

Edelgasmessungen an Eisenmeteoriten *

L. SCHULTZ und H. HINTENBERGER

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

(Z. Naturforschg. **22 a**, 773—779 [1967]; eingegangen am 3. März 1967)

The spallogenic isotopes of helium, neon, and argon have been measured in 36 iron meteorites using a statically operated double focusing mass spectrometer. The following relations were found between the concentration ratios of the cosmic ray produced isotopes ^3He , ^4He , ^{21}Ne , and ^{38}Ar :

$$\begin{aligned} ^3\text{He}/^4\text{He} &= (36.0 \pm 0.9) \cdot ^{21}\text{Ne}/^4\text{He} + (0.148 \pm 0.015), \\ ^{38}\text{Ar}/^{21}\text{Ne} &= (9.4 \pm 0.8) \times 10^{-3} \cdot ^4\text{He}/^{21}\text{Ne} + (2.06 \pm 0.04). \end{aligned}$$

From the $^{38}\text{Ar}/^{21}\text{Ne}$ ratio a parameter n was calculated for each sample which according to GEISS, OESCHGER und SCHWARZ is a number measuring the effective irradiation hardness. Relations between n , $^3\text{He}/^4\text{He}$, $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$, and $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$ have been studied.

A slight variation of the $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ has been found which is correlated to the effective irradiation hardness. The spallation yield of ^{36}Ar relative to the total isobaric yield does not depend on the effective irradiation hardness.

Ein Anliegen der Meteoritenforschung ist es, die Frage zu klären, wie die Meteorite entstanden sind und welche Entwicklungsgeschichte sie durchgemacht haben. Ein Beitrag hierzu kann durch die Bestimmung ihrer Bestrahlungsalter, d. h. der Zeit, der sie dem Beschuß von hochenergetischen Teilchen der kosmischen Strahlung ausgesetzt waren, erbracht werden. In unserem Laboratorium werden seit einigen Jahren Untersuchungen zur Bestimmung der Bestrahlungsalter der Eisenmeteorite durchgeführt¹⁻³, wobei die Erzeugung von radioaktiven (^{40}K , ^{36}Cl) und stabilen (^{21}Ne , ^{38}Ar , ^{41}K) Spallationsprodukten durch die kosmische Strahlung im Meteoriten ausgenutzt wird.

Eine genaue Altersangabe kann bei diesen Methoden nur erfolgen, wenn die effektive Härte der erzeugenden Strahlung in den untersuchten Proben genau bekannt ist. Die heute auf der Erde untersuchten Proben von Eisenmeteoritenmaterie entstammen meist dem Inneren von Körpern, die im interplanetaren Raum der kosmischen Strahlung ausgesetzt waren. Durch Ablation beim Durchgang durch Erdatmosphäre oder durch Verwitterung auf der Erde können die äußeren Schichten dieser Körper verloren gehen. Die heute untersuchten Proben sind daher gegen die Höhenstrahlung mehr oder weniger abgeschirmt gewesen. Ein Teil der Kernreaktionen erfolgte so durch niederenergetische Sekundärteil-

chen, deren Spallationswirkungen von denen der primären Teilchen verschieden sind.

Die effektive Härte der erzeugenden Strahlung kann aus den Konzentrationsverhältnissen ihrer Spallationsprodukte errechnet werden. Es wurden deshalb Proben von 36 Eisenmeteoriten untersucht und die Konzentration und Isotopenzusammensetzung der Edelgase Helium, Neon und Argon gemessen. Einen Überblick der bisher veröffentlichten Literatur über stabile und radioaktive Spallationsprodukte in Meteoriten geben zwei in dieser Zeitschrift kürzlich veröffentlichte Arbeiten^{4, 5}.

I. Durchführung der Versuche

Die Meßapparatur bestand aus drei Teilen: dem Entgasungs- und Reinigungsteil, dem Massenspektrometer und der Anlage zur Spike-Zugabe.

Die Proben wurden aus einem Degussittiegel verdampft, der in einem induktiv geheizten Tantalofen auf 1900 °C gebracht werden konnte. Dieser Tantalofen war, auch an seiner Außenseite, durch ein getrenntes Vakuumsystem vor Oxydation geschützt. Die extrahierten Gase befanden sich in einem ganz aus Metall gebauten Verdampfungsraum, wodurch eventuelle Gasverluste durch Hochfrequenz induzierte Gasentladungen vermieden wurden. Die Reinigung der extrahierten Edelgase erfolgte mit heißem Titanschwamm bei 600 bis 800 °C, der nach einer 20-minütigen Einwirkzeit abgekühlt wurde, damit auch der vorhandene Wasserstoff adsorbiert wurde.

* In dieser Arbeit werden Ergebnisse der Dissertation von L. SCHULTZ verwendet (D 77).

¹ H. VOSHAGE u. H. HINTENBERGER, in „Radioactive Dating“, International Atomic Energy Agency, Wien 1963, S. 367.

² H. VOSHAGE u. D. C. HESS, Z. Naturforschg. **19 a**, 341 [1964].

³ E. VILCZEK u. H. WÄNKE, in „Radioactive Dating“, International Atomic Energy Agency, Wien 1963, S. 381.

⁴ H. HINTENBERGER u. H. WÄNKE, Z. Naturforschg. **19 a**, 210 [1964].

⁵ F. BEGEMANN, Z. Naturforschg. **20 a**, 950 [1965].



Das doppelfokussierende Massenspektrometer mit korrigierten Bildfehlern⁶ war mit einer Elektronenstoß-Ionenquelle ohne Hilfsmagnete und einem Cu-Be-Multiplier ausgerüstet. Es konnte bis 450 °C ausgeheizt werden, der Druck bei statischem Betrieb war besser als $2 \cdot 10^{-9}$ Torr. Die Massendiskriminierung des Spektrometers wurde durch Eichung mit Hilfe von $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Mischungen und Edelgasen der Atmosphäre bestimmt.

