

Helium- und Neonisotope in Eisenmeteoriten und der Tritiumverlust in Hexaedriten

H. HINTENBERGER, L. SCHULTZ, H. WÄNKE und H. WEBER

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

(Z. Naturforschg. 22 a, 780—787 [1967]; eingegangen am 10. März 1967)

The He- and Ne-contents as well as their isotopic composition have been measured of 40 iron meteorites, including 12 hexahedrites. These hexahedrites were of particular interest because many of them showed a definite ^3He -deficiency which we explain by a loss of tritium. This effect was already found by us previously for the hexahedrite *Braunau*. The tritium loss depends on the temperature the meteorites were exposed to, hence, on their orbital elements. Some of the hexahedrites have lost practically all their tritium produced during their exposure to the cosmic rays, indicating that they always had been in the vicinity of the Earth or even closer to the Sun. Two octahedrites, *Anoka* and *Staunton*, suffered an appreciable loss of tritium too.

From the rare gas data of meteorites with a nearly complete loss of tritium the cross-section ratios of the direct production of tritium, ^3He , and ^4He by the cosmic rays in iron meteorites could be calculated.

$$\frac{\sigma(^3\text{He})}{\sigma(\text{T}) + \sigma(^3\text{He})} = 0.33 \pm 0.04; \quad \frac{\sigma(^3\text{He})}{\sigma(\text{T})} = 2.0 \pm 0.3; \quad \frac{\sigma(^3\text{He})}{\sigma(^4\text{He})} = 0.10 \pm 0.02.$$

In the ataxite *Washington County* a portion of the rare gas content was identified to be of primordial origin.

In den letzten Jahren haben wir bereits mehrmals über Edelgasmessungen an Eisenmeteoriten berichtet^{1–5}. Diese Untersuchungen wurden routinemäßig fortgeführt. In dieser Arbeit soll über die inzwischen gewonnenen weiteren Ergebnisse berichtet werden.

Die Edelgase wurden durch Lösen der Meteoritproben in CuCl_2 extrahiert und das befreite Helium und Neon in einer Apparatur zur Mikroanalyse von Edelgasen gemessen, die nach Methoden arbeitet, die von PANETH und seinen Schülern entwickelt wurden^{1, 6–8}. Die Edelgasproben wurden anschließend zur massenspektrometrischen Analyse in Ampullen abgefüllt. Die Isotopenhäufigkeitsmessungen sind in einem 60°-Ganzmetallmassenspektrometer in statischem Betrieb durchgeführt worden. Das Meßverfahren wurde bereits in früheren Arbeiten ausführlich beschrieben^{1, 2, 4}.

Von Ausnahmefällen abgesehen handelt es sich bei allen Edelgasisotopen, die in Eisenmeteoriten gefunden werden, um Reaktionsprodukte der Höhenstrahlung mit den Targetelementen Eisen und Nickel. Die Verhältnisse der Mengen der einzelnen Edelgas-

isotope variieren für die einzelnen Meteorite und auch für Proben aus verschiedener „Tiefe“ von ein und demselben Meteoriten. Diese Variationen sind in erster Linie auf den wechselnden Anteil von Sekundärteilchen an den Spallationsreaktionen zurückzuführen. So werden beispielsweise die Neonisotope fast ausschließlich durch Primärteilchen erzeugt, da nur ein geringer Prozentsatz der Sekundärteilchen Energien besitzt, um Neon aus Eisen mit merklichen Wirkungsquerschnitten zu produzieren. Hierauf hatten erstmalig EBERT und WÄNKE¹ hingewiesen. Ausgehend von einer Arbeit von MARTIN⁹ hatten diese Autoren auch ein Modell angegeben, welches es erlaubt, die Mengenverhältnisse der verschiedenen Spallationsprodukte rechnerisch zu erfassen. SIGNER und NIER¹⁰ haben nach diesem Modell die in verschiedenen Tiefen zu erwartenden Edelgasproduktionsraten errechnet, die stets bestens mit den experimentell gefundenen Edelgaskonzentrationen übereinstimmen. Danach liegen in Eisenmeteoriten die Werte für das $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis zwischen ca. 0,20 und 0,32 und die Werte für das $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis

¹ K. H. EBERT u. H. WÄNKE, Z. Naturforschg. 12 a, 766 [1957].

² H. WÄNKE u. H. HINTENBERGER, Z. Naturforschg. 13 a, 895 [1958].

³ T. HAYAKAWA, H. HINTENBERGER u. H. WÄNKE, Z. Naturforschg. 16 a, 844 [1961].

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

⁵ L. SCHULTZ u. H. HINTENBERGER, Z. Naturforschg. 22 a, 773 [1967].

⁶ F. A. PANETH u. U. PETERS, Z. physik. Chem. A 134, 353 [1928].

⁷ E. GLÜCKAUF, Proc. Roy. Soc. London A 185, 98 [1945].

⁸ K. F. CHACKETT, P. REASBECK u. E. J. WILSON, Geochim. Cosmochim. Acta 3, 261 [1953].

⁹ G. R. MARTIN, Geochim. Cosmochim. Acta 3, 288 [1953].

¹⁰ P. SIGNER u. A. O. NIER, J. Geophys. Res. 65, 2947 [1960].



zwischen etwa 70 und 110. Die Werte für das $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis liegen damit im Bereich zwischen 200 und 450.

In unserer letzten Arbeit⁴ hatten wir einen Meteoriten gefunden, bei dem diese Werte weit außerhalb der angegebenen Grenzen liegen. Es handelte sich um den Hexaedriten Braunau mit $^3\text{He}/^4\text{He} = 0,103$ und $^3\text{He}/^{21}\text{Ne} = 25$. Für einen zweiten Meteoriten, den Pallasiten Colomera, war ein Herausfallen nur im $^3\text{He}/^4\text{He}-\Sigma \text{Ne}/\Sigma \text{He}$ -Diagramm feststellbar.

