Meteorite an diesen Elementen (—: nicht bestimmt). Die Cl-Gehalte der letzten Spalte wurden von v. GUNTEN et al.¹⁴ durch Neutronenaktivierung bestimmt.

¹¹ F. BEGEMANN, E. VILČEK u. H. WÄNKE, erscheint in Kürze.

¹² E. VILČEK u. H. WÄNKE, Z. Naturforschg. **16 a**, 379 [1961].

¹³ H. KÖNIG, Geochim. Cosmochim. Acta **28**, 1697 [1964].

¹⁴ H. R. v. GUNTEN, persönliche Mitteilung.

sichtlich Chlor eingeschleppt. Nimmt man an, daß das Cl aus der mit Soda aufgeschlossenen 10 g-Probe quantitativ und — wie bei Leedey — etwa 90% aus dem mit HNO_3 behandelten Aliquot gewonnen, jedoch nur wenige Prozent mit kaltem Wasser ausgelaugt wurden, so sollte man $(160 \pm 50) \mu\text{g}$ Cl erwarten. Gefunden aber wurden $600 \mu\text{g}$. Außer bei Norton County ist ein Blindwert der gleichen Größenordnung stets zu vernachlässigen.

Wie die Tabelle weiter zeigt, lag nur bei Ab ee die Hauptmenge des Chlors in wasserlöslicher Form vor; aber auch hier erlauben die im wäßrigen Extrakt gefundenen Elemente (außer den in Tab. 1 angegebenen noch etwa 2 mg SiO_2 bei Ab ee I) keine Rückschlüsse auf die Art des Vorkommens von Cl in diesem Meteoriten. Entsprechend der sehr kleinen Menge gelösten Eisens scheinen jedoch weniger als 4% als Lawrencit vorgelegen zu haben.

Die verschiedenen Chlorgehalte der beiden unmittelbar benachbarten Cranbourne-Proben sind nicht überraschend, da in Eisenmeteoriten das Chlor vorwiegend in Rissen vorkommt, und außerdem vielleicht ein Teil beim Fräsen der Probe II verloren gegangen ist.

C. Aktivitätsmessung

Die Aktivität aller Proben wurde mit einem volltransistorisierten Sharp-Low-Beta-Durchflußzähler gemessen, und zwar jede Probe bei mindestens zwei verschiedenen Auflagedicken (auf Au-Unterlagen) unter einem $1/2''$ - und einem $1''$ -Detektor. Der Nulleffekt betrug 0,09 bzw. 0,22 Impulse/min, die Zählabschute war bei typischen Auflagedicken 25 bzw. 45%. Als Standard diente eine ^{36}Cl -Eichlösung des National Bureau of Standards, Washington.

Tab. 2 zeigt die Ergebnisse. Bei allen Proben stimmen die Zerfallsraten nach dem Umarbeiten des NaCl innerhalb der angegebenen Fehlergrenzen mit den ursprünglich gemessenen überein.

Meteorit	Zerfälle/Min	
	H_2O -Extrakt	Säure-Extrakt
Ab ee I (Zentrum)	$0,10 \pm 0,05$	$0,73 \pm 0,06$
Ab ee II (außen)	$0,09 \pm 0,05$	$0,78 \pm 0,07$
Leedey	$0,08 \pm 0,03$	$2,90 \pm 0,1$
Norton County	$0,045 \pm 0,015$	
Cranbourne I	$0,15 \pm 0,035$	
Cranbourne II	$0,01 \pm 0,02$	$0,33 \pm 0,01$

Tab. 2. ^{36}Cl -Gehalt der wäßrigen bzw. Säureextrakte. Die Werte sind Mittel aus mindestens zwei Bestimmungen bei verschiedenen Auflagedicken. In allen Fällen stimmte die Aktivität nach dem Umarbeiten der Proben mit den ursprünglich gemessenen innerhalb der Fehlergrenzen überein.

