Analyse der kosmogenen Radionuklide

^{10}Be, ^{14}C und ^{26}Al

in Steinmeteoriten mittels

Beschleunigermassenspektrometrie

Vom Fachbereich Chemie

der Universität Hannover

zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften

- Dr. rer. nat. -

genehmigte Dissertation

von

Diplom-Chemiker Markus Knauer

geboren am 01.02.1964 in Hannover

1994

Abstract

Knauer, Markus

Im Rahmen eines DFG Gruppenvorhabens zur Untersuchung von Meteoritenpopulationen aus heißen und kalten Wüsten wurden die Aktivitäten der kosmogenen Radionuklide ^{10}Be, ^{14}C und ^{26}Al in Meteoriten mittels Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) bestimmt. Die Messung dieser Nuklide und der Vergleich mit den aus den theoretischen Produktionsraten ableitbaren Korrelationen ermöglichten Rückschlüsse auf die präatmosphärische Größe des Meteoroiden, die Abschirmverhältnisse der vorliegenden Probe und auf das terrestrische Alter. Unter den analysierten 37 Meteoriten befand sich der in der Antarktis gefundene Chondrit Allan Hills 88019, für den das bisher älteste terrestrische Alter von 1.39 Millionen Jahren berechnet wurde. An 13 Meteoriten aus der Sahara wurden ^{14}C-Messungen vorgenommen, die im Vergleich mit berechneten, tiefenkorrigierten ^{14}C-Produktionsraten terrestrische Alter von 1000 - 22000 Jahren zeigten. Die Tiefenkorrektur wurde mit den ^{10}Be- und ^{26}Al-Daten unter Benutzung eines theoretisch berechneten 3-Isotopenplots ($^{14}C/^{10}Be$ gegen $^{26}Al/^{10}Be$) durchgeführt. Es wurde eine ^{14}C-Extraktionsmethode entwickelt und ein Trennungsgang für ^{10}Be und ^{26}Al modifiziert und validiert.

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis 1

1. Einleitung 4
   1.1 Einfall extraterrestrische Materie auf die Erde 5
   1.2 Meteorite in kalten und heißen Wüsten 7
   1.3 Mineralogie und chemische Klassifizierung von Meteoriten 11
   1.4 Herkunft der Meteorite 14
   1.5 Meteoritenalter 20

2. Kosmische Strahlung und kosmogene Nuklide 23
   2.1 Die solare kosmische Strahlung 23
   2.2 Die galaktische kosmische Strahlung 24
   2.3 Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit Materie 26
   2.4 Produktion kosmogener Nuklide 27
   2.5 Empirische Ansätze zur Interpretation kosmogener Nuklide 29
   2.6 Modelle der Produktion kosmogener Nuklide 32

3. Aufgabenstellung 36

4. Nachweis von ^{10}Be und ^{26}Al 37
   4.1 Nachweis von langlebigen Radionukliden mittels AMS 37
   4.2 Nachweis von ^{10}Be und ^{26}Al in Steinmeteoriten 45
      4.2.1 Separation von ^{10}Be und ^{26}Al in Steinmeteoriten 45
      4.2.2 Analyse von Trennungsgängen 49
      4.2.3 Ursachen der Probleme 54
      4.2.4 Modifikation des Trennungsganges 54
   4.3 Qualitätskontrolle 59
      4.3.1 Camel Donga und Meteoritenstandard ("Dhurmsalastandard") 59
      4.3.2 ^{10}Be und ^{26}Al im Dhurmsalastandard 62
      4.3.3 AMS Spektren beispielhafter Proben 63

5. Nachweis von ^{14}C in Steinmeteoriten 66
   5.1 Historischer Überblick der ^{14}C Analysen von Meteoriten 66
   5.2 Separation und Oxidation des Kohlenstoffs in Meteoriten 69
      5.2.1 Erzeugung hoher Temperaturen 69
      5.2.2 Prinzip der Induktionserwärmung 71
      5.2.3 Generatorleistung 73
      5.2.4 Leistungsverluste 74

5.3 Aufbau der ^{14}C Apparatur ... 76
5.4 Entwicklungsarbeit ... 78
5.4.1 Anpassung des Induktionsofens an die Apparatur ... 79
5.4.2 Thermische Entgasung von Meteoritenproben ... 85
5.4.3 Erste Standardmessungen ... 88
5.4.4 Erneute Methodenentwicklung ... 90
5.4.5 Standardmessungen zur Kalibration ... 92
5.5 Erste ^{14}C Messungen an Meteoriten ... 97

6. Experimentelle Ergebnisse ... 100

7. Produktionsraten kosmogener Nuklide in Meteoriten ... 105
7.1 Produktion von ^{10}Be und ^{26}Al in Steinmeteoriten ... 107
7.2 Produktion von Neon Isotopen in Steinmeteoriten ... 113
7.3 Produktion von ^{14}C in Steinmeteoriten ... 115

8. Diskussion ... 120
8.1 Diskussion der Meteorite, die nicht aus der Antarktis oder Sahara stammen ... 126
8.2 Diskussion der antarktischen Meteorite ... 128
8.3 Diskussion der Sahara Meteorite ... 134

9. Zusammenfassung ... 144

10. Literaturverzeichnis ... 147

A. Anhang ... 154
A.1 ^{10}Be- und ^{26}Al-AMS-Ergebnisse ... 155
A.1.1 ^{10}Be-Messung vom 01.07.91 bzw. 08.07.91 ... 155
A.1.2 ^{10}Be-Messung vom 13.12.91 ... 156
A.1.3 ^{10}Be-Messung vom 22.05.92 ... 157
A.1.4 ^{10}Be-Messung vom 22.12.92 ... 158
A.1.5 ^{10}Be-Messung vom 11.03.93 ... 159
A.1.6 ^{10}Be-Messung vom 21.06.93 ... 160
A.1.7 ^{10}Be-Messung vom 21.01.94 ... 161
A.1.8 ^{26}Al-Messung vom 04.11.91 ... 162
A.1.9 ^{26}Al-Messung vom 24.04.92 ... 163
A.1.10 ^{26}Al-Messung vom 09.12.92 ... 164
A.1.11 ^{26}Al-Messung vom 01.07.93 ... 165
A.1.12 ^{26}Al-Messung vom 31.01.94 ... 166

A.2 Berechnung der ^{10}Be- und ^{26}Al-Aktivitäten 167
A.2.1 ^{10}Be 167
A.2.2 ^{26}Al 167
A.3 Atom-Emissionsspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-AES) 169
A.4 Meßergebnisse des ICP-AES 170
A.4.1 Ergebnisse der Analyse des alten Trennungsgangs 170
A.4.2 Ergebnisse der Analyse des neuen Trennungsgangs 172
A.5 ^{14}C-AMS-Meßergebnisse 174
A.5.1 ^{14}C-AMS-Meßergebnisse vom 22.07.93 174
A.5.2 ^{14}C-AMS-Meßergebnisse vom 14.01.94 175
A.5.3 ^{14}C-AMS-Meßergebnisse vom 30.03.94 176
A.5.4 ^{14}C-AMS-Meßergebnisse vom 10.05.94 177
A.6 Berechnung der ^{14}C-Aktivitäten 178
A.7 Volumenmessung der ^{14}C-Apparatur 180

1. Einleitung

Meteorite stellten in der Geschichte der Menschheit immer wieder besondere Objekte der Begierde (Ensisheim), des Glaubens ('Hadshar al Aswad', das Allerheiligste der Kaaba in Mekka) und der Forschung (Allende) dar. Die Menschen begleiteten kaum ein anderes Stück Metall oder Stein mit soviel Ehrfurcht, sodaß sich um einzelne Meteorite ganze Bücher schreiben ließen. Aber seit der Entmystifizierung der Naturvorgänge wurden sich immer mehr Wissenschaftler der Bedeutung dieser extraterrestrischen Materie bewußt. Als erster hat der deutsche Physiker und Jurist Chladni 1794 Meteorite als extraterrestrisch erkannt [CLA94]. Meteorite sind nach heutigen Kenntnissen Bruchstücke von Körpern, die die älteste Materie unseres Sonnensystems repräsentieren, primitive Gesteine, die Zeugen der Entstehung unseres Sonnensystems sind.

Mit der Entdeckung und Erforschung der instabilen Nuklide durch Bequerel, Curie, Rutherford und andere um die Jahrhundertwende war es möglich, auch nach entsprechenden Nukliden in Meteoriten zu suchen. Was aus reinem Interesse 1928 von Paneth et al. [PAN28] untersucht, aber fehlinterpretiert wurde (die Analyse von Helium in Eisenmeteoriten als ein Produkt der Uranzerfallsreihe), entwickelte sich 1952 [PAN52] zu einem neuen Wissenschaftszweig, die Untersuchung kosmogener Nuklide.

Seit der Entstehung des Sonnensystems ist die Materie der kosmischen Strahlung ausgesetzt, die je nach Ursprungsort Galaktische Kosmische Strahlung (GCR) oder Solare Kosmische Strahlung (SCR) genannt wird. Diese aus Protonen (p), Heliumkernen (α) und schwereren Teilchen bestehende Strahlung erzeugt durch Kernreaktionen stabile und instabile Nuklide, die kosmogenen Nuklide. Durch ihre verschiedenen Bestandteile und Energien variieren deren Produkte (Spallations- oder Fragmentationsprodukte). Ein Teil der Meteoritenforschung befaßt sich mit diesen Nukliden und den für ihre Entstehung relevanten Parametern. Dazu gehören auch die Radionuklide ^{26}Al ($t_{1/2}$ = 716 ka), ^{10}Be ($t_{1/2}$ = 1,6 Ma) und ^{14}C ($t_{1/2}$ = 5,73 ka).

Die Bestimmung der Konzentrationen von ^{26}Al und ^{10}Be in Meteoriten wird schon seit 1958 durchgeführt [EHM58]. Nach der Entdeckung der Radiocarbonmethode von Libby 1947 [AND47] wurde auch ^{14}C als Spallationsprodukt von Meteoriten [SUE61, GOE62] untersucht. Aufgrund des technischen Fortschritts (Beschleunigermassenspektrometrie) und der reichhaltiger gewordenen Auswahl an Meteoriten durch organisierte Expeditionen (ab

1974) in heißen und kalten Wüsten ergab sich die Möglichkeit, die Analytik zu verfeinern, Meßfehler zu verkleinern und in einzelnen Fällen Mehrfachbestimmungen von einem Meteoriten, von verschiedenen Laboren erstellt, zu vergleichen. Dadurch sind Statistiken, semi-empirische und rein theoretische Modelle entstanden, die langzeitgemittelte Energiespektren der kosmischen Strahlung und Aussagen zur Wechselwirkung der Strahlung mit Materie liefern. Allerdings stehen experimentelle und theoretische Daten noch nicht in befriedigendem Ausmaß zur Verfügung.

1.1 Einfall extraterrestrische Materie auf die Erde

Insgesamt wurden bis heute ca. 12000 Meteorite gefunden, davon rund 9000 in der Antarktis. Die meisten antarktischen Meteorite haben Massen um 5 oder 10g, manchmal auch 50g, sehr selten aber kg-Größe. Die größten Meteorite die je gefunden wurden, sind der Steinmeteorit Jilin mit 1,8 t (als Meteoritenschauer insgesamt 4 t) und der Eisenmeteorit Hoba in Namibia mit 60 t Gewicht als einzelner Block. Kleine Körper tauchen in die Erdatmosphäre ein und verglühen. Kleinere Teilchen mit einer Größe $\leq 50\mu m$, sogenanter kosmischer Staub oder IDPs (Interplanetary Dust Particles), durchdringen die Erdatmosphäre relativ unbeschadet. Sie können in hochfliegenden Flugzeugen eingefangen oder in terrestrischen Proben wie z.B. Eisbohrkernen und Tiefseesedimenten nachgewiesen werden. Auf diese Art erreichen die Erde täglich ca. 27000 t extraterrestrische Materie [BRO67].

Solange die Meteoriten, wie in den meisten Fällen, eine Größe von einigen Zentimetern Durchmesser bis maximal Faustgröße haben, stellen sie so gut wie keine Bedrohung dar. Menschliche Opfer sind nicht zu beklagen (1954: Frau wurde durch den Meteoriten Sylacauga leicht verletzt). Aber nicht ohne Grund fürchteten sich die Menschen im Mittelalter vor diesen 'Feuer- oder Donnersteinen'. Meteorite können in ihrer Zerstörungskraft das gesamte Kernwaffenarsenal aller Nuklearmächte (vor 1989) zusammen bei weitem übertreffen. Nur ein einziger Meteorit von 10 km Durchmesser könnte die unvorstellbare Energie von 10^{23} Joule freisetzen, was einer Explosion von 20 Billionen Tonnen TNT oder der Detonation von 1,5 Milliarden Atombomben des Hiroshima-Typs entspricht [GRI87]. Ein sehr gut untersuchtes Kollisionsereignis von einem Meteoriten mit der Erde stellt der Meteoritenkrater Nördlinger Ries in der Schwäbischen Alb dar. Unter anderem untersuchten amerikanische NASA - Geologen 1961 im Zusammenhang mit den Apollo Missionen diesen Einschlagkrater als Vergleichsobjekt für Krater auf dem Mond. Denn schon zuvor hatte man im Barringer - Krater in Arizona (Durchmesser 1,3 km, Tiefe 170 m, Alter 40000 Jahre [GRI90]), der mit Sicherheit durch den Aufprall eines Eisenmeteoriten entstanden ist, das

Mineral Stishovit nachgewiesen, eine Hochdruckmodifikation des Quarz, das sich auch im Nördlinger Ries wiederfand. Das Nördlinger Ries wurde zum am besten erforschten Meteoritenkrater der Erde. Die Rekonstruktion der Ereignisse gibt ein anschauliches Bild einer solchen Katastrophe wieder [LEM81]:

> Ein Meteoroid* von einem halben bis einem Kilometer Durchmesser kommt mit einer Geschwindigkeit von 30 km/s auf die Erde zu und durchschlägt die Lufthülle nahezu ungebremst in wenigen Sekunden. Kleine Glasmeteorite (Tektite), sogenannte Moldavite, reißen als Schmelztröpfchen von der glühenden Oberfläche des Meteoroiden ab und gehen als Glasregen nieder. Beim Eintritt in die Atmosphäre muß sich der Meteoroid geteilt haben. Ein kleiner Teil erzeugt beim Aufprall auf die Erdoberfläche das Steinheimer Becken, ein viel größerer das Nördlinger Ries. Dieser bohrt anfangs ein ein bis zwei Kilometer tiefes und vier bis sechs Kilometer Durchmesser großes Loch in die Erde, das sich in wenigen Sekunden zu einer endgültigen Tiefe von sieben- bis achthundert Meter entspannt. Dabei wird die Materie auf ein Viertel des ursprünglichen Volumens komprimiert. Der Druck am Einschlagort beträgt zehn Millionen bar, die Temperatur etwa dreißigtausend Grad Celsius, was einer Energie von 10^{20} Joule entspricht. Diese Energie ist ungefähr hundertmal so groß, wie die des stärksten jemals beobachteten Erdbebens. Nach zwanzig bis sechzig Millisekunden läßt der Ries - Meteorit ungefähr vier bis fünf Kubikkilometer Gebirge verdampfen und schleudert diese sowie hundert Kubikkilometer festen Auswurf in einer atompilzähnlichen Wolke mindestens zwanzig Kilometer weit in die Stratosphäre. Dabei landet geschmolzenes und verglastes Kristallin - Material aus der Tiefe wieder im oder in der Nähe des Kraters und verfestigt sich im Laufe der Zeit zu Suevit (Stishovit in tuffähnlichem Gestein). Der Ries - Meteorit hinterläßt einen Krater von 25 km Durchmesser.

Der Ries-Krater ist ein Beispiel für einen komplexen Krater. Nur größere Meteoroide von mehreren hundert Metern Durchmesser mit einer Einschlaggeschwindigkeit von ca. 30 km/s haben beim Aufprall auf der Erde die Energie, die Erdkruste um einige Kilometer zu komprimieren. Dieser Stoßwelle Richtung Erdmittelpunkt folgt entgegengesetzt eine Entlastungswelle, die das Erdreich in der Mitte des Kraters wieder um Hunderte von Metern anhebt. Es bildet sich im Trichterboden eine Erhebung, die z.B. im Falle des 200 Millionen Jahre alten und 100 km breiten Manicouagan - Krater in der kanadischen Provinz Quebec auf 10 km geschätzt wird, höher als die derzeit größte Erhebung der Erde (Mount Everest mit 8848 m). Sind die Meteorite immer noch groß, aber kleiner als ca. 400 m im Durchmesser, entstehen sogenannte einfache Krater, wie z.B. der Barringer - Krater in Arizona / USA.

---

* Meteoroid: Materie vor Eintritt in die Erdatmosphäre; Meteorit: Materie nach Eintritt in die Erdatmosphäre

Meteorite dieser Größenordnung verdampfen vollständig, sodaß nur deren Schmelz- und Verdampfungsprodukte in großem Umkreis um den Krater zu finden sind.

In der Geschichte der Erde gab es immer wieder weltweites Massensterben der Land- und Wasserbewohner. So finden sich diese Schicksalsschläge in regelmäßigen Abständen:

Tab.1.1: weltweites Massensterben von Land- und Wasserlebewesen

Paläozoikum			Mesozoikum		
Anfang Ordovizium	Ende	Ende Devon	Ende Perm	Ende Jura	Ende Kreide
500	438	360	248	144	65 Ma b.p.

Das letzte Massensterben betraf die Ära der Dinosaurier, dessen Ursache in jüngster Zeit nachweislich feststeht: es handelt sich um einen Meteoriten, der vor 65 Millionen Jahren im heute unter Wasser liegenden Gebiet des Yucatanbeckens zwischen Mexiko und Kuba niederging und das Klima durch Verdunkelung der Sonne schlagartig veränderte [SHA92; KER92]. Solche Ereignisse geschehen im Mittel alle 100 Millionen Jahre .

1.2 Meteorite in kalten und heißen Wüsten

Man unterscheidet gefundene von gefallenen Meteoriten. Die letzteren werden bei ihrem Fall beobachtet und ausfindig gemacht, ihr Niedergang kann zeitlich genau festgelegt werden und in neuerer Zeit mit automatischen Kameras, z.B. dem 'Prairie Network' der USA, während ihres Falles beobachtet werden, um Geschwindigkeit, Anfangsgewicht, Endgewicht, Bahnanfang, Bahnende und schließlich Fundort zu bestimmen. Im idealen Fall kann der Orbit des Meteoriten in unserem Sonnensystem rekonstruiert werden. Dies ist geschehen für die Steinmeteoriten Pribam, Lost City und Innisfree [WAS85]. Gefundene Meteorite müssen erst als solche identifiziert werden, da sie meist rein zufällig entdeckt werden. Bei ihnen ist natürlich auch das terrestrische Alter unbekannt. Zum Teil ist es sehr schwierig einen normal, schwarz aussehenden Stein als Meteoriten zu erkennen, weswegen nur bestimmte Gebiete der Erde ein relativ leichtes Auffinden möglich machen. Zum größten Teil sind Konzentrierungs-

mechanismen für große Meteoritenansammlungen verantwortlich. Dies ist in ausgeprägtem Maße in der Antarktis der Fall (s. Abb.1.1).

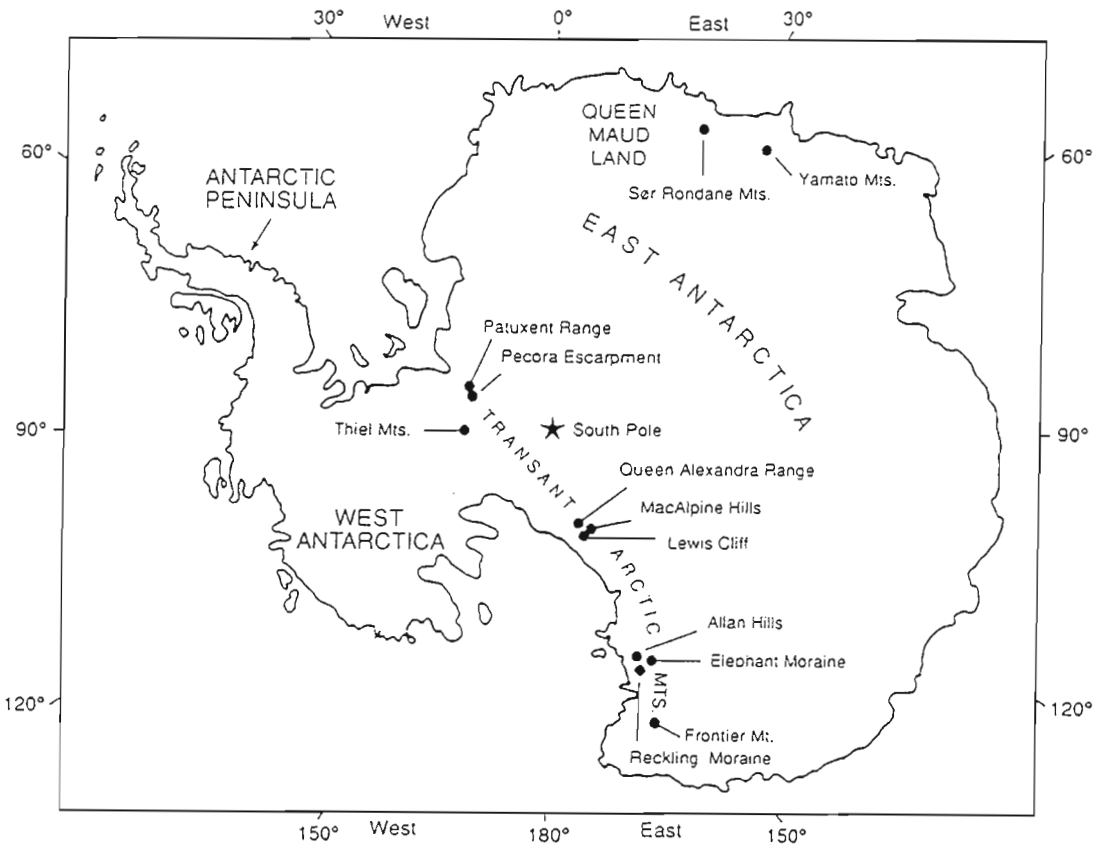
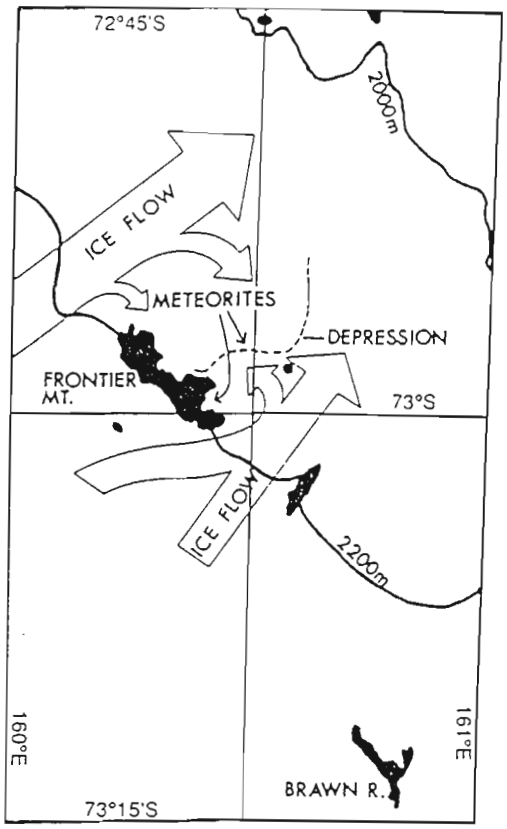


Abb. 1.1:Skizze der Antarktis mit Angabe der Fundstellen [CAS92]

Der erste antarktische Meteorit wurde 1912 während einer Antarktisexpedition, geleitet von Sir Douglas Mawsons, gefunden. 1961 wurden weitere zwei, 1962 wiederum zwei und 1964 nochmals einer entdeckt. Es handelte sich hier um zufällige Mitbringsel von leicht zu erkennenden schwarzen Steinen auf hellem Untergrund. Als aber 1969 japanische Geologen in der Nähe der Yamato Mountains neun Meteorite und 1973 12 weitere Meteorite fanden, wurde man auf dieses Gebiet aufmerksam und organisierte Expeditionen. Japan und die USA fanden auf unterschiedliche Art und Weise ungefähr 9000 Meteorite [KOE88]. So umfaßte 1988 das US Antartic Research Programm (USARP) fünf Stationen (MacMurdo, Scott-Armundsen, South Pole, Palmer, Siple und Byrd) sowie den Betrieb von Helikoptern, Flugzeugen und Eisbrechern. Satelliten- und Luftbilder ermöglichten gezieltere Expeditionen.