Das Verhältnis $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$ für Braunau lag mit 244 jedoch gut im Bereich der von uns für Spallationsedelgase gefundenen Werte. Wir haben deshalb für diesen Meteoriten auf einen Tritium-Verlust im Weltraum geschlossen, um die offenkundige Mindermenge von ^3He zu erklären. (Mindestens 50% des in Eisenmeteoriten gefundenen ^3He entsteht durch β -Zerfall aus Tritium.) Inzwischen hat BAUER¹¹ Heliummessungen an mehreren anderen Hexaedriten veröffentlicht. Auch er fand in diesen Meteoriten Werte für das $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis, die um etwa einen Faktor 2 bis 3 zu tief lagen. BAUER schloß jedoch auf einen Überschuß von ^4He ; hervorgerufen entweder durch Uredelgasanteile oder auf Grund von radiogenen Heliumbeimengungen. BAUER ging hierbei von der Tatsache aus, daß sich die tiefen $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnisse stets nur in solchen Meteoriten fanden, deren Gesamtheliumgehalt sehr gering war, so daß in diesen Fällen kleine Mengen an Uredelgasen oder radiogenen Edelgasen durch die Spallationsedelgase nicht vollständig überdeckt wurden. Das $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis wurde von BAUER nicht gemessen.

Wir haben uns nun bemüht, Proben einiger weiterer Hexaedrite zu bekommen und haben wiederum für Hexaedrite mit geringen Edelgasgehalten recht ähnliche Verhältnisse gefunden.

1. Messungen

Tab. 1 enthält alle Angaben über die Herkunft der von uns untersuchten Proben, die Tab. 2 die Ergebnisse der Edelgasanalysen. Wiederum fanden wir, daß die $^3\text{He}/^4\text{He}$ - sowie die $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnisse für Hexaedrite mit kleinem Heliumgehalt wesentlich tiefer liegen, als es nach den Gesetzmäßigkeiten für die Bildung von Spallationsedelgasen zu erwarten ist. Die $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnisse zeigen jedoch keine merklichen Anomalien. Wir müssen allerdings be-

tonen, daß wegen der sehr geringen ^{21}Ne -Mengen in diesen in Frage kommenden Meteoriten von nur einigen $10^{-10} \text{ cm}^3/\text{g}$, die ^{21}Ne -Werte und damit auch die $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ - und $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnisse mit einem größeren Fehler behaftet sind. Die Reproduzierbarkeit dieser sehr niedrigen Neonmengen ist dennoch besser als 20%. Nachdem in ähnlichen Messungen von Proben mit sehr geringen Edelgasgehalten keine Anomalien festgestellt wurden, sind systematische Fehler mit ziemlicher Sicherheit ebenso auszuschließen.

In Abb. 1 wurde das in Tab. 2 angeführte Verhältnis $^3\text{He}/^4\text{He}$ gegen das Verhältnis $^{21}\text{Ne}/^4\text{He}$ aufgetragen. Die Daten für den größten Teil der Meteorite liegen in unmittelbarer Umgebung einer Geraden, die durch die Gleichung

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

dargestellt werden kann. Diese Gerade ist von SCHULTZ und HINTENBERGER⁵ durch Messungen von 36 verschiedenen Eisenmeteoriten normaler spallogener Edelgaskonzentrationen aufgestellt worden. Die angegebenen Grenzen für den Streubereich stellen die mittleren quadratischen Abweichungen dar. Die Meteorite Anoka, Boguslavka, Filomena, Mayodan, Nenntmannsdorf, San Martin, Soper, Staunton, Tocopila und Uwet liegen allerdings ganz wesentlich unterhalb dieser Geraden. Es handelt sich dabei um die bereits oben erwähnte Anomalie, die im nächsten Abschnitt besonders diskutiert wird.

In Abb. 2 ist in ähnlicher Weise das Verhältnis $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ gegen das Verhältnis $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$ aufgetragen. In diesem Diagramm liegen die Meßpunkte für die meisten Meteorite in der Nähe der Geraden

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

Die Diagramme der Abb. 1 und 2 drücken den gleichen Tatbestand aus, und die Gl. (2) läßt sich aus Gl. (1) ableiten. In der folgenden Diskussion ist es jedoch zweckmäßig, beide Darstellungsformen benutzen zu können.

2. Diskussion der Meßergebnisse

Aus den bisherigen Messungen sieht man, daß in den Diagrammen, in welchen das Verhältnis zweier Spallationsnuklide als Funktion des Verhältnisses von zwei anderen Spallationsnukliden aufgetragen

¹¹ C. A. BAUER, J. Geophys. Res. **68**, 6043 [1963].