Diskussion

Unter der Annahme, daß in allen Fällen das ^{36}Cl nur aus den gelösten Mengen der in Tab. 1 angege-

benen Elemente stammt (kein *leaching*), können jetzt das durch Spallation und das durch Neutroneneinfang erzeugte ^{36}Cl getrennt berechnet werden aus

$$A_{\text{TOTAL}} = A_{n,\gamma}^s [\text{Cl}] + A_{\text{SP}}^s [\text{Fe} + \text{Ni} + \alpha \text{Ca}], \quad (1)$$

wobei α gleich dem Verhältnis der Wirkungsquerschnitte für die Erzeugung von ^{36}Cl an Ca und Fe ist.

Für den Eisenmeteoriten Cranbourne ergibt sich aus Probe II $A_{\text{SP}}^s = (4,7 \pm 0,2)$ Zerfälle/min kg und $A_{n,\gamma} = (0,14 \pm 0,28)$ Zerfälle/min kg bei einem Chlorgehalt von 180 ppm. In Übereinstimmung damit, daß keine $A_{n,\gamma}$ -Aktivität nachgewiesen werden konnte, ist das Ergebnis an der unmittelbar benachbarten Probe I, wo trotz des zwanzigmal höheren Chlorgehaltes eine Gesamtaktivität $A_{\text{TOTAL}} = (4,5 \pm 1)$ Zerfälle/min kg gefunden wurde, also innerhalb der Fehlergrenzen derselbe Wert wie A_{SP} bei Probe II. Wir glauben nicht, daß das Fehlen einer meßbaren neutroneninduzierten ^{36}Cl -Aktivität auf eine extrem ungünstige Lage unserer Probe in dem Meteoriten zurückzuführen ist. Aus vorläufigen Ergebnissen von Edelgasmessungen — kombiniert mit den von SIGNER und NIER¹⁵ gegebenen Kurven für die Isotopenverhältnisse der Edelgase als Funktion der Größe und der Position innerhalb der Meteoriten — folgt, daß für unsere Probe $r/R \approx 0,7$ und die Gesamtmasse des Cranbourne etwa 20 t war.

Der niedere Wert für A_{SP} kann auf ein hohes terrestrisches Alter und/oder die Größe des Meteoriten zurückzuführen sein. ^{39}Ar konnte in der 70 g-Probe nicht mehr nachgewiesen werden. Das Ergebnis der Messung war $-(0,017 \pm 0,014)$ Impulse pro min, d. h. $-(0,44 \pm 0,36)$ Zerfälle/min kg, was einem terrestrischen Mindestalter (3σ) von etwa 1000 Jahren entspricht.

Für die drei Steinmeteorite läßt sich der durch Neutroneneinfang erzeugte Anteil $A_{n,\gamma}$ nicht mit der erhofften Genauigkeit bestimmen, wie aus Tab. 1 bereits ersichtlich ist. Der Chlorgehalt von Ab ee ist zwar hinreichend hoch — ein Großteil liegt sogar in wasserlöslicher Form vor —, wegen des ebenfalls wasserlöslichen CaS wird jedoch die Korrektur für das am Ca durch Spallation erzeugte ^{36}Cl beträchtlich. Bei Leedey konnten nur wenige Prozent des gesamten Cl mit Wasser ausgelaugt werden, und unsere Probe von Norton County

¹⁵ P. SIGNER u. A. O. NIER, J. Geophys. Res. **65**, 2947 [1960].

schließlich enthielt anstatt der von BECK und LAPAZ¹⁶ an einer anderen Probe desselben Meteoriten gefundenen 800 ppm nur so geringe Mengen Chlor, daß überhaupt darauf verzichtet werden mußte, das Chlor in zwei Fraktionen zu gewinnen.

Trotz dieser Schwierigkeiten sollen die Daten im folgenden ausführlich diskutiert werden, da auch die oberen Grenzen einige wichtige Aussagen erlauben.

A. Spallations-³⁶Cl

Um einen direkten Vergleich mit den von anderen Autoren^{12, 17-19} an Eisenmeteoriten bekannten Falldatums gemessenen Werten zu ermöglichen, sind in Tab. 3, Spalte 4, die durch Spallationsreaktionen erzeugten Aktivitäten, bezogen auf die gelösten Mengen Fe, Ni und Ca, aufgeführt.

