

# Zur Frage der Diffusionsverluste von radiogenen und spallogenen Edelgasen aus Steinmeteoriten

Von H. HINTENBERGER, E. VILCSEK und H. WÄNKE

Max-Planck-Institut für Chemie (Otto-Hahn-Institut), Mainz  
(Z. Naturforschg. 19 a, 219—224 [1964]; eingegangen am 29. November 1963)

Using a newly developed technique of specific solvents we succeeded in measuring the rare gas contents of the main mineral fractions of stone meteorites separately. In this way we studied the diffusion loss of the radiogenic and spallogenic rare gases in 5 chondrites which all had U-Th-He ages considerably below 4.5 billion years. The results showed that in 4 of these meteorites, which all belong to the UREY-CRAIG group L, no diffusion losses occurred during the time of cosmic ray exposure. Only in one of the meteorites, i. e. Breitscheid, (group H) large diffusion losses of the cosmic ray produced  $^3\text{He}$  were found. Considerable losses of radiogenic  $^4\text{He}$  could be proved for the meteorites Breitscheid and Bruderheim. For the meteorite Breitscheid the loss of  $^4\text{He}$  seems to be approximately a factor of 2 lower than that of  $^3\text{He}$ .

Während bei irdischen Gesteinen Altersbestimmungen an getrennten Mineralen bereits seit längerer Zeit allgemein üblich sind, ist ein solches Verfahren noch niemals für Altersbestimmungen an Meteoriten angewendet worden. Der Grund hierfür liegt in der Kostbarkeit und Begrenztheit der zur Verfügung stehenden Proben. Während es beispielsweise bei irdischen Gesteinen praktisch nichts ausmacht, von dem 100- bis 1000-fachen der benötigten Probenmenge auszugehen, und es einzige und allein darauf ankommt, die jeweilige Endfraktion möglichst sauber zu haben, ist ein solches Vorgehen im Falle der Meteorite von vornherein ausgeschlossen. Außerdem kam es uns speziell darauf an, mögliche Diffusionsverluste sowohl von radiogenen als auch von spallogenen durch die Höhenstrahlung in den Meteoriten erzeugten Edelgasen aufzuspüren. Methoden, mit denen es zwar möglich ist, kleine Fraktionen mit relativ sauber getrennten Mineralen zu gewinnen, bei denen aber die Hauptmenge der Ausgangsprobe in zahlreichen recht inhomogenen Fraktionen anfällt, mußten daher ausscheiden. Für uns kam nur ein Verfahren in Frage, das es erlaubt, die Gesamtprobe in einigermaßen einheitliche Fraktionen zu zerlegen. Dies ist jedoch mit den klassischen Methoden der Mineraldurchsuchung so gut wie unmöglich, auch können hierbei nur jeweils Minerale von einer bestimmten Korngröße ab getrennt werden. Hinsichtlich etwaiger Diffusionsverluste sind aber gerade die sehr kleinen Korngrößen von entscheidender Bedeutung.

## 1. Problemstellung

Wie schon in einer vorhergehenden Arbeit ausgeführt<sup>1</sup>, zeigt ein großer Teil der von uns untersuchten Steinmeteorite deutliche Anzeichen von Diffusionsverlusten der beiden radiogenen Edelgase  $^4\text{He}$  und  $^{40}\text{Ar}$ . Während Altersbestimmungen an Steinmeteoriten nach der Rubidium-Strontium-<sup>2,3</sup> bzw. nach der Blei-Bleimethode<sup>4,5</sup> stets Alterswerte von ca. 4,5 Milliarden Jahren ergeben, liegen die Kalium-Argon- und Uran-Thorium-Heliumalter teilweise beträchtlich tiefer, selbst Alterswerte unter 1 Milliarde Jahre treten bei den Edelgasmethoden auf<sup>1,6</sup>. Da überdies die Uran-Thorium-Heliumalter häufig und zum Teil wesentlich tiefer liegen als die Kalium-Argonalter, ist der Unterschied zu den Rubidium-Strontium- bzw. Blei-Bleialtern in vielen Fällen auch nicht durch eine einmalige zwischenzeitliche starke Erwärmung, bei der dann alle bisher gebildeten Edelgase ausgetrieben wurden, zu erklären. Es besteht vielmehr der berechtigte Verdacht, daß man es mit partiellen Diffusionsverlusten von Edelgasen bei relativ geringer Temperatur zu tun hat. Stimmen Uran-Thorium-Heliumalter und Kalium-Argonalter überein, so haben Proben mit Edelgasalterswerten unter  $4,5 \cdot 10^9$  Jahren entweder eine einmalige stärkere Erhitzung zu dem Zeitpunkt, der durch den Alterswert gegeben ist, durchgemacht, oder aber, diese Meteorite waren seit ihrer Phasentrennung, also seit etwa 4,5 Milliarden Jahren (Rb-Sr- oder

<sup>1</sup> H. HINTENBERGER, H. KÖNIG u. H. WÄNKE, Z. Naturforschg. 17 a, 1092 [1962].