Diese Eichmischungen, sowie quantitativ bekannte Gasmengen von ^3He , Luftneon und ein in ^{36}Ar angereichertes Argon wurden in Glasampullen (ca. $0,3 \text{ cm}^3$ Inhalt) abgefüllt. Die Spikeampullen mit den Gasmengen von ca. $1 \cdot 10^{-5}$ bis $1 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^3$ NTP konnten im Vakuum zertrümmert und in die gesamte Apparatur eingelassen werden.

Die zu untersuchenden Meteoritenproben (ca. 100 bis 600 mg) wurden mit HNO_3 geätzt und mit destilliertem Wasser und Äthanol gewaschen. Nach einer 15-stündigen Vorheizzeit bei ca. 120 °C im Vakuum zur Beseitigung oberflächlich adsorbierter Gase, dem Verdampfen der Proben und der Reinigung der Edelgase, wurde Argon an Aktivkohle bei der Temperatur des siedenden Stickstoffs gebunden und die Isotopenzusammensetzung des Heliums und Neons im Massenspektrometer bestimmt. Die quantitative Bestimmung der Gasmengen erfolgte anschließend durch Isotopenverdünnung. Danach wurde Argon von der Kohlefalle desorbiert und genau wie Helium und Neon gemessen.

Ein Memory-Effekt wurde bei diesen Messungen nicht beobachtet. Die maximalen Mengen an Edelgasen im Spektrometer waren stets kleiner als $5 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^3$ NTP.

II. Meßergebnisse

In Tab. 1 sind die untersuchten Meteorite, ihre Klasse nach HEY⁷, das bekannte Gesamtgewicht sowie Nickelgehalt und Herkunft der Proben aufgeführt. Für den Nickelgehalt wurden stets die neuesten Ergebnisse von WASSON⁸ bevorzugt.

Herkunft der Proben:

- AMNH: American Museum of Natural History, New York, N.Y., Prof. B. MASON.
 AMS: Australian Museum, Sydney, Mr. R. O. CHALMERS.
 ASU: Arizona State University, Tempe, Ariz., Prof. C. B. MOORE.
 CHNM: Chicago Natural History Museum, Chicago, Ill., Dr. E. OLSEN.
 GMHU: Geol. Museum Harvard University, Cambridge, Mass., Prof. C. FRONDEL.
 GMS: Geol. Survey, Mines Dep., Melbourne, Mr. J. L. KNIGHT.
 MPIH: Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg, Dr. J. ZÄHRINGER.
 MPIM: Max-Planck-Institut für Chemie (Otto-Hahn-Institut), Mainz.
 MSU: Michigan State University, East Lansing, Mich., Dr. VON DEL CHAMBERLAIN.
 TÜB: Mineralog. Institut Universität Tübingen, Prof. VON ENGELHARDT, Dr. W. WEISKIRCHNER.
 USNM: U.S. National Museum, Washington D.C., Dr. R. S. CLARKE, Dr. E. P. HENDERSON.

| Nr. | Meteorit | Klasse | Gewicht kg | Ni % | Bezeichnung der Probe | Herkunft |
|-----|---------------------------|--------|---------------|--------------------|--------------------------|----------|
| 1 | Ainsworth | Ogg | 10,5 | 6,1 | 420.1 | ASU |
| 2 | Babb's Mill | D | 145 | 17,3 | | GMHU |
| 3 | Butler | Off | 41 | 16,0 | 137.x | ASU |
| 4 | Cambria | Of | 16 | 10,6 ⁷ | 9112006 | TÜB |
| 5 | Campo del Cielo (El Taco) | H | sehr groß | 5,5 ⁹ | —17/5 | MPIM |
| 6 | Cape of Good Hope | D | 136 | 16,5 | 262 a | ASU |
| 7 | Carlton | Of | 81 | 13,0 | 3851 | AMNH |
| 8 | Charlotte | Of | 4,3 | 8,2 | | GMHU |
| 9 | Costilla Peak | Om | 35 | 7,8 | 856 | CNHM |
| 10 | Cowra | Off | 5,3 | 13,7 ¹⁰ | 6444 | AMS |
| 11 | Delegate | Om | 27,7 | 10,0 | 7888 | AMS |
| 12 | Glorieta Mountain | Om-P | 145 | 12,2 | 2170 | CNHM |
| 13 | Gundaring | Om | 110 | 8,2 ⁷ | 312 | MPIH |
| 14 | Hill City | Off | 11,7 | 9,3 ⁷ | 1446 | USNM |
| 15 | Hoba | D | groß | 16,2 ⁷ | 193 | MPIH |
| 16 | Huizopa | Of | 120 | 7,8 | 2232 | AMNH |
| 17 | Iron River | Of | 1,4 | 8,0 | 1006.4 | MSU |
| 18 | Kalkaska | Om | 9,4 | | 1005.3 | MSU |
| 19 | Merceditas | Om | 43 | 7,3 ⁷ | 586 | CNHM |
| 20 | Moonbi | Of | 13 | 7,9 ⁷ | 1253 | AMS |
| 21 | Mount Edith | Om | 326 | 8,7 | 1959 | CNHM |
| 22 | Mungindi | Off | 51 | 10,7 | 2486 | AMS |
| 23 | Nocoleche | Og | 20 | 6,4 ¹⁰ | 164 | AMNH |
| 24 | Osseo | Og | 46,3 | 6,4 | 925 | USNM |
| 25 | Ponca Creek | Ogg | 45 | 5,9 | 421.1 | ASU |
| 26 | Puente del Zacate | Om | 30,7 | 8,2 ⁷ | 946 | ASU |
| 27 | Putnam County | Of | 32,5 | 7,9 | 246.2 | ASU |
| 28 | Rodeo | Of | 43 | 11,1 | 319 | USNM |
| 29 | Sanderson | Om | 6,8 | 10,0 ¹¹ | 441.3x | ASU |
| 30 | Santa Apollonia | Om | 1317 | 7,8 ⁷ | 112.38 | AML |
| 31 | South Byron | D | 6 | 18,5 | 2555 | CNHM |
| 32 | Trenton | Om | 455 | 8,2 | ATI —10/+2 | MPIM |
| 33 | Weaver Mountain | D | 39 | 18,0 | 313.1 | TÜB |
| 34 | Wedderburn | D | 0,2 | 22,2 | 11893 | GSM |
| 35 | Williams-town | Om | 31 | 7,3 ⁷ | 801 | AMNH |
| 36 | Yanhuitlan | Of | 421 | 7,4 | 129a | ASU |