Nr.	Meteorit	Jahr des Falles oder Fundes	Klas- se	Gesamt- gewicht in kg	Herkunft der Probe	Kartei- Nr.
1	Annaheim	Fund 1916	Og	11,8	Geol. Surv. Canada, Ottawa, Dr. K. R. Dawson	—
2	Anoka	Fund 1961	Of	1,1	Amer. Met. Lab., Nr. H. 1.4	97/1
3	Bischtübe	Fund 1888	Og	48,3	Chicago Nat. Hist. Mus., Nr. 934, Dr. E. Olsen	—
4	Bogou	Fall 14. 8. 1962	Og	8,8	Prof. J. R. Arnold, Univ. Calif., San Diego	—
5	Boguslavka	Fall 31. 12. 1916	H	246	Akad. Wiss. USSR, Moskau, Prof. E. L. Krinow	274/1
6	Canon Diablo	Fund 1891	Og	groß		
7	Casas Grandes	erk. 1867	Om	1547	U. S. Nat. Mus. Washington, Dr. E. P. Henderson	—
8	Cedartown	Fund 1898	H	11,3	U. S. Nat. Mus. Washington, Nr. 1379, Dr. E. P. Henderson	286/1
9	Central Missouri	Fund 1855	H	25	U. S. Nat. Mus. Washington, Nr. 1377 Dr. E. P. Henderson	298/1
10	Descubridora	Fund 1780	Om	576	Chicago Nat. Hist. Mus., Nr. 2, Dr. E. Olsen	—
11	Filomena	Fund 1941	H	21,1	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 43/1
12	Klondike	Fund 1901	D	16,5	Geol. Surv. Canada, Ottawa, D. K. R. Dawson	81/1
13	Lombard	Fund 1953	H	7,2	Amer. Met. Lab., Nr. 658.14	43/1
14	Maria Elena	erk. 1935	Om	15,5	U. S. Nat. Mus. Washington, Nr. 1221 Dr. E. P. Henderson	—
15	Mayodan	Fund 1920	H	15,4	U. S. Nat. Mus. Washington, Dr. E. P. Henderson	—
16	Narraburra	Fund 1855	Of	32,2	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 71/1
17	Nenntmannsdorf	Fund 1872	H	12,5	Staatl. Mus. Min. u. Geol. Dresden, Dr. Prescher	—
18	Norfolk	Fall 1907	Om	23	Amer. Mus. Nat. Hist. New York, Nr. 2686 Dr. B. Mason	—
19	Norfork	Fall 1918	Om	1,05	Arizona State Univ. Tempe, Nr. 296.1 x Dr. C. B. Moore	—
20	Odessa Pa 78/2	Fund vor 1922	Og	groß	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 78/2
21 a/b	Odessa 49/1	Fund vor 1922	Og	groß	Amer. Met. Lab., Nr. 91.191	49/1
21 c	Odessa 49/1	Fund vor 1922	Og	groß	Amer. Met. Lab., Nr. 91.192	49/2
21 d	Odessa 49/3	Fund vor 1922	Og	groß	Amer. Met. Lab., Nr. 91.223	49/3
21 e	Odessa 49/4	Fund vor 1922	Og	groß	Amer. Met. Lab., Nr. 91.186	49/4
22	Osseo	Fund 1931	Ogg	46,3	U. S. Nat. Mus. Washington, Nr. 925 Dr. E. P. Henderson	—
23	Sakramento Mts.	Fund 1896	Om	237	Amer. Mus. Nat. Hist. New York, Nr. 72 Dr. B. Mason	—
24	San Angelo	Fund 1897	Om	88,1	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 83/1
25	San Martin	erk. 1924	H	29	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 84/1
26	Seeläsgen	erk. 1847	Ogg	102	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 90/1
27	Sikhote Alin	Fall 12. 2. 1947	H	> 300	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 94/1
28	Soper	Fund 1938	H	3,7	U. S. Nat. Mus. Washington, Nr. 1315 Dr. R. S. Clarke, jr. und Dr. E. P. Henderson	287/1
29	Staunton	Fund 1858	Om	69	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 98/1
30	Tamarugal	Fund 1903	Om	320	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 100/1
31	Tlacotepec	Fund 1903	D	24	Arizona State Univ. Tempe, Dr. C. B. Moore	—
32	Tocopilla	Fund 1927	H	75	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 102/1
33	Trenton	Fund 1858	Om	455	Amer. Met. Lab., Nr. 33.85	80/1
34	Trenton		Om		U. S. Nat. Mus. Washington, Dr. E. P. Henderson	—
35	Uwet	erk. 1903	H	54,5	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 109/1
36	Washington County	Fund 1927	D	5,75	Prof. O. A. Schaeffer, Brookhaven Nat. Lab.	—
37	Wiley	Fund 1938	D	3,5	Arizona State Univ. Tempe, Nr. 380.1 x Dr. C. B. Moore	—
38	Williamstown	Fund 1892	Om	30,9	Amer. Mus. Nat. Hist. New York, Nr. 801 Dr. B. Mason	—
39	Yanhuitlan	erk. 1804	Om	421	Arizona State Univ. Tempe, Nr. 162a Dr. C. B. Moore	—
40	Youndegin	Fund 1884	Og	1141	Sammlung Prof. F. A. Paneth	Pa 116/1

Tab. 1. Name, Fall- oder Funddaten, Klasse und Gesamtgewicht der untersuchten Meteorite, sowie die Herkunft der Proben.

wird, alle Punkte verschiedener Meteoritproben auf einer glatten Kurve liegen, die in den in Abb. 1 und 2 dargestellten Beispielen mit guter Näherung als Gerade angesehen werden kann. Abweichungen

müssen durch zusätzliche Prozesse, welche die Konzentration eines oder mehrerer Nuklide verändert haben, verursacht worden sein. Aus den Diagrammen der Abb. 1 und 2 läßt sich eindeutig ablesen, daß