Für das Verhältnis

$$\alpha = \sigma(^{36}\text{Cl})_{\text{Ca}} / \sigma(^{36}\text{Cl})_{\text{Fe}} \quad (2)$$

wurde der am Leedey gefundene Wert von 10 benutzt¹¹, die Ca-Mengen sind also mit diesem Faktor multipliziert (Spalte 3).

Da die Möglichkeit nicht auszuschließen ist, daß ein geringer Teil der Aktivität im wäßrigen Extrakt ausgelaugtes Spallations-³⁶Cl ist, handelt es sich um Minimalwerte. Bei beiden Proben des Abee ist eine eventuelle Korrektur jedoch zu vernachlässigen, da mehr als 75% des gesamten gelösten Cl im wäßrigen Extrakt enthalten waren. Bei Leedey dagegen, wo der wäßrige Extrakt nur etwa 5% des Cl enthielt, ist die Korrektur beträchtlich. Unter der extremen Annahme, daß gar kein (n,γ)-produziertes ³⁶Cl vorhanden ist, die geringe gefundene Aktivität im H₂O-Extrakt also bedeutet, daß etwa 1% des Spallationschlor ausgelaugt wurde, erhöht sich die

Zerfallsrate von 21,3 auf 26,2 Zerfälle/min kg (Fe + Ni + 10 Ca).

Bei beiden Meteoriten stimmt die Aktivität gut mit den in Eisenmeteoriten vergleichbarer Größe gefundenen überein.

Für Norton County ergibt sich ein Maximalwert von (22 ± 10) Zerfällen/min kg (Fe + Ni + 10 Ca), wenn man die gemessene Aktivität ausschließlich Spallationsreaktionen zuschreibt. Dieser Wert ist mehr als doppelt so hoch wie der von FIREMAN und DEFELICE⁶ in demselben Meteoriten für die ³⁹Ar-Aktivität gefundene; wegen des großen Fehlers kann man jedoch keine Rückschlüsse auf das Vorhandensein einer neutroneninduzierten ³⁶Cl-Aktivität ziehen.

B. (n,γ)-produziertes ³⁶Cl

Die in Tab. 3, Spalte 5, aufgeführten Aktivitäten sind die in den wäßrigen Extrakten gemessenen, korrigiert für die aus den gelösten Elementen zu erwartenden A_{sp}-Beiträge. In Spalte 6 sind alle Zerfallsraten normiert auf 100 mg Cl und damit vergleichbar mit den von EBERHARDT et al.¹⁰ berechneten (Zerfälle/min kg Meteorit bei einem angenommenen Cl-Gehalt von 100 ppm). Bei Norton County wurde — als sichere obere Grenze — die gesamte gefundene Aktivität als durch Neutroneneinfang erzeugt angenommen und der oben angegebene Cl-Wert von 0,16 mg für die Berechnung benutzt.

Wie bereits erwähnt, handelt es sich in allen Fällen um Maximalwerte. Ein Vergleich dieser Aktivitäten mit den für „normale“ Chondrite (Häufigkeit der Elemente gleich dem Mittelwert der von UREY und CRAIG²⁰ gegebenen für „high“ und „low“ Chon-

Meteorit	Einwaage (g)	Fe + Ni + 10 Ca (g)	$A_{sp}^s \left[\frac{\text{Zerfälle}}{\text{min kg (Fe + Ni + 10 Ca)}} \right]$	$A_{n,\gamma}^s \left[\frac{\text{Zerfälle}}{\text{min}} \right]$	$A_{n,\gamma}^s \left[\frac{\text{Zerfälle}}{\text{min 100 mg Cl}} \right]$
Abee I (Zentrum)	100,0	35,6	20,5 ± 2	0,055 ± 0,053	0,21 ± 0,2
Abee II (außen)	100,0	35,8	21,8 ± 2	0,026 ± 0,055	0,08 ± 0,17
Leedey	314,7	111	21,3 – 26,2	0,065 ± 0,03	1,7 ± 1
Norton County	30	2,0 ± 0,5	≤ (22 ± 10)	≤ (0,045 ± 0,015)	≤ (30 ± 15)
Cranbourne II	70,0	70,0	4,7 ± 0,2	0,01 ± 0,02	0,08 ± 0,16

