

# Kosmogener Überschuß von $^{40}\text{K}$ und Fluß schneller Neutronen in Meteoriten

W. Stegmann und F. Begemann

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

(Z. Naturforsch. **30 a**, 968–975 [1975]; eingegangen am 6. Juni 1975)

*Cosmogenic Excess of  $^{40}\text{K}$  and the Flux of Fast Neutrons in Meteorites*

Results are reported of a mass spectrometric investigation of the content and isotopic composition of potassium from the mesosiderite Emery (silicate phase) and the chondrite Elenovka (bulk). Normalized to the Nier value of  $^{39}\text{K}/^{41}\text{K}=13.47$  the  $^{40}\text{K}$  in Emery (K-content  $220 \pm 25$  ppm) was found to be enriched by  $(4.03 \pm .30)\%$ , the potassium from Elenovka ( $760 \pm 50$  ppm) to be indistinguishable from terrestrial potassium. — Evidence is presented that the excess  $^{40}\text{K}$  in the silicates from Emery (Ca-content 6.06 weight %) has been produced essentially by secondary cosmic ray neutrons via the  $^{40}\text{Ca}(n,p)$ -reaction. The total excess of  $(2.57 \pm .39) \times 10^{14}$   $^{40}\text{K}$ -atoms/g Ca together with the excitation function of the  $^{40}\text{Ca}(n,p)$ -reaction and the neutron flux spectrum of Arnold, Honda and Lal yields a dose of fast neutrons ( $2 \text{ MeV} \leq E_n \leq 100 \text{ MeV}$ )  $\Phi \cdot T = (7.2 \pm 1.1) \times 10^{16}$  neutrons/cm<sup>2</sup> and an average flux during the cosmic ray exposure age  $T = (134 \pm 12)$  Myrs of  $\Phi = (17.4 \pm 3.1)$  neutrons/cm<sup>2</sup> sec. — A comparison of the neutron induced production rate of  $^{40}\text{K}$  from Ca with that of  $^{21}\text{Ne}$  from Mg and  $^{38}\text{Ar}$  from Ca indicates the Arnold, Honda, Lal flux spectrum to be adequate for  $E_n \lesssim 20 \text{ MeV}$  but that it underestimates the number of neutrons with higher energies.

Vor ihrem Fall auf die Erde sind Meteorite \* als kleine Körper mit typischen Durchmessern von cm bis m der Einwirkung der solaren und galaktischen kosmischen Strahlung ausgesetzt. Da die Eindringtiefe der solaren Komponente jedoch nur wenige g/cm<sup>2</sup> beträgt und die Meteorite beim Durchgang durch die Atmosphäre die äußeren Schichten durch Ablation verlieren, ist für Untersuchungen im Laboratorium im allgemeinen nur derjenige Teil zugänglich, der durch die galaktische Komponente bestrahlt worden ist.

Nur bei sehr kleinen prae-atmosphärischen Radien von wenigen cm ist die Konzentration verschiedener durch die Wechselwirkung mit der meteoritischen Materie erzeugten Reaktionsprodukte ein direktes Maß für Fluß, Energie- und Massenspektrum der primären kosmischen Strahlung, gemittelt über die Bestrahlungsdauer und die Bahn der Meteoriten um die Sonne. Bei größeren Massen dagegen dominiert bereits in geringer Tiefe die Anzahl der Sekundärteilchen; Konzentration und Massenspektrum der Reaktionsprodukte hängen außer von der Primärkomponente stark von der Größe der Meteorite ab. Das führt u. a. dazu, daß vor allem bei niederenergetischen Reaktionen (Projektilenergie  $\lesssim 50 \text{ MeV}$ ) solche überwiegen, die durch Neutro-

nen induziert werden, obwohl in der Primärkomponente praktisch keine Neutronen vorhanden sind.

Eines der durch Neutronen in Steinmeteoriten erzeugten Reaktionsprodukte ist das aus  $^{40}\text{Ca}$  durch (n, p)-Reaktion entstehende  $^{40}\text{K}$ . Es bietet sich aus verschiedenen Gründen für eine Messung an:

1. Das Ca/K-Verhältnis ist groß; eine relativ geringe Neutronendosis führt zu meßbaren Effekten.
2. Das aus Ca entstehende  $^{40}\text{K}$  ist praktisch ein reines Neutronenprodukt. Aus dem häufigsten Isotop  $^{40}\text{Ca}$  (96,97%) kann durch Beschuß mit Protonen prinzipiell kein  $^{40}\text{K}$  entstehen; Einfang von negativen Mesonen überträgt zu viel Energie auf den Kern, als daß  $^{40}\text{K}$  in merklicher Ausbeute entsteht, und  $\alpha$ -induzierte Reaktionen an  $^{40}\text{Ca}$  sind ebenso zu vernachlässigen wie p-induzierte an den seltenen Isotopen und die (n,  $\gamma$ )-Reaktion an  $^{39}\text{K}$ .
3. Der Wirkungsquerschnitt bis zu Neutronenenergien von 6 MeV ist experimentell bestimmt, bei höheren Energien ist der Verlauf der Anregungsfunktion berechnet. Aus den Ergebnissen kann also die Neutronendosis errechnet werden.
4. Es ist zu erwarten, daß eine evtl. Erwärmung der Meteorite während ihrer Bestrahlung nicht zu einem Verlust von  $^{40}\text{K}$  geführt hat, im Gegensatz zu gasförmigen Reaktionsprodukten.

\* Nach ihrem Fall auf die Erde bezeichnet man Meteorite als Meteorite.



5. Die mittlere Lebensdauer von  $^{40}\text{K}$  ist groß im Vergleich zu allen bekannten Bestrahlungsaltern von Steinmeteoriten; das  $^{40}\text{K}$  integriert somit wie ein stabiler Kern den Neutronenfluß über die gesamte Bestrahlungsdauer.

### Experimenteller Teil

Für die Messungen wurde je eine Probe des Chondriten Elenovka (MAW 1833) und des Mesosideriten Emery (AML H82.13) ausgewählt. Bei Elenovka wurde ein ca. 600 mg Teilstück aus dem Inneren einer größeren Probe herausgebrochen und in einem Korund-Mörser pulverisiert, im Falle von Emery das Aliquot einer Silikatprobe verwendet, an der bereits Messungen anderer kosmogener Nuklide durchgeführt worden waren<sup>1</sup>.

Details zu den experimentellen Methoden sind von Stegmann<sup>2</sup> beschrieben; wir werden uns hier auf eine grobe Skizzierung beschränken (Abbildung 1).