Tab. 1. Name, Klasse, Gewicht und Herkunft der untersuchten Meteoritenproben. Für die angegebenen Nickelgehalte wurden die neuesten Ergebnisse von WASSON⁸ bevorzugt.

⁶ H. HINTENBERGER u. L. A. KÖNIG, *Advances in Mass Spectrometry* (Ed. J. D. WALDRON), Pergamon Press, London—New York 1959.

⁷ M. H. HEY, *Catalogue of Meteorites*, The British Museum, London 1966.

⁸ J. T. WASSON, Persönl. Mitteilung an Dr. VOSHAGE, zit. in ²¹.

⁹ F. R. PARK, T. E. BUNCH u. T. B. MASSALSKI, *Geochim. Cosmochim. Acta* **30**, 399 [1966].

¹⁰ J. F. LOVERING, W. NICHIPORUK, A. CHODOS u. H. BROWN, *Geochim. Cosmochim. Acta* **11**, 263 [1957].

¹¹ E. GOLDBERG, A. UCHIYAMA u. H. BROWN, *Geochim. Cosmochim. Acta* **2**, 1 [1951].

| Nr. | Meteorit | ³ He | ⁴ He | ²¹ Ne | ³⁸ Ar | ³ He ⁴ He | ³ He ²¹ Ne | ⁴ He ²¹ Ne | ³⁸ Ar ²¹ Ne | ²² Ne ²¹ Ne | ³⁶ Ar ³⁸ Ar | <i>n</i> | Autor |
|-----|-------------------|-----------------|-----------------|------------------|------------------|------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|--------------------------------------|--------------------------------------|--------------------------------------|----------|-------|
| 1 | Ainsworth | 530 | 2160 | 5,97 | 32,5 | 0,245 | 89,0 | 362 | 5,44 | 1,04 | 0,651 | 2,58 | |
| 2 | Babb's Mill | 13 | 49 | 0,175 | 0,83 | 0,266 | 74,4 | 280 | 4,75 | 1,08 | 0,599 | 2,39 | |
| 3 | Butler | 323 | 1271 | 3,55 | 19,5 | 0,254 | 91 | 359 | 5,50 | 1,05 | 0,638 | 2,59 | |
| 4 | Cambria | 240 | 975 | 2,46 | 14,25 | 0,246 | 97,5 | 396 | 5,80 | 1,05 | 0,624 | 2,64 | |
| 5 | Campo del Cielo | | | | | | | | | | | | |
| | El Taco | 1,3 | 6,7 | 0,011 | 0,09 | 0,194 | 118 | 611 | 8,20 | 1,50 | 1,0 | 3,1 | |
| 6 | Cape of Good Hope | 275 | 1180 | 2,52 | 15,1 | 0,233 | 109 | 468 | 5,99 | 1,04 | 0,657 | 2,70 | |
| 7 | Carlton | 370 | 1378 | 4,46 | 21,5 | 0,269 | 83,9 | 308 | 4,80 | 1,06 | 0,644 | 2,37 | |
| 8 | Charlotte | 321 | 1015 | 4,46 | 18,5 | 0,316 | 72 | 227 | 4,15 | 1,05 | 0,665 | 2,14 | |
| | | 386 | 1170 | 5,14 | | 0,329 | 75 | 228 | | 1,03 | | | 4 |
| 9 | Costilla Peak | 600 | 2055 | 7,68 | 34,0 | 0,292 | 78,1 | 267 | 4,42 | 1,05 | 0,678 | 2,40 | |
| 10 | Cowra | 578 | 2260 | 7,12 | 35,8 | 0,252 | 81,1 | 317 | 5,02 | 1,05 | 0,645 | 2,44 | |
| 11 | Delegate | 578 | 1946 | 7,78 | 36,9 | 0,297 | 73,4 | 250 | 4,75 | 1,05 | 0,660 | 2,35 | |
| 12 | Glorieta Mountain | 88 | 344 | 1,08 | 5,7 | 0,256 | 81,5 | 319 | 5,28 | 1,05 | 0,636 | 2,51 | |
| 13 | Gundaring | 572 | 2178 | 6,60 | 33,0 | 0,262 | 86,5 | 330 | 5,00 | 1,05 | 0,639 | 2,42 | |
| | | | | 31,0 | | | | | | | | | 12 |
| 14 | Hill City | 260 | 923 | 3,70 | 16,3 | 0,282 | 70,4 | 250 | 4,40 | 1,05 | 0,657 | 2,23 | |
| 15 | Hoba | 53 | 224 | 0,48 | 3,1 | 0,236 | 110 | 466 | 6,45 | 1,06 | 0,608 | 2,84 | |
| | | 35 | 157 | | | 0,222 | | | | | | | 13 |
| | | | | | 4,0 | | | | | | | | 12 |
| 16 | Huizopa | 218 | 810 | 2,56 | 13,1 | 0,269 | 85 | 316 | 5,11 | 1,04 | 0,637 | 2,46 | |
| 17 | Iron River | 340 | 1085 | 4,67 | 19,0 | 0,313 | 72,7 | 232 | 4,06 | 1,04 | 0,672 | 2,11 | |
| 18 | Kalkaska | 387 | 1303 | 5,05 | 23,4 | 0,296 | 76,6 | 258 | 4,64 | 1,04 | 0,658 | 2,32 | |