Tab. 3. Durch Spallations- bzw. Verdampfungsreaktionen (A_{sp}^s) und durch Neutroneneinfang ($A_{n,\gamma}^s$) erzeugte ³⁶Cl-Aktivitäten. Zum besseren Vergleich mit den in Eisenmeteoriten gefundenen Zerfallsraten sind die A_{sp}^s -Werte bezogen auf kg [Fe + Ni + α · Ca] mit $\alpha = \sigma(^{36}\text{Cl})_{\text{Ca}} / \sigma(^{36}\text{Cl})_{\text{Fe}} = 10$. Die neutroneninduzierten Aktivitäten $A_{n,\gamma}^s$ sind normiert auf 100 mg Cl, d. h. bei einem Chlorgehalt von 100 ppm sind die Werte gleich der Aktivität pro kg Meteorit.

¹⁶ C. W. BECK u. L. LAPAZ, Amer. Mineralogist **36**, 45 [1951].

¹⁷ H. WÄNKE u. E. VILČEK, Z. Naturforsch. **14a**, 929 [1959].

¹⁸ P. S. GOEL u. T. P. KOHMAN, Science **136**, 875 [1962].

¹⁹ M. HONDA u. J. R. ARNOLD, Science **143**, 203 [1964].

²⁰ H. C. UREY u. H. CRAIG, Geochim. Cosmochim. Acta **4**, 36 [1953].

drate, 0,1% H_2O) verschiedener Radien zu erwartenden ¹⁰ erlaubt, den Massenverlust der Meteorite beim Durchgang durch die Atmosphäre bzw. durch „space erosion“ abzuschätzen. Dabei ist jedoch zu bedenken, daß nur *Leedey* als „normaler“ Chondrit angesprochen werden kann. Die chemische Zusammensetzung von *Abee* und *Norton County* ist dagegen so verschieden von der „Norm“, daß die Rechnungen neu durchgeführt werden mußten. Dazu wurden die von *EBERHARDT et al.*¹⁰ vorgeschlagene „Analytische Methode“ sowie die Ergebnisse der chemischen Analysen von *WILK*²¹ (*Norton County*) und *DAWSON, MAXWELL und TAYLOR*²² (*Abee*) benutzt. Als H_2O -Gehalt jedoch wurde für *Abee* $(0,30 \pm 0,03)\%$ angenommen, ein Wert, der sehr reproduzierbar in drei Versuchen an verschiedenen Proben des Meteoriten bestimmt wurde, und für *Norton County* $(0,125 \pm 0,01)$ ²³. Es zeigte sich, daß bei *Abee* der höhere Wasserstoffgehalt den größten Einfluß auf das Ergebnis der Rechnungen hat, während bei *Norton County* der sehr geringe Metallgehalt eine starke Erhöhung der zu erwartenden Aktivitäten zur Folge hat.

a) *Abee*

Der Meteorit kann in guter Näherung als kugelförmig betrachtet werden. Aus den von *DAWSON et al.*²² gegebenen Daten berechnet sich ein mittlerer post-atmosphärischer Radius $r_m = 19$ cm. Die hier als *Abee*-Zentrum bezeichnete Probe stammt aus einer Entfernung von 4–10 cm vom Zentrum (Abb. 1), der genaue Wert spielt wegen der geringen radialen Abhängigkeit der Produktionsrate in der Nähe des Zentrums keine große Rolle. Die äußere Probe hatte einen Abstand von 15–19 cm vom post-atmosphärischen Zentrum.