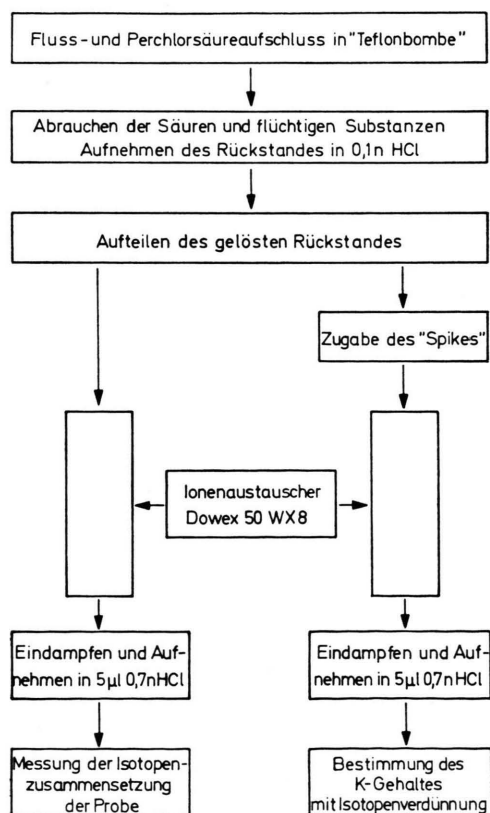


Abb. 1. Skizzierung des Analysenganges.

#### a) Aufschluß und Abtrennung des Kalium

Der Aufschluß geschah in einer verschraubbaren Teflonbombe. Die angefeuchteten Proben (200 bis 400 mg) wurden mit je 5 ml HF (40%) und  $\text{HClO}_4$  (70%) versetzt und 5 Stunden lang auf  $170^\circ\text{C}$  erhitzt, die Lösung anschließend in der Teflonbombe abgeraucht und zur Trockne eingedampft. Der Rückstand war in 5 ml 0,7-n. HCl vollständig löslich; einem Teil dieser Lösung wurde eine bekannte Menge eines  $^{40}\text{K}$ -„Spikes“ zugegeben.

Die Abtrennung des K erfolgte in zwei identischen Ionenaustauschersäulen ( $19 \times 0,95 \text{ cm}^2$ ) an Dowex 50 WX8 (0,05 – 0,08 mm). Reinigen und regenerieren der Säulen geschah mit 4,7-n. HCl, gefolgt von 600 ml  $\text{H}_2\text{O}$ . Als Elutionsmittel diente 0,7-n. HCl bei einer Strömungsgeschwindigkeit von  $0,8 \text{ ml/cm}^2 \cdot \text{min}$ . Aufgefangen und für die massenspektrometrische Messung verwendet wurde die 140 – 190-ml-Fraktion, die mehr als 95% des gesamten K enthielt. Sie wurde in einem Spitzbecher zur Trockne eingedampft, der kaum sichtbare Rückstand in  $5 \mu\text{l}$  0,7-n. HCl wieder gelöst und mit einer Mikro-Bürette auf das Schiffchen des Einsatzes der Thermionenquelle aufgebracht.

Alle verwendeten Chemikalien hatten den Reinheitsgrad „Suprapur“; während des gesamten Analysenganges wurden ausschließlich Quarz-, Teflon- und PVC-Gefäße und -Pipetten verwendet.

#### b) Massenspektrometrische Messungen

Die Isotopenhäufigkeitsmessungen wurden mit einem Varian MAT Spektrometer vom Typ CH5 mit Thermionenquelle (Rhenium-Zweiband-Einsatz) durchgeführt. Der Ionennachweis erfolgte über Faraday-Auffänger, jedoch konnte auch während der Messung (z. B. zur Prüfung des  $\text{Ca}^+$ -Untergrundes) auf SEV umgeschaltet werden. Zur Verbesserung des Vakuums und der Peak-Form war während der Messungen der in die Ionenquelle ragende Kühlfinger einer Kryofalle mit flüssigem Stickstoff gefüllt. Dadurch konnte unter Meßbedingungen stets ein Druck  $< 3 \times 10^{-8}$  Torr erreicht werden.

Zur Erhöhung der Genauigkeit (Signal/Rausch-Verhältnis bei  $^{40}\text{K}$ ) war es vorteilhaft, für die Registrierung der  $^{39}\text{K}/^{41}\text{K}$ - und  $^{41}\text{K}/^{40}\text{K}$ -Verhältnisse verschiedene Ableitwiderstände zu verwenden ( $10^{11}$  bzw.  $10^{12} \Omega$ ). Um außerdem möglichst unabhängig zu sein von der Charakteristik der Widerstände und des Registriersystems (Leeds & Northrup Speedomax XL 680, Abweichungen von der Linearität  $< 2\%$ ), wurden alle Messungen bei möglichst gleichen Ionenströmen durchgeführt ( $^{39}\text{K} \triangleq 25 \pm 5 \text{ Volt}$ ). Bei den ersten Versuchen war die Reihenfolge der Messungen: 10 Verhältnisse  $^{39}\text{K}/^{41}\text{K}$  mit  $10^{11} \Omega$ ,

10 Verhältnisse  $^{41}\text{K}/^{40}\text{K}$  mit  $10^{12} \Omega$ , Überprüfung des  $\text{Ca}^+$ -Untergrundes mit SEV (Erhöhung der Empfindlichkeit um  $\approx 10^3$ ), 10 Verhältnisse  $^{39}\text{K}/^{41}\text{K}$  mit  $10^{11} \Omega$ . Da sich jedoch bei den gewählten Ionenströmen auch nach 2 Stunden keine systematische zeitliche Änderung der Verhältnisse zeigte, wurde bei den späteren Versuchen die zweite  $^{39}\text{K}/^{41}\text{K}$ -Serie fortgelassen.

Da es das Ziel war, eine durch die Einwirkung der kosmischen Strahlung bewirkte Anreicherung des  $^{40}\text{K}$  zu messen und die Annahme begründet ist, daß alle auf Kernreaktionen zurückzuführenden Änderungen in den Häufigkeiten von  $^{39}\text{K}$  und  $^{41}\text{K}$  demgegenüber zu vernachlässigen sind, wurden die  $^{39}\text{K}/^{41}\text{K}$ -Verhältnisse dazu verwendet, für die bei der Messung unvermeidliche Massendiskriminierung zu korrigieren, d. h.

$$\frac{(^{39}\text{K}/^{41}\text{K})_{\text{Mess}}}{(^{39}\text{K}/^{41}\text{K})_0} \equiv 1 + \alpha \quad (1)$$

und

$$(^{41}\text{K}/^{40}\text{K})_{\text{kor}} = (^{41}\text{K}/^{40}\text{K})_{\text{Mess}} (1 + \alpha/2) \quad (2)$$

mit  $(^{39}\text{K}/^{41}\text{K})_0 = 13.47^3$ . Wir folgen damit Burnett, Lippolt und Wasserburg<sup>4</sup>, wo auch eine ausführliche Diskussion zu finden ist.

