

$^3\text{He} - ^3\text{H}$ – Strahlungsalter eines Steinmeteoriten

VON F. BEGEMANN *, P. EBERHARDT ** und D. C. HESS

Aus dem Enrico Fermi Institute for Nuclear Studies, University of Chicago, Chicago,
und dem Argonne National Laboratory, Lemont, Illinois(Z. Naturforschg. **14 a**, 500–503 [1959]; eingegangen am 28. März 1959)

The tritium und ^3He contents of three samples of the ABEE stone meteorite have been measured. Within the experimental limits of error both are found to be the same at the surface and near the center of the meteorite. At the time of fall (1952) the tritium activity was (0.26 ± 0.04) disintegrations/min g. The ^3He content was measured to be $(0.13 \pm 0.01) \cdot 10^{-6}$ cc STP/g. The amount of ^3He accumulated and the tritium decay rate yield a maximum radiation age of 30 million years. If it is assumed that equal amounts of ^3He and ^3H are produced by the interaction of cosmic rays with the meteoritic matter, the radiation age is 13 million years.

The $^4\text{He}/\text{U}$ -age of the meteorite is greater than 3800 million years. The possible significance of this discrepancy is discussed.

In den letzten Jahren haben die durch die Wechselwirkung von kosmischer Strahlung mit Meteoritenmaterial entstehenden stabilen und radioaktiven Reaktionsprodukte ein zunehmendes Interesse gefunden. Es erschien eine Reihe von Arbeiten, in denen Messungen der in Meteoriten vorhandenen kosmogenen Mengen He, Ne, A, Sc, ^3H , ^{10}Be , ^{26}Al , ^{39}A und ^{60}Co beschrieben sind^{1–23}. Dabei wurde schon bald versucht, aus den vorhandenen Mengen von stabilem Helium und Neon das Strahlungsalter der Meteorite, d. h. die Zeit, die die Meteorite der kosmischen Strahlung ausgesetzt waren, zu berechnen^{1, 6, 24–28}. Die so erhaltenen Alter waren jedoch recht ungenau, da eine Reihe von Annahmen über die Produktionsraten der betreffenden Isotope sowie die Intensität und das Energiespektrum der kos-

mischen Strahlung am Herkunftsort der untersuchten Proben gemacht werden mußten. Diese Schwierigkeiten konnten teilweise dadurch überwunden werden, daß man die Häufigkeit von isobaren bzw. isotopen Kernpaaren maß, von denen eines radioaktiv und das andere stabil ist^{12, 13, 19}. Bei einem gerade gefallenen Meteoriten ist dann die Zerfallsrate des radioaktiven Isotops gleich der mittleren Produktionsrate (gemittelt über eine mit der Halbwertszeit vergleichbaren Zeit bevor der Meteorit fiel), die Menge des stabilen Isotops ist ein Maß für die Bestrahlungsdauer. In diesem Fall brauchen nur noch Annahmen über das Verhältnis der Produktionsraten von radioaktivem zu stabilem Isotop sowie die zeitliche und räumliche Konstanz der kosmischen Strahlung gemacht zu werden.

* Jetzt im Max-Planck-Institut für Chemie (Otto-Hahn-Institut), Mainz.