Abb. 2 zeigt die für fünf verschiedene prae-atmosphärische Radien R berechneten Produktionsraten $P(r, R)$ als Funktion des Abstandes vom Mittelpunkt. Wie aus der Abbildung ersichtlich ist, wurde an der Oberfläche $P(r=R)=0$ angenommen, d. h. die Extrapolationslänge von etwa 2 cm wurde nicht berücksichtigt. Dieses macht die folgenden Aussagen jedoch nur sicherer. Eingetragen sind außerdem die gemessenen $A_{n,\gamma}^s$ -Aktivitäten sowie $A_{n,\gamma}^s + 3\sigma$ (gebrochene Linien). Beide Meßwerte stimmen gut mit den für $R=22$ cm zu erwartenden überein bzw. zei-

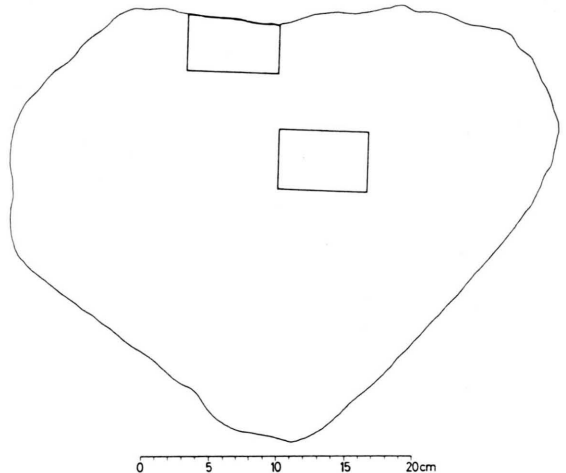


Abb. 1. Schnitt durch den Meteoriten *Abee*. Der Herkunftsort der beiden untersuchten Proben ist eingezeichnet.

gen, daß mit mehr als 99-proz. Wahrscheinlichkeit (3σ) $R < 27$ cm war. Wegen der schon erwähnten geringen radialen Abhängigkeit der Produktions-

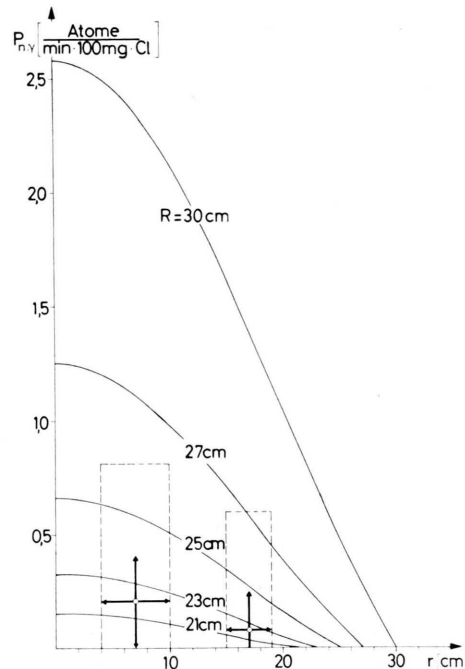


Abb. 2. Die Produktionsraten von ^{36}Cl aus $^{35}Cl(n,\gamma)^{36}Cl$ an *Abee* für verschiedene prae-atmosphärische Radien R als Funktion des Abstandes r vom Zentrum. Eingezeichnet sind die an den beiden Proben gemessenen Aktivitäten ($\rightarrow 1\sigma$, --- 3σ). Für alle Radien R wurde die Extrapolationslänge von etwa 2 cm vernachlässigt, d. h. $P(r=R)=0$ angenommen.

²¹ H. B. WILK, *Geochim. Cosmochim. Acta* **9**, 279 [1956].

²² K. R. DAWSON, J. A. MAXWELL u. D. E. PARSONS, *Geochim. Cosmochim. Acta* **21**, 127 [1960].

²³ F. BEGEMANN, J. GEISS u. D. C. HESS, *Phys. Rev.* **107**, 540 [1957].

rate nahe dem Mittelpunkt gilt diese Aussage auch dann, wenn die Ablationsverluste beim Durchgang durch die Atmosphäre sehr asymmetrisch waren.