## Ergebnisse

### a) Reproduzierbarkeit der MSP-Messungen

Zur Prüfung der erreichbaren Genauigkeit sowie der Reproduzierbarkeit wurde eine Reihe von Messungen an terrestrischen Standards durchgeführt. Die dazu benutzten KCl-Lösungen entsprachen in ihrer Konzentration der für die späteren Probenmengen erwarteten; die auf das Probenschiffchen aufgetragenen K-Mengen lagen zwischen 0,5 und 10  $\mu\text{g}$ .

Die Ergebnisse sind in Tab. 1 zusammengestellt. Abbildung 2 zeigt die Häufigkeitsverteilung der für Massendiskriminierung korrigierten  $^{41}\text{K}/^{40}\text{K}$ -Verhältnisse; sie liegen alle in einem Streuintervall von etwa 5‰. Zum Vergleich ist die Verteilung eingezeichnet, die von Burnett, Lippolt und Wasserburg<sup>4</sup> in ihrer umfangreichen und sorgfältigen Untersuchung von terrestrischem und meteoritischem K erhalten wurde. Wie ersichtlich, fallen die Schwerpunkte der Verteilungen praktisch zusammen; die Mittelwerte sind 584,89 bzw.  $584,71 \pm 0,80$ , sie stimmen innerhalb der Fehlergrenzen mit dem von Nier<sup>3</sup> angegebenen Verhältnis von  $581 \pm 5$  überein.

Tab. 1. Kalium-Isotopenverhältnisse terrestrischer Standards. In den Spalten 2 und 3 sind die Mittelwerte der gemessenen  $(^{39}\text{K}/^{41}\text{K})$ - und  $(^{41}\text{K}/^{40}\text{K})$ -Verhältnisse aufgeführt. Die angegebenen Fehler sind  $\sigma = \sqrt{(\sum (\Delta x_i)^2)/(n-1)}$ . Die letzte Spalte zeigt die nach Gl. (2) für Massendiskriminierung korrigierten  $^{41}\text{K}/^{40}\text{K}$ -Verhältnisse.

Versuch	$(^{39}\text{K}/^{41}\text{K})_{\text{Mess}}$	$(^{41}\text{K}/^{40}\text{K})_{\text{Mess}}$	$(^{41}\text{K}/^{40}\text{K})_{\text{Korr}}$
41	$13,856 \pm 0,050$	$576,58 \pm 1,25$	$584,84 \pm 2,50$
42	$13,872 \pm 0,010$	$576,39 \pm 2,56$	$584,99 \pm 2,67$
44	$13,851 \pm 0,033$	$576,17 \pm 2,71$	$584,32 \pm 3,12$
45	$13,868 \pm 0,017$	$577,17 \pm 2,68$	$585,70 \pm 2,85$
46	$13,844 \pm 0,030$	$576,20 \pm 1,17$	$584,20 \pm 1,76$
47	$13,885 \pm 0,031$	$576,26 \pm 1,90$	$585,14 \pm 2,37$
51	$13,842 \pm 0,017$	$575,48 \pm 1,95$	$583,43 \pm 2,13$
54	$13,882 \pm 0,036$	$576,38 \pm 2,37$	$585,19 \pm 2,89$
55	$13,847 \pm 0,029$	$575,18 \pm 1,51$	$583,23 \pm 1,99$
64	$13,874 \pm 0,028$	$576,67 \pm 2,87$	$585,32 \pm 3,19$
72 c	$13,849 \pm 0,012$	$576,50 \pm 1,57$	$584,61 \pm 1,69$
76	$13,832 \pm 0,013$	$576,62 \pm 2,47$	$584,37 \pm 2,60$
77	$13,891 \pm 0,005$	$576,89 \pm 2,28$	$585,91 \pm 2,36$
Mittel	—	—	$584,71 \pm 0,8$

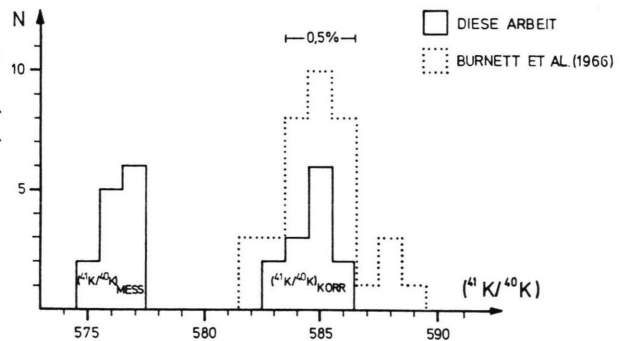


Abb. 2. Verteilung der gemessenen und der korrigierten  $(^{41}\text{K}/^{40}\text{K})$ -Verhältnisse für terrestrische KCl-Standards.

### b) Beiträge von Fremdionen

Merkliche Beiträge von störenden Fremdionen sind nur auf der Masse 40 zu erwarten, und zwar am ehesten von  $^{40}\text{Ca}^+$  und  $^{24}\text{Mg}^{16}\text{O}^+$ . Wie bereits erwähnt, wurde daher stets nach der Messung der K-Isotopenverhältnisse der Massenbereich von 42 bis 44 mit SEV überprüft. Die Erhöhung der Empfindlichkeit bei diesen SEV-Messungen um etwa  $10^3$  folgte aus dem Vergleich der Spannungswerte bei  $M=40$ . In allen Fällen war  $U_{42}(\text{SEV}) < 4 \text{ mV}$  und  $U_{44}(\text{SEV}) < 1 \text{ mV}$ . Interpretiert man diese Ausschläge als von  $^{26}\text{Mg}^{16}\text{O}$  bzw.  $^{44}\text{Ca}$  herrührend, so ergeben sich daraus als mögliche Beiträge von  $^{24}\text{Mg}^{16}\text{O}$  bzw.  $^{40}\text{Ca}$  zur Intensität bei  $M=40$  Werte von  $< 1,3\text{‰}$  bzw.  $< 2\text{‰}$ .

Das gilt auch für diejenigen Messungen, bei denen das Kalium via Ionenaustauscher von Mg und Ca abgetrennt wurde.

c) K-Standard mit  $\delta^{40}\text{K} \approx 1,5\%$ 

Aus der geringen Breite des Streuintervalls der korrigierten ( $^{41}\text{K}/^{40}\text{K}$ )-Verhältnisse war zu erwarten, daß Variationen in der  $^{40}\text{K}$ -Häufigkeit von  $\geq 1\%$  nachzuweisen sein sollten. Es erschien trotzdem ratsam, diese auf der Reproduzierbarkeit der Messungen fußende Erwartung durch Messungen an einem K-Standard zu verifizieren, in dem das  $^{40}\text{K}$  um  $(1,46 \pm 0,08)\%$  angereichert, das  $^{39}\text{K}/^{41}\text{K}$ -Verhältnis aber nur um  $< 0,1\%$  von dem des natürlichen Kaliums verschieden war (Herstellerangaben).

