

# Die chemische Zusammensetzung des Steinmeteoriten St. Severin

O. MÜLLER

Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg

(Z. Naturforsch. 23 a, 48–51 [1968]; eingegangen am 29. September 1967)

The meteorite St. Severin, fallen on June 27, 1966, near St. Severin, Department Charente, France, was analyzed. The analytical scheme is described for major and minor constituents and the results are presented in the conventional form as oxides, metals and iron sulphide. According to the values obtained this stony meteorite seems to belong to the group of amphoterite-chondrites which are a subclass of the olivine-hypersthene chondrites.

Der Meteorit St. Severin fiel am 27. Juni 1966, 14<sup>40</sup>h Weltzeit bei St. Severin im Departement Charente, Frankreich. Acht Steine mit der Bezeichnung A bis H und einem Gesamtgewicht von 271 kg wurden innerhalb von einigen Tagen nach dem Fall gefunden (ORCEL et al.<sup>1</sup>).

In dieser Arbeit soll über die chemische Analyse dieses Steinmeteoriten berichtet werden. Die Problematik solcher Analysen wurde insbesondere von WIJK<sup>2</sup>, EASTON und LOVERING<sup>3</sup> und KÖNIG<sup>4</sup> aufgezeigt. Sie beruht hauptsächlich darauf, daß neben den silikatischen Anteilen metallische, sulfidische, phosphidische und carbidische Phasen vorliegen können. Vor allem kann Eisen in verschiedenen Oxydationsstufen in diesen Phasen auftreten; die zuverlässige Analyse dieses Elementes ist für die Klassifizierung eines Steinmeteoriten besonders wichtig. Die inhomogene mineralogische Struktur erschwert die Probenahme für die Analyse (KEIL<sup>5</sup>), zumal die metallische Phase in Form von bis zu millimetergroßen Körnern vorliegen kann, die sich nur schwer zerkleinern lassen. Diese Schwierigkeiten bei der Herstellung einer Durchschnittsprobe des Meteoriten lassen sich umgehen, indem man von mindestens 10 g Material für die Analyse ausgeht und die gröbere Metallphase mit einem Magneten vom zerkleinerten Durchschnitt abtrennt. Diese wird gesondert gewogen, und bei jeder Einwaage werden aliquote Teile des Metalls dem feinkörnigen Pulver der Hauptmenge zugesetzt.

## Probenvorbereitung

Zur Analyse des Meteoriten St. Severin stand uns ein kompaktes, krustenfreies Stück zur Verfügung. Diese Probe stammte vom Bruchstück D des Meteoritenfalls, das ein

Gewicht von 19,9 kg hatte (ORCEL et al.<sup>1</sup>). 17 g hiervon wurden nach Waschen mit in einer Quarzapparatur destilliertem Wasser und reinem Aceton in einem Stahlmörser zerkleinert und pulverisiert. Mit einem Magneten wurden gröbere Teile ( $> 100 \mu$ ) abgetrennt und das Pulver vollständig durch ein Sieb von  $100 \mu$  Maschenweite gegeben und gemischt. Der magnetische Anteil wurde gewogen und betrug 2,84 Gewichts-% des gesamten Durchschnitts. Aliquote Anteile der magnetischen Phase wurden bei jeder Einwaage dem Pulverdurschnitt zugesetzt. Die Einwaagen für die einzelnen Aufschlüsse und Analysengänge lagen zwischen 0,5 und 1 g. Für die Bestimmung des Kalium wurden kleinere Einwaagen verwendet, wobei Kalium im Pulverdurschnitt und magnetischen Anteil getrennt gemessen wurde. Für jedes Element wurden aus zwei unabhängigen Einwaagen Doppelbestimmungen durchgeführt.

## Chemische Analyse

Die Bestimmung der einzelnen Elemente wurde in sechs getrennten Aufschluß- und Analysengängen durchgeführt:

1.  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ -Schmelze: Si, Fe (Gesamteisen), Cu, Ni, Co, Mn, Ca, Mg;
2.  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ - $\text{NaNO}_3$  (1 : 4)-Schmelze: S, P;
3.  $\text{HF-HClO}_4$ -Aufschluß: Na;
4.  $\text{Na}_2\text{O}_2$ -Schmelze: Cr, Al, Ti;
5.  $\text{HgCl}_2$ -Aufschluß: Fe (metallisch);
6. Neutronenaktivierung,  $\text{HF-HNO}_3$ -Aufschluß: K.