<sup>2</sup> E. SCHUMACHER, Z. Naturforschg. 11 a, 206 [1956].

<sup>3</sup> P. W. GAST, Geochim. Cosmochim. Acta 26, 927 [1962].

<sup>4</sup> C. C. PATTERSON, Geochim. Cosmochim. Acta 7, 151 [1955].

<sup>5</sup> D. C. HESS u. R. R. MARSHALL, Geochim. Cosmochim. Acta 20, 284 [1960].

<sup>6</sup> T. KIRSTEN, D. KRANKOWSKY u. J. ZÄHRINGER, Geochim. Cosmochim. Acta 27, 13 [1963].



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Pb-Pb-Alter), einer gegenüber den übrigen Meteoriten wesentlich höheren Aufbewahrungstemperatur ausgesetzt, die dann erst zu dem Zeitpunkt, der durch das Edelgasalter beschrieben wird, plötzlich abfiel. Alle diese Probleme wurden kürzlich in einer Arbeit von ANDERS<sup>7</sup> ausführlich diskutiert.

Neben den radiogenen Edelgasen sind in Steinmeteoriten manchmal auch bei den durch die Höhenstrahlung erzeugten Edelgasen Andeutungen von Diffusionsverlusten vorhanden. So zeigte das Verhältnis  ${}^3\text{He}/{}^{21}\text{Ne}$  für die von uns untersuchten Steinmeteorite überraschend hohe Schwankungen<sup>1, 8</sup>. Berücksichtigt man die gemessenen Extremwerte für dieses Verhältnis, so hat man es sogar mit Schwankungen von über einem Faktor 10 zu tun. Bei den normalen Chondriten sind die extrem niedrigen  ${}^3\text{He}/{}^{21}\text{Ne}$ -Werte ( ${}^3\text{He}/{}^{21}\text{Ne} \leq 3$ ) so gut wie sicher auf Diffusionsverluste zurückzuführen. Wir wollten aber vor allem auch untersuchen, ob vielleicht das spallogene  ${}^3\text{He}$  ebenso oft Diffusionsverluste zeigt wie das radiogene  ${}^4\text{He}$ . Im Falle einer Parallelität zwischen spallogenem  ${}^3\text{He}$ - und radiogenem  ${}^4\text{He}$ -Verlusten wäre es naheliegend, diese Diffusionsverluste während der Zeitspanne der Einwirkung der kosmischen Strahlung anzunehmen. Die Ursache für derartige Diffusionsverluste wäre dann vermutlich auf Grund der jeweiligen Meteoritbahnen in einer größeren Annäherung an die Sonne und einer damit verbundenen stärkeren Erwärmung zu suchen.

Die Steinmeteorite und besonders die Chondrite sind glücklicherweise aus mehreren, hinsichtlich ihrer Diffusionskonstanten sicherlich recht unterschiedlichen Mineralien zusammengesetzt. Das durch die Höhenstrahlung gebildete  ${}^3\text{He}$  wird in allen Meteoritmineralien mit praktisch denselben Produktionsraten gebildet, ausgenommen nur das metallische Nickeleisen, in dem die  ${}^3\text{He}$ -Produktionsrate etwas tiefer liegt.  ${}^{21}\text{Ne}$  wird im Nickeleisen mit wesentlich geringeren Produktionsraten gebildet als in den silikatischen Meteoritbestandteilen. Hingegen hat man für die Bildung von  ${}^{21}\text{Ne}$  im Pyroxen mit praktisch den gleichen oder doch nur unwesentlich geringeren Produktionsraten zu rechnen als im Olivin.

Im Falle des radiogenen  ${}^4\text{He}$  würde man zunächst eine Anreicherung in den Meteoritmineralien mit höherem Urangehalt vermuten. Da aber die mittlere Korngröße der Meteoritmineralien vergleichbar ist

mit der Reichweite der  $\alpha$ -Teilchen aus der Uran- bzw. Thoriumreihe, so sollte auch das radiogene  ${}^4\text{He}$  einigermaßen homogen verteilt sein, ausgenommen natürlich nur die sehr groben Körner.