** Jetzt im Institute of Technology and Engineering, University of California, La Jolla, California.

¹ K. I. MAYNE, F. A. PANETH u. P. REASBECK, *Geochim. Cosmochim. Acta* **2**, 300 [1952].² K. I. MAYNE, F. A. PANETH u. P. REASBECK, *Nature, Lond.* **172**, 200 [1953].³ K. F. CHACKETT, P. REASBECK u. E. J. WILSON, *Geochim. Cosmochim. Acta* **3**, 261 [1953].⁴ J. C. DALTON, F. A. PANETH, P. REASBECK, S. J. THOMSON u. K. I. MAYNE, *Nature, Lond.* **172**, 1168 [1953].⁵ P. REASBECK u. K. I. MAYNE, *Nature, Lond.* **176**, 186 [1955].⁶ P. REASBECK u. K. I. MAYNE, *Nature, Lond.* **176**, 733 [1955].⁷ W. GENTNER u. J. ZÄHRINGER, *Z. Naturforschg.* **10 a**, 498 [1955].⁸ A. V. TROFIMOV u. K. G. RIK, *Dokl. Akad. Nauk USSR* **102**, Nr. 5, 911 [1955].⁹ E. K. GERLING, *Dokl. Akad. Nauk, USSR* **107**, Nr. 4, 555 [1956].¹⁰ E. K. GERLING u. L. K. LEVSKII, *Dokl. Akad. Nauk, USSR* **110**, Nr. 5, 750 [1956].¹¹ W. GENTNER u. J. ZÄHRINGER, *Geochim. Cosmochim. Acta* **11**, 60 [1957].¹² E. L. FIREMAN u. D. SCHWARZER, *Geochim. Cosmochim. Acta* **11**, 252 [1957].¹³ F. BEGEMANN, J. GEISS u. D. C. HESS, *Phys. Rev.* **107**, 540 [1957].¹⁴ J. H. REYNOLDS u. J. I. LIPSON, *Geochim. Cosmochim. Acta* **12**, 330 [1957].¹⁵ T. P. KOHMAN u. W. D. EHMAN, UNESCO/NS/RIC/219.¹⁶ K. H. EBERT u. H. WÄNKE, *Z. Naturforschg.* **12 a**, 766 [1957].¹⁷ J. GEISS, *Chimica* **11**, 349 [1957].¹⁸ J. H. HOFFMAN u. A. O. NIER, *Phys. Rev.* **112**, 2112 [1958].¹⁹ E. L. FIREMAN, *Nature, Lond.* **181**, 1613 [1958].²⁰ E. L. FIREMAN, *Nature, Lond.* **181**, 1725 [1958].²¹ W. GENTNER, H. FECHTIG u. G. KISTNER, *Z. Naturforschg.* **13 a**, 569 [1958].²² H. WÄNKE, *Z. Naturforschg.* **13 a**, 645 [1958].²³ H. WÄNKE u. H. HINTENBERGER, *Z. Naturforschg.* **13 a**, 895 [1958].²⁴ S. F. SINGER, *Nature, Lond.* **170**, 728 [1952], *Phys. Rev.* **90**, 168 [1953].²⁵ G. R. MARTIN, *Geochim. Cosmochim. Acta* **3**, 288 [1953].²⁶ E. L. FIREMAN, *Phys. Rev.* **97**, 1303 [1955].²⁷ L. A. CURRIE, W. F. LIBBY u. R. L. WOLFGANG, *Phys. Rev.* **101**, 1557 [1956].²⁸ G. W. REED u. A. TURKEVICH, *Nature, Lond.* **180**, 594 [1957].

Bisher wurde je ein isobares und ein isotopes Paar für eine solche Berechnung des Strahlungsalters herangezogen, nämlich $^3\text{He}-^3\text{H}$ (s. Anm. ^{12,13}) und $^{39}\text{A}-^{38}\text{A}$ (s. Anm. ¹⁹), letzteres natürlicherweise bei Eisenmeteoriten.

Experimenteller Teil

Für unsere Untersuchungen standen uns drei Proben des Steinmeteoriten ABEE zur Verfügung, die uns freundlicherweise von Dr. K. R. DAWSON, Geological Survey of Canada, Ottawa, überlassen wurden. Der Meteorit fiel am 10. Juni 1952 um 06.05 h in der Provinz Alberta, Kanada ($54^\circ 13' \text{ N}$, $113^\circ 00' \text{ W}$). Seine Klassifizierung erscheint noch unsicher. DAWSON ²⁹ bezeichnet ihn als Chondrit (black polymict chondritic breccia); UREY und MAYEDA ³⁰ fanden keine Chondruhlen und bezeichnen ihn als Achondrit.

Das Gewicht des fast vollständig von einer geschmolzenen Oberflächenschicht überzogenen Meteoriten ist 107 kg, seine Gestalt etwa würfelförmig, die Dichte $3,39 \text{ g/cm}^3$.

Abb. 1 zeigt die Position der analysierten Proben innerhalb des Meteoriten.

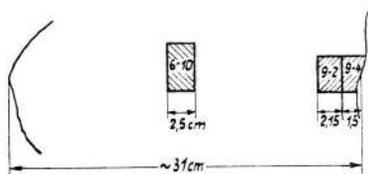


Abb. 1. Die Position der drei analysierten Proben innerhalb des Meteoriten. Probe 9.4 war auf einer Seite mit einer geschmolzenen Oberflächenschicht bedeckt, sie stammt also von der Oberfläche des Meteoriten. Probe 9.2 war 9.4 direkt benachbart (nur durch eine Sägeblattbreite getrennt). Probe 6.10 stammt etwa aus dem Zentrum des Meteoriten.