### 1. $\text{Na}_2\text{CO}_3$ -Schmelze:

Si, Fe (Gesamteisen), Cu, Ni, Co, Mn, Ca, Mg.

Zur Bestimmung der Kieselsäure wurde die Substanz in einem Platintiegel mit der fünffachen Menge wasserfreiem Natriumcarbonat aufgeschlossen, die Schmelze mit Salzsäure versetzt und die Kieselsäure in bekannter Weise abgeschieden und als  $\text{SiO}_2$  ausgewogen. Der nach dem Abrauchen des  $\text{SiO}_2$  mit Flußsäure verbliebene Rückstand wurde erneut gegläut und ausgewogen und von der ersten  $\text{SiO}_2$ -Auswaage abgezogen. Der Rückstand wurde danach mit  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  aufgeschlossen, die Schmelze in Salzsäure gelöst und mit dem Kieselsäurefiltrat vereinigt.

<sup>1</sup> J. ORCEL, B. DAVID, F. KRAUT, D. NORDEMANN u. J. TOBAILEM C. R. Acad. Sci. Paris 264, 1556 [1967].

<sup>2</sup> H. B. WIJK, Geochim. Cosmochim. Acta 9, 279 [1956].

<sup>3</sup> A. J. EASTON u. J. F. LOVERING, Geochim. Cosmochim. Acta 27, 753 [1963].

<sup>4</sup> H. KÖNIG, Geochim. Cosmochim. Acta 28, 1697 [1964].

<sup>5</sup> K. KEIL, Chem. der Erde 22, 281 [1962].



Das Filtrat der Kieselsäure wurde in einen Meßkolben überführt und hiervon  $\frac{1}{10}$  für die Gesamteisenbestimmung abgenommen. Eisen wurde mit Titriplex III (Fa. Merck) und Sulfosalicylsäure als Indikator komplexometrisch bestimmt. Diese Bestimmung ist für Eisen sehr selektiv und kann in Anwesenheit vieler anderer Elemente ausgeführt werden.

In dem verbliebenen Teil des Kieselsäurefiltrats wurde  $\text{H}_2\text{S}$ -Gas eingeleitet, wobei sich ein dunkelbrauner Niederschlag bildete, der im wesentlichen aus Kupfer- und Platinsulfid (aus dem Platintiegel) bestand. Hieraus wurde Kupfer mit Natriumdiäthylthiocarbamat spektralphotometrisch bestimmt.

Das Filtrat der  $\text{H}_2\text{S}$ -Fällung wurde durch Kochen von  $\text{H}_2\text{S}$  befreit und Eisen mit  $\text{H}_2\text{O}_2$  oxidiert. Mit Hexamethylenetetramin wurden die dreiwertigen von den zweiwertigen Elementen durch eine Hydrolysentrennung geschieden. Der Hydroxidniederschlag wurde umgefällt. Im ammoniakalischen Filtrat wurden die Elemente Ni, Co und Mn durch Einleiten von  $\text{H}_2\text{S}$ -Gas als Sulfide gefällt und so von den Erdalkalielelementen getrennt. Der Niederschlag der Sulfide wurde mit Königswasser gelöst und Nickel aus essigsaurer Lösung mit Diacetyldioxim gefällt. Im Filtrat der Nickelfällung wurde die organische Substanz durch Abrauchen mit konzentrierter Salpetersäure zerstört. Die Lösung wurde geteilt. In einem Teil wurde Kobalt durch Anfärben mit 2-Nitrosonaphthol-1 photometrisch bestimmt. Im anderen Teil wurde Mangan mit Ammoniumperoxodisulfat und Silberionen zum Permanganat oxidiert und die Intensität der schwach violetten Färbung photometrisch bestimmt.

Im Filtrat der Ammoniumsulfidfällung wurden Calcium und Magnesium bestimmt. Calcium wurde als Oxalat gefällt und als Calciumoxalatmonohydrat gewogen. Im Filtrat des Calciumoxalats wurde nach Zerstören der Oxalsäure Magnesium mit Diammoniumhydrogenphosphat gefällt und als Magnesiumpyrophosphat gewogen.