Es gab japanische (Japan Antarctic Research Expedition / JARE), amerikanische (Antarctic Search for Meteorites / ANSMET), deutsche (GANOVEX) und europäische (European Search for Meteorites / EUROMET) Expeditionen, bei denen Meteorite entdeckt wurden. Gefunden wurden die Meteorite in der Nähe von Tälern (Frontier Mountain) oder auf sogenannten Blaueisfeldern (z.B. Allan Hills).

Das Eis der Blaueisfelder hat eine Dichte von 0.9 g/cm^3 und kann nur unter einer mehrere Meter mächtigen Eisauflast entstehen. Ist diese Fläche freigelegt, schimmert es im Licht blau aufgrund von Lichtbrechungseffekten. Wie aber ist es zu verstehen, daß es in diesen nur wenige 100 m^2 großen Flächen zu solch einer Akkumulation von meteoritischem Material kommt? Bestimmte geologische / glaziologische Voraussetzungen müssen gegeben sein. Das Eis bewegt sich am Rande des Polarplateaus in Nord Victoria Land auf ca. 2000 m Höhe gegen ein Gebirge, wird an ihm auf- und hochgeschoben. Ein ständiger Wind an der Oberfläche sorgt für die Abtragung des Eises. Meteorite, die einmal auf dieses Polarplateau gefallen sind, bewegen sich bis zur Freilegung in diese Meteoritenfalle. Dort sammeln sich antransportierte mit bereits vorhandenen Meteoriten. Im Rahmen von GANOVEX IV wurde das Allan Hills Main- und Near Western Icefield mit einem Radar durchleuchtet, um die Topographie unter dem Eis zu erkunden [DEL91]. Die Untersuchungen haben ergeben, daß unter dem Eis westlich der Allan Hills ein Gesteinsplateau verborgen ist, auf dem der Eisstrom immer neues Tiefeneis aufschiebt (Blaueis). Auf dieser mehrere tausend Jahre dauernden Reise wird das Eis fast völlig abgetragen. Die Meteorite gelangen an die Oberfläche und reichern sich an. Kleinere Meteorite werden vom Südwestwind über das Eis geblasen, bis sie auf Schneebrücken über Eisspalten oder an der Grenze des Blaueisfeldes hängenbleiben. Der Eisstrom des Near Western Icefield kollidiert mit einer 400 m hohen, unter Eis verborgenen Felswand (s. Abb.1.2). Das Eis wird durch Sublimation ständig abgetragen und eingeschlossene Meteorite gelangen an die Oberfläche, von denen einige in eine nahegelegene Eissenke geblasen werden. Als aber Meteorite nicht in der typischen Position in Richtung des Eisflusses vor einer Gebirgsbarriere, sondern dahinter (wie am Frontier Mountain) gefunden wurden, konnte man sich deren Akkumulation nicht erklären. GANOVEX IV ermöglichte auch dort eine Erklärung: Das Eis vom Polarplateau umfließt Frontier Mountain (s. Abb.1.3). Aus gleicher Richtung weht der katabatische Wind über das Gebirge und trifft als erwärmter Fallwind auf die Eisflächen hinter dem Gebirge. Die Eissublimation ist so stark, daß ständig neues Eis von den Seiten nachfließen muß. Die Meteorite werden auf einer Fläche von weniger als 100 m^2 freigelegt und sammeln sich dort an [CAS92, DEL91, SchUL90].



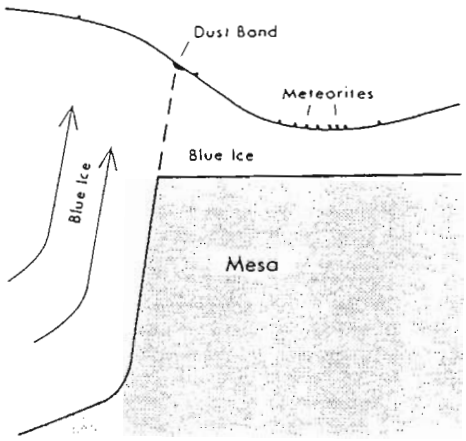


Abb.1.2: Skizze der Meteoritenakkumulation an den Allan Hills Near Western Icefields [DEL91].

Abb.1.3: Skizze der Meteoritenakkumulation an der Frontier Mountain Barriere [CAS92].

Beim Fund eines Meteoriten wird seine Position genauestens vermessen und beispielsweise bei den amerikanischen Expeditionen, ohne jemals den Gefrierpunkt zu überschreiten, in ein Präparationslabor geflogen (Houston / USA). Dort wird er unter Schutzgas (N_2) auf organische Verbindungen und mineralogische Zusammensetzung bzw. den petrologischen Typ untersucht und katalogisiert. Auf Antrag werden kleine Proben Wissenschaftlern weltweit zur Verfügung gestellt.

Neben der Antarktis gehören auch die heißen Wüstenregionen der Erde zu den häufigeren Fundstätten. Das liegt zum einen an der guten Auffindbarkeit von größeren schwarzen Steinen in Gegenden mit hellem Untergrund. Grundsätzlich sind aber noch andere Voraussetzungen nötig, damit sich Meteorite finden lassen. So durfte die Gegend in den letzten Jahrtausenden keiner Deflation (Sedimentationsvorgänge) ausgesetzt sein. Die Gesteinsoberfläche besteht immer aus hartem Material wie z.B. Kalkstein. Zusätzlich sollte die Verwitterungsrate nicht zu groß sein, die von der geochemischen Beschaffenheit des Bodens, der Feuchtigkeit und dem Temperaturwechsel im Tages- und Jahresgang abhängt. Solche

Gebiete finden sich in der Nullarborebene (Australien) und in der Sahara, vorwiegend in Algerien und Libyen (s. Abb.1.4).

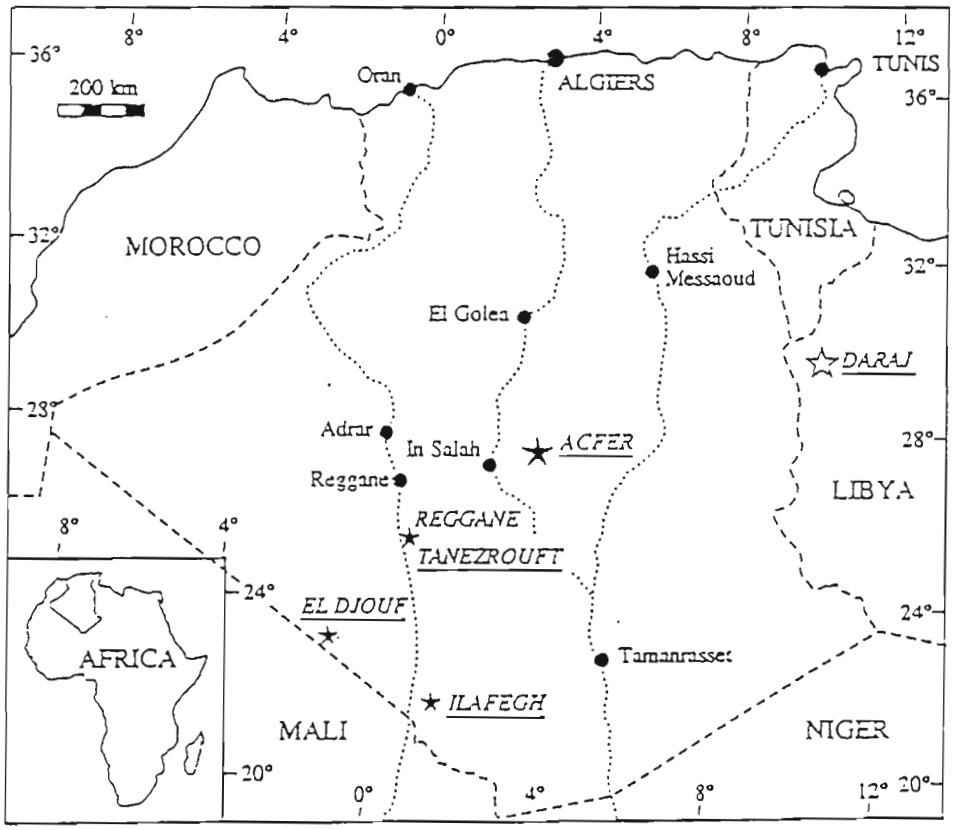


Abb.1.4: Skizze der Fundorte der Sahara Meteorite [OTT92]

1.3 Mineralogie und chemische Klassifizierung von Meteoriten

Meteorite können grob in drei Klassen eingeteilt werden. Es gibt Stein-, Steineisen- und Eisenmeteorite. Sie können schon phänomenologisch sehr einfach unterschieden werden, indem sie wechselnde Anteile an Mineralien und Eisen / Nickel aufweisen.

Mit die ersten Wissenschaftler, die sich in der neueren Zeit mit der Entstehung und Herkunft der Meteorite befaßt haben, waren H.S.Brown und C.Patterson 1947 [BRO47a, 47b, 48]. Um sich aber mit dem Ursprung der Meteoriten zu beschäftigen, mußte als erstes deren chemische Zusammensetzung bekannt sein. Brown berücksichtigte verschiedene Typen von Meteoriten und folgerte je nach Typ auf unterschiedliche Positionen im Mutterkörper. Urey et al. 1953 [URE53] unterschieden die verschiedenen Typen anhand der Eisen- und Calcium-

gehalte. Sie behaupteten, daß nach einer Niedrigtemperaturphase ein Proto-Planet entstand, der darauffolgend eine Hochtemperaturphase erfuhr. Obwohl sie damit ganz richtig die Entstehung sogenannter Achondrite (differenzierte Meteorite) erklären konnten, paßten kohlige Chondrite, die primitivste Materie unseres Sonnensystems, nicht ins Bild. B. H. Mason war der Auffassung, daß sich kohlige Chondrite aufgrund ihrer leicht flüchtigen Bestandteile niemals über 600°C erhitzt haben konnten. In seiner Beweisführung gegen die Theorie von Urey et al. verfaßte er die auch heute noch gültige, in der Moderne nur leicht erweiterte Klassifizierung der Meteorite [MAS60, 62a, 62b].

Tab.1.2: Klassifikation der Meteorite [HAR93].

Broad classification	Group name assigned by Wasson[a]	Mineralogical-structural name	Percentage of falls[b]
Primitive Bodies ↑			
Stones 95% / Chondrites 86% / Carbonaceous chondrites 5%	CI	= C1 = CI	0.7
	CM	= C2 = CII	2.0
	CO, CV	= C3 = CIII	2.0
Stones 95% / Chondrites 86% / Ordinary chondrites 81%	E	= Enstatite	1.5
	H[c]	= Bronzite	32.3
	L[d]	= Hypersthene	39.3
	LL[e]	= Amphoterite	7.2
	Others	—	0.3
Increasing Differentiation ↓ / Stones 95% / Achondrites 9%	Ureilites	= Olivine-pigeonite	0.4
	Aubrites	= Enstatite	1.1
	Diogenites	= Hypersthene	1.1
	Howardites and eucrites	= Pyroxene-plagioclase	5.3
	Others	= Other differentiated stones	1.0
Stony irons 1%	Mesosiderites	= Mesosiderites	0.9
	Pallasites	= Pallasites	0.3
Irons 4%	IA	≈ Medium and coarse octahedrites	0.8
	IIA	≈ Hexahedrites	0.5
	IIIA	≈ Medium octahedrites	1.5
	IVA	≈ Fine octahedrites	0.4
	Others	= Ataxites, etc.	1.3
			99.9%

[a] von Wasson [WAS74]; [b] von Scott [SCO78] und Dodd [DOD81]; [c] H = hoher Eisengehalt; [d] L = niedriger Eisengehalt; [e] LL = sehr niedriger Eisengehalt.

Meteorite sind nach dem Grad der Differenzierung ihrer Bestandteile klassifiziert. Primitive Meteorite werden wegen ihrer geringen Differenzierung als primitiv bezeichnet. Sie gehören zu den Chondriten (Steinmeteoriten). Chondrite besitzen als kleine Einschlüsse sogenannte Chondren (Schmelzkügelchen), die aus Hochtemperaturmineralien wie Olivin ($(Mg, Fe)_2SiO_4$) und Pyroxen (z.B. $(Mg,Fe)SiO_3$) bestehen. Diese Chondren sind 0,5 - 5 mm groß und bildeten sich wahrscheinlich aus der Schmelze, als in sehr kurzer Zeit auf tiefe Temperaturen abgekühlt wurde [HAR93]. Ihr Anteil am Chondriten beträgt 40 - 90%. Ihre

Matrix besteht aus Feldspat (Mischkristall aus Anorthit $CaAl_2Si_2O_8$, Albit $NaAlSi_3O_8$, Orthoklas $KAlSi_3O_8$), Chondrenbruchstücken, Nickeleisen- und anderen, sehr feinen Mineralkörnern (z.B. Nephelin $KNa_3(AlSiO_4)_4$), die reich an leichtflüchtigen Elementen (Edelgase, Sauerstoff, Schwefel, Kohlenstoff) und Verbindungen (Wasser, organisches Material) sind. Chondrite werden unterteilt in die kohlenstoffreichen kohligen Chondrite und die gewöhnlichen Chondrite. Die kohligen Chondrite weisen Ca - Al reiche Einschlüsse auf (CAI's). Es sind Verbindungen wie Spinell ($MgAl_2O_4$), Korund (Al_2O_3) und Perowskit ($CaTiO_3$). Bei einem angenommenen Druck im Urnebel von 10^{-3} bar kondensierten als erstes diese Ca - Al reichen Oxide und Silikate. Mit der Analyse der leichtflüchtigen Materie und des Eisen-Nickel Gehaltes werden die Chondrite nach steigender Differenzierung geordnet und unterschieden: Kohlige Chondrite werden in C1, C2, C3 und gewöhnliche Chondrite in Enstatit (E), Bronzite (H), Hypersthene (L), Amphoterite (LL) und andere Klassen eingeteilt. Jede Gruppe der gewöhnlichen Chondriten wird aufgeteilt in ihre petrologischen Typen 1-6, wobei Typ 1 am wenigsten differenziert ist.

Steinmeteorite, die keine Chondren enthalten, werden Achondrite genannt. Als erste teilten H.C.Urey und H.Craig 1953 [URE53] Achondrite in Ca-arm und Ca-reich (basaltisch) ein. Zu den Ca-armen Achondriten zählen die Aubrite, Diogenite und Ureilite, zu den Ca-reichen die Howardite, Eukrite und die anormalen Achondrite. Die Meteoritenklassen Howardite, Eucrite und Diogenite werden wegen ihres engen genetischen Zusammenhangs auch als die HED-Gruppe bezeichnet. Ihnen wird gemeinsam ein HED-Mutterkörper zugeordnet. Aufgrund petrologischer, gefügekundlicher und mikrochemischer Untersuchungen wurde eine komplexe Entwicklungsgeschichte festgestellt. Sie entstammen dem Krustenbereich eines Asteroiden, dessen thermische Entwicklung in fünf Phasen eingeteilt werden kann, die sequentiell sowie auch parallel zueinander abgelaufen sind:

1. Enstehung basaltischer Magmen und Kristallisation
2. Postmagmatische Abkühlung (Equilibrierung von Pyroxenen; Entmischungsvorgänge in Pyroxen und Plagioklas; Umwandlungsprozesse in Pyroxen)
3. Impaktmetamorphose, Breccierung* und Umlagerung der Basalte
4. Thermische Metamorphose (Temperung in der Nähe der Solidustemperatur)
5. Impaktmetamorphose und Breccierung der rekristallisierten Basalte und nachfolgende Umlagerung und Vermischung mit Diogeniten, Kumulateucriten, Impaktschmelzgesteinen und rekristallisierten Eukriten.

* Breccie: aus kantigen Gesteinstrümmern gebildetes und verkittetes Gestein

Sehr selten sind die Stein-Eisen Meteorite, die in Mesosiderite und Pallasite unterteilt werden. Wie der Name bereits aussagt, handelt es sich bei der Zusammensetzung dieser Meteorite um eine Gruppe zwischen den Achondriten und den Eisenmeteoriten.

Eisenmeteorite bestehen zu mehr als 90% aus metallischem Nickeleisen und nur wenigen Mineralien. Sie werden nach ihrer Struktur eingeteilt, die nach Feinschliff und Politur der Schnittfläche erkennbar wird. Dabei zeigen eingelagerte Mineralkörner verschiedene Farben. Nach dem Anätzen der Oberfläche entstehen Strukturen von parallelen Linien, die Neumannsche Linien oder gröbere, sogenannte Widmanstätt' schen Figuren.

Diese Klassifizierung der Meteorite entstand aus dem Bemühen heraus, eine Erklärung für dessen Herkunft und Bildung zu geben und dadurch Rückschlüsse ziehen zu können, wie das Sonnensystem entstand. Geologen erhoffen, durch Eisenmeteorite Aufschluß über die Zusammensetzung des Erdkerns zu bekommen, Material, das den Menschen wahrscheinlich niemals zugänglich sein wird. Was aber sind die Mutterkörper der Meteorite, der extraterrestrischen Materie aus unserem Sonnensystem?