| 19 | Merceditas | 545 | 2015 | 6,41 | 31,2 | 0,270 | 85 | 314 | 4,86 | 1,05 | 0,639 | 2,38 | |
| | | 540 | 2040 | 6,55 | 34,0 | 0,265 | 82,5 | 310 | 5,19 | 1,05 | 0,645 | | 14 |
| | | 565 | 2036 | | | 0,278 | | | | | | | 13 |
| | | 566 | 2160 | 7,00 | 34,2 | 0,263 | 81 | 309 | 4,89 | | 0,637 | | 15 |
| 20 | Moonbi | 381 | 1390 | 5,13 | 22,5 | 0,274 | 74,2 | 271 | 4,39 | 1,05 | 0,640 | 2,23 | |
| 21 | Mount Edith | 450 | 1740 | 6,05 | 27,0 | 0,259 | 74,5 | 289 | 4,47 | 1,05 | 0,675 | 2,26 | |
| | | 500 | 1865 | 7,00 | 32,0 | 0,268 | 71,5 | 266 | 4,60 | 1,07 | 0,635 | 2,31 | 5 |
| 22 | Mungindi Nr. 2 | 378 | 1422 | 4,68 | 25,5 | 0,266 | 80,6 | 304 | 5,45 | 1,05 | 0,646 | 2,56 | |
| 23 | Nocoleche | 163 | 673 | 1,93 | 10,1 | 0,242 | 84,5 | 348 | 5,23 | 1,05 | 0,626 | 2,48 | |
| 24 | Osseo | 314 | 1060 | 4,60 | 19,2 | 0,296 | 68,4 | 230 | 4,18 | 1,04 | 0,663 | 2,14 | |
| | | 329 | 1137 | 4,65 | | 0,289 | 70,8 | 245 | | 1,02 | | | 18 |
| 25 | Ponca Creek | 517 | 2005 | 6,10 | 31,6 | 0,258 | 84,7 | 329 | 5,18 | 1,04 | 0,630 | 2,46 | |
| 26 | Puente del Zacate | 543 | 2040 | 6,72 | 32,0 | 0,266 | 80,7 | 303 | 4,78 | 1,04 | 0,642 | 2,35 | |
| 27 | Putnam County | 326 | 1112 | 4,01 | 20,3 | 0,293 | 80,1 | 277 | 5,05 | 1,03 | 0,654 | 2,44 | |
| | | 361 | 1247 | | | 0,289 | | | | | | | 13 |
| 28 | Rodeo | 284 | 1050 | 3,70 | 18,4 | 0,271 | 76,6 | 284 | 4,97 | 1,05 | 0,667 | 2,42 | |
| 29 | Sanderson | 412 | 1595 | 5,41 | 25,3 | 0,258 | 76 | 294 | 4,67 | 1,07 | 0,641 | 2,32 | |
| 30 | St. Apolonia | 204 | 790 | 2,51 | 12,9 | 0,258 | 81,4 | 315 | 5,14 | 1,05 | 0,646 | 2,46 | |
| | | 210 | 815 | 2,58 | 12,4 | 0,258 | 81,5 | 316 | 4,80 | | 0,627 | | 15 |
| 31 | South Byron | 187 | 693 | 2,62 | 10,8 | 0,270 | 71,5 | 264 | 4,13 | 1,05 | 0,661 | 2,12 | |
| 32 | Trenton | 370 | 1425 | 4,79 | 24,8 | 0,259 | 77,4 | 298 | 5,19 | 1,06 | 0,633 | 2,48 | |
| | | | | 22,0 | | | | | | | | | 12 |
| | | 441 | 1713 | 4,60 | | 0,258 | 95,7 | 372 | | 1,02 | | | 18 |
| 33 | Weaver Montain | 288 | 1104 | 3,42 | 17,4 | 0,261 | 84,2 | 323 | 5,09 | 1,05 | 0,631 | 2,48 | |
| | | 287 | 1106 | | | 0,260 | | | | | | | 13 |
| 34 | Wedderburn | 92 | 316 | 1,30 | 5,6 | 0,291 | 71 | 242 | 4,31 | 1,05 | 0,654 | 2,23 | |
| 35 | Williamstown | 519 | 1791 | 7,22 | 33,3 | 0,289 | 71,9 | 248 | 4,61 | 1,07 | 0,635 | 2,30 | |
| | | 480 | 1920 | 6,0 | 26,4 | 0,25 | 80 | 320 | 4,40 | 1,12 | 0,666 | | 17 |
| | | 463 | 1800 | 5,28 | 28,0 | 0,257 | 87,7 | 340 | 5,33 | 1,06 | 0,635 | | 14 |
| | | 585 | 2047 | 6,43 | | 0,286 | 91 | 318 | | 1,01 | | | 18 |
| 36 | Yanhuitlan | 174 | 663 | 1,95 | 10,6 | 0,263 | 89,4 | 340 | 5,44 | 1,04 | 0,617 | 2,54 | |

Tab. 2. Mittelwerte der Edelgasanalysen. Alle Konzentrationen sind in 10^{-8} cm³ NTP/g Meteorit angegeben. Es wurden außerdem die in der Literatur veröffentlichten Edelgasmengen von gleichen Meteoriten eingetragen. Aus dem gemessenen ³⁸Ar/²¹Ne-Verhältnis wurde unter Berücksichtigung des Nickelgehaltes der Härteindex *n* der effektiven, die spallogenen Edelgase erzeugenden Strahlung, berechnet.