Tab. 2. Gemessene und korrigierte Isotopenverhältnisse des im  $^{40}\text{K}$  um  $1,46 \pm 0,08\%$  angereicherten Standards.

Versuch	$(^{39}\text{K}/^{41}\text{K})_{\text{Mess}}$	$(^{41}\text{K}/^{40}\text{K})_{\text{Mess}}$	$(^{41}\text{K}/^{40}\text{K})_{\text{Korr}}$
48	$13,884 \pm 0,018$	$568,75 \pm 2,47$	$577,49 \pm 2,66$
49	$13,867 \pm 0,030$	$567,63 \pm 2,14$	$575,99 \pm 2,54$
56	$13,846 \pm 0,027$	$565,16 \pm 1,92$	$573,05 \pm 2,28$
57	$13,831 \pm 0,042$	$569,30 \pm 1,98$	$576,93 \pm 2,70$
58	$13,820 \pm 0,059$	$569,66 \pm 2,37$	$577,06 \pm 3,48$
59	$13,909 \pm 0,056$	$570,12 \pm 1,95$	$579,41 \pm 3,11$
60	$13,953 \pm 0,041$	$568,65 \pm 2,68$	$578,85 \pm 3,27$
62	$13,872 \pm 0,030$	$566,73 \pm 2,22$	$575,19 \pm 2,61$
Mittel	—	—	$576,75 \pm 2,03$

Die Ergebnisse (Tab. 2) zeigen zwar eine größere Streuung als die an natürlichem K gemessenen, der gefundene Mittelwert der Anreicherung von  $(1,36 \pm 0,37)\%$  stimmt aber gut mit dem theoretischen überein, und insbesondere sind die beiden Datenblöcke deutlich voneinander getrennt (Abbildung 3).

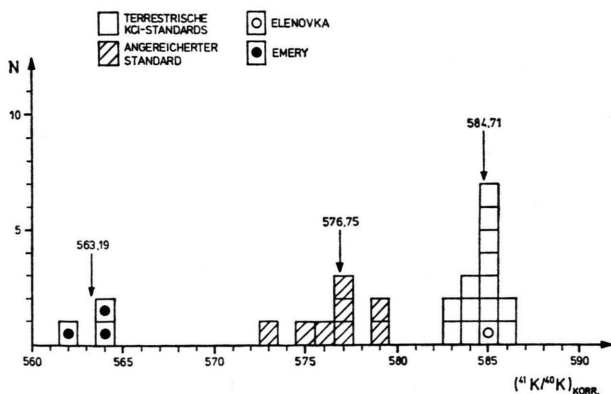


Abb. 3. Zusammenstellung aller an Meteoriten und Standardproben bestimmten ( $^{41}\text{K}/^{40}\text{K}$ )-Verhältnisse. Alle Werte sind normiert auf ein  $(^{39}\text{K}/^{41}\text{K})$ -Verhältnis  $\equiv 13,47$ . Durch Pfeile sind die Mittelwerte der jeweiligen Datenblöcke gekennzeichnet.

## d) Kontamination

Für die Deutung einer durch die kosmische Strahlung bewirkten Anreicherung des  $^{40}\text{K}$  muß außer der Anreicherung auch der K-Gehalt der Proben bekannt sein. Er wurde durch Isotopenverdünnung bestimmt; die Isotopenverhältnisse des „Spikes“ waren  $^{39}\text{K}/^{41}\text{K} = (13,48 \pm 0,10)$  und  $^{41}\text{K}/^{40}\text{K} = (286,87 \pm 1,0)$ .

Die Bestimmung der während der gesamten Analyse eingeschleppten K-Menge erfolgte mit demselben „Spike“ und Olivin-Proben des Pallasiten Mergalahti, der nach Megrue<sup>5</sup> einen extrem tiefen K-Gehalt von  $(0,77 \pm 0,2)$  ppm hat. Bei gleicher Probengröße, Säuremenge und Analysenmethode wie bei den Hauptversuchen wurde als mittlerer K-Blindwert  $(3,36 \pm 0,50) \mu\text{g}$  gefunden.

Eine Beeinflussung der Isotopenverhältnisse durch vorausgegangene Proben mit verschiedenen Isotopenhäufigkeiten konnte durch Verwendung verschiedener Trennsäulen und Zweiband-Einsätze für natürliche und in  $^{40}\text{K}$  künstlich angereicherte Proben sowie Ausheizen der Bänder (5 Stunden bei heller Weißglut) vollständig vermieden werden (vergleiche z. B. das Ergebnis von Versuch 64 aus Tab. 1, bei dem die unmittelbar vorhergehende Probe im  $^{40}\text{K}$  um den Faktor 2 angereichert war).

## e) Messungen an Emery und Elenovka

Die für die beiden untersuchten Meteorite erhaltenen Ergebnisse sind in Tab. 3 zusammengestellt. Bei der ersten Emery-Probe wurden die Messungen ohne „Spike“ an zwei Aliquots der  $5 \mu\text{l}$ -KCl-Lösung mit zwei verschiedenen Zweiband-Einsätzen der Thermionenquelle durchgeführt; es handelt sich also bezüglich der massenspektrometrischen Messungen um eine Doppelbestimmung.

Abbildung 3 zeigt in Form eines Histogramms alle für Massendiskriminierung korrigierten  $^{41}\text{K}/^{40}\text{K}$ -Verhältnisse. Während bei Elenovka keinerlei Abweichung von der isotopischen Zusammensetzung des terrestrischen K zu sehen ist, ist bei Emery das  $^{40}\text{K}$  deutlich angereichert. Der gemessene Mittelwert beträgt  $\delta = (3,68 \pm 0,23)\%$ , korrigiert man mit dem Blindwert von  $3,36 \mu\text{g K}$ , so folgt für die wahre Anreicherung  $\delta_0 = (4,03 \pm 0,30)\%$ .

Die in der letzten Spalte angegebenen K-Mengen sind noch nicht für den Analysen-Blindwert korrigiert; nach der Korrektur ergibt sich für den K-Gehalt von Emery  $(220 \pm 25)$  ppm und von Elenovka

Tab. 3. K-Isotopenanalysen an Steinphase des Mesosideriten Emery und Gesamtprobe des L-Chondriten Elenovka.