Die experimentellen Einzelheiten der Meßmethode sind bereits in einer früheren Arbeit beschrieben ¹³. Folgende Modifikationen wurden vorgenommen: Alle Proben wurden nach dem ersten Ausheizen unter erneuter Zugabe von Wasserstoffträgergas noch ein- bis zweimal ausgeheizt, ohne das Vakuumssystem zu öffnen, da sich herausstellte, daß bei diesem Meteoriten weder das Tritium noch das Helium durch einmaliges Ausheizen bei den erreichbaren Temperaturen vollständig extrahiert werden konnten. Die vollständige Extraktion des Heliums geschah der Einfachheit wegen durch Schmelzen von Aliquots (3–5 g) der fein pulverisierten und gut durchmischten Proben mit Borax als Fluß-

mittel. (Nähere Einzelheiten der massenspektrometrischen He-Bestimmungen sowie der Vollständigkeit der He-Extraktion bei Verwendung von Borax als Flußmittel werden a. a. O. beschrieben werden ³¹.)

In Tab. 1 und 2 sind die Meßergebnisse zusammengestellt.

Diskussion

Da frühere Erfahrungen ¹³ die Möglichkeit andeuteten, daß ein Teil des Tritium von den sich an der gekühlten Wand des Extraktionsgefäßes bildenden Sublimaten absorbiert wird, kam für die Tritiumextraktion die Verwendung eines Flußmittels, wie es zur Heliumextraktion verwendet wurde, nicht in Frage. Unter den gewählten Versuchsbedingungen gaben die Proben auch beim zweiten bzw. dritten Ausheizen noch meßbare Mengen Tritium ab. Die in Tab. 1, Spalte 6, angegebenen spezifischen Aktivitäten müssen somit durchweg als Minimalwerte angesehen werden. Wir glauben jedoch, daß die wahren Werte nicht wesentlich höher sind (höchstens 20%) als die hier angegebenen. (Eine Ausnahme ist Probe 9.4, bei der der beim zweiten Ausheizen gewonnene Wasserstoff vollständig verloren ging.) Über eine mögliche Tiefenabhängigkeit kann somit leider nichts ausgesagt werden. Innerhalb der Fehlergrenzen sind sowohl der Tritium- als auch der ^3He -Gehalt der Proben gleich.

Zur Berechnung des Strahlungsalters des Meteoriten, das definiert ist als

$$T_{\text{Str.}} = \frac{\text{Anzahl der vorhandenen } ^3\text{He-Atome}}{^3\text{He-Produktionsrate}},$$

muß die ^3He -Produktionsrate bekannt sein. Diese setzt sich zusammen aus der direkten ^3He -Produktionsrate und der des Tritium, das mit einer Halbwertszeit von $12,26 \text{ a}$ ³³ in ^3He zerfällt. Es muß also das Verhältnis der Produktionsraten $^3\text{He}/^3\text{H}$ abgeschätzt werden.

Es liegen zwei experimentelle Bestimmungen dieses Verhältnisses an Eisen vor. MARTIN, THOMSON, WARDLE und MAYNE ³⁴ fanden bei einer Protonenenergie von 340 MeV einen Wert von etwa 0,6; SCHAEFFER und ZÄHRINGER ³⁵ erhielten bei 430 MeV ein Verhältnis von 1,4 und bei 3 BeV sogar 2,4. Dieser letzte Wert kann für Steinmeteorite sicher als

²⁹ K. R. DAWSON, persönl. Mitteilung.

³⁰ H. C. UREY u. T. MAYEDA, persönl. Mitteilung, Arbeit erscheint in Geochim. Cosmochim. Acta.

³¹ P. EBERHARDT u. D. C. HESS, Astrophys. J., im Druck.

³² A. G. ENGELKEMEYER u. W. F. LIBBY, Rev. Sci. Instrum. **21**, 550 [1950].

³³ W. M. JONES, Phys. Rev. **100**, 124 [1955].

³⁴ G. R. MARTIN, S. J. THOMSON, G. WARDLE u. K. I. MAYNE, Phil. Mag. **45**, 410 [1954].

³⁵ A. O. SCHAEFFER u. J. ZÄHRINGER, Z. Naturforschg. **13a**, 346 [1958].

Probe	Gewicht (g)	Temperatur (°C)	Heizdauer (h)	Tritium-Aktivität	
				(Schläge/min)	(Zerf./min g) $t = 0$
6. 10	21,06	1250	7	2,51 ± 0,25	0,21 ± 0,05
		1350	10	0,56 ± 0,23	
	16,22	1300	7	2,32 ± 0,25	
		1350	9	0,15 ± 0,14 (a)	
9. 2	29,27	1250	9	2,90 ± 0,15	0,24 ± 0,05
		1300	9	1,36 ± 0,14	
		1400	10	0,92 ± 0,14	
9. 4	19,23	1200	8	2,12 ± 0,15	0,26 ± 0,04
		1300	10	(b)	
		1350	10	—	
					0,16 ± 0,03

(a) Etwa 50% des extrahierten Wasserstoffs verloren. (b) Extrahierter Wasserstoff vollständig verloren.