Nr.	Meteorit	Klasse	Einwaage in g	^3He	^4He (in 10^{-8} cm 3 NTP/g)	^{20}Ne	^{21}Ne	^{22}Ne	$\frac{^3\text{He}}{^4\text{He}}$	$\frac{^3\text{He}}{^{21}\text{Ne}}$	$\frac{^4\text{He}}{^{21}\text{Ne}}$
1	Annaheim	Og	3,067	320	1208	3,37	3,31	3,37	0,265	96,7	365
2	Anoka	Of	16,803	34,3	188	0,420	0,448	0,453	0,183	76,7	420
3	Bischtübe	Og	3,508	324	1358	3,19	3,40	3,41	0,239	95,3	399
4	Bogou	Og	5,272	413	1673	4,49	4,72	4,72	0,247	87,5	354
5	Boguslavka	H	7,212	47	223	0,780	0,668	0,692	0,213	70,4	334
6	Canon Diablo	Og	3,461	238	959	2,61	2,45	2,48	0,248	97,1	391
7	Casas Grandes	Om	10,107	80	349	0,69	0,71	0,72	0,229	113	489
8	Cedartown	H	5,000	239	961	3,14	3,04	3,14	0,249	78,6	316
9	Central Missouri	H	5,450	711	2866	7,80	7,20	7,43	0,248	98,5	397
10	Descubridora	Om	6,176	156	675	1,91	1,56	1,61	0,232	100	433
11	Filomena	H	9,415	19	110	0,213	0,225	0,232	0,177	84,4	489
12a	Klondike	D	3,034	659	2648	9,10	8,48	8,63	0,249	77,7	312
12b	Klondike	D	2,106	728	2826	9,00	9,29	9,46	0,258	78,4	304
13	Lombard	H	10,196	63	275	0,551	0,594	0,605	0,229	106	463
14	Maria Elena	Om	3,464	459	1922	5,20	5,49	5,52	0,239	83,6	350
15	Mayodan	H	6,530	12	129	0,416	0,425	0,429	0,091	28,2	304
16	Narraburra	Of	3,502	170	720	1,66	1,66	1,69	0,236	102	434
17	Nenntmannsdorf	H	1,254	64	282	0,89	0,94	0,97	0,226	68,1	300
18	Norfolk	Om	1,823	639	2153	8,44	8,43	8,42	0,297	75,8	255
19	Norfolk	Om	4,620	597	2244	6,32	6,37	6,41	0,266	93,7	352
20	Odessa	Og	8,245	34	128	0,339	0,384	0,407	0,266	88,5	333
21a	Odessa 49/1	Og	12,999	175	696	2,16	1,88	1,88	0,252	93,1	370
21b	Odessa 49/1	Og	7,693	178	710	2,00	2,07	2,10	0,251	86,0	343
21c	Odessa 49/2	Og	11,219	1,6	7,4	0,021	0,020	0,020	0,218	80,0	370
21d	Odessa 49/3	Og	9,485	71	307	0,587	0,688	0,696	0,232	103	446
21e	Odessa 49/4	Og	9,652	9,8	46,2	0,134	0,106	0,111	0,212	92,4	436
22	Osseo	Ogg	6,190	329	1137	4,80	4,65	4,72	0,289	70,8	245
23	Sakramento Mts.	Om	2,559	245	920	3,26	3,19	3,22	0,266	76,8	288
24	San Angelo	Om	4,184	220	926	2,23	2,20	2,24	0,237	100	421
25	San Martin	H	8,773	22	144	0,424	0,419	0,428	0,156	52,6	344
26	Seeläsgen	Ogg	11,096	95	398	1,18	1,05	1,07	0,240	90,5	379
27	Sikhote Alin	H	5,119	148	574	1,86	1,65	1,68	0,257	89,7	348
28	Soper	H	4,929	10	120	0,378	0,356	0,366	0,083	28,1	337
29	Staunton	Om	3,482	19	86	0,302	0,355	0,363	0,220	53,5	242
30	Tamarugal	Om	4,145	449	1770	5,17	5,31	5,34	0,254	84,6	333
31	Tlacotepec	D	2,985	627	2287	5,69	5,90	5,94	0,274	106	388
32	Tocopilla	H	5,178	58	280	1,03	0,93	0,94	0,207	62,4	301
33	Trenton	Om	11,600	321	1367	3,85	3,87	3,86	0,235	82,9	353
34a	Trenton Al-1	Om	3,100	441	1713	4,67	4,60	4,67	0,258	95,7	372
34b	Trenton Al-1	Om	3,284	324	1355	3,29	3,39	3,42	0,239	95,6	400
34c	Trenton Nr. 10	Om	2,902	324	1356	3,61	3,76	3,86	0,239	86,2	361
34d	Trenton Nr. 7	Om	2,982	357	1447	4,12	4,28	4,32	0,247	83,4	338
35	Uwet	H	5,494	1,3	14,7	0,338	0,032	0,054	0,096	40,6	459
36	Washington County	D	3,370	146	3307	7,90	2,11	2,50	0,044	69,2	1567
37	Wiley	D	3,740	459	1517	5,05	5,05	5,14	0,303	90,9	300
38	Williamstown	Om	2,540	583	2047	6,46	6,43	6,48	0,286	91,0	318
39	Yanhuitlan	Om	7,582	111	480	1,26	1,10	1,12	0,231	101	436
40	Youndegin	Og	5,090	61	270	0,496	0,486	0,488	0,226	126	556

Tab. 2. Edelgaskonzentrationen und -konzentrationsverhältnisse der untersuchten Meteoritenproben. Die angegebenen Neonwerte sind hinsichtlich des Apparaturblindwertes korrigiert.

zumindest die stärksten Abweichungen, die bei einigen Meteoriten beobachtet werden, nur durch ein ^3He -Defizit erklärt werden können. (Die Abweichungen bei Washington County werden später gedeutet.)