## 2. $\text{Na}_2\text{CO}_3$ - $\text{NaNO}_3$ -Schmelze: S, P

In diesem Aufschluß wurden Schwefel und Phosphor bestimmt. Die Schmelze im Nickeliegel wurde mit Wasser zerstört und zuerst die Kieselsäure mit konzentrierter Salzsäure abgeschieden. Im Filtrat wurde der als Sulfat vorliegende Schwefel mit Bariumchlorid gefällt und als Bariumsulfat ausgewogen. KÖNIG<sup>4</sup> hat darauf hingewiesen, daß der  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ - $\text{NaNO}_3$ -Aufschluß für die Nickeleisen-Phase, die neben anderen Mineralien sulfidische Erze enthalten kann, unvollständig ist und so der Sulfatbestimmung entgegen muß. In einem getrennten Aufschluß prüften wir deshalb den gesamten unlöslichen Rückstand des Wasserauszugs der Schmelze auf sulfidischen Schwefel in der von KÖNIG<sup>4</sup> angegebenen Weise (Nachweis von  $\text{H}_2\text{S}$  über CdS). Dieser Nachweis war im Fall der St.-Severin-Analyse negativ, so daß bei der oben angegebenen Sulfatbestimmung der Schwefelgehalt des Meteoriten quantitativ erfaßt wurde.

Im Filtrat hiervon wurde das Phosphat mit Ammoniummolybdat in salpetersaurer, ammoniumnitratthaltiger Lösung gefällt und als Ammoniumphosphomolybdat gewogen. Die Herstellung der Reagenzien und die Fällungsbedingungen

erfolgten in der in PREGL-ROTH<sup>6</sup> beschriebenen Weise. Die Berechnung des  $\text{P}_2\text{O}_5$ -Gehaltes erfolgte mit dem für die angegebene Arbeitsvorschrift gültigen empirischen Faktor. Dieser wurde außerdem mit einer Phosphatlösung bekannter Konzentration überprüft und bestätigt.

## 3. $\text{HF}$ - $\text{HClO}_4$ -Aufschluß: Na

Die Substanz wurde für die Natriumbestimmung mit Flußsäure und Perchlorsäure aufgeschlossen. Die Säuren wurden bis zur Trockene abgedampft und die Perchlorate mit  $\text{H}_2\text{O}$  in einen Meßkolben gespült. Da die Lösungspartner die flammenphotometrische Bestimmung des Natriums stören, wurden Eisen, Aluminium, Calcium und Magnesium ( $\text{MgCO}_3$  fällt unvollständig) mit  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$  gefällt und im Filtrat Natrium mit einem Zeiss-Flammenphotometer gemessen. Die Natriumvergleichslösung enthielt die gleiche Menge  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$  wie die Probelösung.

## 4. $\text{Na}_2\text{O}_2$ -Schmelze: Cr, Al, Ti

Im wäßrigen Auszug der Schmelze wurde Chrom und Aluminium, im Rückstand Titan bestimmt. Aluminium, Kieselsäure und wenig Eisen wurden durch Einleiten von  $\text{CO}_2$  aus dem wäßrigen Auszug gefällt und abfiltriert. Das chromathaltige Filtrat wurde mit Salzsäure angesäuert, KJ-Lösung zugegeben und das ausgeschiedene Jod mit Thiosulfatlösung titriert unter Zugabe von Stärkelösung als Indikator.

Aluminium wurde durch Abrauchen mit Salzsäure von Kieselsäure getrennt und nach dem Äther-Salzsäure-Verfahren als  $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  abgeschieden. Nach Abzentrifugieren wurde der Niederschlag in  $\text{H}_2\text{O}$  gelöst, mit  $\text{NH}_3$  als  $\text{Al}(\text{OH})_3$  gefällt und zu  $\text{Al}_2\text{O}_3$  verglüht und gewogen.

Im Rückstand der  $\text{Na}_2\text{O}_2$ -Schmelze wurde Titan kolorimetrisch als Peroxotitanylschwefelsäure bestimmt. Dieser bestand hauptsächlich aus Fe, Ni und Ti und wurde in verdünnter Schwefelsäure gelöst. In einer Hydrolysentrennung unter Verwendung von Hexamethylenetetramin wurde Ni von Fe und Ti getrennt. Die Hydroxide wurden in Schwefelsäure gelöst, zur Komplexbildung des Eisens Phosphorsäure zugegeben und mit 30%igem  $\text{H}_2\text{O}_2$  versetzt.