Meteorit	Ein- waage [mg]	$\left(\frac{^{39}\text{K}}{^{41}\text{K}}\right)_{\text{Mess}}$	Ohne „Spike“ $\left(\frac{^{41}\text{K}}{^{40}\text{K}}\right)_{\text{Mess}}$	$\left(\frac{^{41}\text{K}}{^{40}\text{K}}\right)_{\text{Korr}}$	Anteil [%]	Spike [μg]	$\left(\frac{^{39}\text{K}}{^{41}\text{K}}\right)_{\text{Mess}}$	Mit „Spike“ $\left(\frac{^{41}\text{K}}{^{40}\text{K}}\right)_{\text{Mess}}$	$\left(\frac{^{41}\text{K}}{^{40}\text{K}}\right)_{\text{Korr}}$	K [μg]
Emery	320	13,933	552,16	561,65	46,2	0,92	13,935	539,20	548,51	32,8 ± 9,2
		± 0,026	± 3,26	± 3,54	—	—	± 0,015	± 3,76	± 3,94	—
		13,921	554,90	564,19			—	—	—	
		± 0,012	± 3,74	± 3,90			—	—	—	
Emery	411	13,943	554,01	563,74	66,6	4,59	13,983	520,48	530,39	65,9 ± 9,0
		± 0,018	± 2,47	± 2,66	50,0	4,59	± 0,016	± 3,47	± 3,65	96,5 ± 8
Elenovka	247	13,900	575,65	584,84			13,901	549,71	558,51	
		± 0,013	± 1,32	± 1,47			± 0,024	± 1,43	± 1,77	

(760 ± 50) ppm. Der Wert für Elenovka ist tiefer als der von Kirsten, Krankowsky und Zähringer<sup>6</sup> für diesen Meteoriten angegebene von 998 ppm, er stimmt jedoch besser überein mit dem Mittelwert für L-Chondrite von 860 ppm<sup>7</sup>. Für Emery ist uns keine weitere K-Bestimmung bekannt; die Silikatphasen anderer Mesosiderite zeigen stark schwankende K-Gehalte von 20 – 200 ppm<sup>4, 6, 8–11</sup>.

Aus der  $^{40}\text{K}$ -Anreicherung und dem K-Gehalt folgt für Emery und Elenovka ( $\delta < 1\%$ ) schließlich ein  $^{40}\text{K}$ -Überschuß von  $^{40}\text{K}^* = (1,60 \pm 0,23) \times 10^{13}$  Atome/g bzw.  $< 1,3 \times 10^{13}$  Atome/g.

## Diskussion

### 1. Mittlerer Fluß und Dosis schneller Neutronen

Die isotopische Zusammensetzung von meteoritischem und terrestrischem Kalium ist im allgemeinen nicht unterscheidbar<sup>4, 12</sup>. In allen Fällen, in denen Abweichungen gefunden wurden, sind diese zweifellos frei auf die Einwirkung der kosmischen Strahlung vor dem Fall der Meteorite auf die Erde zurückzuführen. Insbesondere für Eisenmeteorite sind wegen der hohen Bestrahlungsalter und des geringen K-Gehaltes besonders große Effekte zu erwarten<sup>13</sup>; so ist z. B. die bisher von Voshage<sup>14</sup> gefundene extremste Zusammensetzung  $^{39}\text{K} : ^{40}\text{K} : ^{41}\text{K} = 45,2 : 18,1 : 36,7$ .

Von allen untersuchten Stein- oder Stein-Eisen-Meteoriten zeigen dagegen nur die beiden von Burnett, Lippolt und Wasserburg gemessenen Norton County (Achondrit) und Vaca Muerta (Mesosiderit) eine  $^{40}\text{K}$ -Anomalie. Die von den Autoren gefundene positive Korrelation zwischen  $^{40}\text{K}$ -Überschuß und Ca/K-Verhältnis beweist jedoch, daß hier nicht Fe, sondern Ca das entscheidende Target-Element ist. Dasselbe gilt für unsere Silikatphase von Emery, wie

ein Vergleich mit anderen durch die kosmische Strahlung erzeugten Nukliden zeigt. Der  $^{38}\text{Ar}$ -Gehalt von reinem FeNi derselben Meteoritenprobe ist z. B.  $12,3 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ NTP/g} = 3,3 \times 10^{12} \text{ Atome/g}^1$ . Da für FeNi das Verhältnis der Produktionsraten  $P(^{40}\text{K})/P(^{38}\text{Ar}) \leq 1$  ist<sup>15</sup>, sind für die Silikatphase (11,9% Fe + Ni; 6,06% Ca; Häufigkeit aller Elemente zwischen Ca und Fe < 0,5%) höchstens  $4 \times 10^{11}$   $^{40}\text{K}$ -Atome/g als Beitrag von Fe und Ni zu erwarten. Alle anderen Elemente außer Ca tragen wegen ihrer geringen Häufigkeit noch wesentlich weniger bei. Normiert man daher den  $^{40}\text{K}$ -Überschuß auf den Ca-Gehalt der Probe, so ergibt sich  $^{40}\text{K}^* = (2,57 \pm 0,39) \times 10^{14}$  Atome/g Ca. Mit einem Bestrahlungsalter von  $(134 \pm 12)$  Millionen Jahre<sup>1</sup> folgt daraus — zeitliche Konstanz der Intensität des effektiven Flusses der kosmischen Strahlung vorausgesetzt — eine Produktionsrate  $P(^{40}\text{K}^*) = (6,4 \pm 1,1) \times 10^{-2}$  Atome/sec · g Ca. Dabei ist für den während der Bestrahlungsdauer bereits wieder zerfallenen Bruchteil des  $^{40}\text{K}$  (3,7%) korrigiert.

Wie eingangs erwähnt, entsteht das  $^{40}\text{K}^*$  praktisch ausschließlich über die  $^{40}\text{Ca}(n, p)$ -Reaktion ( $Q = -0,54 \text{ MeV}$ ). Es ist also

$$P(^{40}\text{K}^*) = N(^{40}\text{Ca}) \bar{\sigma} \Phi, \quad (3)$$

$$\text{wobei} \quad \bar{\sigma} = \frac{\int \sigma(E) \varphi(E) dE}{\int \varphi(E) dE} \quad (4)$$

der über das differentielle Neutronenspektrum  $\varphi(E)dE$  gemittelte Wirkungsquerschnitt für die (n, p)-Reaktion ist und  $\Phi = \int \varphi(E) dE$  der Neutronenfluß. Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma(E)$  ist für Neutronenenergien bis 6 MeV experimentell bestimmt<sup>16</sup> — zumindest für Übergänge in die vier energetisch tiefsten Zustände des  $^{40}\text{K}$ ; bis  $E_n = 16 \text{ MeV}$  ist die Anregungsfunktion für den totalen Querschnitt berechnet<sup>17</sup> und für höhere Energien

(bis 100 MeV) der Verlauf aus analogen Reaktionen abgeleitet<sup>18</sup>. Da bis 4 MeV der gemessene gleich dem totalen Wirkungsquerschnitt für die Reaktion ist, wurde die theoretische Kurve bei dieser Energie normiert (Abbildung 4).