Betrachten wir zum Beispiel die Meteorite Mayodan (15) und Soper (28), so läßt sich aus Abb. 1 sofort ablesen, daß die Anomalie dieser Meteorite sicher nicht durch eine Veränderung der Konzentra-

tion des ^{21}Ne verursacht sein kann. Einer Änderung des ^{21}Ne -Gehaltes entspricht in Abb. 1 eine Verschiebung des betreffenden Meteoritenpunktes längs einer Waagrechten. Und auch bei einer beliebig großen Verschiebung des ^{21}Ne -Gehaltes können die Punkte (15) und (28) niemals mit der Geraden für die Normalmeteorite zur Deckung gebracht werden. Ähnlich kann man aus Abb. 2 schließen, daß das anomale Konzentrationsverhältnis der beiden Meteorite auch

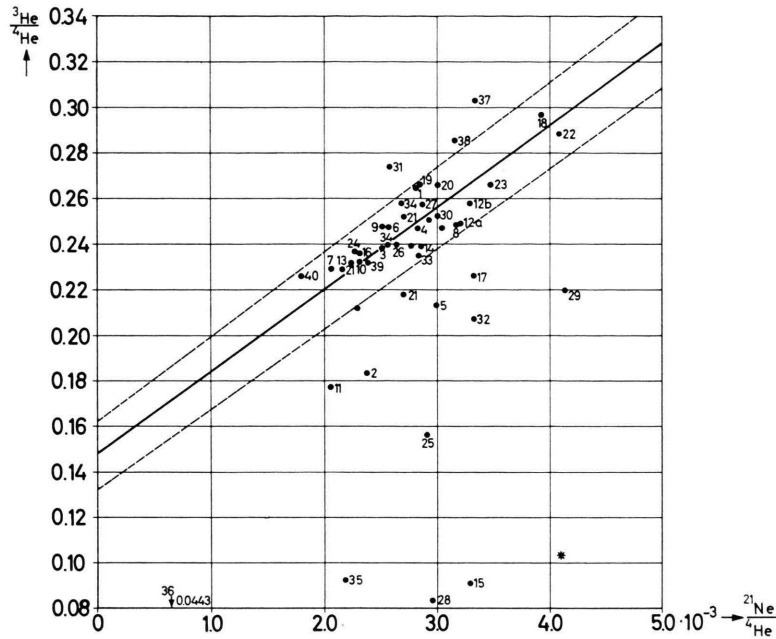


Abb. 1. $^3\text{He}/^4\text{He}$ als Funktion von $^{21}\text{Ne}/^4\text{He}$. Meteorite mit normalen spallogenen Edelgaskonzentrationen liegen in einem engen Bereich von der eingezeichneten Geraden ⁵. Bei den herausfallenden Meteoriten handelt es sich im wesentlichen um Hexaedrite mit geringer Edelgaskonzentration, die einen Tritiumverlust erlitten haben. Die Nummern beziehen sich auf die in Tab. 2 aufgeführten Meteorite. Der Stern entspricht dem Meteoriten Braunau, der von uns in einer früheren Arbeit ⁴ untersucht worden ist.

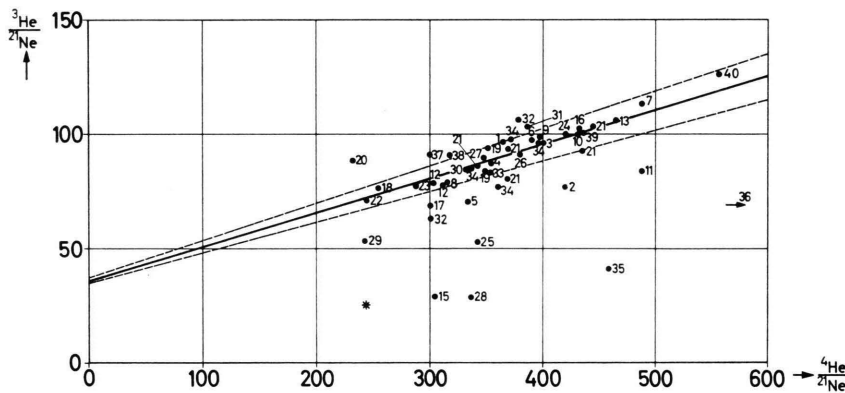


Abb. 2. $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ als Funktion von $^4\text{He}/^{21}\text{Ne}$. Meteorite mit normalen spallogenen Edelgaskonzentrationen liegen in einem engen Bereich von der eingezeichneten Geraden ⁵. Bei den herausfallenden Meteoriten handelt es sich im wesentlichen um Hexaedrite mit geringer Edelgaskonzentration, die einen Tritiumverlust erlitten haben. Die Nummern beziehen sich auf die in Tab. 2 aufgeführten Meteorite. Der Stern entspricht dem Meteoriten Braunau, der von uns in einer früheren Arbeit ⁴ untersucht worden ist.

sicher nicht durch eine Veränderung des ^4He -Gehaltes verursacht sein kann. Eine Veränderung des ^4He -Gehaltes würde in Diagramm 2 eine waagrechte Verschiebung bedeuten, durch welche die Punkte 15 und 28 auch hier nicht auf die Gerade für die normalen Meteorite gebracht werden können. Die gleichen Folgerungen gelten auch für den bereits früher gemessenen Meteoriten Braunau ⁴, der zum Vergleich in Abb. 1 und 2 mit eingetragen ist. Die Anomalie läßt sich aber sehr einfach durch ein ^3He -Defizit erklären.