¹² P. LÄMMERZAHN u. J. ZÄHRINGER, *Geochim. Cosmochim. Acta* **30**, 1659 [1966].

¹³ C. A. BAUER, *J. Geophys. Res.* **68**, 6043 [1963].

¹⁴ P. SIGNER u. A. O. NIER, in „Researches on Meteorites“ (Ed. C. B. MOORE), John Wiley & Sons, New York 1962, p. 7.

¹⁵ M. E. LIPSCHUTZ, P. SIGNER u. E. ANDERS, *J. Geophys. Res.* **70**, 1473 [1965].

¹⁶ O. A. SCHAEFFER u. D. HEYMANN, *J. Geophys. Res.* **70**, 215 [1965].

¹⁷ O. A. SCHAEFFER u. J. ZÄHRINGER, *Geochim. Cosmochim. Acta* **19**, 94 [1960].

¹⁸ H. HINTENBERGER, L. SCHULTZ, H. WÄNKE u. H. WEBER, *Z. Naturforsch.* **22 a**, 780 [1967].

Von allen Meteoriten wurden mehrere Edelgasmessungen, mindestens 2, durchgeführt, die Mittelwerte der Meßergebnisse sind in Tab. 2 aufgeführt. Die bei den Einzelmessungen eines Meteoriten beobachteten Edelgaskonzentrationen stimmen stets innerhalb von mindestens 10% miteinander überein.

Die Fehler in den absoluten Mengen sollten kleiner als 8% sein, die der Isotopenhäufigkeiten kleiner als 3%. Die Hauptfehlerquelle dürfte die Kalibrierung der Eichampullen darstellen, da hier der Fehler der Volumenmessung beim Auswiegen der Ampulle mit Quecksilber zu 3% angesetzt werden muß und der Fehler der Druckmessung beim Füllen der Ampullen auch je nach Probenmenge bis 3% betragen kann.

In Tab. 2 sind auch die in der Literatur aufgeführten Edelgasmessungen anderer Autoren von gleichen Meteoriten angegeben. Die Übereinstimmung der Messungen an den meisten der gemeinsam gemessenen Meteorite wie z.B. Charlotte, Gundaring, Hoba, Merceditas, Osseo, Putnam County, Santa Apolonia und Trenton sind gut; die geringe Zahl der Abweichungen kann durch die unterschiedliche Probenlage erklärt werden, wie bei Mt. Edith und Williams-town.

Bei den Messungen brauchte nur für Argon eine Untergrundkorrektur durchgeführt werden. Hierbei wurde angenommen, daß alles ^{40}Ar aus Luftverunreinigungen stammt. ^{36}Ar und ^{38}Ar sind entsprechend korrigiert.

Wegen der Massendiskriminierung beim Nachweis mit dem Multiplier wurde das Verhältnis $^3\text{He}/^4\text{He}$ korrigiert. Der Korrekturfaktor wurde laufend kontrolliert, er änderte sich im Laufe der Messungen um höchstens 0,5%. Die gleichen Korrekturen, wenn auch in wesentlich kleinerem Maße (jeweils 2%), wurden für die Verhältnisse $^{22}\text{Ne}/^{21}\text{Ne}$ und $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ angebracht. Massendiskriminierungen beeinflussen die quantitative Bestimmung der Konzentrationen von ^3He , ^{21}Ne und ^{38}Ar nicht, da sie bei der Isotopenverdünnungsmethode eliminiert werden.

III. Diskussion

a) Beziehungen der Konzentrationsverhältnisse untereinander

Das Verhältnis der spallogenen Konzentrationen der Isotope ^3He und ^{38}Ar aus Eisenmeteoriten ist im Gegensatz zu anderen Konzentrationsverhältnis-

sen keinen großen Schwankungen ausgesetzt. In Abb. 1 ist das $^{38}\text{Ar}/^{21}\text{Ne}$ - über dem $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis aufgetragen. Die durchgezogene Gerade entspricht einem Wert für das $^3\text{He}/^{38}\text{Ar}$ -Verhältnis von 16,4, der gleichzeitig der Mittelwert aller Messungen

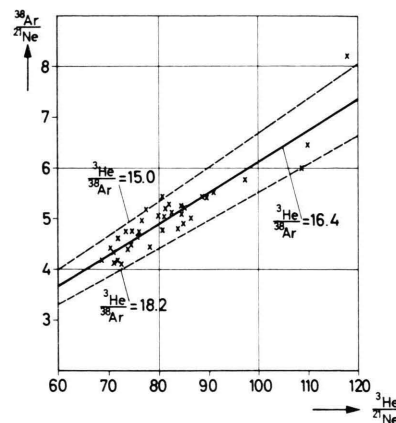


Abb. 1. $^{38}\text{Ar}/^{21}\text{Ne}$ als Funktion von $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$. Die eingezeichnete Gerade, in deren Umgebung die Meßpunkte für alle Meteorite liegen, die nur reine Spallationsedelgase enthalten, genügt der Gleichung $^{38}\text{Ar}/^{21}\text{Ne} = (0,061 \pm 0,006) ^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$. Das aus dem Diagramm ableitbare Verhältnis $^3\text{He}/^{38}\text{Ar}$ zeigt nur geringe Abweichungen vom Mittelwert $^3\text{He}/^{38}\text{Ar} = 16,4$.

ist. Dieser Wert stimmt mit dem Mittelwert anderer Autoren gut überein (15,8 bis 16,7)^{5, 12, 14, 15}. Würde dieses Verhältnis von der Probenlage im Meteoriten abhängen, dann müßten sich die Meßpunkte bei wachsendem $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ zur gestrichelt eingezeichneten oberen ($^3\text{He}/^{38}\text{Ar} = 15$) oder unteren ($^3\text{He}/^{38}\text{Ar} = 18,2$) Geraden verschieben, da das $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis von der Härte der effektiven Strahlung abhängig ist (siehe nächsten Abschnitt).