VILCSEK und WÄNKE<sup>9</sup> haben nun kürzlich ein Verfahren entwickelt, bei dem mittels spezifischer Lösungsmittel jeweils nur bestimmte Minerale aufgeschlossen werden, so daß die in diesen Mineralien enthaltenen Edelgase getrennt gemessen werden können. Dieses Verfahren haben wir benutzt, um die Fragen der Diffusionsverluste der radiogenen und spallogenen Edelgase in Steinmeteoriten zu klären.

## 2. Durchführung der Experimente

Die Meteoritproben werden so weit pulverisiert, daß sie ein Sieb von  $60 \mu$  Maschengröße passieren können. Das schwer zu zerkleinernde metallische Nickeleisen muß allerdings teilweise in größeren Korngrößen dazugenommen werden. Die gepulverten Meteoritproben (in unseren Versuchen hatten wir mit Einwaagen zwischen 5 und 10 g gearbeitet) wurden nun nacheinander folgenden Lösungsschritten unterworfen:

1.  $\text{CuCl}_2$ -Lösung (Lösen des Nickeleisens),
2. Bromwasser (Troilit),
3. Salzsäure (Olivin).

Sämtliche Operationen erfolgten im Vakuum.

Die verbleibenden unlöslichen Silikate (Pyroxene und Feldspäte) wurden zur Edelgasextraktion im Hochfrequenzofen auf etwa  $1500^\circ\text{C}$  erhitzt.

Die hierzu verwendete Apparatur und das Verfahren wurden in der Arbeit von HINTENBERGER, KÖNIG und WÄNKE<sup>1</sup> beschrieben.

Sowohl die durch Lösen als auch die durch Erhitzen extrahierten Gase wurden einer Apparatur zur Mikroanalyse von Edelgasen zugeführt, Helium und Neon untereinander und von allen anderen Gasen abgetrennt, gemessen und anschließend die Isotopenverhältnisse massenspektrometrisch bestimmt. Der genaue Vorgang der Edelgasanalysen wurde schon an anderen Stellen mehrfach ausführlich beschrieben<sup>1, 10</sup>.

Die Lösungen aus den einzelnen Fraktionen wurden chemisch aufgearbeitet und die in Lösung gegangenen Elemente quantitativ bestimmt. Die einzelnen Lösungsfractionen enthielten beinahe die Gesamtmenge des betreffenden Minerals. Nur die Bromfraktionen enthielten neben dem Troilit auch noch beträchtliche Mengen von Olivin sowie Reste des metallischen Nickeleisens, das in der  $\text{CuCl}_2$ -Fraktion nicht ganz vollständig gelöst wurde. Es hätte jedoch durch eine Verlängerung der Einwirkungsdauer bereits in der  $\text{CuCl}_2$ -Fraktion vollständig in Lösung gebracht werden können. Wie wir in Vorversuchen zeigen konnten, enthält die  $\text{HCl}$ -Fraktion

<sup>7</sup> E. ANDERS, Rev. Mod. Phys. **34**, 287 [1962].

<sup>8</sup> H. HINTENBERGER, H. KÖNIG, L. SCHULTZ u. H. WÄNKE, Z. Naturforschg. **19 a**, [1964], im Druck.

<sup>9</sup> E. VILCSEK u. H. WÄNKE, in Vorbereitung, erscheint voraussichtlich in Z. Naturforschg. **19 a**, [1964].

<sup>10</sup> K. H. EBERT u. H. WÄNKE, Z. Naturforschg. **12 a**, 766 [1957].

praktisch nur Eisen, Magnesium und Kieselsäure, während Calcium und Aluminium nur in Spuren nachweisbar sind. Aus den Analysendaten geht deutlich hervor, daß in der HCl-Faktion praktisch nur reiner Olivin in Lösung geht. Im unlöslichen Rückstand ist der gesamte Pyroxen und der Großteil der Feldspäte enthalten. Es wäre allerdings denkbar, daß ein Teil dieses unlöslichen Rückstandes während des Einwirkens der Salzsäure einer gewissen Veränderung unterzogen wird. Hierbei könnten auch kleine Mengen der in den praktisch ungelösten Mineralien enthaltenen Edelgasmengen in Freiheit gesetzt werden. Der Prozentsatz solcher etwa aus dem unlöslichen Rückstand bereits in der HCl-Faktion extrahierten Edelgasmengen ist sicher sehr klein und muß, da wir einen solchen Effekt niemals nachweisen konnten, unter etwa 5% liegen.