## 5. $\text{HgCl}_2$ -Aufschluß: Fe (metallisch)

Die Bestimmung des metallischen Eisens erfolgte durch 120stündiges Kochen der möglichst feinzerkleinerten Probe mit Quecksilber(II)-chloridlösung in einer Kohlendioxidatmosphäre. Hierbei geht metallisches Eisen zweiwertig in Lösung. Die Methode geht auf einen Vorschlag von BOSSINGAULT<sup>7</sup> zurück. Nach Abfiltrieren des Rückstandes wurde das zweiwertige Eisen mit Kaliumpermanganat titrimetrisch bestimmt. Besteht die Metallphase aus größeren Partikeln, so geht das Eisen nicht quantitativ in Lösung (HABASKY<sup>8</sup>). Wir prüften deshalb den Rückstand mit einem Magneten auf ferromagnetische Teilchen und konnten damit einige kleine Partikel abtrennen. In diesen wurde Eisen kolorimetrisch mit Sulfosalicylsäure bestimmt. Der Eisengehalt betrug etwa 2% relativ von dem mit Kaliumpermanganat ermittelten Wert. Der metallische Eisengehalt des Meteoriten ergab sich aus der Summe beider Bestimmungen.

<sup>6</sup> O. PREGL-ROTH, Quantitative organische Mikroanalyse, Springer-Verlag, Wien 1958.

<sup>7</sup> O. BOSSINGAULT, C. R. Acad. Sci. Paris **66**, 873 [1868].

<sup>8</sup> M. G. HABASKY, Analyt. Chemie **33**, 586 [1961].

### 6. Neutronenaktivierung, HF-HNO<sub>3</sub>-Aufschluß: K

Wegen des kleinen Kaliumgehalts der Probe wurde die neutronenaktivierungsanalytische einer flammenphotometrischen Kaliumbestimmung vorgezogen. Eine Probe des Pulverdurchschnitts und des magnetischen Anteils sowie ein Kaliumstandard wurden in Quarzampullen eingewogen und im Karlsruher Forschungsreaktor FR 2 eine Stunde bei einem Neutronenfluß von etwa  $8 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup> sec bestrahlt. Nach dem Zerfall der Hauptmenge von Si<sup>31</sup> (Halbwertszeit 2,6 h) wurden die Proben unter Zugabe von je 10 mg Kaliumträger mit Fluß- und Salpetersäure in einer Platinschale gelöst. Kalium wurde mit Tetraphenylbornatrium gefällt, durch mehrere Reinigungsschritte von Fremdaktivitäten befreit und schließlich als Kaliumperchlorat montiert. Die  $\beta$ -Strahlung des K<sup>42</sup> (Halbwertszeit 12,4 h) wurde mit einem Endfenster-Proportionalzählrohr gemessen und mit der K<sup>42</sup>-Aktivität des Standards verglichen. Die chemische Ausbeute der Kaliumperchloratpräparate wurde nach dem Zerfall des K<sup>42</sup> flammenphotometrisch bestimmt und die Aktivitäten auf 100% Ausbeute korrigiert.

### Ergebnisse

Die Ergebnisse der chemischen Analyse sind in Tab. 1 zusammengestellt. Die Darstellung der einzelnen Elemente als Oxide, Sulfide bzw. als Metalle entspricht der für Steinmeteorite konventionellen Form und gibt nicht in allen Fällen die wahre Zusammensetzung wieder, da die chemische Analyse nicht genügend Aufschluß über die mineralogische Zusammensetzung eines Meteoriten liefert. Zum Beispiel wird der Gesamtschwefel als FeS angegeben, obwohl in vielen Meteoriten neben Troilit (FeS) kleine Mengen von Oldhamit (CaS) Daubreeolith (FeCr<sub>2</sub>S<sub>4</sub>) und anderen Sulfiden vorkommen. Ähnliches gilt für die Darstellung des Phosphorgehaltes, der in Form von Phosphaten und Phosphiden in Steinmeteoriten vorliegen kann.