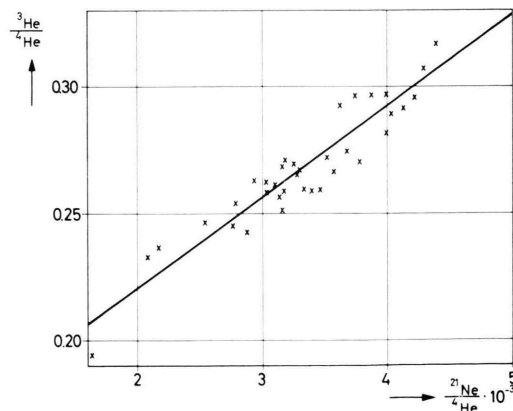


Abb. 2. $^3\text{He}/^4\text{He}$ als Funktion von $^{21}\text{Ne}/^4\text{He}$. Die eingezeichnete Gerade genügt der Gleichung

$$^3\text{He}/^4\text{He} = (36,0 \pm 0,9) \cdot ^{21}\text{Ne}/^4\text{He} + (0,148 \pm 0,015).$$

In Abb. 2 ist das $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis über $^{21}\text{Ne}/^4\text{He}$ aufgetragen. Die wahrscheinlichste Gerade durch die Meßpunkte genügt der Gleichung

$$^3\text{He}/^4\text{He} = (36,0 \pm 0,9) \cdot ^{21}\text{Ne}/^4\text{He} + (0,148 \pm 0,015). \quad (1)$$

Hieraus ergibt sich der spallogene Neongehalt einer Probe eines Eisenmeteoriten in Abhängigkeit ihrer Heliumisotopen-Konzentration:

$$^{21}\text{Ne} = \frac{1}{(36,0 \pm 0,9)} \cdot [^3\text{He} - (0,148 \pm 0,015) ^4\text{He}]. \quad (2)$$

Der Grenzwert für das kleinste mögliche $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis durch Spallation von meteoritischem Nickel-Eisen berechnet sich daraus zu $(^3\text{He}/^4\text{He})_{\min} = (0,148 \pm 0,015)$.

In Abb. 3 ist das $^{38}\text{Ar}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis als Funktion des $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$ aufgetragen. Die Abhängigkeit läßt sich für den untersuchten Bereich auch hier noch näherungsweise durch eine Gerade beschreiben, die die Form hat

$$^{38}\text{Ar}/^{21}\text{Ne} = (9,4 \pm 0,8) \cdot 10^{-3} \cdot ^4\text{He}/^{21}\text{Ne} + (2,06 \pm 0,04). \quad (3)$$

Die angegebenen mittleren quadratischen Felder sind in Abb. 3 als gestrichelte Linien eingezeichnet.

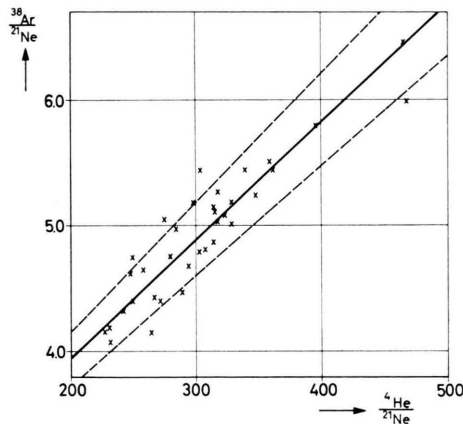


Abb. 3. $^{38}\text{Ar}/^{21}\text{Ne}$ als Funktion von $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$. Die eingezeichnete Gerade entspricht der Gleichung

$$^{38}\text{Ar}/^{21}\text{Ne} = (9,4 \pm 0,8) \cdot 10^{-3} \cdot ^4\text{He}/^{21}\text{Ne} + (2,06 \pm 0,04).$$

b) Die Härte der erzeugenden Strahlung

Für das differentielle Energiespektrum der die Edelgase erzeugenden Strahlung kann folgender Ansatz gemacht werden:

$$f(E) dE = f_0 E^{-\alpha} dE, \quad (4)$$

wobei f_0 eine Konstante und α eine die Härte der Strahlung charakterisierende Größe ist.

GEISS, OESCHGER und SCHWARZ¹⁹ berechneten die durch eine solche Strahlung produzierte totale Spallationsausbeute einer Isobaren:

$$N(\Delta A, A_0) = \frac{3 \sigma_0 A_0^{2/3} f_0 \Gamma(n) (\Delta A)^{-n}}{2 c^{n-1}}. \quad (5)$$

Hierbei ist A_0 die Nukleonenzahl des Targetkerns, ΔA die Differenz zu der des Spallationsproduktes,

$$n = \frac{3\alpha-1}{2}, \quad c = \frac{c_1}{1+c_2 A_0}, \quad \Gamma(n) = \int_0^\infty x^{n-1} e^{-x} dx.$$

Die Konstanten σ_0 , c_1 und c_2 sind empirisch bestimmt.