Die Summe der einzelnen Mineralfraktionen blieb meistens unter 100%. Dies ist jedoch nicht verwunderlich, da bei dem mehrmaligen Umspülen der noch ungelöst gebliebenen Proben Verluste unvermeidbar waren. Der Verlust war jedoch niemals größer als 6%.

### 3. Meßergebnisse

Die Meßergebnisse der extrahierten Edelgasmengen für die 5 von uns bisher untersuchten Meteorite sind in Tab. 1 wiedergegeben; außerdem sind in dieser Tabelle noch die in den einzelnen Fraktionen aufgeschlossenen Mineralanteile aufgeführt. In den Spalten 7, 8 und 9 der Tab. 1 sind die in den einzelnen Fraktionen extrahierten Mengen von  ${}^3\text{He}$ ,  ${}^4\text{He}$  und  ${}^{21}\text{Ne}$  in  $10^{-8} \text{ cm}^3$  pro Gramm Meteorit aufgeführt. Die Summe der 4 Einzelfraktionen kann somit sofort mit den von uns schon früher bestimmten Edelgasgehalten in der Gesamtprobe verglichen werden. Die Spalten 10 bis 13 enthalten die entsprechenden Edelgaswerte, bezogen auf 1 g der in der entsprechenden Fraktion in Lösung gegangenen Minerale. In der Zeile HCl handelt es sich somit beispielsweise um die in 1 g Olivin enthaltenen Edelgasmengen. Der Fehler der Edelgasbestimmungen liegt im allgemeinen zwischen 5 und 10%, für besonders kleine Neonkonzentrationen von unter  $0,5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{g}$  Met. steigt er auf etwa 10 bis 20% an.

Der Anteil an  ${}^4\text{He}_{\text{rad}}$  wurde jeweils durch Subtraktion des der  ${}^3\text{He}$ -Menge entsprechenden Spallationsanteils von  ${}^4\text{He}$  berechnet. Hierzu gingen wir von der Annahme aus, daß durch die Höhenstrahlung viermal soviel  ${}^4\text{He}$  gebildet wird wie  ${}^3\text{He}$ . Die Spalte 14 enthält das Verhältnis der beiden nur durch die Höhenstrahlung gebildeten Edelgasisotope  ${}^3\text{He}$  und  ${}^{21}\text{Ne}$ .

Im Falle des Meteoriten Breitscheid ist zu beachten, daß wir zur Lösung des metallischen Nickel-eisens anstatt der später verwendeten Kupferchloridlösung eine Lösung von Eisen-(III)-Chlorid verwendet hatten. Der Troilit bleibt sowohl bei Verwendung von Eisen-(III)-Chlorid als auch in der Kupferchloridlösung vollständig unangegriffen. Die Edelgasmengen der Bromfraktion von Breitscheid gingen leider verloren.

Betrachtet man Spalte 10 in Tab. 1, so sieht man sofort, daß, wie nach den Erzeugungsquerschnitten zu erwarten, die  ${}^3\text{He}$ -Konzentrationen im metallischen Nickeleisen nur etwa  $\frac{2}{3}$  der Konzentrationen von  ${}^3\text{He}$  im Olivin bzw. Pyroxen ausmachen. Die kleinen  ${}^3\text{He}$ -Konzentrationen im Troilit von Hayes Center und vor allem im Troilit von Mocs sind schwer verständlich, und wir haben hierfür bis jetzt keine überzeugende Erklärung. Wir möchten jedoch weitere Messungen an diesen Meteoriten abwarten, bevor wir näher hierauf eingehen.

Während das Verhältnis der  ${}^3\text{He}$ -Mengen im Nickel-eisen zu denen im Olivin bzw. Pyroxen in allen Meteoriten annähernd konstant ist, liegt der  ${}^3\text{He}$ -Gehalt des Pyroxens (unlöslicher Rückstand) von Breitscheid (hell) nur bei ca. 20% des  ${}^3\text{He}$ -Gehalts des Olivins. Nimmt man annähernd gleiche Korngrößenverteilung zwischen Olivin und Pyroxen an, so muß man auf größere Diffusionskonstanten der Edelgase im Pyroxen gegenüber denen im Olivin schließen. Dies könnte auf die unterschiedliche Struktur zurückgeführt werden.  ${}^3\text{He}$  wird ausschließlich durch die Höhenstrahlung erzeugt, und man müßte somit Diffusionsverluste während der Einwirkung der Höhenstrahlung für diesen Meteoriten annehmen. Das von uns früher<sup>1</sup> in einer Gesamtprobe vom Breitscheid (hell) gefundene  ${}^3\text{He}/{}^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis von 3,82 liegt in der Tat sehr niedrig und läßt auf einen solchen Diffusionsverlust von  ${}^3\text{He}$  schließen. Auch das Verhältnis der  ${}^{21}\text{Ne}$ -Mengen in der Olivin- und Pyroxenfraktion liegt mit 0,46 für Breitscheid (hell) wesentlich unter den Werten der anderen untersuchten Meteorite. Da offenkundig neben dem  ${}^3\text{He}$ -Verlust auch ein solcher von  ${}^{21}\text{Ne}$ , wenn auch in geringerem Umfang, eintrat, so ist damit bewiesen, daß das  ${}^3\text{He}/{}^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis nicht ganz so empfindlich auf Diffusionsverluste ist, wie man zunächst annehmen möchte.