Für das Verhältnis von post-atmosphärischem zu prae-atmosphärischem Radius ergibt sich somit

$$r_m/R = 0,86 \quad \text{bzw.} \quad r_m/R \geq 0,70 \quad (3 \sigma).$$

Dabei wurde die stillschweigende Voraussetzung gemacht, daß der Meteorit während der Zeit, die durch sein Strahlungsalter T_s gegeben ist, seine Größe nicht änderte. Nimmt man umgekehrt an, daß Ablationsverluste zu vernachlässigen sind und „space erosion“ die entscheidende Rolle spielte, so läßt sich eine obere Grenze dafür angeben.

In dem hier interessierenden Bereich ($19 \text{ cm} < R < 27 \text{ cm}$) wird die Produktionsrate im Zentrum mit hinreichender Genauigkeit beschrieben durch

$$P(R) = P(R_0) e^{-\beta(R_0-R)} \quad (3)$$

bzw. mit dem Ansatz

$$R(t) = R_0 - \varkappa t \quad (4)$$

$$\text{durch} \quad P(t) = P_0 e^{-\beta \varkappa t}. \quad (3a)$$

Dabei ist $\beta = 0,35 \text{ cm}^{-1}$ und \varkappa die Erosionsrate in cm pro Zeiteinheit. Aus

$$dN_{n,\gamma}/dt = P_0 e^{-\beta \varkappa t} - \lambda N(t) \quad (5)$$

– wobei $\lambda = 2,3 \cdot 10^{-6} \text{ a}^{-1}$ die Zerfallskonstante des ³⁶Cl ist – folgt für das laufende Gleichgewicht für große Zeiten

$$\lambda N(t) = \frac{\lambda}{\lambda - \beta \varkappa} P(t), \quad (6)$$

solange $\beta \varkappa < \lambda$, d. h. $\varkappa < 6,6 \cdot 10^{-6} \text{ cm a}^{-1}$ ist. Zur Zeit $t = T$ des Falles des Meteoriten ist $\lambda N(T)$ gleich der gemessenen Zerfallsrate und somit gleich der Produktionsrate $P(R = 22 \text{ cm})$, $P(T)$ gleich der Produktionsrate für den jetzigen Radius $P(R = 19 \text{ cm})$, und daraus ergibt sich

$$\varkappa = 4,3 \cdot 10^{-6} \text{ cm a}^{-1}.$$

Will man das Strahlungsalter des Abee von $T_s = 13 \text{ Ma}^{24}$ durch „space erosion“ erklären, so folgt aus ^{5, 10}

$$T_s = L/\varkappa \quad (7)$$

(mit L = effektive Absorptionslänge der kosmischen Strahlung in Meteoritenmaterial = 45 cm) für

$\varkappa = 3,5 \cdot 10^{-6} \text{ cm a}^{-1}$. Die aus den $A_{n,\gamma}$ -Aktivitäten berechnete obere Grenze für die Erosionsrate ist größer als die aus dem Strahlungsalter geforderte. Sie erlaubt also nicht die Widerlegung der Theorie, daß das Strahlungsalter des Abee im wesentlichen durch „space erosion“ bedingt ist.

b) Leede y

Aus der gefundenen Gesamtmasse von 50 kg und der Dichte von $\rho = 3,5 \text{ g/cm}^3$ folgt ein mittlerer Radius $r_m = 15 \text{ cm}$. Nach den von EBERHARDT et al.¹⁰ gegebenen Daten entspricht die neutroneninduzierte Aktivität von 1,7 Zerfällen/min kg einem prae-atmosphärischen Radius von $R = 31 \text{ cm}$, und damit ist $r_m/R = 0,5$. Es sei aber hier noch einmal ausdrücklich darauf hingewiesen, daß bei diesem Meteoriten nur wenige Prozent des gesamten Cl im wäßrigen Extrakt enthalten waren, so daß schon eine geringe Menge ausgelaugten Spallations-³⁶Cl einen relativ großen Fehler bewirkt. Andererseits handelt es sich bei Leede y um einen Meteoritenschauer, und es scheint durchaus möglich, daß die gefundenen 26 Bruchstücke nur ein Teil der post-atmosphärischen Masse sind, wodurch sich ein zu kleiner Wert für r_m/R ergäbe.