Tab. 1. Die Ergebnisse der Tritiummessungen. Spalte 5 gibt die gemessenen Aktivitäten in Schlägen/min, Spalte 6 die auf den Zeitpunkt des Falls des Meteoriten rückextrapolierten spezifischen Aktivitäten in Zerfälle/min g. Dabei ist außer einer 4-proz. Korrektur für Endverluste im Zählrohr ³² eine solche von 5% angebracht, die berücksichtigt, daß nicht aller Wasserstoff in das Zählrohr gepumpt werden konnte.

Probe	Temperatur (°C)	Heizdauer (h)	⁴ He (10 ⁻⁶ cm ³ NTP/g)	³ He (10 ⁻⁶ cm ³ NTP/g)	³ He/ ⁴ He (%)
6. 10	1200	7	—	0,13 ± 0,01	1,30 ± 0,2
9. 2	1200	7	12,5 ± 0,5	—	1,00 ± 0,05
9. 4	1200	7	12,2 ± 1,0	—	—

Tab. 2. Die Ergebnisse der massenspektrometrischen He-Bestimmungen. Nur die direkt gemessenen Werte sind eingetragen.

obere Grenzen angesehen werden, der wahrscheinlichste Wert dürfte etwa 1 sein.

In Tab. 3 sind das minimale, maximale und wahrscheinlichste Strahlungsalter des Meteoriten angegeben. Das Maximalalter wurde berechnet unter der Annahme, daß alles Tritium aus den Proben extrahiert wurde und daß gar kein ³He direkt entsteht. (Dies wäre z. B. dann der Fall, wenn alles ³He durch die Reaktion ⁶Li(n, α) ³H → ³He erzeugt worden wäre. Nimmt man jedoch für den bisher nicht gemessenen Li-Gehalt dieses Meteoriten den höchsten von FIREMAN und SCHWARZER¹² in Steinmeteoriten gefundenen Li-Wert als richtig an und macht vernünftige Annahmen über den Fluß langsamer Neutronen in Steinmeteoriten, so zeigt sich, daß der Beitrag dieser Reaktion zur Tritiumproduktionsrate zu vernachlässigen ist.)

Die zu dem Minimalalter führenden Annahmen sind, daß nur 80% des in den Proben vorhandenen Tritiums extrahiert wurde und daß das Verhältnis der Produktionsraten ³He/³H = 2,4 ist.

Für die Berechnung des wahrscheinlichsten Strahlungsalters schließlich wurde angenommen, daß die Tritiumzerfallsrate in den Proben 10% höher ist als

Tritium-aktivität (Zerfälle/min g)	³ He/ ³ H-Produktionsrate	Strahlungsalter (10 ⁶ a)		
		Max.	Min.	Wahrschlst.
0,22	0	30	—	—
0,30	2,4	—	7	—
0,26	1,0	—	—	13

Tab. 3. Das maximale, minimale und wahrscheinlichste Strahlungsalter. Für die zu den verschiedenen Altern führenden Annahmen siehe den Text.

der gefundene Mittelwert von 0,24 Zerfällen/min g und daß die Produktionsraten von ³He und ³H gleich sind.

Die Ergebnisse besagen dann, daß die untersuchten Proben dieses Meteoriten mindestens 7, höchstens 30, wahrscheinlich aber 13 Millionen Jahre der kosmischen Strahlung ausgesetzt waren, vorausgesetzt, daß deren Intensität im Mittel dieselbe war wie während der letzten 20 Jahre, da die gemessene Tritiumzerfallsrate ja nur eine Aussage über diese Zeit zu machen gestattet.

Aus dem gemessenen ⁴He-Gehalt (Tab. 2) und

dem von REED³⁶ mit Hilfe einer Neutronenaktivierungsanalyse bestimmten Urangehalt von $1,0 \cdot 10^{-8}$ g Uran/g berechnet sich (mit $\text{Th}/\text{U} = 4$ ³⁷) ein He/U -Alter von 3800 Ma³⁸. Dieses Alter, das den Zeitpunkt fixiert, zu dem der Meteorit zum letzten Mal so hoch erhitzt wurde, daß merkliche Mengen Helium verloren gingen, stellt eine untere Grenze dar, da Diffusionsverluste von ^4He während dieser langen Zeitspanne nicht mit Sicherheit auszuschließen sind. Seit mindestens 3800 Ma ist also dieser Meteorit nicht mehr wesentlich erhitzt worden.