Deutliche Diffusionsverluste von radiogenem  ${}^4\text{He}$  zeigen die Meteorite Breitscheid (hell) sowie Bruderheim. Da im Bruderheim praktisch kein Verlust von

1 Meteorit	2 Metall	3 $\Sigma$ FeS	4 Olivin	5 Pyro- xen	6 $\Sigma$	7 ${}^3\text{He}$	8 ${}^4\text{He}$	9 ${}^{21}\text{Ne}$	10 ${}^3\text{He}$	11 ${}^4\text{He}$	12 ${}^4\text{He}_{\text{rad}}$	13 ${}^{21}\text{Ne}$	14 ${}^3\text{He}$ ${}^{21}\text{Ne}$	
		Gewichtsprozent bezogen auf die Einwaage					in $10^{-8} \text{ cm}^3/\text{g}$ Met.					in $10^{-8} \text{ cm}^3/\text{g}$ gelöst		
Akaba	CuCl <sub>2</sub> Br <sub>2</sub> HCl Rü.	7,91 1,78	4,29	0,50 1,46 33,1		8,41 7,53 33,1 47,1	2,35 2,95 15,8 47,1	24,9 70,6 269 18,9	0,060 0,240 2,27 2,54	28,0 39,2 47,8 40,2	296 940 815 895	184 783 624 734	0,72 3,19 6,88 5,40	39 12,3 6,95 7,44
Rü./HCl = Pyroxen/Olivin	$\Sigma$ Lit. <sup>1</sup>	9,69	4,29	35,1	47,1	96,1	40,0 40,9	786 805	5,11 5,48					7,82 7,46
Breitscheid	FeCl <sub>3</sub> (hell)	17,1	5,6	0,48 3,3 24,6		17,6 8,9 24,6 49,3	8,8 291 3,98 7,16	91,0 267	0,196 3,64	50,0 14,5	516 1183 541	316 915 483	1,10 1,17 0,78	45
Rü./HCl = Pyroxen/Olivin	$\Sigma$ Lit. <sup>1</sup>	17,1	5,6	28,4	49,3	100,4	32,5 35,3	649 608	7,82 9,25					4,16 3,82
Bruderheim	CuCl <sub>2</sub> Br <sub>2</sub> HCl Rü.	8,75 2,09	5,35	0,82 3,79 32,4		9,57 11,23 32,4 41,3	2,90 3,68 19,3 17,2	29,3 50,7 220 142	0,17 0,33 3,95 2,98	30,3 32,8 59,6 41,7	306 452 678 344	185 321 440 178	1,78 2,94 12,2 7,23	17,0 11,2 4,89 5,77
Rü./HCl = Pyroxen/Olivin	$\Sigma$ Lit. <sup>1</sup>	10,84	5,35	37,0	41,3	94,5	43,1 47,4	442 526	7,43 8,17					5,80 5,80
Hayes	CuCl <sub>2</sub> Center	8,65 1,44	5,25	0,24 3,31 26,5		8,89 10,0 26,5 51,5	2,70 1,53 13,7 22,8	14,6 25,8 94,8 170,2	0,090 0,417 3,70 5,51	30,4 15,3 51,8 44,3	164 258 358 331	42 197 151 158	1,02 4,17 14,0 10,7	29,8 3,67 3,70 4,14
Rü./HCl = Pyroxen/Olivin	$\Sigma$ Lit. <sup>1</sup>	10,09	5,25	30,0	51,5	96,9	40,7 49,0	305 348	9,72 10,02					4,48 4,89
Mocs	CuCl <sub>2</sub> Br <sub>2</sub> HCl Rü.	6,92 0,91	5,31	0,44 0,95 31,9		7,36 7,17 31,9 49,3	0,78 0,22 9,9 9,92	22,8 232 2,10 313	0,048 0,033 2,10 2,63	10,6 3,1 29,4 20,2	310 138 728 635	268 126 610 554	0,65 0,47 6,60 5,34	16,3 6,6 4,45 3,78
Rü./HCl = Pyroxen/Olivin	$\Sigma$ Lit. <sup>1</sup>	7,83	5,31	33,3	49,3	95,7	20,3 25,1	577 608	4,81 5,38					4,22 4,67