Gewichts-%		Gewichts-%	
SiO <sub>2</sub>	40,8	MnO	0,25
MgO	25,5	TiO <sub>2</sub>	0,12
FeO	20,3	Fe	1,99
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1,84	Ni	0,73
CaO	2,01	Co	0,04
Na <sub>2</sub> O	0,98	Cu	0,008
K <sub>2</sub> O	0,1120	FeS	4,67
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0,26	C	0,024 *
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,61	Summe	100,24

\* Dr. W. OTTING, Max-Planck-Institut für Medizinische Forschung Heidelberg.

Tab. 1. Ergebnisse der chemischen Analyse des Meteoriten St. Severin.

<sup>9</sup> B. MASON u. H. B. WILK, Geochim. Cosmochim. Acta **28**, 533 [1964].

<sup>10</sup> J. ZÄHRINGER, Geochim. Cosmochim. Acta. [1967], im Druck.

Die Klassifizierung eines Meteoriten auf Grund der chemischen Analyse ist nicht möglich. Sie bleibt einer genauen mineralogischen Untersuchung vorbehalten. Aus der chemischen Zusammensetzung des Meteoriten St. Severin läßt sich dennoch folgendes aussagen:

Die chemische Analyse stimmt gut mit der von MASON und WILK<sup>9</sup> für Amphoterit-Chondrite angegebenen Zusammensetzung überein. Charakteristisch für diese Meteoritengruppe ist der niedrige Gehalt an metallischem Eisen, der von 3,2 bis 0,3% Fe schwankt. Der gefundene Fe-Gehalt von 1,99% im Meteoriten St. Severin liegt in diesem Bereich. Als Folge des kleinen Gehalts an metallischem Eisen ist die Metallphase bemerkenswert reich an Nickel; das Fe/Ni-Verhältnis beträgt für St. Severin 2,72. Ferner ist der für diesen Meteoriten gefundene Gesamteisengehalt von 20,75% mit dem für Amphoterite angegebenen Mittelwert von 20% in guter Übereinstimmung. Der bei dieser Gruppe etwas schwankende Gehalt an FeO (17,7 bis 21,3%) beträgt für St. Severin 20,3%.

Der Kaliumgehalt entspricht mit 1120 ppm K<sub>2</sub>O (930 ppmK) etwa dem von normalen Chondriten. Mit dem von ZÄHRINGER<sup>10</sup> am gleichen Durchschnitt gefundenen radiogenen Argongehalt von  $6860 \cdot 10^{-8}$  cm<sup>3</sup> STP/g ergibt sich ein K-Ar-Alter von  $4,49 \cdot 10^9$  a.

FUNKHOUSER, KIRSTEN und SCHAEFFER<sup>11</sup> fanden ein Alter von  $4,38 \cdot 10^9$  a (Ar<sup>40</sup>:  $7140 \cdot 10^{-8}$  cm<sup>3</sup> STP/g, K: 1028 ppm).

ORCEL et al.<sup>1</sup> untersuchten die mineralogische und chemische Zusammensetzung des Meteoriten St. Severin und klassifizierten ihn als Amphoterit-Chondrit (LL-Gruppe). Die chemische Analyse, die von JEAN PATUREAU ausgeführt wurde, zeigt hinsichtlich des Metall-, Troilit- und Kaliumgehaltes wesentlich höhere Werte als die entsprechenden der vorliegenden Arbeit. Vorausgesetzt, daß PATUREAU von einer genügend großen Probemenge (mindestens 10 g) für die Analyse ausging, können diese Unterschiede der Analysenergebnisse schwerlich durch die Probenahme bedingt sein.

In Tab. 2 werden die für L- und LL-Chondrite typischen chemischen Unterschiede in Form einzelner Verhältnisse mit den in dieser Arbeit für St.

<sup>11</sup> J. FUNKHOUSER, T. KIRSTEN u. O. A. SCHAEFFER, Preprint, State University of New York, Stony Brook. New York 1967.