1.4 Herkunft der Meteorite

Unser Sonnensystem wird unterteilt in ein Inneres mit den irdischen Planeten Merkur, Venus, Erde und Mars sowie ein Äußeres mit den Giganten Jupiter, Saturn, Uranus und Neptun. Asteroide, die als die Mutterkörper der Meteorite angesehen werden, liegen zwischen dem Mars mit 1,52 A.U. (1 Astronomical Unit: mittlerer Abstand Erde-Sonne (149,6 Mkm)) und dem Jupiter mit 5,20 A.U. und gehören zum inneren Sonnensystem. Zwischen 2,0 und 3,3 A.U. befindet sich eine hohe Dichte an kleinen Körpern, der sogenannte Asteroidengürtel (s. Abb. 1.5). Diese Asteroide folgen unabhängigen Bahnen und haben Durchmesser bis zu 1000 km. Wird die Materieverteilung zwischen Mars und Jupiter beobachtet, so fallen in bestimmten Abständen zur Sonne Lücken oder auch Häufungen auf. Obwohl es keine geregelten Asteroidenbahnen gibt, scheinen destabilisierende und stabiliserende Stellen zu existieren. So gibt es in 2,5 A.U. eine Materielücke, die Kirkwood Lücke. Wird die Asteroidenperiode um die Sonne zum Verhältnis zur Jupiterperiode um die Sonne gesetzt, so wird in der Kirkwood Lücke eine 3:1 Resonanz erhalten. Hier wird durch die Wechselwirkung der Perioden eine starke Störung verursacht, sodaß vorhandene Materie aus dieser Resonanz herausgeworfen wird. Es existieren aber auch stabilisierende Resonanzen, wie die 3:2 Resonanz mit dem Asteroiden Hilda (3,97A.U.). Die 3:1 Resonanz kann, wenn Objekte durch Kollisionsereignisse in diese chaotische Zone gelangen, diese in erdkreuzende Bahnen

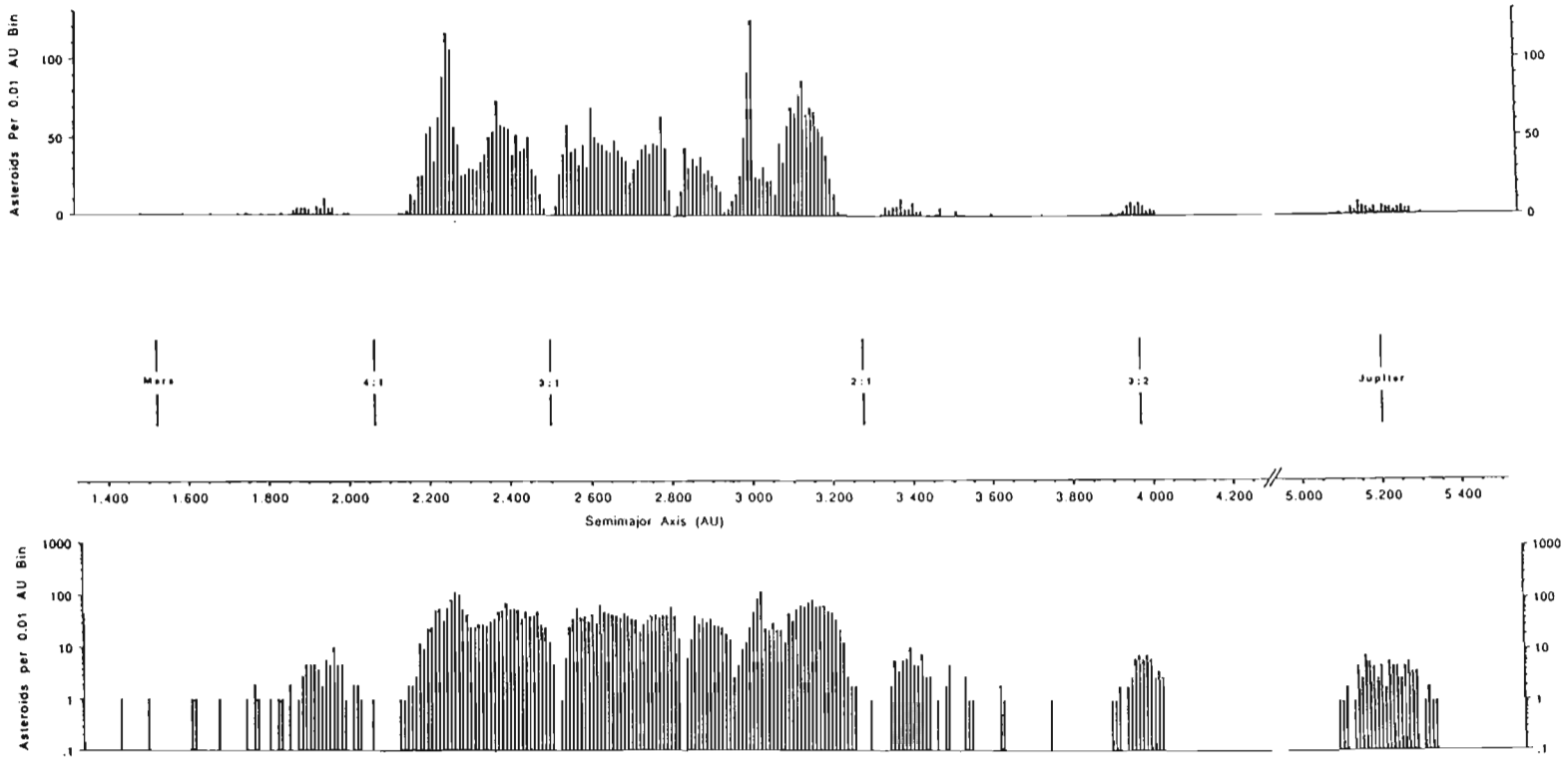


Abb. 1.5: Histogramme der Dichte der Asteroidenanzahl in 0.01 A. U. Intervalle. Die Abbildung enthält 4500 Asteroide von Knezevic und Milani (1989) und 56 Hilda sowie 85 Trojan Asteroide aus 1993 "Ephemeris of Minor Planets". Die obere Abbildung ist die Auftragung auf einer linearen Skala, die untere auf einer logarithmischen Skala, um die Resonanzlücken deutlicher erscheinen zu lassen [GAF93].

ablenken [WIS85]. So stammen Meteoritenschauer auf die Erde von Asteroiden, die in der Nähe dieser Resonanz kollidierten, wobei der größte Teil meteoritischer Materie deshalb nur von ca.1% der Asteroidenpopulation abstammen kann und nicht representativ für alle Asteroide ist [WET85,87,88, FAR93].

Um Asteroide bestimmten Meteoritengruppen zuzuordnen, müssen ihre Zusammensetzungen bekannt sein. Dies kann nur über eine spektrale Oberflächenanalyse erreicht werden, wobei man auf die Verfügbarkeit von Kalibrationsdaten zur Charakterisierung der Minerale auf den Asteroidenoberflächen angewiesen ist. Es wird die VNIR Spektroskopie (visible and near-infrared) angewendet. Sie erfaßt einen Energiebereich angefangen bei Vibrationsenergien bis zu elektronischen Anregungen. Die erhaltene Wellenlänge ist abhängig von der Ionenladung (z.B. Fe^{2+}, Fe^{3+}, Ti^{4+}), von den Molekülen (z.B. OH, CO_3, C-H) und der mineralischen Struktur. Es können Minerale wie Pyroxen, Olivin, Spinell und Eisennickel unterschieden werden. Selbst petrologische Klassen können erfaßt werden, da sie durch Korngrößen und Grad der Homogenität erkannt werden (z.B. L4, L5, L6). Dadurch ist es möglich, Asteroide zu klassifizieren. Diese Klassifizierung weicht stark von der Meteoritenklassifizierung ab und richtet sich nach Oberflächenbeschaffenheit, thermischer Geschichte und Kollisionsentwicklung. Zur eingehenderen Beschäftigung mit den taxonomischen Asteroidenklassen verweise ich auf D.J.Tholen 'Asteroid Taxonomy from Cluster Analysis of Photometry' [THO84].

Um Informationen über Kollisionsereignisse zu bekommen, teilt man Asteroide und Asteroidbruchstücke in sogenannte Familien ein. Familien wie z.B. Eos, Koronis oder Themis sind erst vor kurzem aus ihren Mutterkörpern entstanden (vor ca.10^8-10^9 Jahre).

In der Nähe der Familie Vesta sind 20 kleinere Asteroide identifiziert worden, deren Spektren (im Labor aufgenommen) denen von Eucriten und Diogeniten gleichen [BIN92,93]. Sie gehören zur taxonomischen Klasse V, sind nach ihrer Bildung nochmals erhitzt worden und haben gleiche Gehalte an Plagioklas, Pyroxen und Olivin an der Oberfläche. Aufgrund dieser Entdeckung ist es wahrscheinlich, daß durch Kollisionen oder Einschläge kilometergroße Fragmente mit einer Geschwindigkeit von ca. 1km/s herausgeschlagen und in die 3:1 Resonanzzone geschleudert wurden, aus der sie dann in eine erdbahnkreuzende Richtung abgelenkt wurden.

Unklarheit herrscht über die Herkunft der gewöhnlichen Chondrite. Obwohl sie mit 75% die größte Masse der identifizierten Meteorite darstellen, haben sich auch nach der Analyse

von 20% der im Hauptgürtel befindlichen 5000 Asteroiden keine eindeutig vergleichbaren Objekte gezeigt. Als Mutterkörper in Frage kämen:

S IV Typ Asteroide. Diese sind aber wie primitive Achondrite teilweise angeschmolzen [FAR92/93] [GAF92/93].

C Typ Asteroide. Diese zeigen geschocktes Oberflächenmaterial, wobei nichtgeschocktes Material unter der Oberfläche liegen könnte [BRI91/92].

Kleine Hauptgürtel Asteroide, die VNIR-Spektren (Visible and Near-Infrared) wie das eines LL6 Chondriten zeigen [BIN93].

Stellt man eine Statistik auf, in der die Häufigkeit der Fälle basaltischer und olivinischer Achondrite mit der Asteroidenhäufigkeit verglichen wird, ergibt sich ein Verhältnis von 400 : 1 [SEA88, PRI86, WAR89]. Diese Diskrepanz hat ihre Ursache möglicherweise im Zählen vieler gefundener Meteorite, die nur Fragmente eines großen Chondriten sind (Stichwort 'Pairing') [GAF93]. Trotzdem sind Asteroide und Meteoroide nach heutigem Wissensstand nicht isotrop [FAR93]. Mögliche Erklärungen wären [GAF93]:

a) es gibt einen systematischen Fehler in der Analyse der Asteroidenspektren,
b) gewöhnliche Chondrite kommen von einem seltenen Asteroidentyp,
c) sie kommen von kleinen, unerhitzten Asteroiden im Hauptgürtel,
d) sie kommen von Mutterkörpern, die in entfernten Positionen während der Akkreationsphase* ausgestoßen wurden, und als Apollo-Körper aus Kometenpositionen in das Innere Sonnensystem zurückkehrten.

Vielleicht liegt aber die Lösung in der Klärung der Bildungsphase dieser Materie. Der solare Urnebel zeigte einen Teilchengradienten zwischen 1,9 und 5,2 A.U. . Das Innere dieses Gürtels enthielt Material, dessen Körper leicht oxidiert waren (H, L und LL Chondrit) [BEL88]. Nachdem die Materie sich zusammengeballt hatte, gab es innerhalb der ersten paar Millionen Jahre des frühen Sonnensystems eine Erhitzungsphase. Sie ist für das differenzierte Asteroiden- und Meteoritenmaterial verantwortlich. Diese Erhitzungsperiode kann möglicherweise von der Sonne ausgegangen sein, wenn sie eine T-Tauri-Phase erfahren hat (< 1Ma). Dagegen gibt es aber den Einwand, daß solch eine Phase für die Sonnenmasse nicht so stark ist, daß sie die Kraft hätte, die in 2,5 A.U. befindliche Materie soweit aufzuheizen. Dazu müßte ihre Masse wesentlich größer gewesen sein. Es kommt also nur eine T-Tauri-

* Akkreationsphase: Bildungsphase

Phase der Sonne als Ursache in Frage, wenn sie mit sehr starken Massenverlusten einherging. Man könnte dann aber einen Temperaturgradienten erklären, der zu verschie-denen Differenzierungen führen würde. Sollte die Ursache aber an der hohen Al-26 Kon-zentration liegen, die aufgrund ihrer Halbwertszeit von 716000 a und der sehr hohen Konzentration des Zerfallsprodukts Magnesium in der Materie diskutiert wird, muß es Konzentrationsgradienten gegeben haben, damit verschiedene Differenzierungen möglich sind [WAS85]. Solch eine Phase könnte 2 - 3 Ma angedauert haben, während der Urnebel kollabierte. So kann man sich also die Bildung des Sonnensystems vorstellen [BUR86]:

1. Vor $4{,}6 \cdot 10^9$ a begann sich das solare System durch Gravitationskollaps zu formen, der Urnebel hatte eine unbekannte Ausdehnung und mehr Masse als das jetzige System.
2. Es wurden Energien freigesetzt und die Temperatur im Nebel stieg.
3. Erste feste Materie begann sich zu kondensieren.
4. Diese Materie weist die gleiche Häufigkeitsverteilung nichtflüchtiger Elemente auf, wie in der Sonne und in kohligen Chondriten Typ I.
5. Die feste Materie nahm zu und kleine Körper bildeten sich, einige wurden von den Planeten eingefangen, andere von der Sonne verschluckt.
6. In einer frühen Phase stieg die Temperatur und erhitzte kleine Körper so stark, daß sie sich chemisch differenzierten und eine Metamorphose durchmachten.

Es bleiben aber viele Fragen. So ist z.B. ungeklärt, wie es zu einem steigenden Verlust der leicht flüchtigen Elementen von Typ 3 zu Typ 6 gewöhnlicher Chondrite kommt, woher die Ca - Al reichen Einschlüsse (CAI's) in kohligen Chondriten kommen und woher die Chondren stammen.

Donald D. Clayton fand Sauerstoff-Isotopenanomalien in den CAI's der kohligen Chondriten und argumentierte, daß es sich bei den Isotopenverhältnissen um Indikatoren für unterschiedliche Entstehungsgeschichten handelt, wenn sie voneinander abweichen. So müßte die Materie des Sonnensystems immer die gleichen Isotopenverhältnisse aufweisen, da sie aus einer Materie kondensierte. Er folgerte, daß es sich um präsolare Materie handelt oder daß aus einer anderen Supernova Explosion Materie in den solaren Urnebel eingeschossen wurde ("Sternenstaub"). Er bezeichnete diese Isotopenanomalien als das "Chemische Gedächtnis" [CLA77/78/81/82/88/92]. Wenn aber der solare Urnebel inhomogen war, könnten sich die CAI's in der äußeren Region gebildet haben (reich an O-16) und nach Diffusion in die inneren Regionen mit dem normalen Sauerstoffverhältnis vermischt haben [BLA79].

Woher aber kommen die Chondren? Aus dem Urnebel konnten sie nicht kondensieren, da sie bei einem angenommen Druck von 10^{-3} bar nicht existent sind [ALF77]. Auch vulkanische Aktivitäten auf ihrem Mutterkörper würden Chondren mit einer anderen chemischen Zusammensetzung bilden. Wenn es sich um feste Einschlüsse im solaren Urnebel handeln sollte, müßte ihr Anteil geringer sein. Oder sind sie möglicherweise im Urnebel geschmolzen, während noch keine Materie als Festkörper existierte? Dann müßte erklärt werden, woher die dazu nötige Hitze stammt. Möglich wäre, daß erste Materie in das Zentrum des solaren Urnebels driftete, sich zu Clustern zusammenballte und Kollisionen zunahmen. In einigen Millionen Jahren nach der Kondensation erhitzten sich die Körper und schmolzen in verschiedenen Phasen und bildeten Metamorphosen. Wahrscheinlich kommt die Hitze weder von einer besonders aktiven Sonne, noch von der Gravitationsenergie, dem solaren Wind oder langlebigen Radionukliden, sondern aus dem Zerfall des ^{26}Al, dessen Zerfallsprodukt ^{26}Mg in Meteoriten (ausgenommen Eisenmeteoriten) als Hauptbestandteil zu finden ist [BUR86].

Da Chondrite durch Aufheizen in Achondrite übergehen und es außerdem noch Stein-Eisen- und Eisenmeteorite gibt, spricht vieles für einen gemeinsamen Mutterkörper. Man könnte sich einen Mutterkörper vorstellen, der aus einem Eisenkern, einer darüberliegenden Schicht von Stein-Eisen Material und einer Oberfläche aus Stein besteht. Die Übergänge zwischen den Schichten sind fließend und repräsentieren die verschiedenen Stufen der Differenzierung der Meteorite. Der Mutterkörper müßte so groß gewesen sein, daß sich Hochdruckminerale und Widmannstättensche Strukturen bilden konnten. Er durfte aber nicht größer gewesen sein als 1600 km im Durchmesser, da sonst Drucke von mehr als 12000 bar auftreten, die die Strukturen zerstört hätten. Wegen der Einhaltung bestimmter notwendiger Abkühlraten ist es wahrscheinlicher, von einem maximalen Durchmesser von 600 km auszugehen [DOD81, NAR85].

Es gibt aber einige weitere Paradoxa. So haben z.B. Chondrite ein maximales Bestrahlungsalter von einigen Millionen Jahren, Eisenmeteorite von mehreren hundert Millionen Jahren. Das widerspricht der Theorie des gemeinsamen Mutterkörpers mit einem Eisenkern.

1.5 Meteoritenalter

Unser Sonnensystem wurde vor 4,57±0,03 Ga gebildet [GEY90]. Vor und nach dieser Zeit werden bestimmte Alter definiert (s. Abb. 1.6). Das Alter der Galaxie vom Urknall an, läßt sich nur vage bestimmen. Es scheint 15 - $20 \cdot 10^9$ a alt zu sein. Den Zeitpunkt der beendeten Nukleosynthese bis zur Bildung unseres Sonnensystems mit seinen Planeten bezeichnet man als Bildungsintervall (Bildungsalter). Es dauerte ungefähr 10^6 a (innere Planeten) bis 10^7 a (äußere Planeten). Das Alter der Meteorite wird ab dem Zeitpunkt definiert, ab dem sich Stein- und Metall-Phasen differenzierten oder die Meteoroid-mutterkörper sich verfestigten. Diese Zeit wird Verfestigungs- oder Solidification-Alter genannt. Unter der Gas-Retentions-Zeit versteht man die Zeit bis zur letzten Erhitzungs-periode, durch die Gase verloren gingen. Die Zeit, in der Meteorite von der galaktischen kosmischen Strahlung (GCR) bestrahlt wurde, wird Expositionszeit genannt. Im Zusammen-hang mit der kosmischen Strahlung ist bei gefundenen Meteoriten auch von Interesse, wann sie auf die Erde aufschlugen und wie lange sie dort lagen. Diese Zeit wird terrestrisches Alter genannt.

Um Alter auf einer absoluten Zeitskala zu erhalten, bietet sich als Methode die Messung radioaktiver Nuklide an. Geht man davon aus, daß durch die Nukleosynthese zu einem bestimmten Zeitpunkt alle möglichen Elemente mit ihren Isotopen, ob kurzlebig, langlebig oder stabil, zu nachvollziehbaren Konzentrationen entstanden, kann man bei Kenntnis der Halbwertszeit eines radioaktiven Isotops durch seine heutige Konzentration eine absolute Zeitskala definieren. Aufgrund von Mutter-Tochter-Gleichgewichten, Isotopenverhältnissen von radioaktiven und / oder stabilen Nukliden sowie der Konzentration von stabilen Tochter-nukliden können die verschiedenen Alter bestimmt werden.

Das Bildungsintervall wurde für terrestrische Steine mit 4,5±0.05 Ga ermittelt. Die Akkreationsphase dauerte 100±1 Ma [GEY91]. Diese Genauigkeit ließ sich nur durch die Benutzung verschiedener Zerfallsreaktionen erreichen. Dazu gehören z.B.

$^{129}I \xrightarrow{\beta^-} {}^{129}Xe$ mit $t_{1/2}$ = 15,7 Ma [KUR67];

$^{244}Pu \xrightarrow[(tracks)]{\alpha, sp, sf} {}^{131-136}Xe$ mit $t_{1/2}$ = 82,6 Ma [KUR67, HUD82];

$^{107}Pd \xrightarrow{\beta^-} {}^{107}Ag$ mit $t_{1/2}$ = 6,5 Ma [KEL78];

$^{26}Al \xrightarrow{\beta^-} {}^{26}Mg$ mit $t_{1/2}$ = 716 ka [LEE78].

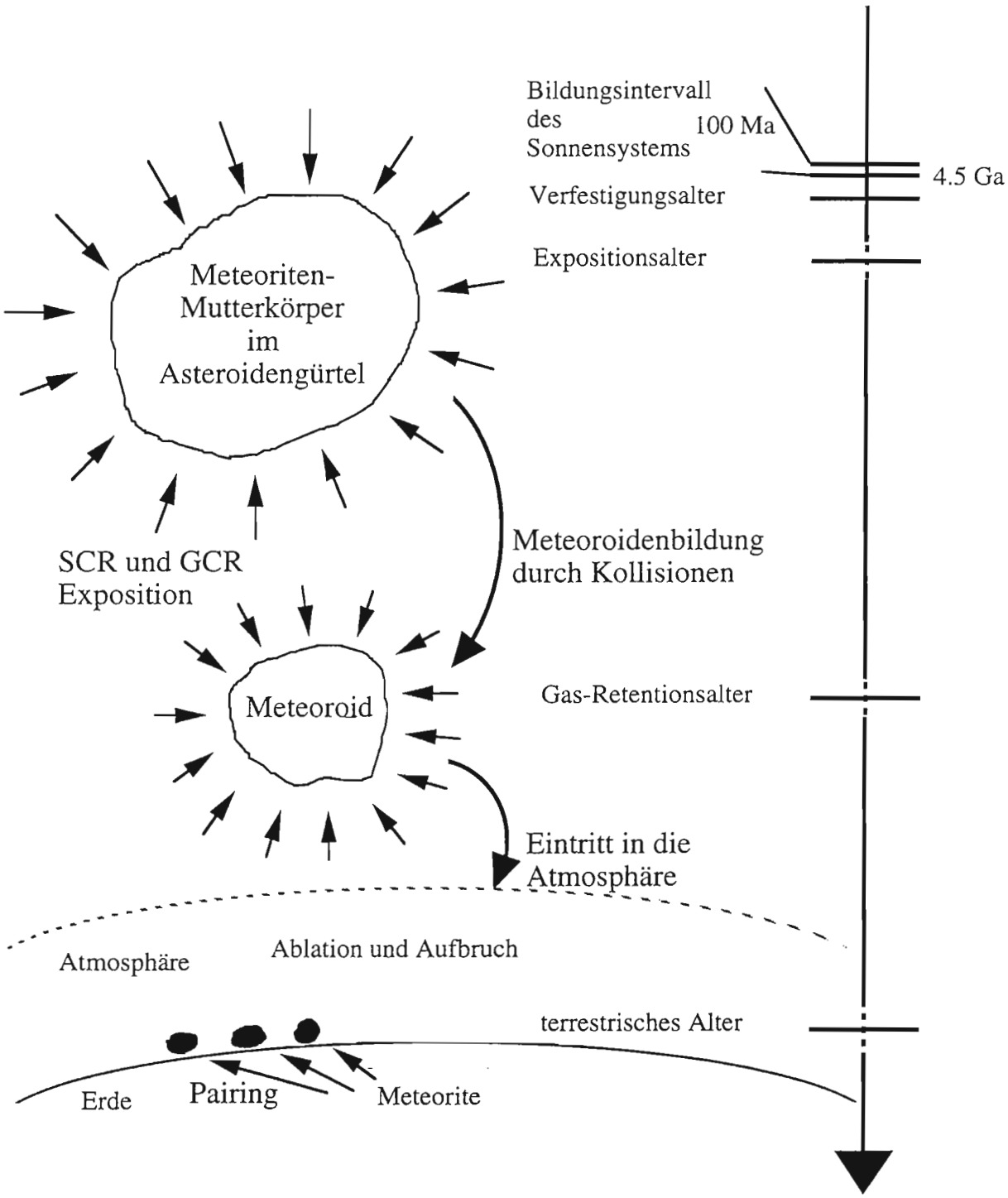


Abb. 1.6: Symbolische Zeitskala mit verschiedenen Altersangaben, die durch den radioaktiven Zerfall verschiedener Nuklide bestimmt werden können.