Die Größe n bezeichnet man als Härteindex der effektiven Strahlung, kleines n bedeutet einen hohen Anteil hochenergetischer Teilchen, die besonders bei kleinen Meteoriten oder an der Oberfläche großer Meteorite als primäre kosmische Strahlung wirksam werden. Im Inneren großer Meteorite – hier wird ein Teil der Spallationsprodukte durch niederenergetische Sekundärteilchen gebildet – ist der Härteindex n entsprechend größer. Betrachtet man die Bestrahlung von Eisen, dann gilt die Beziehung (5) für Spallationsprodukte des Massenbereichs von etwa $A=20$ bis $A=50$. Es kann also das theoretische Produktionsverhältnis $P(^{38}\text{Ar}/^{21}\text{Ne})$ – beide Isotope enthalten eine vollständige Isobarenausbeute – als Funktion von n berechnet werden:

$$\frac{P(38, A_0)}{P(21, A_0)} = \left(\frac{A_0 - 21}{A_0 - 38} \right)^n. \quad (6)$$

Mit Hilfe des gemessenen $^{38}\text{Ar}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnisses der Proben und unter Berücksichtigung ihres Nickelgehaltes [$A_0(\text{Fe}) = 55,8$, $A_0(\text{Ni}) = 58,7$] wurde so der Härteindex n gewonnen, der für alle Meteoritenproben in Tab. 2 aufgeführt ist.

Die kleinsten Meteorite, die untersucht wurden (Wedderburn, Iron River, Charlotte und South Byron), weisen die kleinsten Härteindices (2,11 bis 2,23) auf; hier sind die untersuchten Proben nur wenig abgeschirmt gewesen. Die größten Meteorite (El Taco und Hoba) hingegen, haben mit $n=3,1$ bzw. 2,88 große Härteindices. Diese Proben waren gegen die primäre kosmische Strahlung zum Teil abgeschirmt, sie entstammen dem Inneren der Körper, die als Meteorite der kosmischen Strahlung ausgesetzt waren.

¹⁹ J. GEISS, H. OESCHGER u. U. SCHWARZ, Space Sci. Rev. 1, 197 [1962].

Diese so gewonnenen Härteindices können nun mit den Konzentrationsverhältnissen der Edelgasisotope verglichen werden, was in tabellarischer Form schon bei VOSHAGE und HINTENBERGER¹ für einige Meteorite erfolgte.

Abb. 4 bis 6 zeigen die Verhältnisse $^3\text{He}/^4\text{He}$, $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ und $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$ in Abhängigkeit vom Härteindex n . Die stärkste Abhängigkeit zeigen die Verhältnisse, die ^{21}Ne enthalten, da Neon durch Spallation aus Eisen fast ausschließlich durch die primäre Strahlung erzeugt wird²⁰. So vergrößert sich das $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis bei einem Anwachsen von $n=2$ auf $n=3$ um einen Faktor drei.

Die Bestimmung von n für eine Meteoritenprobe kann über das $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis ohne eine quantitative Edelgasanalyse erfolgen.

Bei SIGNER und NIER¹⁴ wird ein Verfahren angegeben, wie allein aus Edelgasdaten einer Probe eines Eisenmeteoriten sein Bestrahlungsalter berechnet werden kann. Diese Alter sind allerdings mit einem großen Fehler behaftet, da der präatmosphärische Radius des Meteoriten abgeschätzt werden muß. So beträgt bei einem Alter von 600 Millionen Jahren der Fehler etwa 20%, er kann bei weich bestrahlten oder jüngeren Proben diesen Wert noch überschreiten. Um Gruppierungen im Bestrahlungsalterdiagramm der Eisenmeteorite erkennen und deuten zu können, ist aber eine genauere Bestimmung dieses Alters nötig. Deshalb wurde in dieser Arbeit auf die Berechnung von Bestrahlungsaltern verzichtet, sie erfolgte bei VOSHAGE²¹ aus der Häufigkeit

der spallogenen Kaliumisotope mit wesentlich höherer Genauigkeit. Dabei wurden die in dieser Arbeit bestimmten Härteindices zur genauen Berechnung der Bestrahlungsalter benutzt.

c) $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ -Verhältnisse

Die gemessenen $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ -Verhältnisse zeigen nur kleine Schwankungen, mit zunehmendem n sollte dieses Verhältnis kleiner werden, da der Spallationskern ^{36}Ar weiter als ^{38}Ar vom Targetkern entfernt liegt. In Abb 7 a ist dieser Gang deutlich zu erken-

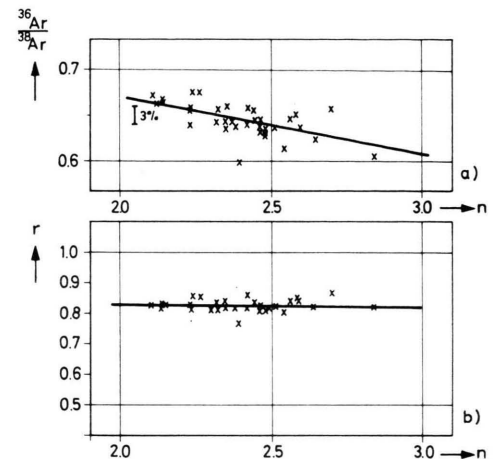


Abb. 7 a. $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ in Abhängigkeit vom Härteindex n der effektiven Strahlung.

Abb. 7 b. Der Anteil r des Kerns ^{36}Ar an der Gesamtspallationsausbeute der Isobaren $A=36$ in Abhängigkeit von der Härte der effektiven Strahlung.