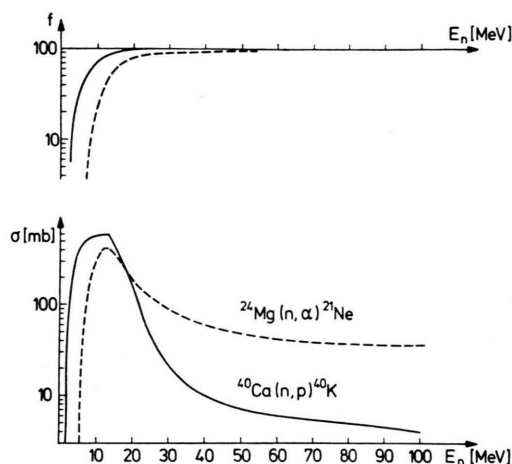


Abb. 4. a) Anregungsfunktionen für die Reaktionen  $^{40}\text{Ca}(n,p)^{40}\text{K}$  und  $^{24}\text{Mg}(n,\alpha)^{21}\text{Ne}$ . b) Prozentualer Beitrag von Neutronen mit Energien  $<E$  zur totalen Produktionsrate  $[f = \frac{E}{\int_0^E \sigma(E) \varphi(E) dE} / \int_0^{100} \sigma(E) \varphi(E) dE]$ . Als Flußspektrum  $\varphi(E)dE$  wurde das von Arnold, Honda und Lal verwendet.

Das Fluß-Spektrum der sekundären Neutronen im Bereich  $2 \text{ MeV} \leq E \leq 100 \text{ MeV}$  ist nach Arnold, Honda und Lal<sup>15</sup> gegeben durch

$$\varphi(E)dE = k(E^{-1} + 10^{-2}E^{-2} + 1,1 \times 10^{-5}E^{-3}) \text{ Neutronen/cm}^2 \text{ sec GeV}.$$

Mit diesem Spektrum und der Anregungsfunktion aus Abb. 4 folgt für den mittleren Wirkungsquerschnitt  $\bar{\sigma} = 244 \text{ mb}$ . Da 50% der gesamten Produktion von  $^{40}\text{K}^*$  durch Neutronen mit  $E < 7 \text{ MeV}$  und

mehr als 90% durch solche mit  $E < 16 \text{ MeV}$  erfolgt, ist der genaue Verlauf der Anregungsfunktion für höhere Energien nur von geringem Einfluß auf  $\bar{\sigma}$ .

Für Emery ergibt sich mit dem Wert von  $\bar{\sigma} = 244 \text{ mb}$  aus (3) für den über das Bestrahlungsalter gemittelten Neutronenfluß  $\Phi = (17,4 \pm 3,1) \text{ Neutronen/cm}^2 \text{ sec}$  und als Dosis  $\Phi \cdot T = (7,2 \pm 1,1) 10^{16} \text{ Neutronen/cm}^2$ .

Tabelle 4 zeigt zum Vergleich die bereits an anderen Meteoriten bestimmten Flüsse. (Messungen der ebenfalls via (n,p)-Reaktionen an  $^{39}\text{K}$  und  $^{32}\text{S}$  erzeugten  $^{39}\text{Ar}$  und  $^{32}\text{P}$  konnten an Emery nicht durchgeführt werden, da es sich um einen aufgefundenen Meteoriten mit unbekanntem Falldatum handelt, in dem beide Radioisotope bereits vollständig zerfallen sind<sup>1</sup>.) Nimmt man diese Werte als typisch für Meteorite, so ist verständlich, daß bei Elenovka keinerlei  $^{40}\text{K}$ -Anomalie nachgewiesen werden konnte: Der Ca-Gehalt ist nur etwa 20% desjenigen von Emery, der K-Gehalt wesentlich höher (760 ppm verglichen mit 220 ppm) und das Bestrahlungsalter beträgt nur etwa 24 Millionen Jahre<sup>23</sup>. Alle drei Faktoren kombiniert lassen eine Anomalie  $\delta^{40}\text{K} < 1\%$  erwarten, die unterhalb unserer Nachweisgrenze liegt.

## 2. Fluß thermischer Neutronen

Die spezifische Aktivität des aus der Silikatphase von Emery mit  $10^{-3}\text{-n. H}_2\text{SO}_4$  ausgelaugten Chlor (140 ppm) ist  $A(^{36}\text{Cl}) = -(10 \pm 15) \text{ Zerfälle/min g Cl}^1$ . Wenn dieses ausgelaugte Cl nicht eine terrestrische Verunreinigung, sondern meteoritischen Ursprungs ist, folgt mit dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{\text{th}} = 45 \text{ b}$  für die  $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$ -Reaktion für den mittleren Fluß thermischer Neutronen während der letzten 500 000 Jahre (= mittlere Lebensdauer des  $^{36}\text{Cl}$ ) vor dem Fall des Meteoriten  $\Phi_{\text{th}} < 1 \text{ Neutron/cm}^2 \text{ sec}$  (3  $\sigma$ -confidence level).

Tab. 4. Mittlerer Fluß schneller Neutronen in verschiedenen Meteoriten. Die zur Messung ausgenutzte Kernreaktion ist in Spalte 2 angegeben. Das Integrationsintervall  $\Delta T$ , für das die Mittelwerte gelten, ist im Falle von  $^{40}\text{K}$  gleich dem Bestrahlungsalter, für  $^{39}\text{Ar}$  und  $^{32}\text{P}$  gleich deren mittlerer Lebensdauer. — Flüsse für Emery, Norton County u. Vaca Muerta sind mit demselben  $\bar{\sigma} = 244 \text{ mb}$  berechnet. Die angegebenen Fehler schließen nicht die Ungenauigkeiten in  $\bar{\sigma}$  ein.