Gruppe	Fe/SiO <sub>2</sub> <sup>a</sup>	Fe <sup>0</sup> /Fe <sup>b</sup>	Fa <sup>c</sup>	SiO <sub>2</sub> /MgO <sup>a</sup>
L	0,55 ± 0,05	0,33 ± 0,07	24 ± 2	1,59 ± 0,05
LL	0,49 ± 0,03	0,08 ± 0,07	29 ± 2	1,58 ± 0,05
St. Severin	0,508	0,096	29 <sup>13</sup>	1,60

a Gewichtsverhältnisse b Fe<sup>0</sup>/Fe = metallisches Fe/Gesamt-Fe c Mol-% Fayalit

Tab. 2. Chemische Merkmale des Meteoriten St. Severin und Vergleich mit der L- und LL-Gruppe der Chondrite VAN SCHMUS und WOOD<sup>12</sup>

Severin erhaltenen verglichen. Der Vergleich der chemischen Merkmale zeigt, daß der Meteorit St. Severin zur Gruppe der LL-Chondrite gehört. Die mineralogische Untersuchung (ORCEL et al.<sup>1</sup>) ist mit diesem Ergebnis in Übereinstimmung.

<sup>12</sup> W. R. VAN SCHMUS u. J. A. WOOD, *Geochim. Cosmochim. Acta* **31**, 747 [1967].

<sup>13</sup> B. MASON, *Geochim. Cosmochim. Acta* **31**, 1100 [1967].

Herrn Professor J. ORCEL, Musée Nationale d'Histoire Naturelle, Paris und Herrn Professor J. LABEYRIE, Centre National de la Recherche Scientifique, Gif-sur-Yvette danken wir herzlich für die unserem Institut überlassene St. Severin-Probe.

Herrn Professor W. GENTNER und Herrn Professor J. ZÄHRINGER danke ich für fördernde Unterstützung bei dieser Arbeit.

Frau I. WOLF-KUNZ und Herrn D. KAETHER möchte ich für ihre selbständige Mitarbeit danken.

## Tracer Studies of Atmospheric Exchange Based on Measurements of Cosmic Ray Produced Sodium-22 \*

W. ROEDEL

II. Physikalisches Institut der Universität Heidelberg

(Z. Naturforsch. **23 a**, 51—55 [1968]; received 2 October 1967)

Die Ergebnisse der in Heidelberg während des Jahres 1966 durchgeführten Messungen des durch die kosmische Strahlung in der Atmosphäre erzeugten Na<sup>22</sup> werden dargestellt. Anhand eines einfachen Modells wird versucht, von den ausschließlich am Boden gewonnenen Meßwerten auf den Austausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre zu schließen. Die Modell-Rechnung liefert für das an Aerosole angelagerte Na<sup>22</sup> eine mittlere Aufenthaltsdauer in der Stratosphäre von 12,3 Monaten; die durch die Tropopause ausgetauschten Luftmengen liegen nach dieser Rechnung zwischen Null (im Spätjahr) und 48 g/cm<sup>2</sup> · Monat (im Frühjahr).

Im Anhang wird die Abnahme des durch die Kernwaffentests von 1961 und 1962 künstlich produzierten Na<sup>22</sup> diskutiert. Es wird gezeigt, daß die künstliche Aktivität in der Atmosphäre bis auf einen vernachlässigbaren Rest abgefallen ist.

Cosmic rays produce several nuclides by spallation of the constituents of the atmosphere<sup>1</sup>. Because it is possible to estimate the production rate of the spallation products fairly well, and because the production varies strongly with altitude and latitude, the radioactive ones among these nuclides are well suited for tracer studies of transport and exchange of aerosols and air in the atmosphere. Especially sodium-22, an argon spallation product with a half-

life of 2.56 yrs, is useful for the study of exchange between stratosphere and troposphere<sup>2, 3, 4</sup>.

The aim of the present paper is to discuss the possibility to estimate the exchange between stratosphere and troposphere by using only ground level measurements of radioactivity of medium- or long-lived cosmic ray produced nuclides.

The values of the Na<sup>22</sup>-concentration in rain and ground-level air at Heidelberg during 1966 as well

\* Erweiterte Fassung eines Vortrags, gehalten auf dem CACR-Symposium on Aerosols and Radioactive Tracers in the Atmosphere, Luzern (Schweiz), Oktober 1967.

<sup>1</sup> D. LAL and B. PETERS, *Cosmic Ray Produced Radioactivity on the Earth*; *Handbuch der Physik* 46/2 [1967].

<sup>2</sup> N. BHANDARI and RAMA, *J. Geophys. Res.* **68**, 1959 [1963].

<sup>3</sup> W. ROEDEL, *J. Geophys. Res.* **70**, 4447 [1965].

<sup>4</sup> N. BHANDARI, D. LAL, and RAMA, *Tellus* **18**, 391 [1966].