Das Verfestigungs- oder Solidification-Alter beträgt für fast alle Meteorite 4,57±0,03 Ga. Das ist auch der Zeitpunkt, zu dem sich unser Sonnensystem bildete. Es beweist die Abstammung der Meteorite von Mutterkörpern, die sich schnell abkühlten. Ab 1950 wurden verschiedene Methoden für die Ermittlung dieser Alter herangezogen: z.B. die Re/Os -, die Rb/Sr - und die Pb/Pb - Methoden. Obwohl jedes dieser Verfahren seine Schwächen hat, wie z.B. in der Pb/Pb - Methode die sehr geringen Konzentrationen von Uran und Thorium, die eine Unterscheidung zwischen meteoritischer Abstammung und terrestrischer Kontamination schwierig machen oder durch Unkenntnis des anfänglichen $(^{87}Sr/^{86}Sr)_0$ bzw. $(^{187}Os/^{186}Os)_0$ Verhältnisses, konnten durch den Vergleich aller Methoden entsprechende Alter präziser formuliert werden.

Die Gas-Retentionsalter sagen aus, wann der Meteorit oder Körper das letzte Mal eine bestimmte Temperatur überschritten hat. Diese Grenztemperatur beträgt für Xenon 570 K oder für Argon 470 K. Es kann sich also um die Zeit bis zur abgeschlossenen Differenzierung handeln, genauso gut aber auch um die Zeit bis zur letzten kosmischen Kollision oder der letzten Umkreisung der Sonne in einem entsprechend nahem Abstand. Deswegen ist es nicht ungewöhnlich, weit auseinander liegende Alter zu erhalten. Sie liegen in dem Bereich von 0,3 - 4,5 Ga. Aufgrund von mineralogischen Anomalien (z.B. Schockverwandlungen, bröckelnde Konsistenz) können manche Ereignisse unterschieden werden. Es wurde die K/Ar - Methode verwendet. Sie kann aber durch Kontamination mit terrestrischem Argon zu fehlerhaften Werten führen.

Das Bestrahlungs- oder Expositionsalter ist die Zeit, in der der Körper den solaren kosmischen Strahlen (SCR = solar cosmic ray) und / oder den galaktisch kosmischen Strahlen (GCR = galactic cosmic ray) ausgesetzt war. Erwarten ließen sich demnach Alter, die den Solidification-Altern ähneln, oder aber auch Zeiten bis zur letzten Kollision der Asteroidenmutterkörper. Teilweise lassen sich auf den ersten Blick keine eindeutigen Aussagen treffen, da sich Ergebnisse verschiedener Untersuchungsmethoden anscheinend widersprechen. Es könnte sich um komplexe Bestrahlungen handeln oder um einst große Meteoroide, von denen nur kleine Fragmente gefunden und analysiert wurden. Im nächsten Kapitel wird näher auf das Bestrahlungsalter und damit verbunden auf die GCR und SCR sowie auf die kosmogenen Nuklide eingegangen.

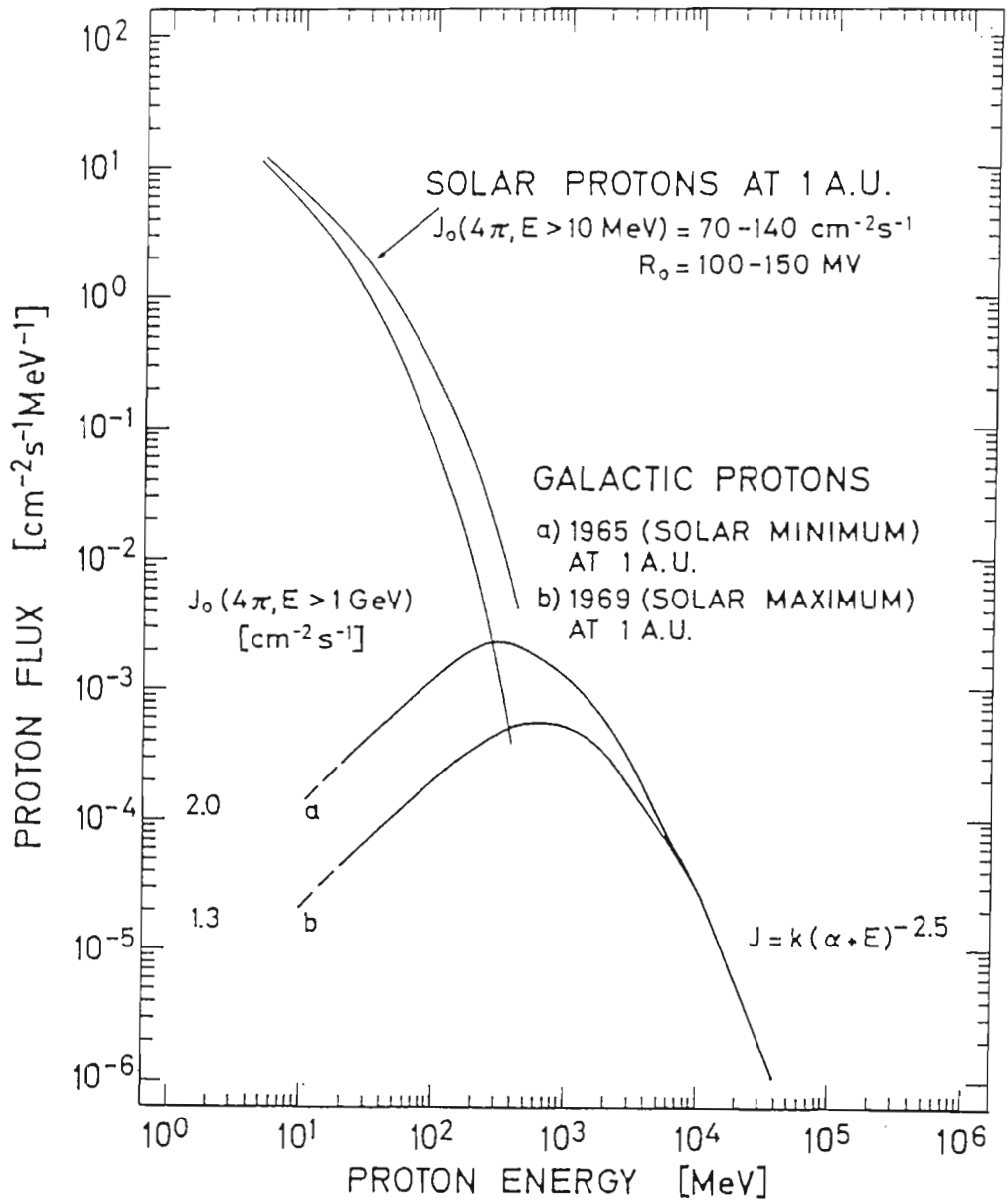


Abb. 2.1: Differenzielles Energiespektrum der solaren und galaktischen kosmischen Strahlung in 1 A. U. [MIC83]

2. Kosmische Strahlung und kosmogene Nuklide

2.1 Die solare kosmische Strahlung

Die solare kosmische Strahlung (SCR) besteht aus hochenergetischen, geladenen Teilchen, zu 98% aus Protonen, im Mittel 2% α-Teilchen und zu <1% aus schwereren Ionen. Sie werden emittiert, wenn räumlich begrenzte Turbulenzen des Sonnenmagnetfeldes sogenannte "solar flares" erzeugen, eine spontane Freisetzung von Energie (auch in Form von

elektromagnetischer Strahlung) [STU80, CUL91]. Die Teilchen erreichen eine Energie bis zu einigen 10^2 MeV/Nukleon (s. Abb. 2.1). Obwohl in Zeiten höherer Sonnenaktivität eines 11-jährigen Zyklus die Häufigkeit der "solar flares" größer ist als zu Zeiten geringerer Aktivität, sind Härte und Intensität eines Ereignisses davon völlig unabhängig.

Um das SCR-Energiespektrum zu beschreiben, wird die magnetische Steifheit R (Rigidity) als der relativistische Impuls pro Ladung (Einheit MV) definiert. Mit ihrer Hilfe können verschiedene geladene Teilchen mit unterschiedlichen Energien im Magnetfeld verglichen werden. So läßt sich für Energien zwischen 10 und 100 MeV/Nukleon der differenzielle SCR-Fluß J durch eine exponentielle Verteilung der Rigidities mit einer charakteristischen Rigidity R_0 beschreiben [REE72, ALS72]:

$$J(R)dR = J_0 \cdot e^{-R/R_0}\, dR \qquad \text{(Gl. 2.1)}$$

$$J(E)dE = J_0(E > 10MeV)\, e^{-R/R_0} dR \qquad \text{(Gl. 2.2)}$$

In der Literatur besteht keine Übereinstimmung in den beiden Parametern J_0 (langzeit-gemittelte Flußdichte) und R_0 (charakteristische Rigidity). So kann für die Produktion von ^{26}Al und ^{53}Mn im Mondgestein durch die SCR für ein langzeit-gemitteltes Spektrum solarer Protonen ein Parametersatz von $J_0 = 55\ cm^{-2}s^{-1}$ und $R_0 = 125$ MV angegeben werden [BOD93] während andere Autoren [REE91] für Mondgesteinproben die Werte $J_0 = 160\ cm^{-2}s^{-1}$ und $R_0 = 85$ MV angeben und die Unsicherheit mit der mangelhaften kernphysikalischen Datenbasis begründen.

2.2 Die galaktische kosmische Strahlung

Die GCR besteht aus 87% Protonen, 12% α-Teilchen und 1% schwereren Kernen [ALS72]. Sie ist eine isotrope Strahlung mit einem Maximum der Energieverteilung zwischen 0,5 - 1,5 GeV, wobei maximale Energien von bis zu 10^{21}eV für einzelne Teilchen auftreten können (s. Abb. 2.1) [SUG71]. Für den Ursprung dieser Teilchen werden Supernova-Explosionen angenommen, bei denen sie ihre Anfangsenergien durch Zusammenstöße von Plasmawolken erhalten und stufenweise durch Wechselwirkungen mit wandernden Magnetfeldern in der Galaxie auf derart hohe Energien beschleunigt werden, und ihren isotropen Charakter erhalten. Da ihr Energiespektrum durch Magnetfelder variiert wird, moduliert das Magnetfeld der Sonne nachweisbar die GCR bis in 32 A.U. Entfernung (Voyager- und Pioneer-Sonden hinter der Neptun-Umlaufbahn [ALL85]) durch Bremsung

der Teilchen (es werden Wechselwirkungen bis zu 100 A.U. geschätzt [INT88]). Der Einfluß des Sonnenmagnetfelds liegt als heliozentrischer Gradient bei 1,5 - 3% / A.U. [ALL85, WEB86]. So kommen während geringer Sonnenaktivität Energieverluste von 150 MeV/Nukleon und im Maximum der Sonnenaktivität 900 MeV/Nukleon vor. Wenn diese Variation durch das Sonnenmagnetfeld im solaren elfjahres Zyklus als einziger freier Parameter berücksichtigt wird, kann das differenzielle Spektrum der primären Protonen der GCR mit einer Gleichung beschrieben werden [CAS80]:

$$J(E_p, M) = C_p \frac{E_p(E_p + 2m_p c^2)(E_p + m + M)^{-2.65}}{(E_p + M)(E_p + 2m_p c^2 + M)} \qquad \text{(Gl. 2.3)}$$

$$m = 780 \exp(-2.5 \cdot 10^{-4} E_p) \qquad \text{(Gl. 2.4)}$$

$J(E_p,M)$	differentielle Flußdichte galaktischer Protonen mit Energie E_p und Modulationsparameter M (M = Einfluß der Sonnenaktivität)	$[cm^{-2}s^{-1}MeV^{-1}]$
C_p	Normalisierungsfaktor $1{,}24 \cdot 10^6$	$[cm^{-2}s^{-1}MeV^{-1}]$
m_p	Ruhemasse des Protons	[g]
c	Lichtgeschwindigkeit	$[ms^{-1}]$

Der Modulationsparameter variiert je nach Sonnenaktivität zwischen 300 MeV (Minimum) und 900 MeV (Maximum) sowie 100 MeV für ein Maunder Minimum (Zeiten geringer Sonnenaktivität). Daraus resultieren integrale Flußdichten $J_{0,pp}$ ($E_p > 10$ MeV) zwischen 1,79 und 9,60 $cm^{-2}s^{-1}$. Je höher die Protonenenergien werden, umso geringer ist der Einfluß der Sonnenaktivität und die Variationen der Flußdichten verringern sich von einem Faktor 5 auf einen Faktor 3 bei $E_p > 1$ GeV. Für Energien von mehreren GeV bedarf es keiner Korrektur, ihr Spektrum kann durch eine einfache Potenzfunktion $E^{-\gamma}$ mit $\gamma \approx$ 2,5 - 2,7 beschrieben werden. Die Flußdichte solch energiereicher Protonen ist kleiner als 0,2 $cm^{-2}s^{-1}$.

2.3 Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit Materie

Trifft ein Teilchen der SCR oder GCR auf Materie, so wechselwirkt es energieabhängig auf verschiedene Art und Weise. Bei Energien unter 50 MeV werden mit dem Projektil, wie z.B. Protonen p, Deuteronen d oder α-Teilchen einzelne Nukleonen oder Gruppen von Nukleonen des Targetkerns ausgetauscht. Bei solchen (p,d), (d,t), (t,d) oder (α,2pn)

Reaktionen handelt es sich um direkte Kernreaktionen. Wenn sich die Energie durch intranukleare Übergänge auf alle Nukleonen statistisch verteilt, spricht man von Compoundkernreaktionen. Es können dann zusätzlich zu den Austauschreaktionen (x, y) noch Photokernreaktionen (γ, y) oder Einfangreaktionen (n, γ) beobachtet werden. Liegt die Teilchenenergie zwischen 50 und 200 MeV, kann eine Teilchenemission aus dem Targetkern schon vor dem Erreichen des Compoundsystems stattfinden. Diese Reaktionen werden Präequilibriumsreaktionen genannt. Werden die Energien größer als 100 MeV, nimmt mit zunehmender Energie auch die Wahrscheinlichkeit für eine Wechselwirkung mit einzelnen Nukleonen des Kerns zu. Die Energieübertragung ist so groß, daß von dem einzelnen Nukleon des Targetkerns weitere Wechselwirkungen in Form einer intranuklearen Stoßkaskade zu hochangeregten Nukleonen führen, die den Kern als Protonen oder Neutronen verlassen und bei anderen Targetkernen weiter auf diese Art wechselwirken, bis die Energie der Teilchen unter einen gewissen Schwellenwert fällt, sodaß keine Reaktionen mehr möglich sind. Es handelt sich hier um Spallationsreaktionen, die neben der intranuklearen auch eine internukleare Kaskade auslösen. Kommt es bei Energien oberhalb von 0.5 GeV zur Verdampfung ganzer Nukleonencluster, spricht man von Fragmentationsreaktionen.

Wenn durch die oben genannten Spallations- und Fragmentationsreaktionen sekundäre Nukleonen weitere Teilchen freisetzen, spricht man von internuklearer Kaskade. Alle Teilchen, die nicht zu den einfliegenden Projektilen (primäre Teilchen) gehören, werden sekundäre Teilchen genannt. Es handelt sich um Neutronen und Protonen sowie leichte Fragmente (d, ^{3}H, ^{3}He, α, ...). Je höher die Energie der sekundären Teilchen ist, umso länger wird die Reaktionskette. So erzeugt ein sekundäres Neutron mit einer Energie von ca. 250 MeV zwei weitere Generationen von sekundären Teilchen, während geladene sekundäre Teilchen für vergleichbare Reaktionsketten eine Energie von ca. 500 MeV benötigen. Beobachtet man den Fluß primärer und sekundärer Teilchen in einem dicken Target (Dicktarget, $\varnothing > 60$ cm), so nimmt die Intensität des primären Teilchenflusses exponentiell mit der Tiefe des Targets ab. Betrachtet man aber den Gesamtfluß aller Teilchen, so wächst der Teilchenfluß durch den Beitrag sek. Teilchen bis zu einem Durchgangsmaximum an und fällt danach exponentiell ab. Die Lage des Durchgangsmaximums ist abhängig von der Energie und der mittleren freien Weglänge der einfallenden Teilchen.

Aufgrund der hohen Energie und damit verbundenen größeren Produktion sekundärer Teilchen, kommt der GCR größere Bedeutung zu als der SCR. Während auf dem Mond kosmogene Nuklide der SCR (wegen des Mangels sek. Teilchen) nur bis zu einer Tiefe von maximal 20 g/cm^2 nachzuweisen sind, lassen sich GCR produzierte Nuklide durch den hohen Sekundärteilchenanteil bis in Tiefen von > 400 g/cm^2 wiederfinden. Da Meteorite mit Radien

größer 5cm in der Regel hohe Ablationsverluste beim Durchgang der Erdatmosphäre erleiden, kann die SCR als Ursache kosmogener Nuklide vernachlässigt werden, außer wenn die Ablationsrate sehr gering ist und damit eine signifikante SCR-Produktionsrate typischer Niedrigenergieprodukte (^{26}Al) nachzuweisen ist, wie es für den Meteorit "Salem" [EVA87, NIS90] zutrifft.

Da die GCR isotrop ist, kann von der Bestrahlung des Körpers aus allen Richtungen gesprochen werden, die bei Meteoriten wegen ihrer geringen Größe und damit höheren Produktionsrate eine 4 π Bestrahlung genannt wird. Handelt es sich um größere Körper wie der Mond, trifft die Strahlung nur aus einem Halbraum auf eine Halbkugel. Dadurch sind im allgemeinen geringere Produktionsraten zu erwarten. Es handelt sich um eine 2 π Bestrahlung.

2.4 Produktion kosmogener Nuklide

Als kosmogene Nuklide bezeichnet man alle von der GCR oder SCR produzierten Nuklide. Dabei kann es sich um Radio- wie auch stabile Nuklide handeln. Interessant für die Meteoritenforschung sind diejenigen, die (bei Radionukliden) neben einer längeren Halbwertszeit (> 1a) auch in ausreichend großer Menge produziert werden, damit eine Analyse noch möglich ist. Analysiert wird mit den gängigen Aktivitätsmeßverfahren wie γ-Spektroskopie oder die Ermittlung der β-Zählrate. Ist die Halbwertszeit zu groß (^{10}Be: $1.51 \cdot 10^6$ a) oder die Strahlung zu schwach (^{14}C: kein γ, $E_{\beta,max} = 0.2$ MeV), wird die aufwendigere AMS Technik eingesetzt. Stabile Nuklide können mit der konventionellen Massenspektrometrie analysiert werden. Die Schwierigkeit der Analyse stabiler Nuklide liegt eher in der Technik des stufenweisen Auf- und Ausheizens der Probe, da die kosmogen produzierten Nuklide von den natürlich vorkommenden zu unterscheiden sind. Tab. 2.1 zeigt alle kosmogenen Nuklide mit einer Halbwertszeit > 1a mit ihren Haupttargetelementen, aus denen sie entstehen. Nicht jedes Nuklid von ihnen kann nach heutigem Wissensstand befriedigend analysiert werden. Es kann aber vorkommen, daß mit der Weiterentwicklung bestimmter Analysenmethoden auch das eine oder andere kosmogene Nuklid der Wissenschaft zugänglich wird. So konnten ^{10}Be-Proben erst mit Hilfe der AMS in größerer Anzahl gemessen werden. Vielfach ist die Bestimmung mancher Nuklide noch eine Konzentrationsfrage. So ist die Analyse von Kr, das aus den seltenen Targetelementen Br, Rb, Sr, Y und Zr produziert wird, nur in bestimmten Mineralien möglich, in denen sich diese Elemente häufen. Damit kommt es zu großen Streuungen der Analysenergebnisse und es werden große Fehlerbereiche erzeugt.

Tab. 2.1: Kosmogene Nuklide ($t_{1/2}$>1a) nach Halbwertszeiten geordnet mit ihren wichtigsten Targetelementen.

Kosm. Nuklid	Halbwerts-zeit	Targetelemente									
^{22}Na	2.6a	Na	Mg	Al	Si	S	Ca	Fe	Ni		
^{55}Fe	2.7a	Mn	Fe	Ni							
^{60}Co	5.26a	Co	Ni								
^{3}H	12.3a	C	N	O	Mg	Al	Si	S	Ca	Fe	Ni
^{44}Ti	47.3a	Ca	Ti	Fe	Ni						
^{32}Si	133a	S	Cl	Ar	K	Ca	Ti	Fe	Ni		
^{39}Ar	269a	K	Ca	Ti	Fe	Ni					
^{14}C	5.73ka	N	O	Mg	Al	Si	S	Ca	Ti	Fe	Ni
^{59}Ni	75ka	Fe	Ni								
^{41}Ca	103ka	K	Ar	Ca	Ti	Fe	Ni				
^{81}Kr	210ka	Rb	Sr	Y	Zr						
^{36}Cl	300ka	Cl	K	Ca	Ti	Fe	Ni				
^{26}Al	716ka	Na	Mg	Al	Si	S	Ca	Ti	Fe	Ni	
^{10}Be	1.51Ma	C	N	O	Mg	Al	Si	S	Ca	Fe	Ni
^{53}Mn	3.7Ma	Mn	Fe	Ni							
^{129}I	15.7Ma	Te	Ba	La	Seltenerdelemente						
^{40}K	1.28Ga	K	Ca	Ti	Fe	Ni					
He	stabil	C	O	Mg	Al	Si	S	Ca	Fe	Ni	
Ne	stabil	Na	Mg	Al	Si	S	Ca	Fe	Ni		
Ar	stabil	S	Cl	K	Ca	Ti	Fe	Ni			
Kr	stabil	Br	Rb	Sr	Y	Zr					
Xe	stabil	Te	Ba	La	Seltenerdelemente						

Das Radionuklid ^{53}Mn ($t_{1/2}$: $3.7 \cdot 10^6$ a) schließt die relativ große Lücke zwischen ^{10}Be ($t_{1/2}$: $1.51 \cdot 10^6$ a) und ^{129}I ($t_{1/2}$: $15.7 \cdot 10^6$ a). Zur Analyse wird die Probe in einem D_2O moderierten Reaktor mit thermischen Neutronen bestrahlt. Dieser Energiebereich der Neutronen ist wichtig, um durch eine ^{53}Mn (n, γ) ^{54}Mn Kernreaktion das kürzerlebige ^{54}Mn ($t_{1/2}$ = 312.2d) zu erhalten, das dann γ-spektroskopisch gemessen werden kann. In der Probe ist auch das stabile Isotop ^{55}Mn mit einer Konzentration von 1.5 bis 2.5 mg/g vorhanden. Bei anderen Energien der Neutronen wird ein zunehmender Anteil nach der Reaktion ^{55}Mn (n, 2n) ^{54}Mn umgesetzt, was die Aktivität der Probe vergrößert. Die Bestimmung des

gesamten Mn in der Probe und Blindwertmessungen ermöglichen eine Ermittlung des Anteils der (n, 2n) Kernreaktion und somit eine Korrektur der γ Spektrometrie. Die ^{53}Mn-Aktivität wird im Gegensatz zur ^{10}Be-, ^{14}C- und ^{26}Al-Aktivität auf den Fe-Gehalt der Probe bezogen.