Tab. 1. Mineralzusammensetzung und Edelgasgehalt der untersuchten Meteorite. Die Edelgaswerte der Spalten 10 bis 13 beziehen sich auf 1 Gramm der in der entsprechenden Fraktion in Lösung gegangenen Minerale.

${}^3\text{He}$  nachweisbar ist, muß für diesen Meteoriten der Verlust von radiogenem  ${}^4\text{He}$  offenbar vor der Einwirkung der Höhenstrahlung stattgefunden haben. Obwohl das Uran-Thorium-Helium-Alter des Meteoriten Hayes Center nur 780 Millionen Jahre beträgt

(siehe Tab. 3), zeigt dieser Meteorit keinerlei Anzeichen für einen Diffusionsverlust von radiogenem Helium. Hierzu ist zu bemerken, daß für Hayes Center das Uran-Thorium-Helium-Alter gut mit dem Kalium-Argon-Alter<sup>6</sup> übereinstimmt und somit par-

tielle Diffusionsverluste bei niedrigen Temperaturen auszuschließen sind.

Nicht verständlich erscheint auf den ersten Blick die Tatsache, daß bei Breitscheid (hell) das Verhältnis der  $^3\text{He}$ -Menge im Pyroxen zu der im Olivin wesentlich niedriger ist als das Verhältnis der entsprechenden  $^4\text{He}$ -Mengen. Nach dem Vorhergesagten kann man das Verhältnis der Konzentration eines bestimmten Edelgasisotops im Pyroxen und Olivin als Maß für den Grad der Diffusionsverluste dieses Edelgasisotops in dem betreffenden Meteoriten betrachten. Unter keinen Umständen kann jedoch nach den zur Zeit allgemein akzeptierten Vorstellungen über die Lebensgeschichte der Meteorite der Diffusionsverlust von  $^3\text{He}$  größer sein als der Diffusionsverlust von radiogenem  $^4\text{He}$ . Da schon in der Zeit, bevor  $^3\text{He}$  durch Spallation gebildet wurde, radiogenes  $^4\text{He}$  verlorengegangen sein kann, ist abgesehen von Isotopeneffekten der Verlust an  $^4\text{He}$  stets größer oder höchstens gleich dem Verlust an  $^3\text{He}$ . Die Meßdaten im Meteoriten Breitscheid (hell) scheinen jedoch zu beweisen, daß der prozentuale Verlust von  $^3\text{He}$  größer ist als der von  $^4\text{He}$ . Da jedoch Breitscheid ein Meteorit mit sogenannter Hell-Dunkel-Struktur ist, und der dunkle Anteil dieses Meteoriten große Mengen von Uredelgasen enthält (HINTENBERGER, KÖNIG, WÄNKE<sup>11</sup>), so wäre es denkbar, daß auch im hellen Anteil des Meteoriten ein Teil des  $^4\text{He}$  nicht radiogenen Ursprungs ist, sondern daß es sich um Urgas handelt. Letztere Möglichkeit ist aber ziemlich unwahrscheinlich, da sich im ungelösten Rückstand des uredelgashaltigen Anteils von Breitscheid prozentuell nur wenig des gesamten Uredelgases fand<sup>12</sup>. Somit könnte man annehmen, daß Breitscheid schon einmal zu einem früheren Zeitpunkt der Einwirkung der Höhenstrahlung ausgesetzt war und die dabei gebildeten Spallationsedelgase teilweise durch Diffusion verlorengegangen, bevor noch die Hauptmengen des radiogenen Heliums gebildet wurden.