Man kann aus den Diagrammen 1 und 2 die Verhältnisse $(^3\text{He}/^4\text{He})^*$ und $(^3\text{He}/^{21}\text{Ne})^*$ ablesen, die in den Proben beobachtet werden müßten, falls kein

^3He -Defizit vorhanden wäre. In Tab. 3 sind die Werte für das $(^3\text{He}/^4\text{He})^*$ -Verhältnis für eine Reihe von Meteoriten, bei denen ein solches Defizit beobachtet wird, aufgeführt. Durch Vergleich mit den Meßwerten für $^3\text{He}/^4\text{He}$ kann das ^3He -Defizit für die einzelnen Meteoritenproben ermittelt werden. Die letzte Spalte zeigt das so bestimmte ^3He -Defizit in Prozent des spallogenen ^3He -Gehaltes an. In ähnlicher Weise kann das ^3He -Defizit natürlich auch aus dem $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis mit Hilfe von Abb. 2 bestimmt werden.

Hiermit erscheint erwiesen, daß diese Meteorite zumindest einen Teil ihrer Verweilzeit als kleine Körper im interplanetarischen Raum, bevor sie auf

Nr.	Meteorit	Klasse	$\left(\frac{{}^3\text{He}}{{}^4\text{He}}\right)_{\text{gem.}}$	$\left(\frac{{}^3\text{He}}{{}^4\text{He}}\right)^*$	$\frac{({}^3\text{He}/{}^4\text{He})_{\text{gem.}}}{({}^3\text{He}/{}^4\text{He})^*}$ in %	${}^3\text{He}$ -Defizit in %
2	Anoka	Of	0,183	0,233	78,5	21,5
5	Boguslavka	H	0,213	0,256	80,0	20,0
11	Filomena	H	0,177	0,222	80,0	20,0
15	Mayodan	H	0,091	0,266	34,2	65,8
17	Nenntmannsdorf	H	0,226	0,267	84,6	15,4
25	San Martin	H	0,156	0,253	61,7	38,3
28	Soper	H	0,083	0,255	32,6	67,4
29	Staunton	Om	0,220	0,296	74,3	25,7
32	Tocopilla	H	0,207	0,268	77,5	22,5
35	Uwet	H	0,092	0,227	40,7	59,3
*	Braunau	H	0,103	0,295	35,1	64,9

Tab. 3. Meteorite mit deutlichem ${}^3\text{He}$ -Defizit. Die Werte $({}^3\text{He}/{}^4\text{He})^*$ sind die theoretischen Erwartungswerte, die aus Abb. 1 entnommen sind. Das Defizit in ${}^3\text{He}$ ist in % angegeben.

die Erde fielen, auf einer sonnennahen Bahn verbracht und durch Erwärmung das spallogene Tritium verloren haben. In den Meteoriten fehlt also zumindest ein Teil des ${}^3\text{He}$, das sonst aus dem Tritium in den Meteoriten entsteht.

Man sieht, daß bei den Meteoriten Mayodan und Soper ebenso wie bei dem Meteoriten Braunau ca. $2/3$ der durch Spallation gebildeten Nuklide der Masse 3 verloren gingen. Das dürfte der Maximalwert sein, den das ${}^3\text{He}$ -Defizit in den Meteoriten überhaupt erreichen kann, wenn das gesamte Tritium, das durch Spallation gebildet worden ist, verloren geht. Man kann daraus die Erzeugungsquerschnitte für die Direktproduktion für Tritium und ${}^3\text{He}$ berechnen. Es ergeben sich die folgenden Werte:

$$\frac{\sigma({}^3\text{He})}{\sigma({}^3\text{H}) + \sigma({}^3\text{He})} = 0,33 \pm 0,04; \quad \frac{\sigma({}^3\text{H})}{\sigma({}^3\text{He})} = 2,0 \pm 0,3.$$

Das Verhältnis $\sigma({}^3\text{H})/\sigma({}^3\text{He}) = 2,0 \pm 0,3$ steht im Widerspruch zu den Ergebnissen von Target-Messungen. [$\sigma({}^3\text{H})/\sigma({}^3\text{He}) = 0,42$ für 3 GeV-Protonen¹² bzw. $\sigma({}^3\text{H})/\sigma({}^3\text{He}) = 0,78; 1,04$ und $1,4$ für Protonen der Energien 25 GeV; 2,2 GeV und 0,6 GeV¹³.] Nach der Theorie^{14, 15} der Kernverdampfung ist jedoch ein wesentlich über 1 liegender Wert für dieses Verhältnis zu erwarten. Vermutlich wurde in allen Targetexperimenten das Tritium zu tief gemessen.

Aus dem niedrigsten Wert für das ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ -Verhältnis, das wir beobachtet hatten, folgt darüber hin-

aus noch für das Verhältnis der Erzeugungsquerschnitte für die Direktproduktion von ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$

$$\frac{\sigma({}^3\text{He})}{\sigma({}^4\text{He})} = 0,10 \pm 0,02.$$

Dieser Wert ist mit den Ergebnissen von Targetmessungen vereinbar [$\sigma({}^3\text{He})/\sigma({}^4\text{He}) = 0,10; 0,15$ und $0,18$ für die Protonenenergien 0,6 GeV; 2,2 GeV und 25 GeV¹³], falls man in Meteoriten für die Kernverdampfung auslösenden Teilchen eine mittlere Energie von 600 MeV annimmt. Eine solche Annahme für diese Energie steht gut im Einklang mit anderen an Meteoriten durchgeführten Untersuchungen¹⁶.

Die angeführten Verhältnisse für die Erzeugungsquerschnitte sind keine Konstanten, sondern von der Härte der Strahlung und damit von der Größe der Meteorite abhängig. Bei Braunau handelt es sich mit Sicherheit um einen ziemlich kleinen und daher hart bestrahlten Meteoriten. Vergleicht man die Meteorite Braunau (39 kg, ${}^{36}\text{Cl} = 22,0 \pm 1,0$ dpm/kg¹⁷) und Treysa (63 kg, ${}^{36}\text{Cl} = 20,3 \pm 0,4$ dpm/kg¹⁷), die beide beobachtete Fälle sind, so beweist auch die Übereinstimmung des in Treysa gemessenen ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ -Verhältnisses von $0,297^3$ mit dem hier berechneten theoretischen Verhältnis $({}^3\text{He}/{}^4\text{He})^* = 0,295$ für Braunau die Richtigkeit unseres Modells.