2.5 Empirische Ansätze zur Interpretation kosmogener Nuklide

Aus den Konzentrationen kosmogener Nuklide können je nach dem, ob es sich um stabile Nuklide oder Radionuklide handelt, Aussagen zu Bestrahlungsdauer, Produktionsraten oder terrestrischem Alter gemacht werden. Mit Kenntnis der Produktionsraten in Abhängigkeit der chemischen Zusammensetzung des Meteoriten können Teilchenflüsse für bestimmte Zeiträume (je nach Halbwertszeit des Radionuklids) definiert werden. Im folgendem werden diese Zusammenhänge näher spezifiziert.

Befand sich der Meteoroid an einer abgeschirmten Stelle im Mutterkörper, beginnt mit seiner Freisetzung die Produktion kosmogener Nuklide solange, bis eine erneute Abschirmung für das Ende der Bestrahlung sorgt. Das ist bei einem Fall auf die Erde durch die Atmosphäre ausreichend gegeben. Das Zeitintervall der Bestrahlung wird Bestrahlungsalter t_{exp} genannt.

Die Konzentration stabiler kosmogener Nuklide nimmt mit der Bestrahlungszeit linear zu, wenn Diffusionseffekte z.B. von Edelgasen vernachlässigt werden können:

$$C = P \cdot t_{exp} \qquad \text{(Gl. 2.5)}$$

C	Konzentration des Nuklides [atome/g]
P	Produktionsrate P_j (R,d,M,B) [atome/(g·s)]
t_{exp}	Bestrahlungszeit [s]

Obwohl die Einheit der Produktionsrate Atome / (g·s) ist, haben sich wegen der übersichtlicheren Zahlengröße bzw. praxisbezogenerer Aussage andere Einheiten durchgesetzt. So werden Produktionsraten von Radionukliden in dpm/kg (disintegrations per minute and kilogram) angegeben, die von stabilen Edelgas-Isotopen in ccSTP/(g·My) (cm^3 Gas unter Standardbedingungen pro g und 10^6 a Bestrahlungszeit). Es ist 1 atom/(g·s) = 60000 dpm/kg = $1.1747 \cdot 10^{-6}$ ccSTP/(g·Ma).

Das Bestrahlungsalter kann unter Annahme konstanter Bestrahlungsbedingungen errechnet werden:

$$t_{\exp} = \frac{C}{P} \qquad \text{(Gl. 2.6)}$$

Die Produktionsraten der Edelgase können als Funktion der Abschirmungstiefe z.B. nach Eugster 1988 [EUG88] berechnet werden. Die verschiedenen chemischen Zusammensetzungen der Chondrite werden als Faktor berücksichtigt. Es folgt die Produktionsratengleichung für ^{21}Ne:

$$P^{21} = 1.61\, F\, (21.77\, (^{22}Ne/^{21}Ne)_c - 19.32)^{-1} \qquad \text{(Gl. 2.7)}$$

$$F_L = 1.00,\ F_{LL} = 1.00,\ F_{CM} = 0.79,\ F_{CO} = 0.96,\ F_{CV} = 0.96,\ F_H = 0.93$$

P^{21}	Produktionsrate von ^{21}Ne [10^{-8} cm^3 STP / (g Ma)]
F_{XX}	Korrekturfaktor für XX Chondrit
$^{22}Ne/^{21}Ne$	Abschirmungsparameter; wenn kein kosmogenes $^{22}Ne/^{21}Ne$ angegeben werden kann, wird üblicherweise der aus dem Meteoriten St.Severin stammende Mittelwert 1.11 verwendet.

Handelt es sich um Radionuklide, steigt die Aktivität je nach Zerfallskonstante bis zu einer Sättigungsaktivität, die das Gleichgewicht zwischen Produktion und Zerfall darstellt. Mit der Voraussetzung konstanter Bestrahlungsbedingungen ist diese Aktivität näherungsweise spätestens nach 7 Halbwertszeiten (>99%) erreicht:

$$A(t_{\exp}) = A_{sat}\,(1 - e^{-\lambda t_{\exp}}) \qquad \text{(Gl. 2.8)}$$

$A(t_{\exp})$	Aktivität des Radionuklids nach der Zeit $t_{\exp}$ [Bq]
A_{sat}	gesättigte Aktivität = Produktionsrate [Bq]
λ	Zerfallskonstante [s^{-1}]

Das Bestrahlungsalter für Radionuklide ergibt sich wie folgt:

$$t_{\exp} = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{A_{sat}}{A_{sat} - A(t_{\exp})} \qquad \text{(Gl. 2.9)}$$

Ist das Bestrahlungsalter bekannt, so kann mit Hilfe dieser Gleichung auch die Produktionsrate errechnet werden. Ist das Bestrahlungsalter größer als 3 Halbwertszeiten des untersuchten Radionuklids, kann entsprechend der analytischen Fehlerbreite von einer gesättigten Aktivität (>93%) gesprochen werden, die gleich der mittleren Produktionsrate des Nuklids in der Abschirmungstiefe des Meteoriten ist.

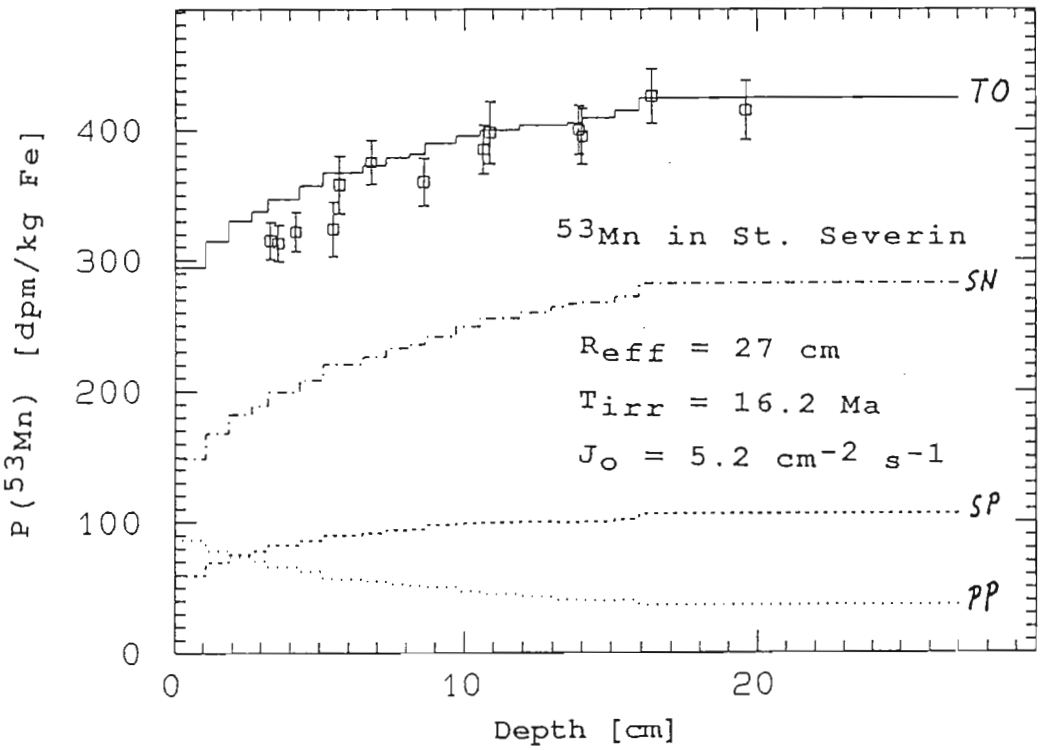


Abb. 2.2: ^{53}Mn Tiefenprofil des L-Chondriten St. Severin. Experimentelle Werte von S. Vogt [VOG88], Berechnungen von R. Michel [MIC91]. (PP: primäre Proton, SP: sekundäre Proton; SN: sekundäre Neutron; TO = Total)

Daraus ergeben sich Parameter für das primäre Teilchenflußspektrum. In Abhängigkeit der Halbwertszeit des betrachteten Radionuklids spricht man von langzeit-gemittelten Teilchenflußspektren. Stimmen diese Spektren für kosmogene Radionuklide verschiedener Halbwertszeiten überein, kann für den entsprechenden Zeitraum von einer Konstanz der (im Falle von Meteoriten) GCR-Strahlung gesprochen werden. So wurde die integrale Teilchenflußdichte für die GCR im Meteoroiden-Orbit (1.5 - 3.0 A.U.) für Energien >10 MeV zu J_0(E > 10 MeV) = 5.2 $cm^{-2}s^{-1}$ bestimmt [MIC91]. Dieser Wert ist die integrale Flußdichte des langzeit-gemittelten GCR-Spektrums für die letzten 10 Ma, basierend auf ^{26}Al- und ^{53}Mn-Tiefenprofilen verschiedener Meteorite (s. Abb. 2.2). Wie allerdings das mittelfristige GCR-Spektrum der letzten 30000 Jahre aussah, kann mit diesen Nukliden nicht ermittelt werden.

Diese wichtige Information über mittlere GCR-Teilchenflußdichteschwankungen kann erst gegeben werden, wenn Tiefenprofile von ^{14}C ($t_{1/2}$ = 5.73 ka) verschiedener Meteorite vorliegen. Wie wichtig das Nuklid ^{14}C ist, erkennt man daran, daß kein kosmogenes Nuklid vergleichbarer Halbwertszeit in der großen Lücke zwischen ^{39}Ar ($t_{1/2}$ = 269 a) und ^{59}Ni ($t_{1/2}$ = 75 ka) existiert.

^{14}C ist auch noch in anderer Hinsicht ein interessantes kosmogenes Nuklid. Mit dem Fall des Meteoriten auf die Erde ist auch die ^{14}C-Produktion unterbrochen. Wegen seiner relativ kurzen Halbwertszeit kann meistens von einer Produktionsrate seiner gemessenen Konzentration ausgegangen werden, abzüglich des seit dem Fall zerfallenen Anteils an ^{14}C. So dient ^{14}C in Meteoriten als ein Chronograph des terrestrischen Alters. Sind einmal alle tiefen- und größenabhängigen Produktionsraten bekannt, kann das Alter eines Meteoriten auf der Erde bis zu 30000 Jahre zurückdatiert werden. Es berechnet sich wie folgt:

$$t_{ter} = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{A_{sat}}{A(t_{ter})} \qquad \text{(Gl. 2.10)}$$

t_{ter}	terrestrisches Alter [a]
A_{sat}	^{14}C Produktionsrate, tiefen- und größenkorrigiert [dpm/kg]
$A(t_{ter})$	gemessene ^{14}C Aktivität [dpm/kg]
λ	^{14}C Zerfallskonstante : $\ln 2 / t_{1/2} = 1.2097 \cdot 10^{-4}\ a^{-1}$

Sollte ein längeres terrestrisches Alter existieren, kann auf andere Nuklide zurückgegriffen werden, wie z.B. ^{26}Al mit $t_{1/2}$ 716 ka oder ^{36}Cl mit $t_{1/2}$ 300 ka. So wurden für antarktische Meteorite schon terrestrische Alter bis zu 1 Ma bestimmt.

2.6 Modelle der Produktion kosmogener Nuklide

Anhand der aus Meteoriten oder Simulationsexperimente ermittelten Produktionsraten, wird versucht, die Produktion kosmogener Nuklide in einem Modell nachzuvollziehen, um dann unter anderem Produktionsraten in Meteoritfragmenten interpretieren zu können. Das Modell soll im folgenden vorgestellt werden.

Die Entstehung kosmogener Nuklide wie der stabilen He-, Ne-, Ar-, Kr-, Xe-Isotope, der langlebigen Nuklide ^{10}Be, ^{14}C, ^{26}Al, ^{36}Cl, ^{41}Ca, ^{53}Mn, ^{81}Kr und der kurzlebigen ^{22}Na und ^{60}Co (s. Kap. 2.5) hängt von vielen Faktoren ab. Ein kosmogenes Nuklid kann durch primäre

Protonen (pp) und schwerere Teilchen wie beispielsweise durch α-Teilchen, aber auch sekundäre Protonen (sp) oder sekundäre Neutronen (sn) produziert werden. Die Konzentration des kosmogenen Nuklids ist abhängig von der Dauer der Bestrahlung. Dabei ist es wichtig, welche Zusammensetzung der Teilchenfluß in der Tiefe des Körpers hat, wie hoch die Flußdichte ist, wie groß die Anzahl der Targetatome ist und welche chemische Zusammensetzung der Körper hat, die für die entsprechenden sekundären Teilchen verantwortlich ist. Zusätzlich ist der Modulationsparameter des Sonnenmagnetfeldes zu berücksichtigen. Die vielen Parameter können zur Berechnung der Produktionsrate P_j in einer Gleichung wie folgt zusammengefaßt werden:

$$P_j(R,d,M,B) = \sum_i N_i \sum_k \int_0^\infty \sigma_{jik}(E_k)\, J_k(E_k,R,d,M,B)\, \mathrm{d}E_k \qquad \text{(Gl. 2.11)}$$

J_k (E_k,R,d,M,B)	Flußdichte [$cm^{-2}\ s^{-1}\ MeV^{-1}$] der Teilchen k in der Tiefe d eines Körpers mit dem Radius R und der chemischen Zusammensetzung B, gegebenfalls durch Modulationsparameter M verändertes GCR Energiespektrum
σ_{jik} (E_k)	energieabhängiger Wirkungsquerschnitt [cm^2] des Targetelementes i für die Produktion des Nuklides j durch das einfallende Teilchen k
N_i	Anzahl der Targetatome des Elementes i pro g Material
P_j (R,d,M,B)	Produktionsrate P_j [Atome/s g] des kosmogenen Nuklids j in der Tiefe d eines Körpers mit dem Radius R und der chemischen Zusammensetzung B

Um tiefen- und größenabhängige Produktionsraten kosmogener Nuklide zu erhalten, werden geometrieabhängige Teilchenflußspektren mit den Dünntarget-Anregungsfunktionen* gefaltet. Da die Teilchenflußspektren in primäre Protonen, sekundäre Protonen und sekundäre Neutronen differenziert werden, sind sie rein experimentell nicht zugänglich. Erst in letzter Zeit [MIC91] ist es gelungen, das Problem der sekundären Teilchen bei hohen Energien, wie sie in GCR bestrahlten Meteoroiden vorkommen, zu lösen. Dafür werden Modelle zur Berechnung von inter- und intranuklearen Kaskaden (INC = Intra-Nukleare Cascade) eingesetzt, wie sie beispielsweise im HERMES-Programmsystem der KFA-Jülich [CLO88] implementiert sind.

Besondere Bedeutung kommt den Anregungsfunktionen zu, da ihre Qualität ausschlaggebend für die Genauigkeit der berechneten Produktionsraten ist. Diese Wirkungsquerschnitte

* Dünntarget-Anregungsfunktion: Wirkungsquerschnitt einer Kernreaktion in Abhängigkeit von der Energie

sind bislang aus theoretischen Annahmen nur unzureichend ableitbar, deshalb helfen hier vor allem Bestrahlungsexperimente weiter. Dabei werden geeignete Materialien (Targets), wenn möglich in Form dünner Folien, mit Teilchen definierter Energie beschossen. Durch Hintereinanderschichten vieler Folien, die sogenannte 'stacked foil technique', aus verschiedenen Materialien, sind - bedingt durch die Abbremsung der Teilchen in einem solchen Stack - in wenigen Experimenten viele Wirkungsquerschnitte erhältlich [BOD93]. Nach der Bestrahlung können relativ kurzlebige radioaktive Nuklide γ-spektroskopisch gemessen werden, während langlebige und stabile Nuklide chemisch (^{10}Be, ^{26}Al) oder physikalisch (^{21}Ne, ^{40}Ar) separiert werden müssen, bevor sie zur Messung mit der Beschleunigermassenspektrometrie oder der konventionellem Massenspektrometrie kommen.

Wenn aber Anregungsfunktionen wie beispielsweise - derzeit noch - für das Produktnuklid ^{14}C kaum oder gar nicht vorhanden sind, muß auf andere Wege zurückgegriffen werden. So gibt es Computerprogramme, die eine Berechnung energieabhängiger Wirkungsquerschnitte ermöglichen, dabei aber um Faktoren bis zu 10 von experimentellen Ergebnissen abweichende Resultate ergeben [BOD93, GLO94, LAN94, LEY94, LÜB93]. Außerdem beschreiben diese Codes immer nur einen Teil der gesamten Reaktion, entweder den niederenergetischen Bereich mit den direkten, Compoundkern- und Präequilibriumsreaktionen oder den hochenergetischen Bereich der Spallations- und Multifragmentationsreaktionen. Eine "a priori"-Vorhersage gestattet das Programm ALICE von Blann, das Compoundkern- und Präequilibriumreaktionen berücksichtigt und mehrfach aktualisiert wurde [BLA90]. Weitere Codes sind beispielsweise das Programm GNASH [YOU77, ART88], das direkte- und Compoundkernreaktionen berechnet, sowie der Code EXIFON [KAL92], der für neutroneninduzierte Kernreaktionen angewendet wird. Spallations- und Multifragmentationsreaktionen können durch Monte-Carlo-Methoden (HET, ISABEL, PACE) [LAN94] oder durch semiempirische Ansätze erfaßt werden. Semiempirische Modelle arbeiten in der Weise, daß durch einen Fit an bestehende experimentelle Daten ein funktionaler Zusammenhang geschaffen und der Verlauf der Anregungsfunktion parametrisiert wird. Das Modell von Rudstam [RUD66] und dessen Weiterentwicklung durch Silberberg und Tsao [SIL73] sind hier besonders zu nennen. Es sei aber bemerkt, daß die Ergebnisse nur so gut sein können, wie es die experimentellen Daten vorgeben. Extrapolationen auf unbekannte Reaktionen sind wegen möglicher falscher Voraussagen nicht zu empfehlen.

Neben den Dünntarget-Ansätzen können Simulationsexperimente direkt größen- und tiefenabhängige Produktionsraten liefern. Dazu wurde eine Steinkugel aus Gabbro [LÜB93] oder eine Metallkugel aus Eisen/Nickel [LEY94] mit Durchmessern von 50 oder 20 cm einem Protonenstrahl mit der Energie von 1600 MeV ausgesetzt. In der Kugel waren Elementfolien

eingelagert. Eine isotrope Bestrahlung gewährleistet eine 4π Bestrahlungssimulation. Wenn die einzelnen Folien oder Stücke der Kugel auf radioaktive Nuklide gemessen werden, erhält man die Anzahl der produzierten Kerne in entsprechender Tiefe pro Zeiteinheit. Dieses Responesintegral ist der Produktionsrate proportional. Wird die Masse des untersuchten Stücks berücksichtigt, gehen daraus direkt Produktionsraten hervor.

Mit der Berechnung oder simulations-experimentellen Ermittlung von Produktionsraten wird versucht, die Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie zu verstehen. Basis dieser Überlegungen sind aber die unverzichtbaren Analysen der Mondproben und Meteorite, in neuerer Zeit auch der IDP's.

3. Aufgabenstellung

Kosmogene Nuklide entstehen durch Wechselwirkung von Materie mit der solaren und galaktischen kosmischen Strahlung. Bisher sind kosmischer Staub, Meteorite (darunter Mond- und Marsgestein) und Mondproben die einzige zugängliche extraterrestrische Materie. An Mondproben und Meteoriten wird einerseits die zeitliche Variation des Energiespektrums der kosmischen Strahlung rekonstruiert und andererseits die Kollisions- und Bestrahlungsgeschichte dieser kleinen Körper im Sonnensystem erforscht.

Im Rahmen des DFG Gruppenvorhabens "Meteoritenpopulationen" sollte in der Zentraleinrichtung für Strahlenschutz (heute Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie) ein Labor zur chemischen Abtrennung der kosmogenen Nuklide ^{10}Be, ^{14}C und ^{26}Al aufgebaut werden. Im Falle der Nuklide ^{10}Be und ^{26}Al sollten die Proben nach chemischer Separation direkt in eine Form gebracht werden, in der sie mit Hilfe der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) analysiert werden konnten. Die ^{14}C Proben sollten bis zum CO_2 aufgearbeitet werden, um sie in einer Reduktionsanlage in der ETH Zürich zu einer AMS-Meßprobe weiterzuverarbeiten und dort zu messen.

Zur naßchemischen Abtrennung der Nuklide ^{10}Be und ^{26}Al konnte auf die Erfahrung der Abt. Nuklearchemie/Universität zu Köln zurückgegriffen werden. Es mußte jedoch untersucht werden, inwieweit die dort benutzten Trennungsgänge auf die Labormöglichkeiten in Hannover übertragbar sind. Gegebenenfalls waren die Trennungsgänge zu modifizieren und an gegebene Labormöglichkeiten anzupassen. Dabei sollten existierende Probleme der Abtrennung, wie beispielsweise niedrige chemische Ausbeuten oder Verunreinigungen der Meßproben und daraus resultierende niedrige AMS-Ströme nach Möglichkeit ergründet werden. Zur besseren Fehlerabschätzung der chemischen Aufarbeitung und des physikalisch analytischen Verfahrens sollte ein Interlaboratoriumsstandard erstellt werden. Häufige Analysen eines homogenisierten Materials, das sich für ^{10}Be und ^{26}Al Messungen eignet, führten zu realistischen Gesamtfehlerabschätzungen. Entgegen vielen Veröffentlichungen [NIS87], in denen der Chemiefehler vernachlässigt wird und nur ein statistischer Zählfehler angegeben ist, sollte gezeigt werden, daß es größere Schwankungsbreiten gibt, als die reine Zählstatistik.