Meteorit	Reaktion	$\Delta T$	$\Phi \left[ \frac{\text{Neutronen}}{\text{cm}^2 \text{ sec}} \right]$	Literatur
Abee	$^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$	400 a	$67 \pm 10$	19
Barwell	$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$	20 d	$8,2 \pm 1,3$	20
Emery	$^{40}\text{Ca}(n,p)^{40}\text{K}$	$134 \times 10^6 \text{ a}$	$17,4 \pm 3,1$	—
Norton County	$^{40}\text{Ca}(n,p)^{40}\text{K}$	$(107-230) \times 10^6 \text{ a}$	$2,4-4,9$	4, 21, 22
St. Severin	$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$	20 d	$5,2 \pm 0,8$	20
Vaca Muerta	$^{40}\text{Ca}(n,p)^{40}\text{K}$	$133 \times 10^6 \text{ a}$	$3,0 \pm 1$	1, 4

Das kleine Verhältnis  $\Phi_{\text{th}}/\Phi_{\text{schnell}}$  zeigt, daß zumindest während dieser Zeitspanne die prae-atmosphärische Größe von Emery so klein gewesen ( $R < 30 \text{ cm}^{24}$ ) bzw. die untersuchte Probe so nahe der Oberfläche bestrahlt worden sein muß, daß die meisten Neutronen vor ihrer Abbremsung auf thermische Energien durch Diffusion verloren gingen. Mit größter Wahrscheinlichkeit gilt diese Aussage auch für das gesamte Bestrahlungsalter  $T$ , da auch der über  $T$  gemittelte Fluß  $\Phi_{\text{th}} < 7$  Neutronen/ $\text{cm}^2 \text{ sec}$  war. Diese obere Grenze errechnet sich unter der extrem unrealistischen Annahme, daß alles in der Silikatphase gefundene  $^{36}\text{Ar}^1$  ausschließlich aus dem Zerfall von  $^{36}\text{Cl}$  stammt und daß außerdem alles  $^{36}\text{Cl}$  ausschließlich durch die  $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)$ -Reaktion erzeugt wurde.

### 3. Vergleich von $^{40}\text{K}_{\text{Ca}}^*$ mit anderen Niederenergie-Produkten

Begemann, Weber, Vilcsek und Hintenberger<sup>1</sup> konnten bei Emery durch die Analyse von vier Proben verschiedener chemischer Zusammensetzung die aus Mg bzw. Ca entstandenen Mengen von  $^{21}\text{Ne}$  bzw.  $^{38}\text{Ar}$  bestimmen.  $[(365 \pm 30) \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ NTP } ^{21}\text{Ne/g Mg}$  bzw.  $(346 \pm 25) \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ NTP } ^{38}\text{Ar/g Ca}]$  Hier ist somit ein Vergleich von  $\text{P}(^{40}\text{K}^*)$  mit den Produktionsraten dieser Nuklide möglich, wobei jedoch die Zuordnung zu spezifischen Kernreaktionen nicht immer eindeutig ist.

#### a) $\text{P}(^{21}\text{Ne})_{\text{Mg}}$

$^{21}\text{Ne}$  ist das einzige stabile Nuklid der Isobare  $M = 21$ . Die Produktionsrate  $\text{P}(^{21}\text{Ne})_{\text{Mg}}$  summiert somit über die Wirkungsquerschnitte aller Reaktionen, bei denen die aus  $^{24}, ^{25}, ^{26}\text{Mg}$  durch Einfang eines Protons oder Neutrons gebildeten Compound-Kerne 4, 5 bzw. 6 Nukleonen in beliebiger Kombination emittieren.

Von allen möglichen Reaktionen an  $^{24}\text{Mg}$ , die zur Bildung von  $^{21}\text{Ne}$  führen – entweder direkt oder über einen radioaktiven Zwischenkern der Masse 21 –, ist die  $(n, \alpha)$ -Reaktion mit  $Q = -2,55 \text{ MeV}$  die energetisch weitaus günstigste. Bei  $^{25}\text{Mg}$  gilt dasselbe für die  $(n, \alpha)$ -Reaktion mit  $Q = -9,88 \text{ MeV}$  und bei  $^{26}\text{Mg}$  für die  $(n, 2n\alpha)$ -Reaktion mit  $Q = -21 \text{ MeV}$ . Da das Fluß-Spektrum der Neutronen zu hohen Energien abfällt (65% aller Neutronen fallen in den Energiebereich  $E_n < 10 \text{ MeV}$ ) und die Isotopenhäufigkeiten von  $^{25}\text{Mg}$  und  $^{26}\text{Mg}$

nur 10,13 bzw. 11,17% sind, werden die Beiträge von allen an diesen beiden Isotopen induzierten Reaktionen zu vernachlässigen sein. Die Produktionsrate ist daher in guter Näherung ausschließlich bestimmt durch die  $(n, \alpha)$ -Reaktion an  $^{24}\text{Mg}$ . Aus dem  $^{21}\text{Ne}_{\text{Mg}}/^{40}\text{K}_{\text{Ca}}^*$ -Verhältnis folgt somit für das Verhältnis der über das Neutronenspektrum gemittelten Wirkungsquerschnitte

$$\bar{\sigma}[^{24}\text{Mg}(n, \alpha)^{21}\text{Ne}]/\bar{\sigma}[^{40}\text{Ca}(n, p)^{40}\text{K}] = 0,28.$$

Der Absolutwert für  $\bar{\sigma}[^{24}\text{Mg}(n, \alpha)^{21}\text{Ne}] = 70 \text{ mb}$  ist in guter Übereinstimmung mit dem von 74 mb, der sich nach (4) unter Verwendung der von Bullock und Moore<sup>25</sup> angegebenen theoretischen Anregungsfunktion ergibt. Leider ist diese Anregungsfunktion durch keinerlei Messungen belegt. Wenn sie jedoch die wahren Verhältnisse wiedergibt, so beweist die Übereinstimmung von berechnetem und gemessenem  $\bar{\sigma}$ , daß die Form des verwendeten Neutronenspektrums im Bereich von 2–20 MeV recht gut stimmt.

#### b) $\text{P}(^{38}\text{Ar})_{\text{Ca}}$

$^{38}\text{Ar}$  ist wiederum das einzige stabile Nuklid der Masse 38. Als Targetkern kommt nur  $^{40}\text{Ca}$  ( $H \approx 97\%$ ) in Frage, so daß  $\text{P}(^{38}\text{Ar})_{\text{Ca}}$  gegeben ist durch die Summe aller  $^{40}\text{Ca}$  (Nukleon, 3 Nukleon)-Reaktionen. Dabei ist diejenige mit dem optimalen  $Q$ -Wert ( $-7,0 \text{ MeV}$ ) die direkt zum  $^{38}\text{Ar}$  führende  $(n, ^3\text{He})$ -Reaktion, gefolgt von  $^{40}\text{Ca}(n, ^3\text{H})^{38}\text{K} \rightarrow ^{38}\text{Ar}$  mit  $Q = -12,9 \text{ MeV}$ .