Zu den Meteoriten, an welchen Anomalien der Häufigkeitsverhältnisse von Spallationsedeltgasen be-

¹² O. A. SCHAEFFER u. J. ZÄHRINGER, Z. Naturforschg. **13a**, 346 [1958].

¹³ K. GOEBEL, H. SCHULTES u. J. ZÄHRINGER, CERN Report 1964/12, Genf 1964.

¹⁴ K. J. LECOUEUR, Proc. Phys. Soc. London A **63**, 259 [1950].

¹⁵ R. HAGEDORN u. W. MACKE, „Vorträge über kosmische Strahlung“, herausgeg. von W. HEISENBERG, Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg, 2. Aufl., 1953, S. 201–225.

¹⁶ H. WÄNKE, Z. Naturforschg. **15a**, 953 [1960].

¹⁷ E. VILČEK u. H. WÄNKE, Proc. Symp. Radioactive Dating, Athen 1962, p. 381.

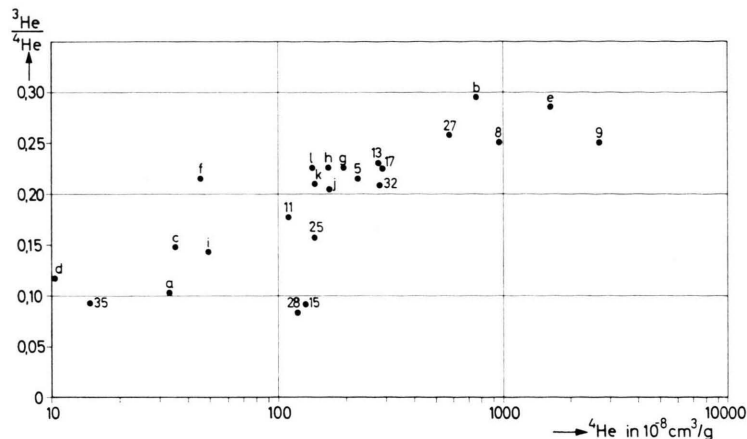


Abb. 3. $^3\text{He}/^4\text{He}$ als Funktion des ^4He -Gehaltes in Hexaedriten. Man erkennt eine deutliche Abnahme des $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnisses mit abnehmender ^4He -Konzentration und damit auch mit abnehmendem Bestrahlungsalter. Die mit Buchstaben bezeichneten Punkte wurden der Literatur entnommen. [Braunau (a), Keen Mts. (b) ⁴; Coahuila (c), Edmonton (d), Ireland (e), Negrillos (f), Sandia Mts. (g), Sierra Gorda (h), Tombigbee River (i); Union Chile (j) ¹¹; Coya Norte (k), Rio Loa (l) ¹⁸.]

obachtet wurden, insbesondere zu den in Tab. 3 aufgeführten Meteoriten ist im einzelnen folgendes zu sagen. Wie bereits bei den Beobachtungen am Meteoriten Braunau vermutet ⁴, zeigen tatsächlich viele der in dieser Arbeit untersuchten Hexaedrite die erwartenden Anomalien. Sie treten besonders deutlich an Hexaedriten mit niedrigem Edelgasgehalt in Erscheinung, wie aus Abb. 3, in welcher das $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis als Funktion des ^4He -Gehaltes aufgetragen ist, entnommen werden kann.

Der Tritium-Verlust ist zwar bei den Hexaedriten mit niedrigem Edelgasgehalt besonders häufig zu beobachten, er ist aber nicht ausnahmslos auf die Hexaedrite beschränkt. So zeigen sowohl der feine Oktaedrit Anoka (2) als auch der mittlere Oktaedrit Staunton (29) ein merkliches ^3He -Defizit. Kürzlich fand auch SCHULTZ ¹⁹ im mittleren Oktaedriten Ruffs Mountain einen beträchtlichen Tritiumverlust.

Die Probe des Oktaedriten Staunton zeigte ein tiefes außerhalb des für Spallationsedelgase zulässigen Bereiches liegendes $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis von 54. Das $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis lag mit 0,220 ebenfalls ziemlich tief, jedoch nicht unerlaubt tief. Da diese Probe eine ^{36}Cl -Zerfallsrate von 7,9 dpm/kg ²⁰ und eine ^{10}Be -Zerfallsrate von 2,1 dpm/kg ²⁰ zeigte, muß

sie nahe der Oberfläche des sicher sehr großen Meteoriten gelegen haben. Es gibt Proben von Staunton mit einem ca. 20-mal höheren Heliumgehalt. So gaben PANETH und URRY ²¹ in einer 1931 erschienenen Arbeit für eine Staunton-Probe einen Gesamt-Heliumgehalt von $1890 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{g}$ an*. Bei Staunton muß es sich somit um einen Meteoriten handeln, bei dem durch eine sekundäre Kollision, deren Zeitpunkt ca. 30 Millionen Jahre zurückliegt, eine neue Oberfläche geschaffen wurde. Nach dieser Kollision befand sich der Meteorit auf einer Bahn, die einen Tritiumverlust ermöglichte. Solche sekundären Kollisionen wurden bereits für mehrere große Eisenmeteorite festgestellt ²². Eine derartige Kollision ist auch aus den in Tab. 2 angegebenen Daten für Odessa ersichtlich. Die Probe Odessa II (20) enthält nur ca. 20% der in Odessa 49/2 (21 a) gefundenen ^3He -Menge; aus dem höheren $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis der ersten Probe (20) geht jedoch hervor, daß diese näher an der Oberfläche war als Probe 21 a.