Auffallend ist auch hier das gegenüber dem $^4\text{He}/\text{U}$ -Alter kleine Strahlungsalter. Dabei ist der Unterschied noch krasser als bei dem einzigen anderen bisher nach der $^3\text{He}/^3\text{H}$ -Methode untersuchten Steinmeteoriten, Norton County, bei dem ein Strahlungsalter von 260 Ma und ein A/K-Alter von 4400 Ma gefunden wurde¹³. Diese Diskrepanz läßt sich auf dreierlei Weise erklären.

1. Bis vor 13 Ma war dieser Meteorit Teil eines wesentlich größeren Meteors und durch das umgebende Material gegen die Einwirkung der kosmischen Strahlung abgeschirmt. Zu diesem Zeitpunkt zerbrach der Meteor ohne wesentliche Erwärmung und der vorliegende Meteorit entstand dabei in seiner jetzigen Größe (abgesehen von dem Massenverlust, den er beim Durchgang durch die Atmosphäre erlitt).

2. Der Meteorit bekam seine prä-atmosphärische Größe nicht durch ein einmaliges Aufbrechen eines wesentlich größeren Meteors, sondern durch stetigen Massenverlust bzw. wiederholtes Abbrechen kleiner Stücke. In diesem Fall wird die Intensität der kosmischen Strahlung am Herkunftsort der Proben ständig angewachsen sein, da der Abschirmungs-

effekt des umgebenden Materials dauernd geringer wurde.

3. Die Intensität der kosmischen Strahlung war zeitlich und/oder räumlich nicht konstant.

Gegen die Erklärung des geringen Strahlungsalters durch die Annahme, daß die kosmische Strahlung zeitlich nicht konstant war, spricht das höhere Strahlungsalter von Norton County (s. oben), sowie das einiger Eisenmeteorite (bis zu 1700 Ma)¹². (Selbst wenn man die von FIREMAN und SCHWARZER berechneten Strahlungsalter mit dem von SCHAEFFER und ZÄHRINGER³⁴ gefundenen Wert von 2,4 für das Verhältnis der $^3\text{He}/^3\text{H}$ -Produktionsraten in Eisen neu berechnet, ist das Strahlungsalter noch 700 Ma.)

Über die räumliche Konstanz der kosmischen Strahlung ist nur sehr wenig bekannt. Wollte man damit die kleinen Strahlungsalter erklären, würde das wegen deren Verschiedenheit bedeuten, daß die räumliche Herkunft der Meteorite sehr verschieden ist. Obwohl diese Möglichkeit nicht auszuschließen ist, erscheint uns doch eine der beiden ersten Erklärungen als die wahrscheinlich richtige.

Diese Arbeit wurde durch die U.S. Air Force, Office of Scientific Research, Contract Nr. AF 18(600) - 564 und durch die U.S. Atomic Energy Commission, Contract Nr. At(11-1) - 101 unterstützt.

Wir danken den Herren Prof. H. C. UREY, W. F. LIBBY, M. G. INGRAM und A. TURKEVICH für zahlreiche Diskussionen sowie Herrn Dr. G. W. REED für die Mitteilung der vorläufigen Ergebnisse seiner Urananalyse. Der eine von uns (P. E.) dankt Herrn Dr. J. GEISS für seine wertvolle Hilfe beim Aufbau der Gasextraktionsapparatur.

Unser besonderer Dank aber gilt Herrn Dr. K. R. DAWSON, Geological Survey of Canada, Ottawa, der uns in großzügiger Weise die untersuchten Meteoritenproben zur Verfügung stellte.

tion $^{204}\text{Pb}(n, 2n) ^{203}\text{Pb}$ auf ^{204}Pb analysiert wurden. Vergleichsmessungen ergaben aber in diesem Fall einen U-Gehalt, der etwa 25% über dem lag, der an unbestrahlten Proben gefunden wurde³⁶. Wenn der wahre U-Wert $0,75 \cdot 10^{-8}$ g/g wäre, ergäbe sich ein $^4\text{He}/\text{U}$ -Alter von 4400 Ma.

³⁶ G. W. REED, persönl. Mitteilung.

³⁷ G. L. BATE, J. R. HUIZENGA u. H. A. PORTRATZ, *Science* **126**, 612 [1957].

³⁸ Der Wert von $1,0 \cdot 10^{-8}$ g U/g muß als vorläufiger Wert betrachtet werden, da die Uranbestimmung an Aliquots der Proben durchgeführt wurde, die vorher mit Hilfe der Reak-