Wir werden an anderen Stellen noch näher darauf eingehen, warum man gerade für die uredelgashaltigen Steinmeteorite eine solche erste Zeitspanne der Einwirkung der Höhenstrahlungen möglicherweise erwarten sollte<sup>12–14</sup>. Hierbei ist natürlich noch ungeklärt, ob nicht vielleicht für einen Teil der

Meteorite die Höhenstrahlung während der ganzen Zeit, wie sie ihren radiogenen Altern entspricht, auf diese Meteorite eingewirkt hat. Falls, wie von WÄNKE<sup>13</sup> vorgeschlagen wurde, tatsächlich eine Verbindung zwischen den Uredelgasen der Steinmeteorite und dem Sonnenwind besteht, müßte sich das Material der uredelgashaltigen Meteorite über längere Zeiträume entweder in Form von Staub im Welt Raum oder aber in den äußersten Schichten des Meteoritenmutterkörpers befinden haben und könnte zeitweise der Einwirkung geringer Intensität der Höhenstrahlung ausgesetzt gewesen sein. Wegen der größeren „Tiefe“ waren sicher die Produktionsraten für  $^3\text{He}$  und  $^{21}\text{Ne}$  relativ klein, doch ist die Menge irgendeines stabilen Spallationsproduktes der Höhenstrahlung proportional der Strahlungsdosis, der die Meteoritmaterie ausgesetzt war. Wenn die Höhenstrahlungsintensität auch gering war, so kann jedoch die Einwirkung über sehr lange Zeiten hin stattgefunden haben.

In Tab. 2 sind die Isotopenhäufigkeiten des Neons der einzelnen Fraktionen der untersuchten Meteorite aufgezeichnet. Pyroxen, Olivin und teilweise auch die Troilitfraktion zeigen reines Spallationsneon. Nur die Nickeleisenfraktionen enthalten fast durchweg einen gewissen Überschuß an  $^{20}\text{Ne}$ . Dieser Überschuß ist wesentlich größer als nach unseren Blindwerten zu erwarten ist (die Werte in Tab. 2 sind bereits blindwert-korrigiert). Es kann natürlich sein, daß es sich hier um adsorbiertes Luftneon handelt, da ja auch die Absolutwerte des Neons in den Nickeleisenfraktionen wesentlich geringer sind als in den übrigen Fraktionen. Es wäre jedoch auch möglich, daß man es hier, zumindest teilweise, mit Urneon zu tun hat. Hierzu ist zu bemerken, daß sowohl von KIRSTEN, KRANKOWSKY und ZÄHRINGER<sup>6</sup> als auch von SIGNER<sup>15</sup> praktisch in allen Steinmeteoriten kleine Mengen Urargon nachgewiesen wurden. Es könnte somit durchaus sein, daß viele Meteorite außerdem winzige Mengen von Urneon enthalten, die natürlich normalerweise durch das Spallationsneon vollkommen überdeckt werden.

Ebenso sind die  $^{21}\text{Ne}$ -Mengen der Nickeleisenfraktionen höher, als man erwarten sollte. Während das Verhältnis  $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$  in Eisenmeteoriten bei etwa 100

<sup>11</sup> H. HINTENBERGER, H. KÖNIG u. H. WÄNKE, Z. Naturforschg. **17 a**, 306 [1962].

<sup>12</sup> H. HINTENBERGER, E. VILCEK u. H. WÄNKE, in Vorbereitung, voraussichtlich Z. Naturforschg. **19 a**, [1964].

<sup>13</sup> H. WÄNKE, in Vorbereitung, erscheint voraussichtlich in Z. Naturforschg. **19 a** [1964].

<sup>14</sup> H. E. SUÈSS, H. WÄNKE u. F. WLOTZKA, Geochim. Cosmochim. Acta, im Druck, erscheint 1964.

<sup>15</sup> P. SIGNER, private Mitteilung.

Meteorit		$^{21}\text{Ne}$ in $10^{-8} \text{ cm}^3/\text{g}$ Met.	$^{21}\text{Ne}$ in $10^{-8} \text{ cm}^3/\text{g}$ gelöst	Blind- wert in %	20	Neon $^{21}$ in %	22
Akaba	$\text{CuCl}_2$	0,060	0,72	29	50,0	21,8	28,2
	$\text{Br}_2$	0,240	3,19	6,2	32,5	30,4	37,1
	$\text{HCl}$	2,27	6,88	0,5	31,4	32,4	36,2
	Rü.	2,54	5,40	11,1	29,6	33,0	37,4
Breitscheid	$\text{FeCl}_3$	0,196	1,11	6,2	47,7	25,0	27,3
	$\text{Br}_2$	—	—	6,4	—	—	—
	$\text{HCl}$	3,98	16,2	0,7	31,3	33,2	35,5
	Rü.	3,64	7,38	11,8	35,9	30,4	33,7
Bruderheim	$\text{CuCl}_2$	0,17	1,78	15,5	52,2	22,0	25,8
	$\text{Br}_2$	0,33	2,94	5,0	34,8	29,6	35,6
	$\text{HCl}$	3,95	12,2	0,3	31,8	33,5	34,7
	Rü.	2,98	7,23	7,8	29,3	34,2	36,5
Hayes Center	$\text{CuCl}_2$	0,090	1,02	29	31,5	34,5	34,0
	$\text{Br}_2$	0,417	4,17	3,7	30,5	33,8	35,7
	$\text{HCl}$	3,70	14,0	0,8	31,1	34,0	34,9
	Rü.	5,51	10,7	4,1	32,6	32,8	34,6
Mocs	$\text{CuCl}_2$	0,048	0,65	20	73,8	10,6	15,6
	$\text{Br}_2$	0,037	0,52	30	43,0	28,5	28,5
	$\text{HCl}$	2,10	6,60	0,6	33,6	32,2	34,2
	Rü.	2,63	5,34	11,7	31,0	33,0	36,0