Wegen dieser großen Unsicherheiten erscheint es nicht sinnvoll, einen Wert für die Erosionsrate zu berechnen.

c) Norton County

Auch dieser Meteorit kann in guter Näherung als kugelförmig ($r_m = 42 \text{ cm}$) betrachtet werden¹⁶. Die untersuchte Probe von der Oberfläche der Hauptmasse hatte somit einen Abstand von 38–42 cm vom Zentrum. Analog zu Abb. 2 zeigt Abb. 3 die berechneten Produktionsraten für verschiedene prae-atmosphärische Radien R als Funktion des Abstandes r vom Mittelpunkt. Die obere Grenze für die $A_{n,\gamma}$ -Aktivität von (30 ± 15) Zerfällen/min 100 mg Cl entspricht einem Radius $R \approx 52 \text{ cm}$, bzw. $R < 64 \text{ cm}$ (3σ Kriterium), und somit ist $r_m/R = 0,77$ bzw. $> 0,63$, wenn die Ablationsverluste symmetrisch waren (Oberflächenprobe)²⁵.

Auch hier erübrigt sich wegen der großen Unsicherheit eine Berechnung der Erosionsrate.

wohl die hier angegebenen A_{sp} -Aktivitäten als auch die Ergebnisse von Edelgasmessungen dagegen sprechen, daß z. B. die prae-atmosphärischen Radien vom Abee und Leede y größer waren als 3 m, dem zweiten möglichen Wert für R .

²⁴ F. BEGEMANN, P. EBERHARDT u. D. C. HESS, Z. Naturforschg. **14 a**, 500 [1959].

²⁵ Da jeder neutroneninduzierten ³⁶Cl-Aktivität zwei mögliche prae-atmosphärische Radien R entsprechen, wurde für alle drei Meteorite der jeweils kleinere der beiden für die Berechnung des r_m/R benutzt. Das erscheint berechtigt, da so

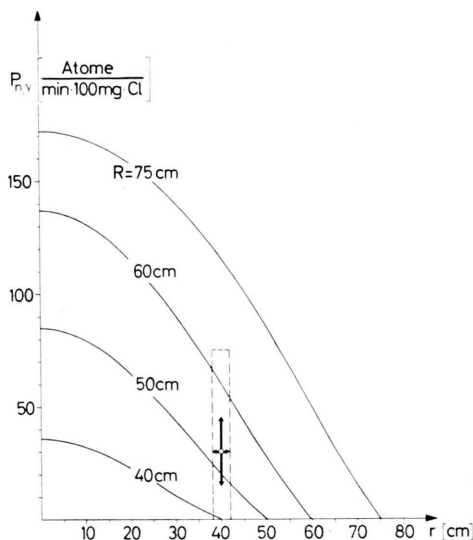


Abb. 3. Die Produktionsraten von ^{36}Cl aus $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$ an Norton County für vier verschiedene prae-atmosphärische Radien R als Funktion des Abstandes r vom Zentrum. Der eingetragene Meßwert ($\rightarrow 1\sigma$, ---- 3σ) ist ein Maximalwert, da die gesamte gefundene Aktivität als durch Neutroneneinfang entstanden angenommen wurde.