HINTENBERGER, SCHULTZ und WÄNKE ²³ konnten kürzlich zeigen, daß auch die Nickeleisenphase vieler Steinmeteorite Mindermengen von ^3He aufweisen und haben die Vermutung ausgesprochen, daß es sich um Tritiumverluste der Meteorite im Weltraum

¹⁸ P. SIGNER u. A. O. NIER, "Researches on Meteorites", (Ed. C. B. MOORE), John Wiley & Sons, New York 1962, p. 7.

¹⁹ L. SCHULTZ, Earth and Planetary Science Letters **2**, 87 [1967].

²⁰ C. CHANG, E. VILCEK u. H. WÄNKE, noch unveröffentlicht.

²¹ F. A. PANETH u. W. D. URRY, Z. physik. Chem. A **152**, 127 [1931].

* Es besteht nicht der geringste Zweifel an der Zuverlässigkeit dieser alten Messungen. Für eine unserer Probe benachbarten Probe des Meteoriten San Angelo gaben PANETH und URRY ²¹ einen Heliumgehalt von $1190 \cdot 10^{-8}$

cm^3/g an (unser Wert $1150 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{g}$). Für Braunau (benachbarte Probe) lauten die Zahlen $36 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ He/g}$ (unser Wert) und $50 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ He/g}$ (alter Wert). Selbst für diese geringen Edelgasmengen liegen die alten Werte noch erstaunlich gut. Es ist hier vielleicht der Platz, den Autoren dieser fast 40 Jahre zurückliegenden Arbeit unsere Referenz zu erweisen.

²² H. WÄNKE, Fortschr. chem. Forsch. **7**, 322 [1966].

²³ H. HINTENBERGER, L. SCHULTZ u. H. WÄNKE, Z. Naturforsch. **21 a**, 1147 [1966].

handelt. Die Folgerungen, die sich aus den Tritiumverlusten über die Meteoritbahnen ziehen lassen, wurden in einer anderen Arbeit diskutiert²².

Für den Meteoriten Washington County, einem nickelreichen Ataxiten, fanden SCHAEFFER und FISHER²⁴ erstmalig ein auffallend niedriges $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis. SIGNER und NIER¹⁸ bestätigten dieses Ergebnis und fanden ein von Probe zu Probe unterschiedliches $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis sowie deutliche Mengen von Überschußneon. Für diese überschüssigen Edelgase gaben sie ein $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ -Verhältnis von 420 an. Sie schlossen daraus, daß es sich bei den überschüssigen Edelgasen um Uredelgase handelt. Die von uns untersuchte Probe von Washington County zeigte den höchsten Anteil von überschüssigem Edelgas, der je an einem Eisenmeteoriten gemessen wurde. Das $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis lag mit 0,044 extrem tief. Auch das $^{20}\text{Ne}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis von 3,7 weist deutlich auf Urneon hin. Mit einem spallogenen $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis von 0,27 ergibt sich für das überschüssige Edelgas ein $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ -Verhältnis von 470. Dieser Wert ist den gefundenen Verhältnissen in uredelgashaltigen Steinmeteoriten recht ähnlich.

Alle unsere Eisenmeteoritproben wurden zur Edelgasextraktion in CuCl_2 gelöst. Wir sind somit sicher, daß die von uns für Washington County gefundenen Uredelgasmengen in der reinen Metallphase und nicht in irgendwelchen Einschlüssen (Silikat, Troilit, Schreibersit usw.) enthalten sind.

Der Einbau der Uredelgase in Eisenmeteoriten ist

noch ungeklärt, man könnte annehmen, daß der Meteorit Washington County aus uredelgashaltigem chondritischem Material erschmolzen wurde. Hierbei muß es sich um einen sehr plötzlichen Prozeß gehandelt haben, da Edelgase im Nickeleisen kaum löslich sind. Uns sind keine Angaben bezüglich der Löslichkeit von Edelgasen in Metallen bekannt, doch kann man aus der Tatsache, daß in normalen irdischen Metallen niemals Edelgase gefunden wurden, auf eine sehr geringe Löslichkeit schließen. Da die Metalle vollkommen undurchlässig für Helium sind, muß man sogar absolute Unlöslichkeit annehmen.

Neben Washington County gibt es vermutlich noch andere Eisenmeteorite, deren herausfallendes $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis tatsächlich durch einen Überschuß von ^4He zustande kommt. Hierher gehört zum Beispiel die Probe des von BEGEMANN²⁵ gemessenen Meteoriten Cranbourne.

Für die Überlassung der Meteoritenproben sind wir den Herren Prof. J. R. ARNOLD, San Diego, Calif., Dr. R. S. CLARKE JR., Washington, D.C., Dr. K. R. DAWSON, Ottawa, Dr. E. P. HENDERSON, Washington, D.C., Prof. E. L. KRINOV, Moskau, Prof. B. MASON, Washington, D.C., Dr. C. B. MOORE, Tempe, Ariz., Dr. E. OLSEN, Chicago, Ill., Dr. PRESCHER, Dresden, zu Dank verpflichtet. Für ihre Mithilfe an dieser Arbeit danken wir Frl. M. MONERJAN und Herrn B. SPETTEL. Ferner danken wir dem Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung sowie der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Bereitstellung von Sachmitteln.

²⁴ O. A. SCHAEFFER u. D. E. FISHER, *Nature* **186**, 1040 [1960].

²⁵ F. BEGEMANN, *Z. Naturforsch.* **20 a**, 950 [1965].