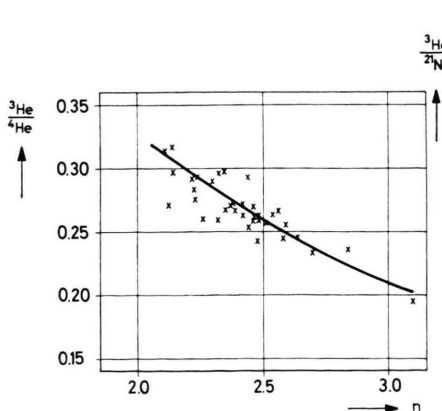


Abb. 4. $^3\text{He}/^4\text{He}$ in Abhängigkeit vom dem Härteindex n der effektiven Strahlung, die die Edelgase erzeugt.

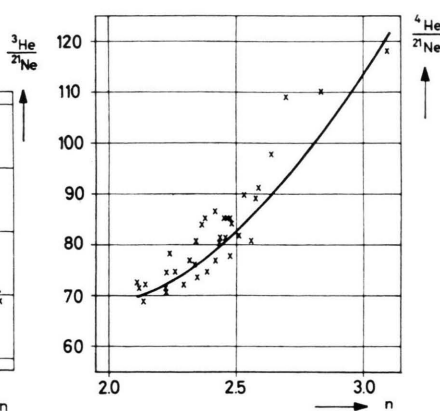


Abb. 5. $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ als Funktion des Härteindex n der effektiven Strahlung.

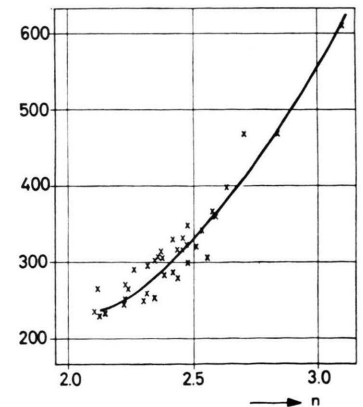


Abb. 6. $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$ in Abhängigkeit der erzeugenden effektiven Strahlungshärte n .

²⁰ P. SIGNER u. A. O. NIER, J. Geophys. Res. **65**, 2947 [1960].

²¹ H. VOSHAGE, Z. Naturforsch. **22 a**, 477 [1967].

²² D. HEYMANN, M. E. LIPSCHUTZ, B. NIELSEN u. E. ANDERS, J. Geophys. Res. **71**, 619 [1966].

nen. Der Mittelwert von allen $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ -Verhältnissen (außer El Taco) liegt mit 0,646 um etwa 1,5% über dem Mittelwert der in der Literatur veröffentlichten Werte^{5, 12, 14–16, 22}. Das ist darauf zurückzuführen, daß in dieser Arbeit besonders wenig Meteorite mit hohem n -Wert und damit niedrigerem $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ -Verhältnis gemessen wurden.

^{36}Ar stellt im Gegensatz zu ^{38}Ar keine vollständige Isobarenausbeute dar, da mit ^{36}S ein weiterer stabiler Kern auf der Isobaren $A=36$ liegt. Es wäre nun möglich, daß die Verteilung der Spallationsausbeuten auf dieser Isobaren auch von der Härte der erzeugenden Strahlung abhängt⁵. Der Anteil der Spallationsausbeute r von ^{36}Ar der gesamten Isobaren 36 kann berechnet werden zu

$$r = \frac{N(^{36}\text{Ar})}{\sum N(^{36}\text{X})} = \frac{N(^{38}\text{Ar})}{\sum N(^{38}\text{X})} \cdot \frac{^{36}\text{Ar}}{^{38}\text{Ar}}, \quad (7)$$

wobei der erste Quotient nach (5) berechnet werden kann. Dieser Wert, mit dem gemessenen $^{36}\text{Ar}/^{38}\text{Ar}$ -Verhältnis multipliziert, ergibt die in Abb. 7 b dargestellten r -Werte für die einzelnen Meteoritenproben. Hier läßt sich keine Verschiebung der Spallationsausbeutekurve längs einer Isobaren mit der

Härte beobachten, die Meßwerte gruppieren sich um einen mittleren r -Wert von $\bar{r} = (0,829 \pm 0,003)$.

Ein Vergleich mit den aus der RUDSTAM-Formel (s. Anm.^{23, 24}) zu erwartenden Härteabhängigkeit der Ausbeute ist noch nicht möglich, da der Fehler der mit dieser Formel vorausgesagten Spallationsquerschnitte viel größer als der hier zu erwartende Effekt ist.

Herrn Dr. H. VOSHAGE danken wir für die Vermittlung der Meteoritenproben und für zahlreiche Hinweise und Diskussionen, Herrn H. WEBER für die Hilfe bei der Herstellung der Eichampullen. Ferner möchten wir den Herren G. BERNSEE und U. PAULI für ihre Mitarbeit bei der Durchführung der Experimente danken.

Diese Arbeit wurde durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft und durch das Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung unterstützt. Wir sind für diese Hilfen zu Dank verpflichtet.

Für die Überlassung der Meteoritenproben möchten wir den Herren CHALMERS, Sydney, Dr. VON DEL CHAMBERLAIN, East Lansing, Mich., Dr. CLARKE und Dr. HENDERSON, Washington, D.C., Prof. VON ENGELHARDT und Dr. WEISKIRCHNER, Tübingen, Prof. FRONDEL, Cambridge, Mass., J. L. KNIGHT, Melbourne, Prof. MASON, New York, N.Y., Prof. MOORE, Tempe, Ariz., Dr. OLSEN, Chicago, Ill., und Dr. ZÄHRINGER, Heidelberg, sehr herzlich danken.

²³ G. RUDSTAM, Phil. Mag. **46**, 344 [1955].

²⁴ G. RUDSTAM, Z. Naturforschg. **21 a**, 1027 [1966].