Tab. 2. Neon-Isotopenhäufigkeiten und  $^{21}\text{Ne}$ -Konzentrationen.

liegt (HINTENBERGER und WÄNKE<sup>16</sup>), liegt dieses Verhältnis, wie Tab. 1 zeigt, für das Nickeleisen der Steinmeteorite wesentlich tiefer. Ein Teil, aber kaum der gesamte Überschuß an  $^{21}\text{Ne}$ , kann durch Spuren von in der  $\text{CuCl}_2$ -Fraktion aufgelöstem Silikat erklärt werden. Vor allem in diesem Punkt sind noch genauere Messungen erforderlich, bevor Endgültiges gesagt werden kann.

Wir möchten noch darauf hinweisen, daß es sich bei dem Meteorit Breitscheid um den einzigen von uns auf diese Weise untersuchten Meteoriten der Gruppe H (UREY-CRAIGSche Einteilung<sup>17</sup>) handelt, während alle vier übrigen Meteorite zur Gruppe L gehören. Es ist in diesem Zusammenhang vielleicht auffallend, daß alle Meteorite mit großem Gehalt an leichten Uredelgasen der Gruppe H angehören, so weit es sich um Chondrite handelt.

Zusammengefaßt haben unsere Messungen gezeigt, daß 4 der 5 von uns untersuchten Meteorite während der Zeitspanne der Einwirkung der Höhenstrahlung keine nennenswerten Diffusionsverluste von Edelgasen erlitten haben. Einzig Breitscheid zeigt starke Diffusionsverluste von spallogenem  $^3\text{He}$ . Verluste von radiogenem  $^4\text{He}$  sind für die Meteorite Breitscheid und Bruderheim deutlich nachweisbar. Für Breitscheid scheint der Verlust von radiogenem  $^4\text{He}$  um etwa einen Faktor 2 niedriger als der Verlust

von  $^3\text{He}$ . Aus diesem Ergebnis scheinen sich Hinweise für eine frühe Einwirkung der Höhenstrahlung auf die Meteoritenmaterie, lange bevor die Meteorite als kleine Körper aus ihrem größeren Mutterkörper ausgebrochen sind, zu ergeben.

Meteorit	K-Ar- Alter $10^9 \text{ a}$	Literatur	U-Th-He- Alter $10^9 \text{ a}$	Literatur
Akaba	3,57	18	2,98	1
Breitscheid	3,33	18	1,35	1
Bruderheim	1,85	6	1,43	1
Hayes Center	0,65	6	0,78	1
Mocs	3,75	18	1,75	1

Tab. 3. K-Ar-Alter und U-Th-He-Alter der untersuchten Meteorite.

Die Meteorite Akaba und Breitscheid entstammen der Sammlung F. A. PANETH. Für die Überlassung der Probe des Meteoriten Bruderheim danken wir Herrn Prof. Dr. R. E. FOLINSBEE und Herrn Prof. Dr. H. E. SUESS für seine Vermittlung.

Für ihre Mitarbeit bei den Analysen, die sie teilweise selbstständig durchführten, danken wir Fräulein U. SCHEERER, Fräulein I. SCHÜLER und Herrn B. SPETTEL. Für ihre Mitarbeit bei den massenspektrometrischen Messungen danken wir Fräulein H. HARASIN und Herrn P. JUNG.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft sind wir für die leihweise Überlassung eines HF-Generators zu Dank verpflichtet.

<sup>16</sup> H. HINTENBERGER u. H. WÄNKE, Z. Naturforschg. **19 a**, 210 [1964].

<sup>17</sup> H. C. UREY u. H. CRAIG, Geochim. Cosmochim. Acta **4**, 36 [1953].

<sup>18</sup> H. WÄNKE u. H. KÖNIG, Z. Naturforschg. **14 a**, 860 [1959].