Da die ^{14}C Analytik momentan nur in Übersee praktiziert wird, lagen für die Entwicklung einer entsprechenden Anlage lediglich Beschreibungen in der Literatur vor. Deshalb teilte sich die Arbeit in vier Bereiche auf:

1. Entwicklung und Erprobung von Aufheizverfahren
2. Untersuchung des ^{14}C-Analysenblanks
3. Qualitätssicherung der CO_2-Ausbeute durch Analyse von Standardreferenzmaterialien
4. Abtrennung des ^{14}C von den Meteoriten aus der Sahara

Es sollten bevorzugt Saharameteorite auf ^{14}C bearbeitet werden, da sie vermutlich niedrigere terrestrische Alter aufweisen als die antarktischen Meteorite, die Akkumulationsmechanismen unterliegen.

Die Aktivitäten der kosmogenen Nuklide ^{10}Be, ^{26}Al und ^{14}C sollten in Bezug auf Größe der Meteorite, Bestrahlungsgeschichte, Pairing und terrestrischen Altern diskutiert werden. Dabei kommt der Größen- und Tiefenabhängigkeit der erhaltenen Daten eine zentrale Bedeutung zu. Zusammen mit Modellrechnungen sollte es möglich sein, erstmals tiefen- und größenkorrigierte terrestrische Alter zu berechnen und mit konventionell berechneten terrestrischen Altern zu vergleichen. Sofern vorhanden sollten Literaturwerte von Edelgas-, Verwitterungs- und Thermolumineszenzdaten sowie anderen kosmogenen Radionukliddaten in die Diskussion mit einbezogen werden.

4. Nachweis von ^{10}Be und ^{26}Al

4.1 Nachweis von langlebigen Radionukliden mittels AMS

Zur Bestimmung von Radionuklidkonzentrationen wird im allgemeinen die Zählung von Zerfallsereignissen angewendet. Der radioaktive Zerfall ist eine mononukleare Reaktion, für die folgendes Zeitgesetz formuliert werden kann:

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \qquad \text{(Gl.4.1)}$$

N	Anzahl der Atome des betreffenden Radionuklids
dN/dt	Anzahl der in der Zeiteinheit zerfallenden Atome N
λ	Zerfallskonstante: $\ln 2 / t_{1/2}$ $[s^{-1}]$

Die Aktivität einer radioaktiven Probe ist mit der Zerfallsrate λ N identisch. Ihre Einheit ist die Anzahl der Kernumwandlungen pro Sekunde ($[s^{-1}]$ oder Becquerel [Bq]). Bei der Messung von Zerfallsereignissen gehorchen die Messwerte der Poisson-Statistik. Daraus folgt, daß der zählstatistische Fehler σ gleich der Wurzel aus dem Erwartungswert der Ereigniszahlen ist. Für nicht zu kleine Ereigniszahlen N einer Messung kann der Fehler σ in guter Näherung als $\sigma \approx \sqrt{N}$ angegeben werden.

Wie sieht nun eine Zählung des ^{26}Al-Zerfalls für einen typischen H-Chondriten aus? Für einen statistischen Fehler von 4 % werden ca. 1000 Zählereignisse gebraucht. Mit einer normalen ^{26}Al-Aktivität von 60 dpm/kg zerfällt in einem 1 kg großem Meteoriten pro Sekunde ein ^{26}Al-Kern. ^{26}Al ist ein β^+-Strahler mit einer Energie von 1.17 MeV und sendet mehrere γ Quanten aus. Eine normale γ-spektrometrische Messung mit empfindlichen Halbleiterdetektoren ist wegen der Untergrundstrahlung nur mit hoher Meteoritenmasse bei entsprechender Aktivität möglich, wobei der große Anteil der mittelgroßen bis kleinen Meteorite oder Fragmente derart nicht untersucht werden kann. Eine andere Möglichkeit besteht in der Ausnutzung der Vernichtungsstrahlung des β^+ Zerfalls, bei dem zwei γ Quanten in entgegengesetzter Richtung im 180° Winkel mit einer Energie von 0.51 MeV ausgesendet werden. Der Meteorit wird zwischen zwei NaI-Szintillationszähler gelegt, die vor der Umgebungsstrahlung mit Pb/Zn abgeschirmt sind. Die nachgeschalteten Einkanaldiskriminatoren selektieren die γ-Energie von 0.51 MeV und sind durch einen Koinzidenzzweig miteinander verbunden. Gelangen die Impulse in die Koinzidenzstufe, werden nur koinzidente Impulse

durchgelassen und im Zählteil registriert. Wird in einem zweiten Zweig mit einem Koinzidenzspektrometer ein γ-Spektrum aufgenommen, kann dann damit der Zerfall des ^{26}Al-Kerns von dem des ^{22}Na-Kerns unterschieden werden [HER69]. Bei einem Steinmeteoriten von 1 kg Masse und 60 dpm/kg Aktivität könnte rein theoretisch nach ca. 17 min eine Zählrate von 1000 Ereignissen erreicht werden. Praktisch ist es unmöglich alle Zerfälle zu registrieren. Zum einen ist die geometrische Anordnung der Detektoren und des Steins entscheidend für eine gute Ausbeute, zum anderen verhindern die Selbstabsorption des Steins und die Absorption durch andere Materialien von vornherein eine absolute Zählung. Der Wirkungsgrad eines Detektorsystems, d.h. die Efficiency, für diese γ–γ-Koinzidenzmessung beträgt ca. 6% [HER94a]. Dadurch verlängert sich die Meßzeit um den Faktor 17, d.h. eine Messung würde ca. 5 Std. benötigen. Ist die Aktivität geringer (was im voraus unbekannt ist), muß mit noch längerer Zeit gerechnet werden. Meteoriten mit >10 g Masse können mittels γ–γ–Spektroskopie gemessen werden. Dabei ist die Bestimmung des Detektoranspruchvermögens kompliziert und schwierig, da für jeden Meteoriten ein in Form und Größe ähnlicher "Dummy" mit gleichmäßig verteilter, bekannter ^{26}Al-Konzentration hergestellt werden muß. ^{10}Be-Halbleitermessungen sind wegen fehlender γ-Quanten und einer β^- Maximal-Energie von 0.556 MeV sowie der langen Halbwertszeit von $1.51 \cdot 10^6$ Jahren nicht möglich.

Eine andere Möglichkeit der Messung von kosmogenen Nukliden ist die massenspektrometrische Analyse (Zählung von Radionukliden vor dem Zerfall). Sie wird schon seit längerem für stabile Edelgase angewendet, war aber vor 1977 für kosmogene Radionuklide nicht gebräuchlich. Das hat zum einen den Grund, daß die Konzentration der stabilen Nuklide während der kosmischen Bestrahlung linear mit der Zeit anwächst, während die Radionuklide einen konstanten und damit wesentlich niedrigeren Wert (Produktionsrate dividiert durch Zerfallskonstante: $N_{Sättigung} = P/\lambda$) erreichen, d.h. je länger die Bestrahlungszeit dauert, um so größer werden die Konzentrationsunterschiede. Je nach Auflösung der Massenspektrometerkomponenten und den Radionuklidkonzentrationen können stabile Isobare, benachbarte Isotope oder mehrfachgeladene Ionen bzw. Molekülionen die Analyse stören.

Erst ab 1977 wurden die von Alvarez und Gornog 1939 [ALV39] durchgeführten Arbeiten mit der Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS = Accelerator Mass Spektrometrie) als eine neue Möglichkeit erkannt um mit hoher Effizienz auch kleinste Konzentrationen von langlebigen Radionukliden eindeutig nachzuweisen. Ab etwa 1980 wurden dann auch kosmogene Radionuklide routinemäßig gemessen. An der PSI/ETH-Tandem-AMS Anlage an der ETH Hönggerberg in Zürich können derartige Messungen durchgeführt werden. Diese Anlage kann zur Zeit die kosmogenen Isotope ^{10}Be, ^{14}C, ^{26}Al und ^{36}Cl messen. Entwicklungsarbeiten zum Nachweis von ^{41}Ca, ^{53}Mn, ^{59}Ni und ^{129}I

werden vorangetrieben. Die Messung von ^{10}Be, ^{14}C und ^{26}Al in Meteoritenproben in dieser Arbeit wurden ausschließlich dort durchgeführt. Die AMS-Messung wird in diesem Kapitel beispielhaft für ^{10}Be und ^{26}Al eingehender beschrieben. Die Anlage ist in Abb.4.1 am Beispiel der Messung von Be zu sehen.

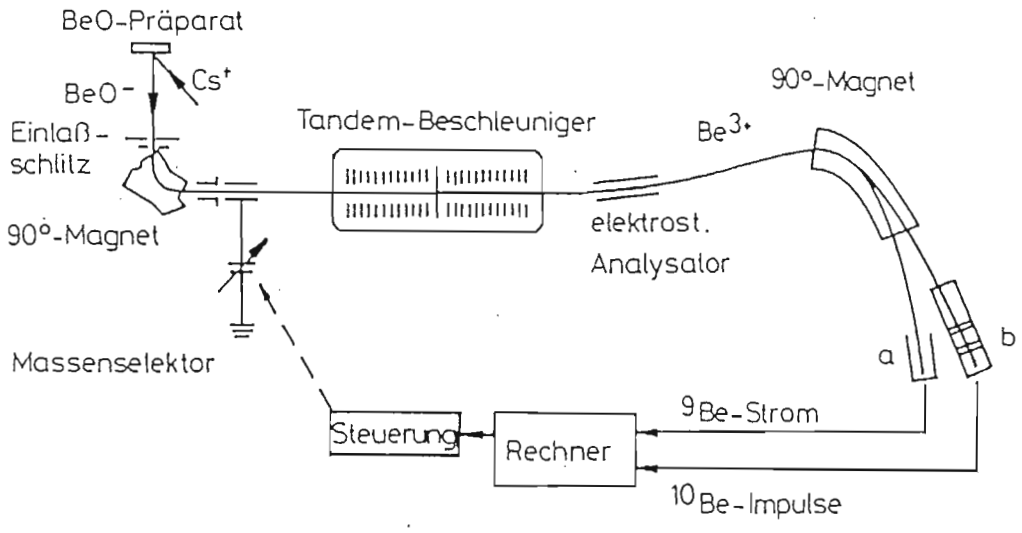


Abb.4.1: Prinzipieller Aufbau der PSI-ETH-Tandem AMS-Anlage für die Messung von ^{10}Be

Für die AMS Messung ist eine chemische Präparation der Meteoritenproben notwendig. Gemessen werden können Elemente oder Verbindungen, die stabile oder hinreichend langlebige negative Ionen bilden. Für ^{10}Be und ^{26}Al werden die Proben in Form von Oxiden vorbereitet. Diese werden in einem Gewichtsverhältnis von 1 : 4 mit Cu-Pulver verrieben und in speziell für die AMS-Anlage entwickelte Probenhalter eingepreßt. Es werden Probenmengen von etwa 1 mg Be bzw. Al benötigt. mit einer Masse von ca. 1mg. Eine Kassette mit 25 Proben, darunter mehreren Standardproben und Blanks, kommt in eine automatische Wechselvorrichtung der Sputter-Ionenquelle. Von dort werden die Proben einzeln in einen Cs^+-Ionenstrahl gebracht, wodurch in einem Zweistufenprozeß negative Ionen (Al^- und BeO^-) entstehen ("sputtering"). Durch eine Zugspannung von 50 kV werden sie extrahiert, beschleunigt und in einem 90°-Magneten nach gewünschter Masse selektiert. Der Teilchenstrom gelangt in den Tandem van-de-Graaff-Beschleuniger, in dem die Ionen bis zur Mitte der Anlage, dem sogenanntem Terminal, beschleunigt werden, das auf einem Potential von +4 bis +6 MV liegt. Dort erfolgt beim Durchgang durch eine dünne Folie oder ein Gastarget, die sogenannten "Stripper", die Umladung zu positiven Ionen. Das Potentialgefälle bis zum anderen Ende des Tandems, das auf Erdpotential liegt, beschleunigt die Ionen auf bis zu 50 MeV. Ein nachgeschalteter elektrostatischer Analysator filtert nur Ionen bestimmter

Ladung und Energie aus. Der folgende 90°-Magnet trennt mit einer Auflösung von $M/\Delta M = 300$ in ihre einzelnen Massen auf. Der Strom stabiler Nuklide wird mit Faraday-Cups gemessen. Die Ionen des Radionuklids werden in einem Gasionisationszähler nachgewiesen, der den spezifischen Energieverlust ΔE und die Totalenergie E_{total} mißt. Je nach Radionuklid werden unterschiedliche Detektoranordnungen benutzt. Um beim Messen des ^{10}Be das Isobar ^{10}B zu eliminieren, wird dem Ionisationsdetektor ein Gasabsorber vorgeschaltet. ^{10}B hat eine kleinere Reichweite als ^{10}Be, wird also am Eintritt in den eigentlichen Detektor gehindert. Der Aufwand für ^{26}Al-Messungen ist wesentlich geringer als für ^{10}Be. Das Isobar ^{26}Mg bildet nämlich kein negatives Ion.

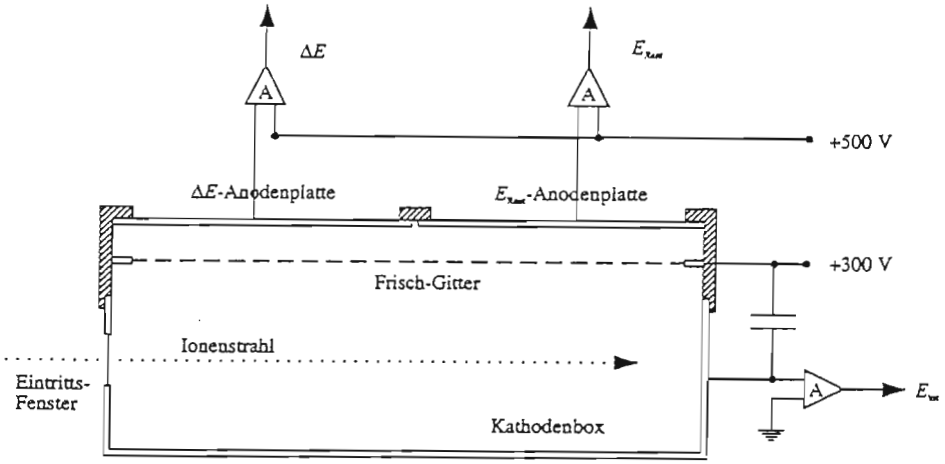


Abb 4.2: Gasgefüllter ΔE/E Detektor der Züricher ETH-PSI AMS Anlage [KUB94]

Am Beispiel von $^{26}Al/Al$-Messungen soll der Detektor näher erklärt werden. Es handelt sich um einen gasgefüllten Detektor mit einer Kathode und drei Anodenplatten (s. Abb. 4.2). Die Anodenplatten werden mit ΔE_1, ΔE_2 und ΔE_3, die Kathode mit E_{Total} bezeichnet. Durch ein Fenster treten die Ionen in den Detektor, in dessen Gas sie abgebremst und schließlich gestoppt werden. Dabei geben sie ihre Energie entlang des durchlaufenen Weges entsprechend der Bethe-Bloch Gleichung (Gl. 4.2) überwiegend durch Ionisationsprozesse an das Zählgas ab. Die dabei erzeugten Elektronen werden auf den Anodenplatten gesammelt. Nach Durchgang des e^- durch das Frischgitter erzeugen die verbleibenden Ionen auf dem Kathodenkäfig Bildladungen, die als Gesamtenergiesignal abgenommen werden können. Nach der Rekombination der Gasionen können neue Teilchen nachgewiesen werden. Sowohl die Elektronen als auch die positiven Gasionen tragen daher die Information über die Energieabgabe des einfallenden Teilchens entlang ihres Weges. Da das Signal der positiven Ionen auf einer einzigen Kathode gemessen wird, erhält man über den Kathodenstrom die Information über die totale Energie der einfallenden Teilchen, E_{Total}. Die drei Anodenplatten sammeln Elektronen, die auf verschiedenen Stücken des Weges der Teilchen im Zählgas

erzeugt werden und erlauben damit die Messung der Energieverluste dE/ds des Teilchens entlang seines Weges s.

Der Energieverlust dE/ds eines geladenen Teilchens mit der Kernladungszahl Z_P in einem Absorber mit der Massenzahl A_T und der Kernladungszahl Z_T wird durch die Bethe-Bloch Gleichung beschrieben:

$$-\frac{dE}{ds} = \frac{4\pi Z_P^2 e^4}{m_e c^2 \beta^2} Av \frac{Z_T}{A_T}\left[\ln\left(\frac{2 m_e c^2}{I} - \frac{\beta^2}{\left(1-\beta^2\right)}\right) - \beta^2 - \frac{f(E,Z_T)}{Z_T}\right] \qquad \text{(Gl.4.2)}$$

$\frac{dE}{ds}$	Bremsvermögen des Absorbers [MeV/(g/cm^2)]
E	Energie des geladenen Projektils [MeV]
Z_P	Kernladungszahl des Projektils
e	Elementarladung: $1.602 \cdot 10^{-19}$ C
m_e	Ruhemasse des Elektrons: 511 keV/c^2
c	Vakuumlichtgeschwindigkeit: $3 \cdot 10^8$ m/s
β	Projektilgeschwindigkeit / c
Av	Avogadro'sche Konstante: $6.022 \cdot 10^{23}$ mol^{-1}
Z_T	Kernladungszahl des Absorbers
A_T	Atomgewicht des Absorbers [g/mol]
I	mittleres Ionisationspotential des Absorbers
f(E,Z)	Schalenkorrekturen
R	Reichweite des Projektils im Absorbers [g/cm^2]

Durch Messung des Energieverlustes eines Ions, der von seiner Kernladungszahl abhängt, und durch Messung der totalen Energie läßt sich somit eine Unterscheidung verschiedener Ionen vornehmen. In dem benutzten Detektor geschieht dies durch rechnerunterstützte Bearbeitung der Signale E_{Total} und ΔE_i (i = 1, 2, 3). Nur die Ereignisse, die in einem bestimmten Energiebereich von ΔE_1 , dem ersten 'software gate', gezählt werden, werden in ΔE_2 weiterverarbeitet usw. . Unter der 3. Anodenplatte werden die Ionen gestoppt, d.h. ΔE_3 gibt die Restenergie der Ionen wieder. E_{Total}-Spektren werden nur solche Ereignisse gewertet, die die Bedingungen aller ΔE_i, i = 1, 2, 3 Softwaregates erfüllen. Mit Hilfe von Standardproben hoher Radionuklidkonzentrationen werden die 'software gates' so gesetzt, daß nur das gewünschte Radionuklid gemessen wird. In einem dreidimensionalem Spektrum, in dem ($\Delta E_1 + \Delta E_2$) gegen die totale Energie, E_{Total}, aufgetragen wird, liegen die gesuchten ^{26}Al-Ereignisse in einem wohldefinierten Bereich der ($\Delta E_1 + \Delta E_2$), E_{Total} - Ebene. Nur dieser

Bereich, für den ein letztes "gate" gesetzt wird, wird zur Berechnung des $^{26}Al/Al$ Verhältnis herangezogen. In Abb. 4.3 ist dies im Spektrum D_1 dargestellt.

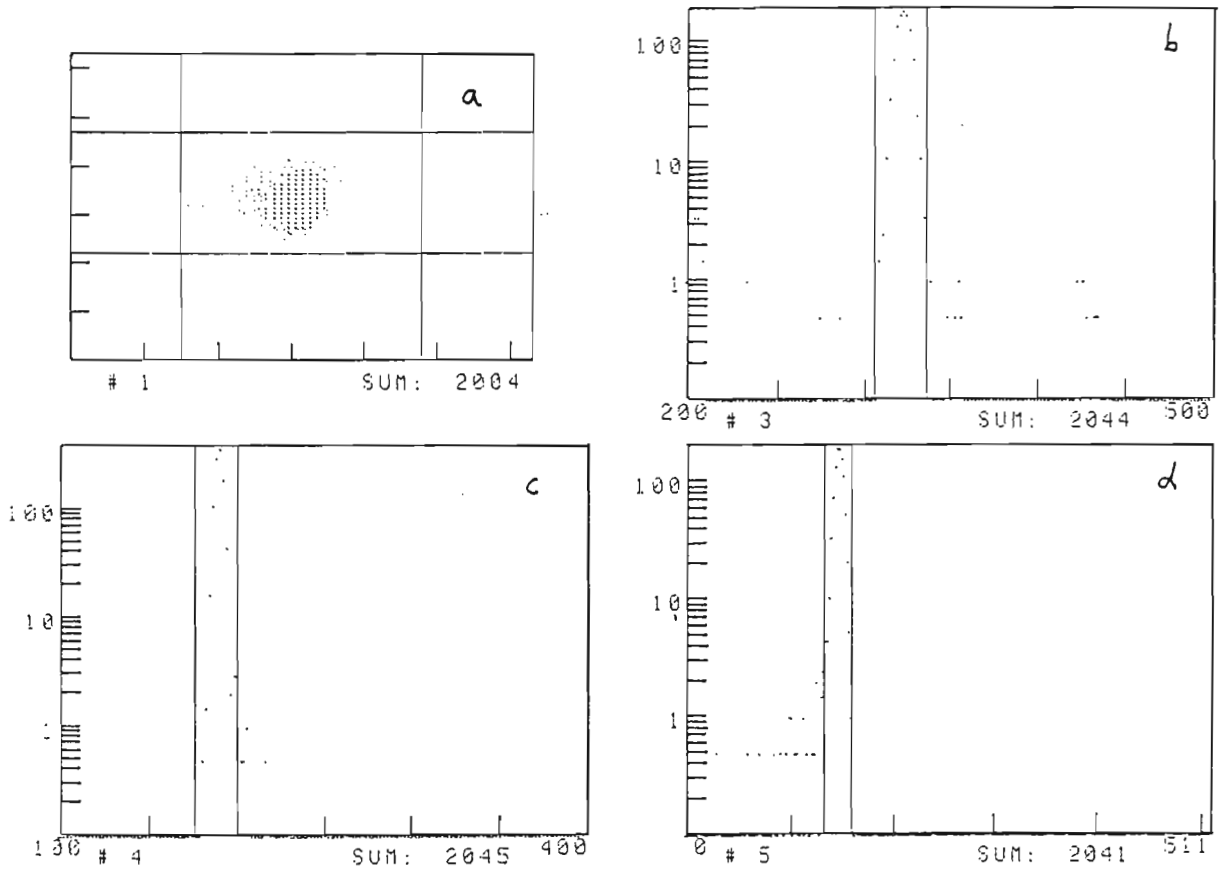


Abb. 4.3: a) D1 Spektrum: E_{Total}, $\Delta E_1 + \Delta E_2$, Ereignisse als Pünktchenplot ; b) ΔE_1 Spektrum: ΔE_1, Ereignisse ; c) ΔE_2 Spektrum: ΔE_2, Ereignisse ; d) ΔE_3 Spektrum: ΔE_3, Ereignisse. Messung des Al11 Standards mit $^{26}Al/Al = 10{,}2 \cdot 10^{-12}$. Es werden nur die Ionen gezählt, die in die gekennzeichneten Softwaregates fallen. Die Messung ist vom 23. Nov. 92.