C. ^{36}Ar -Überschuß in Steinmeteoriten

Spallationsreaktionen erzeugen in Eisenmeteoriten Argon mit einem $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ -Verhältnis von etwa 0,64. Ein ähnlicher Wert wurde in dem Ca-reichen Achondriten *Pasamonte* gemessen⁴, d. h. das Isotopenverhältnis des aus Ca und Fe produzierten Argons ist etwa gleich. Häufig wird in Steinmeteoriten aber auch ein wesentlich höheres Verhältnis gefunden. Da durch Neutroneneinfang am Cl praktisch nur ^{36}Cl entsteht, könnte dieser Prozeß für den ^{36}Ar -Überschuß verantwortlich sein⁴. Aus den in Tab. 3 aufgeführten Werten kann man jetzt für die untersuchten Steinmeteoriten das zu erwartende $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ -Verhältnis abschätzen. Dazu sind in Tab. 4 die durch Spallationsreaktionen und durch Neutroneneinfang erzeugten ^{36}Cl -Aktivitäten – bezogen auf kg Meteoritenmaterial – angegeben. Für Norton County wurde hier – vielleicht etwas willkürlich – die Aktivität je zur Hälfte Spallationsreaktionen und Neutroneneinfang zugeschrieben. Die letzte Spalte gibt die zu erwartenden $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ -Verhältnisse an²⁶. Der Faktor 1,25 bei A_{sp}^m berücksichtigt dabei die Direktproduktion von ^{36}Ar . Da Abee Ur-Argon enthält und das kosmogene Argon des Leedey bisher nicht gemessen wurde, kann man nur bei Norton County das gemessene Verhältnis⁴ von 0,93 mit dem vorhergesagten vergleichen. Hier muß die relativ gute Übereinstimmung aber wohl als rein zufällig betrachtet werden.

Meteorit	$A_{\text{sp}}^m \left[\frac{\text{Zerfälle}}{\text{min kg}} \right]$	$A_{\text{n},\gamma}^m \left[\frac{\text{Zerfälle}}{\text{min kg}} \right]$	$0,64 \left(1 + \frac{A_{\text{n},\gamma}^m}{1,25 \cdot A_{\text{sp}}^m} \right)$
Abee (Zentrum)	8	1,1	0,71
Abee (außen)	8	0,4	0,67
Leedey	7	1,7	0,76
Norton County	1	0,75	1,02

Tab. 4. Durch Spallations- bzw. Verdampfungsreaktionen (A_{sp}^m) und durch Neutroneneinfang ($A_{\text{n},\gamma}^m$) pro kg Meteorit erzeugte ^{36}Cl -Aktivitäten. Die letzte Spalte gibt das zu erwartende $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ -Verhältnis an.

neneinfang erzeugten ^{36}Cl -Aktivitäten – bezogen auf kg Meteoritenmaterial – angegeben. Für Norton County wurde hier – vielleicht etwas willkürlich – die Aktivität je zur Hälfte Spallationsreaktionen und Neutroneneinfang zugeschrieben. Die letzte Spalte gibt die zu erwartenden $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ -Verhältnisse an²⁶. Der Faktor 1,25 bei A_{sp}^m berücksichtigt dabei die Direktproduktion von ^{36}Ar . Da Abee Ur-Argon enthält und das kosmogene Argon des Leedey bisher nicht gemessen wurde, kann man nur bei Norton County das gemessene Verhältnis⁴ von 0,93 mit dem vorhergesagten vergleichen. Hier muß die relativ gute Übereinstimmung aber wohl als rein zufällig betrachtet werden.

Für die Meteoritenproben möchten wir auch hier den Herren Dr. K. R. DAWSON, Dr. CARLETON B. MOORE und Mr. C. W. BRACENOR unseren Dank sagen, für ihre Hilfe bei den experimentellen Arbeiten Frl. U. SCHEERER und Frl. U. KREBS. Den Herren Professor J. GEISS und Dr. P. EBERHARDT danken wir für zahlreiche Diskussionen, sie stellten außerdem freundlicherweise ihre numerischen Daten für die Umrechnung der zu erwartenden (n,γ)-produzierten Aktivitäten zur Verfügung.

Herr Dr. H. VON GUNTEN war so entgegenkommend, Proben der hier untersuchten Meteoriten in seine Neutronenaktivierungsanalysen mit einzubeziehen und uns die Ergebnisse vor der Veröffentlichung wissen zu lassen.

²⁶ Die Werte gelten nur, wenn "space erosion" zu vernachlässigen ist und die Massenverluste beim Durchgang der Meteoriten durch die Atmosphäre eintraten. Für den um-

gekehrten Fall haben EBERHARDT, GEISS und LUTZ die Produktion von ^{36}Ar aus durch Neutroneneinfang erzeugtem ^{36}Cl berechnet.