$(n, \alpha)$ -Reaktionen an dem Ca benachbarten Elementen haben wegen des Coulomb-Walles erst einen von Null meßbar verschiedenen Wirkungsquerschnitt bei Neutronenenergien, die um etwa 3 MeV größer sind als der Schwellenwert. Nehmen wir dasselbe für die Emission von  $^3\text{He}$  an, so tragen Neutronen mit  $E < 10 \text{ MeV}$  nicht zur Produktion von  $^{38}\text{Ar}$  bei. Dann jedoch ist der aus dem  $^{38}\text{Ar}_{\text{Ca}}/^{40}\text{K}_{\text{Ca}}^*$ -Verhältnis von  $(0,36 \pm 0,06)$  folgende mittlere Wirkungsquerschnitt für die Erzeugung von  $^{38}\text{Ar}$  ( $\bar{\sigma} = 88 \text{ mb}$ ) mit dem Neutronenspektrum von Arnold, Honda und Lal<sup>15</sup> nur schwer zu verstehen. Wie erwähnt, haben in diesem Spektrum nur  $1/3$  aller Neutronen Energien  $> 10 \text{ MeV}$ , d. h. der über den relevanten Energiebereich gemittelte Wirkungsquerschnitt wäre etwa 250 mb. Wenn es auch weder systematische Messungen noch Rechnungen für die Anregungs-

funktionen der fraglichen Reaktionen in dem hier wichtigen Energiebereich gibt (einziger experimenteller Wert für  $\sigma[^{40}\text{Ca}(n, ^3\text{H})^{38}\text{K}]$  ist 20 mb bei 14,8 MeV<sup>26</sup>), so erscheinen die 250 mb doch unwahrscheinlich hoch. Als plausible Erklärung bietet sich vielmehr an, daß das angenommene Neutronspektrum zu steil ist, eine Möglichkeit, auf die schon Burnett, Lippolt und Wasserburg<sup>4</sup> hingewiesen haben. Ein flacherer Verlauf hätte den doppelten Effekt, daß einmal relativ mehr Neutronen in den Energiebereich  $>10$  MeV fielen und außerdem der zur Normierung verwendete Wirkungsquerschnitt  $\bar{\sigma}[^{40}\text{Ca}(n, p)^{40}\text{K}]$  kleiner würde.

Abschließend sei bemerkt, daß das für Emery gefundene  $\text{P}(^{21}\text{Ne})_{\text{Mg}}/\text{P}(^{38}\text{Ar})_{\text{Ca}}$ -Verhältnis keines-

wegs anormal ist, sondern innerhalb von 20% mit dem an 11 anderen Mesosideriten und einem Chondriten bestimmten übereinstimmt<sup>1, 27</sup>. Demnach scheint das effektive Flußspektrum in Emery nicht ungewöhnlich flach gewesen, sondern die von Arnold, Honda und Lal<sup>15</sup> gegebene Form generell zu steil zu sein. Eine definitive Aussage wird jedoch erst möglich sein, wenn Messungen der Wirkungsquerschnitte der relevanten Kernreaktionen vorliegen.

Wir danken Prof. E. L. Krinov, Akademie der Wissenschaften, Moskau, für die Probe des Meteoriten Elenovka, sowie Prof. H. Wänke für zahlreiche Diskussionen.

- <sup>1</sup> F. Begemann, H. W. Weber, E. Vilcsek u. H. Hintenberger, *Geochim. Cosmochim. Acta*, im Druck.
- <sup>2</sup> W. Stegmann, Diplomarbeit, Universität Mainz, 1975.
- <sup>3</sup> A. O. Nier, *Phys. Rev.* **77**, 789 [1950].
- <sup>4</sup> D. S. Burnett, H. J. Lippolt u. G. J. Wasserburg, *J. Geophys. Res.* **71**, 1249 [1966].
- <sup>5</sup> G. H. Megrue, *J. Geophys. Res.* **73**, 2027 [1968].
- <sup>6</sup> T. Kirsten, D. Krankowsky u. J. Zähringer, *Geochim. Cosmochim. Acta* **27**, 13 [1963].
- <sup>7</sup> G. G. Goles, *Handb. of Elemental Abundances in Meteorites*, Ed. B. Mason, Gordon-Breach, New York 1971.
- <sup>8</sup> G. H. Megrue, *J. Geophys. Res.* **71**, 4021 [1966].
- <sup>9</sup> J. Zähringer, *Geochim. Cosmochim. Acta* **32**, 209 [1968].
- <sup>10</sup> H. B. Wiik, *Comm. Phys.-Math.* **34**, 135 [1969].
- <sup>11</sup> H. Wänke, persönl. Mitteilung.
- <sup>12</sup> W. Kempe u. J. Zähringer, *Geochim. Cosmochim. Acta* **30**, 1049 [1966].
- <sup>13</sup> H. Voshage u. H. Hintenberger, *Z. Naturforsch.* **14a**, 828 [1959].
- <sup>14</sup> H. Voshage, *Z. Naturforsch.* **22a**, 477 [1967].
- <sup>15</sup> J. R. Arnold, M. Honda u. D. Lal, *J. Geophys. Res.* **66**, 3519 [1961].
- <sup>16</sup> R. Bass, persönl. Mitteilung.
- <sup>17</sup> W. Alley u. R. M. Lessler, *Nuclear Data* **11**, 621 [1972].
- <sup>18</sup> R. C. Reedy u. J. R. Arnold, *J. Geophys. Res.* **77**, 537 [1972].
- <sup>19</sup> F. Begemann, E. Vilcsek u. H. Wänke, *Earth Planet. Sci. Let.* **3**, 207 [1967].
- <sup>20</sup> F. Begemann, E. Vilcsek u. H. Wänke, *Nature (London)* **213**, 52 [1967].
- <sup>21</sup> G. F. Herzog u. E. Anders, *Geochim. Cosmochim. Acta* **35**, 239 [1971].
- <sup>22</sup> F. Begemann, J. Geiss u. D. C. Hess, *Phys. Rev.* **107**, 540 [1957].
- <sup>23</sup> J. Geiss, B. Hirt u. H. Oeschger, *Helv. Phys. Acta* **33**, 590 [1960].
- <sup>24</sup> P. Eberhardt, J. Geiss u. H. Lutz, *Earth Science and Meteoritics*, North-Holland Publ. Co., Amsterdam 1963.
- <sup>25</sup> R. E. Bullock u. R. G. Moore, *Phys. Rev.* **119**, 721 [1960].
- <sup>26</sup> C. S. Khurana u. I. M. Govil, *Nucl. Phys.* **69**, 153 [1965].
- <sup>27</sup> D. D. Bogard u. P. J. Cressy, *Geochim. Cosmochim. Acta* **37**, 527 [1973].