Zu jeder Anodenplatte gibt es ein Spektrum, in dem die Ereignisse gegen das jeweilige Energieintervall aufgetragen sind (s. Abb. 4.3). Im ΔE_1, ΔE_2 und ΔE_3 sind die entsprechenden Softwaregates zu sehen. Das $^{26}Al/Al$-Verhältnis berechnet sich aus den ^{26}Al Ereignissen im Spektrum D_1 und dem Wert für die ^{27}Al Strommessung im Faradaycup.

Für die Berechnung der ^{26}Al-Aktivität geht das gemessene $^{26}Al/^{27}Al$-Verhältnis, die Einwaage, der Al-Gehalt und die Zerfallskonstante ein:

$$A\,(^{26}Al) = \frac{N_A}{M_{AL}} \cdot \lambda \cdot \frac{26}{27} \cdot \frac{27}{m_{Probe}} \qquad \text{(Gl.4.3)}$$

$A(^{26}Al)$	Aktivität in [dpm/kg]
N_A	Avogadrosche Konstante $6.023 \cdot 10^{23}$ [mol^{-1}]
M_{Al}	Molmasse des Al 26.98 [g/mol]
λ	Zerfallskonstante mit $t_{1/2} = 713000a$: $1.84186 \cdot 10^{-12}$ [min^{-1}]
26/27	$^{26}Al/^{27}Al$ Verhältnis der AMS-Analyse
$27/m_{Probe}$	Gesamt-Al/Meteoriteneinwaage Verhältnis

Für die Verhältnisse $^{10}Be/^{9}Be$ und $^{26}Al/^{27}Al$ existieren individuelle Nachweisgrenzen. Je geringer der aus der Ionenquelle extrahierbare Strom eines Isotopes ist, umso schlechter ist die Zählstatistik. Bei zu geringen Strömen ist eine Messung in vertretbarer Meßzeit nicht möglich. Das ist bisweilen bei der Messung des ^{26}Al der Fall, ein Problem, dem analytisch in dieser Arbeit nachgegangen werden mußte. Zum anderen kann die Qualität der zu messenden Probe einen direkten Einfluß auf den Strom und damit die Nachweisempfindlichkeit haben. Insbesondere eine hohe ^{10}B-Kontamination in einer ^{10}Be Probe erzeugt Untergrundprobleme, die die Nachweisgrenze erhöhen. Für ein übliches $^{10}Be/^{9}Be$ Verhältnis meteoritischer Proben von $>10^{-12}$ stellen Verunreinigungen von bis zu 100 ppm ^{10}B bezogen auf 2 mg Be keine ernsthaften Probleme dar [KUB94]. In Tab. 4.1 sind die für den Nachweis benutzten negativen Ionen, die Bereiche der erzielbaren negativen Ionenströme, Nachweisgrenzen sowie typische systematische und statistische Fehler aufgelistet. Der Vollständigkeit halber sind auch die entsprechenden Daten für die Messung von ^{14}C in Tab. 4.1 aufgeführt:

Tab.4.1: Leistungen der PSI-ETH AMS Anlage in Zürich

Element	Neg.Ion	Pos.Ion	Strom [µA]	Nachweisgrenze**	System. Fehler [%]	Stat. Fehler* [%]
Be	BeO^-	Be^{3+}	0.2 - 1	10^{-14}	3	2
C	C^-	C^{4+}	10 - 40	$5 \cdot 10^{-16}$	0.1-0.2	0.35
Al	Al^-	Al^{7+}	0.04 - 0.1	$1 \cdot 10^{-13}$	3	8

* Statistischer Fehler bei einem Verhältnis von 10^{-12}, 1 h Meßzeit und mittlerem Strom

** Untergrund bzw. Zählstatistik (25% statist. Fehler)

4.2 Nachweis von ^{10}Be und ^{26}Al in Steinmeteoriten

4.2.1 Separation von ^{10}Be und ^{26}Al in Steinmeteoriten

Ausgehend von existierenden Trennungsgängen für kosmogenes ^{10}Be von Brown et al. [BRO81] und Moniot et al. [MON82] entwickelten Sarafin [SAR85] und später Vogt [VOG88] sowie Bremer [BRE92] der Universität Köln (Abt. Nuklearchemie am Institut Biochemie) einen kombinierten Trennungsgang für die kosmogenen Nuklide ^{10}Be, ^{26}Al und ^{53}Mn für Meteoriteneinwaagen von ca. 100 mg.

In Anlehnung an diese existierenden Separationsschemata wurde das im folgenden näher beschriebene Verfahren entwickelt, das die in Hannover gegebenen Laborbedingungen berücksichtigt. Dabei wurde anfänglich nach einem Trennungsgang vorgegangen, der im folgenden als "alter Trennungsgang" bezeichnet wird. Es zeigten sich eine Reihe von Schwierigkeiten, die die Entwicklung eines neuen, modifizierten Trennungsgangs notwendig machte.

Der alte wie auch der neue Trennungsgang wurden detailliert untersucht. Mit dem neuen Trennungsgang konnten dann umfangreiche Meteoritenanalysen durchgeführt werden.

Abb. 4.4 zeigt den hier verwendeten alten Trennungsgang in einem Fließschema. 100 mg Meteoritenmaterial (bei starker Differenzierung auch mehr) werden bis zu einer Korngröße kleiner 400 µm gemörsert und in einem Teflonbecher einer Parr-Bombe mit je 2 mg Be- und Al-Träger versetzt (Fa. Merck Be- bzw. Al-Standardlösung, gebrauchsfertig, 1.000 ± 0.002 g/l). Der Suspension werden 7 ml 40%ige HF und 2 ml 65%ige HNO_3-Lösung hinzugegeben, der Becher in der Parr-Bombe verschlossen und 6 Stunden bei 150° C aufgeschlossen. Zur Vertreibung des Silizumdioxid wird die Probe danach mehrmals mit HF abgeraucht. Nach Lösen des Rückstands in konz. HCl wird die Lösung mit H_20 auf 100 ml Volumen eingestellt. Ihr werden ca. 20 ml Lösung zur Al-Gesamtkonzentrationsbestimmung (Aliquot) entnommen. Die AMS-Messung liefert $^{26}Al/^{27}Al$-Verhältnisse (s. Kap. 4.1). Zur Berechnung der ^{26}Al-Aktivität, muß das Verhältnis mit dem ^{27}Al Gehalt multipliziert werden. Näherungsweise ist der ^{27}Al-Gehalt der Gesamtaluminiumgehalt der Probe ($^{26}Al/^{27}Al \approx 10^{-12}$). Dieser Gesamtaluminiumgehalt wird im Aliquot mit Hilfe der ICP-AES bestimmt (Beschreibung des ICP-AES im Anhang). Bis zu diesem Schritt der Analyse muß folgendes beachtet werden:

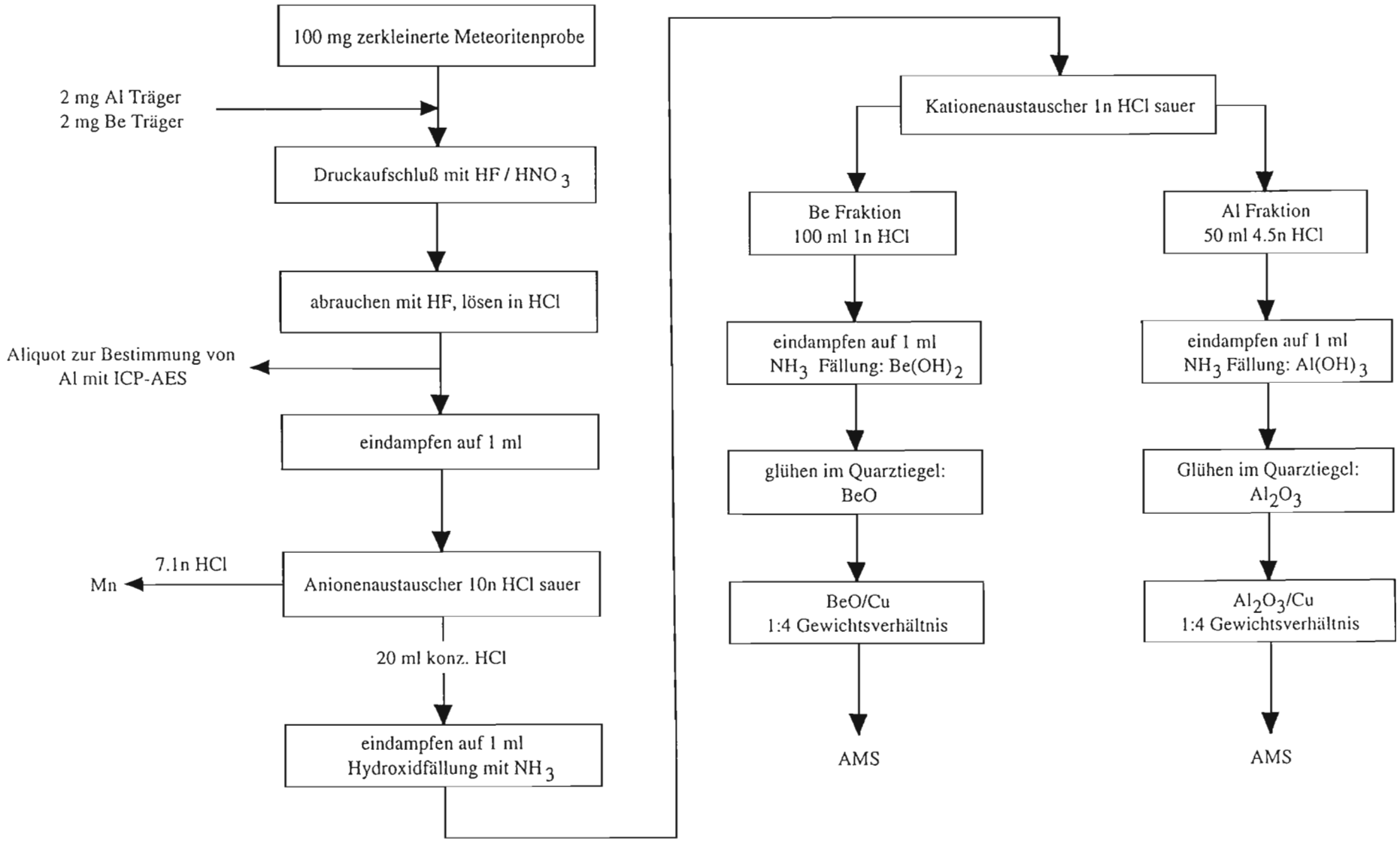


Abb. 4.4: Fließschema des alten Trennungsganges zur AMS-Analyse von ^{10}Be und ^{26}Al.

1. Ein Verlust des Aluminums durch Verspritzen, Verdampfen, Ausfällen oder -flocken, Wandadsorptionen oder Rückständen im Teflonbecher ist auszuschließen.

2. Nur die "isotopische Äquilibrierung" des Trägers mit der Probe, d.h. die zu mindestens in einem wenn auch kleinen Zeitraum existierende gemeinsame Lösung aller Bestandteile zur Homogenisierung, sichert das Ergebnis vor systematischen Fehlern.

Die Al-Aliquotkonzentrationen liegen bei 3 - 5 mg / 100 ml. Die Nachweisgrenze des ICP-AES für Al wird mit 9 ng/ml angegeben. Damit liegen die Al-Gehalte der Aliquots um den Faktor 5 über der Nachweisgrenze. Es wird über drei Messungen gemittelt. Die relative Spannweite dieser Messungen beträgt max. 1.5 %.

Die übrigen 80 ml Lösung werden eingedampft und in 3 ml 10 n HCl aufgelöst, um sie auf eine Anionenaustauschersäule zu übertragen. Die Säule hat die Ausmaße von 10 x 9 x 200 mm ($ø_{außen}$ x $ø_{innen}$ x Länge) und ist aus PE/PTFE Werkstoff, um keine Kontaminationen mit z.B. in Bor-Silikat-Glas enthaltendem Bor zu riskieren. Sie wird mit dem Austauscher Dowex 1 x 8 (Cl^- -Form, 100-200 mesh) gefüllt (10 g) und mit 50 ml 10 n HCl konditioniert (60 min). Be und Al sowie alle anderen Elemente, die keine negativen Chlorokomplexe bilden, werden mit den ersten 20 ml 10 n HCl eluiert. Mit weiteren 150 ml 7.1 n HCl kann das Mn separiert werden, bevor mit neutralem Wasser das Eisen eluiert werden kann (wenn der Bedarf besteht). Die Säule ermöglicht vor allem eine Abtrennung des Hauptbestandteiles Eisen. Mangan Proben können zur Zeit nicht analysiert werden. Bisher wurde die Neutronen-aktivierungsanalyse angewendet (^{53}Mn-Bestimmung mittels AMS ist in Entwicklung).

Die Al und Be enthaltende erste Fraktion muß vor der NH_3-Fällung eingeengt werden. Die Fällung der Hydroxide bewirkt eine Abtrennung des Mg, Ca und Ni. Nach Waschen mit H_20 und Zentrifugieren werden die Hydroxide in 1 n HCl gelöst und auf eine Kationensäule übertragen. Die Säule gleicht der oben beschriebenen Anionensäule und ist gefüllt mit 8 g des Austauschers Dowex 50W x 8 (H^+ -Form, 100-200 mesh). Nach 50 ml 1 n HCl als Vorlauf (20 min), wird mit 100 ml 1 n HCl das Beryllium eluiert. Die Anhebung der Säurestärke auf 4.5 n HCl löst mit 50 ml alles Aluminium von der Säule. Nach dem Einengen der Lösungen auf wenige ml Volumen werden die Hydroxide mit 25% NH_3-Lösung (PE-Flasche) gefällt und zentrifugiert. Der Niederschlag wird insgesamt dreimal mit Wasser aufgeschlämmt und zentrifugiert. Im Muffelofen in Quarztiegeln werden die Hydroxide bei 80° C getrocknet und über Nacht bei ca. 900° C zu Oxiden geglüht. Eine innige Verreibung der Oxide mit dem

vierfachen Gewicht Cu-Pulver im Achatmörser bereitet die Probe auf die Pressung in den Probenhalter und die Messung in der AMS vor.

Der Glührückstand wird gewogen, um die Ausbeute kontrollieren zu können und die nötige Cu-Pulvermenge zu ermitteln. Dabei ergaben sich immer wieder signifikante Unstimmigkeiten. So waren die chemischen Ausbeuten für Beryllium immer sehr klein (um 20%), während es für Aluminium meist mehr als 100% waren (z.B. 120%). Es fiel auf, daß der im Aliquot ermittelte Aluminiumgehalt niedriger war, als die Summe aus intrinsischem Al-Gehalt von 1.01% [MAS79] und dem zugegebenen Träger erwarten ließ. Es lag der Verdacht nahe, daß bis zur Abnahme des Aliquot Aluminium verloren ging, zum Schluß aber Verunreinigungen eine Ausbeute über 100% simulierten. Zusätzlich sorgten häufig sehr geringe Al-Ströme in der AMS für große Fehlerbreiten oder gar komplette Ausfälle bei der Messung. Den Ursachen dieser Probleme mußte nachgegangen werden. Dazu wurde der Trennungsgang systematisch untersucht, um über eine Konzentrationskontrolle des Al und Be bzw. deren Reinheit und Ausbeute Rückschlüsse auf diese Probleme ziehen zu können.

4.2.2 Analyse von Trennungsgängen

Die systematische Analyse des Trennungsgangs sollte eine Kontrolle der Konzentrationen der kationischen Haupt- und Nebenelementbestandteile eines Meteoriten nach jedem chemischen Schritt des Trennungsgangs ermöglichen. Die Analysenschritte sind im Trennungsgang in Abb. 4.5 mit arabischen Ziffern gekennzeichnet. Dazu wurde ein mit Meteoriten in der Elementzusammensetzung und -konzentration vergleichbarer Standard erstellt. Analysiert wurde in der Reihenfolge der Ziffern in Abb. 4.5 unter Verwendung eines ICP-AES (ICP-AES Beschreibung siehe Anhang). Dadurch ergaben sich mindestens 10 Analysen. Für jede Analyse wurde ein Standard verbraucht. So ergeben sich viele Analysenansätze mit gleichen Voraussetzungen und realen Bedingungen. Die Entnahme vieler Aliquots an verschiedenen Stellen eines einzelnen Trennungsgangdurchlaufes hätte aufgrund immer geringer werdender Konzentrationen die tatsächlichen Verhältnisse verfälscht wiedergegeben.

Der synthetische Standard wurde aus gebrauchsfertigen Elementstandardlösungen der Fa. Merck zusammengestellt (1.000 ± 0.002 g/l). Es handelte sich beim synthetischen Standard im Unterschied zum festen Meteoriten um eine wässrige Lösung, die somit auch keine typisch meteoritisch anionischen und silikatischen Anteile enthielt. Folgende Elemente mit

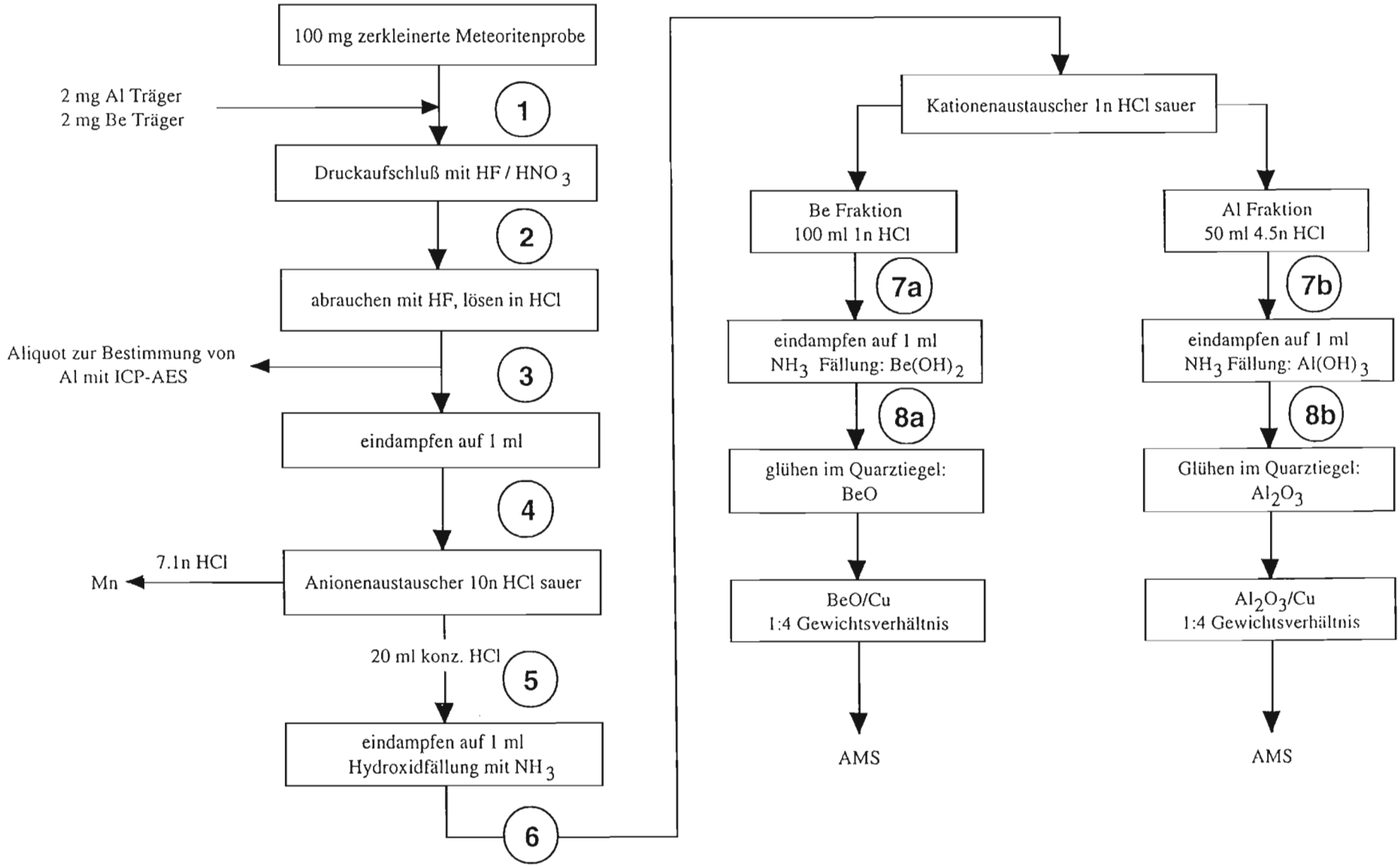


Abb. 4.5: Fließschema des alten Trennungsganges zur AMS-Analyse von ^{10}Be und ^{26}Al

der Konzentration eines fiktiven Durchschnittschondriten bezogen auf 100 mg Einwaage wurden berücksichtigt (Tab. 4.2):

Tab. 4.2: Zusammensetzung eines fiktiven Chondriten [mg/100 mg].

Al	Be	Fe	Mg	Ca	Na	Ni	Cr	Mn	Ti	Co
2.5	---	25.0	32.0	2.0	1.5	1.5	0.5	0.25	0.1	0.1

Es ist zu beachten, daß diese Standardlösung wie ein Meteorit behandelt wurde, d.h. es wurden der Lösung am Anfang der Analyse neben den Säuren auch die Träger (je 2 mg Al und Be) hinzugefügt. Es ergaben sich somit als Einwaage 4.5 mg Al und 2.0 mg Be. Die Einwaage jedes Elementes einschließlich des Trägers wurde als 100% gewertet. Alle weiteren Analysen nach entsprechenden Schritten des Trennungsganges beziehen sich auf diese 100%. Der Nachteil der Methode ist, daß eine vollständige Auflösung des Meteoriten zu irgendeinem Zeitpunkt bis zum dritten Analysenschritt, d.h. eine vollständige Homogenisierung, nicht überprüft werden kann.

In den Abb. 4.6 - 4.9 sind die Analysenschritte gegen die relativen Konzentrationen der wichtigsten Elemente Al, Be, Fe und Mg aufgetragen.

Wie schon anfangs erwähnt, ist es in der Isotopenanalytik von ^{26}Al und ^{10}Be mit Hilfe der AMS im Prinzip nicht notwendig, quantitativ zu arbeiten, da nur Verhältnisse gemessen werden. Deshalb ist es aber zur Bestimmung absoluter ^{26}Al- und ^{10}Be-Gehalte notwendig, daß die Al- und Be-Elementkonzentrationen der Proben genau bekannt sind. Das intrinsische Be des Meteoriten im Vergleich zur Trägermasse kann bei der Berechnung der ^{10}Be-Aktivität vernachlässigt werden. Die Elementkonzentration des Be ergibt sich aus der Trägerzugabe. Da aber die relative Konzentration von Al im Meteoriten im Prozentbereich liegt, ist es unumgänglich, zumindest bis zum 3. Schritt (Abb. 4.6), das ist die Abnahme der Aliquots zur Al Bestimmung, quantitativ zu arbeiten. Die Analysen des Al aber zeigen im 3. Schritt nur eine Ausbeute von 72%. Diese systematische Unterschätzung des Al-Gehaltes verfälscht direkt die ^{26}Al-Aktivität, denn die Konzentration des ^{26}Al errechnet sich durch das ^{26}Al/^{27}Al-Verhältnis multipliziert mit dem Al-Gehalt (entspricht der ^{27}Al-Konzentration). Auffällig ist der geringe Al-Gehalt der Lösung im 2. Schritt. Hier ließen sich im Becherrückstand 66% Al analysieren. Die weiteren Schritte, wie die Übertragung der Lösung auf die

Anionensäule sowie dessen Al-Eluat und das folgende Separieren über die Kationensäule lassen die Al-Konzentration auf 8.8% gegenüber der Ursprungslösung schrumpfen.

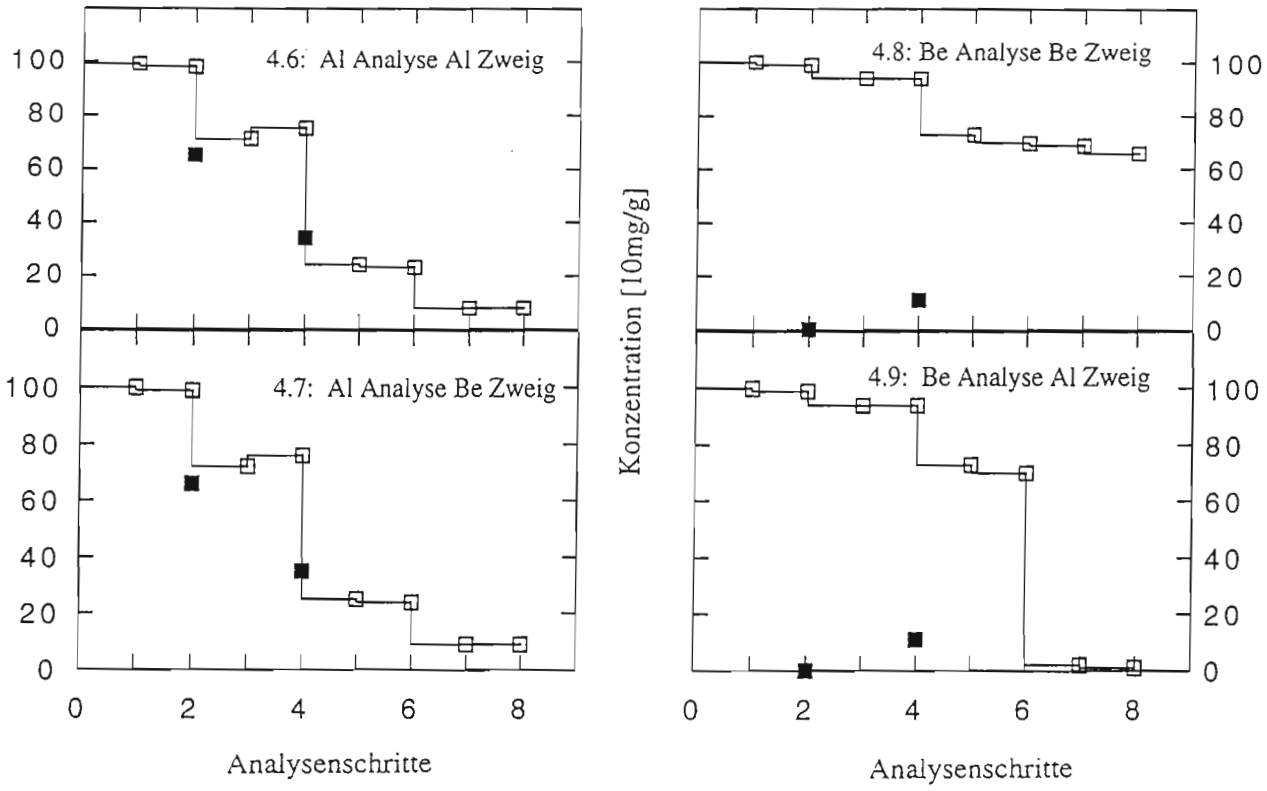


Abb. 4.6 - 4.9: Systematische Analyse des Trennungsgangs mit Hilfe der ICP-AES. ☐ Analyse des Al bzw. Be ; ■ Analyse des Becherrückstandes in Schritt 2 direkt nach dem Druckaufschluß und in Schritt 4 nach dem Eindampfen der Lösung auf 1 ml. Während nach Schritt 2 ein Teil des Al durch Abrauchen mit HF und Lösen in HCl wieder in Lösung ging (zu sehen an der scheinbaren Konzentrationssteigerung des Al von Schritt 2 zu Schritt 3), ging nach Schritt 4 der Becherrückstand verloren. Die Summe der Konzentraionen aus Becherrückstand und Lösung ergibt die Konzentration aus Schritt 1 bzw. Schritt 3. Die Ausbeute des Be beträgt 66% (s. Be Analyse des Be Zweigs), die Trennung vom Al ist gut (s. Be Analyse des Al Zweigs). Al ist in beiden Zweigen mit gleicher Konzentration zu finden, die Ausbeute beträgt keine 10%. Zahlenwerte in Tabellenform s. Anhang

Wenn der Gang der Be-Analysen verfolgt wird, erkennt man in den Schritten 4 (Überführung der Lösung auf die Anionensäule: 83%) und 5 (Be-Fraktion der Anionensäule: 73%) leichte Ausbeuteeinbußen, sodaß am Ende für die AMS noch 66% Be zur Verfügung steht. An welchen Stellen des Trennungsgangs die Be-Konzentration drastisch verringert wird, eines der anfangs erwähnten Probleme dieses Trennungsgangs, kann nur vermutet werden. Eine Möglichkeit wären stark schwankende Elutionsbedingungen, die das Be schon in der

verworfenen Vorfraktion ansammeln ließen oder ein Einschleppen größerer Konzentrationen in die Al-Fraktion bewirken.

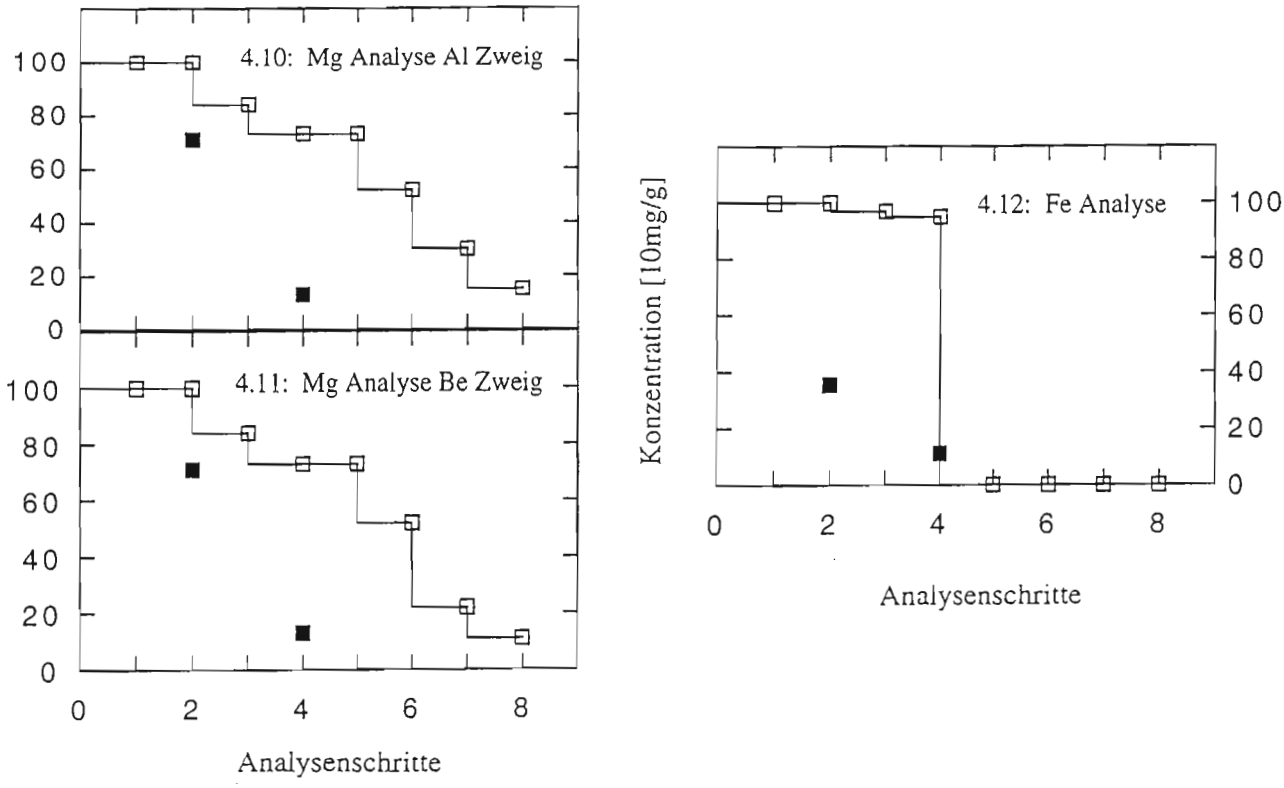


Abb. 4.10 - 4.12: Systematische Analyse des Trennungsgangs mit Hilfe der ICP-AES. ☐ Analyse des Fe bzw. Mg ; ■ Analye des Becherrückstandes. Die vollständige Abtrennung vom Fe durch den Anionenaustauscher ist an der Analyse des 5.Schrittes zu sehen, bei der die Konzentration gegen Null geht. Die Abtrennung des Mg ist nicht so eindeutig. Es bleibt ein Rest von 11 bzw. 15% (s. Tabelle im Anhang).

Besondere Aufmerksamkeit sollte den Elementen Fe und Mg zukommen. Ihr Chemismus kann aufgrund ihrer hohen Konzentration die Separierung und Analyse von Be und Al stark beeinträchtigen. Deshalb ist es wichtig, Elutionsprofile immer mit einer realen Element- und Massenbelegung aufzunehmen. Aber auch sonstige Schritte können stark beeinflußt werden. In welchem Umfang Trennungen erfolgreich waren, zeigt die Analyse (s. Abb. 4.10 - 4.12). Auffällig ist, daß mit dem Becherrückstand in Schritt 2 viel Mg (71%) und Fe (35.5%)

zurückbleibt, das allerdings durch Abdampfen und Auflösen zum größten Teil wieder in Lösung geht (Schritt 3: Fe 97%, Mg 84%). Während mit der Anionensäule das gesamte Fe abgetrennt wird, verringert sich der Gehalt des Mg mit der Hydroxidfällung (Schritt 6) drastisch um 6.6 mg auf 52%. Ab der Kationensäule findet eine Aufteilung der Mg-Konzentration auf beide Zweige des Trennungsganges statt. Trotzdem liegt durch die hohe Anfangskonzentration in beiden AMS Proben (Schritt 8) Mg als Hauptbestandteil vor. Die Be-Probe beinhaltet dreimal soviel Mg wie Be und die Al-Probe sogar 12-mal soviel Mg wie Al.

Die anderen Elemente sind hier im einzelnen nicht aufgeführt, da sie am Ende kaum nachzuweisen sind. Erwähnenswert ist die Konzentration des Cr in der Al-Fraktion (Schritt 8b), das mit ca. 40% oder absolut 0.2 mg vorlag, was in diesem Fall immerhin die Hälfte der Al-Masse ist. Die Analysenwerte sind im Anhang tabelliert.

Die Analyse hat gezeigt, daß Be mit dem alten Trennungsgang zwar mit einer Ausbeute von 66% separiert wird, trotzdem aber eine hohe Mg-Verunreinigung aufweist. Das Al verteilt sich auf die Be- wie auch auf die Al-Probe. Die Ausbeute ist sehr gering, die Verunreinigung durch Mg im Verhältnis zur Al-Masse viel zu hoch. Zusätzlich besteht eine Al-Probe noch zu ca.4% aus Cr.

4.2.3 Ursachen der Probleme

Die Anfangs erwähnten Probleme konnten zum Teil erklärt werden. Die hohe chemische Ausbeute von teilweise >100% der Aluminiumproben ließ auf Verunreinigungen schließen. Das hat sich bestätigt. Die Al-Probe für die AMS Messung besteht vorwiegend aus Magnesium mit Anteilen von Aluminium und Chrom. Die Ursachen der geringen Be-Ausbeute konnten nicht erkannt werden, hängt aber wahrscheinlich mit wechselnden Mg-Konzentrationen der Be-Proben zusammen.

Die Ursachen konnten unter Berücksichtigung des Zusammenwirkens der verschiedenen Elemente hergeleitet werden. Der HF/HNO_3-Aufschluß überführt die Kationen in meist sehr stabile Fluoride oder Fluoridkomplexe. Es bilden sich einerseits klare, durchscheinende Kristalle von AlF_3 und MgF_2. Sie wurden anfänglich als silicatische Verbindungen fehlinterpretiert. Al- oder Mg-Fluorverbindungen können mit Alkalimetallen lösliche Komplexe bilden z.B. M_3AlF_6. Diese Komplexe bildeten sich beim Abrauchen mit HF und Auflösen in HCl in dem Maße, wie Alkalimetalle vorhanden sind oder eingeschleppt werden. Wenn nach dem Abrauchen mit HF der Rückstand mit HCl aufgenommen wird, werden die

gebildeten Fluorokomplexe nicht zerstört, sodaß auf der Anionensäule separat ermittelte Elutionsprofile der Chlorokomplexe einzelner Elemente wie Al und Be nur noch bedingt gelten.

Das Durchschleppen des Mg in beiden Fraktionen von Be und Al ist ein Hinweis auf die ungenügende Trennung durch die zweimaligen Hydroxidfällungen. Trotzdem sollte nicht übersehen werden, daß der Mg-Anteil auf 11% bzw. 15% gesunken ist, was allerdings durch die hohe Anfangskonzentration immer noch zu hoch ist. In Bezug auf den amphoteren Charakter des Al-Hydroxids ist auch bei einer Fällung mit NH_3 darauf zu achten, daß der pH-Wert der Lösung nicht über 7 steigt.

Diese Analysen haben gezeigt, daß der alte Trennungsgang den Anforderungen nicht gerecht wurde.

4.2.4 Modifikation des Trennungsganges

Das Hauptproblem des alten Trennungsgangs war die Bildung der Fluoridverbindungen durch den HF/HNO_3-Aufschluß. Silicatisches Gestein wird in der Regel mit $HF/HNO_3/HClO_4$ oder $HF/HNO_3/H_2SO_4$ in Lösung gebracht. Dabei wirkt $HClO_4$ als Oxidationsmittel oder H_2SO_4 als hygroskopisches Reagenz, das der Reaktion HF / Silicat das Wasser entzieht und sie so als "Promotor" in Gang hält. In Verbindung mit der Parr-Bombe wurden beide Möglichkeiten näher untersucht (s. Tab. 4.3). Während dem Druckaufschluß mit $HF/HNO_3/HClO_4$ nur ein Abrauchen mit HF und das Lösen in HCl folgte, wurde der Variante $HF/HNO_3/H_2SO_4$ ein HCl-Druckaufschluß angeschlossen. Die folgende Tabelle zeigt alle drei Möglichkeiten im Überblick:

Tab. 4.3: Wiederfindungsrate von Al und Be nach Säureaufschluß in der Parr-Bombe und nachfolgendem Abrauchen (in Prozent).

	HF/HNO_3	$HF/HNO_3/HClO_4$	$HF/HNO_3/H_2SO_4$
Al [%]	72	96	96
Be [%]	86	90	96

Inwieweit der $HF/HNO_3/HClO_4$ Aufschluß eine negative Wirkung auf die Be-Ausbeute hat, wurde nicht überprüft. Eine häufige Wiederholung des Perchlorsäure-Aufschlusses mit nachfolgendem Abrauchen konnte in der Zentraleinrichtung für Strahlenschutz in Hannover wegen fehlendem Perchlorsäureabzug nicht durchgeführt werden. Deshalb bildet die Schwefelsäure-Variante mit nachfolgendem HCl-Druckaufschluß eine gute Alternative. Bei der Verwendung von $HF/HNO_3/H_2SO_4$ darf nur bis zur Entstehung weißer Dämpfe (Schwefelsäuredämpfe) abgeraucht werden. Weiteres Abrauchen bildet möglicherweise schwer lösliche Oxide.

Nach der Aliquotierung wurde durch den Anionentauscher erstens eine Manganfraktion gewonnen und zweitens erfolgte eine Abtrennung des Eisens. Die Separation von verschiedenen Elementen in einem Trennungsgang, wie Be, Al und Mn, hat wegen des direkten Vergleichs der Ergebnisse von demselben Meteoritenfragment große Vorteile. Aber unter einer erwünschten Abtrennung des Mn zur ^{53}Mn-Bestimmung hat die Vollständigkeit der Al-Isolierung nicht zu leiden. In Hinblick auf die momentan fehlende Möglichkeit, mit thermischen Neutronen zu bestrahlen, wurde darauf verzichtet, Präparate zur ^{53}Mn-Bestimmung zu erzeugen und statt dessen die Qualität der ^{26}Al-Proben optimiert. Zur Abtrennung des Fe bedarf es nicht unbedingt der sehr zeitaufwendigen und teuren Methode des Anionenaustausches der Chlorokomplexe. Eine schnellere und billigere Möglichkeit bietet die klassische Extraktion mit 4-Methyl-2-pentanon (MIK - Methylisobutylketon). Es bilden sich aus salzsaurer Lösung mit MIK ungeladene Chelatkomplexe wie z.B. $[MIK{\cdot}H^+][FeCl_4^-]$, die durch ihre hydrophoben Außengruppen in Wasser schwer löslich sind. Sie können mit einem organischen Lösungsmittel wie MIK extrahiert werden. Neben Fe(III) werden auch eine Reihe anderer Ionen (Cr(VI), Mo(VI), Sb(V), Se(IV), Ge(IV) u.a.) extrahiert. Für diesen Trennungsgang ist es wichtig zu wissen, daß Be, Al, Mg, Ca und Cr(III) in der wässrigen Phase verbleiben. Der Extraktionsgrad für Fe(III) wird bei einer optimalen HCl-Konzentration von 5.0 - 7.0 mol/l mit 99.98% angegeben [JAN90]. Das Volumen der extrahierten Lösung ist bei diesem Verfahren im Gegensatz zur Anionensäule wesentlich kleiner (10 ml). Deshalb ist es möglich, ohne vorheriges Einengen die Hydroxide zu fällen.

Das sind im wesentlichen die entscheidenden Veränderungen im alten Trennungsgang. Entsprechende Elutionsprofile des Kationentauschers für Be und Al wurden neu erstellt (s. Anhang). Die einzelnen Schritte des neuen Trennungsgangs werden im folgenden zusammengefaßt:

1. Ca. 150 mg Meteorit werden gemörsert und in einem Teflonbecher eingewogen. Je 2 mg Al- und Be-Träger (1.000±0.002 g/l Standard) werden hinzugefügt.

2. Nach Versetzen mit 3 ml HNO_3, 2 ml HF und 0.5 ml H_2SO_4 wird der Teflonbecher in einer Parr-Bombe verschlossen und 7 Std. bei 170°C erhitzt.
3. Die Analysenlösung wird bis zum Auftreten weißer Dämpfe abgeraucht.
4. Mit 5 ml konz. HCl wird der Druckaufschluß für 5 Std. bei 160°C fortgeführt.
5. Zur Bestimmung des Al-Gesamtgehaltes wird nach Verdünnen mit H_2O auf 100 ml ein Aliquot von ca. 20 ml für die ICP-AES Analyse entnommen.
6. Nach Eindampfen der Lösung auf ca. 1 - 2 ml und Einstellen auf 10 ml 5.0 mol/l HCl Konzentration schließt sich die Extraktion mit MIK an.
7. Eine NH_3-Fällung bei pH 7 und das Auflösen des Niederschlages in 1n HCl bereitet die Analysenlösung auf den Kationenaustauscher vor.
8. Der auf 1n HCl eingestellte Kationenaustauscher wird mit der Analysenlösung beschickt. Die ersten 65 ml 1n HCl-Lösung werden verworfen.
9. Mit den nächsten 100 ml 1n HCl wird alles Be eluiert. Die Al-Fraktion erhält man durch weitere 50 ml 4.5n HCl Lösung.
10. Ein Einengen der Lösung auf wenige Milliliter ermöglicht eine weitere Hydroxidfällung mit NH_3. Die Niederschläge werden mehrmals mit Typ I "Reinstwasser" gewaschen.
11. Die Hydroxide werden in einem Einweg-Quarztiegel bei 1000°C geglüht.
12. Die Al- und Be-Oxide werden im Gewichtsverhältnis 1 : 4 mit Cu-Pulver verrieben und in AMS-Probenhalter gepreßt.

Abb. 4.13 zeigt den neuen Trennungsgang in einem Fließschema. Wichtig ist die quantitative Arbeitsweise bis zur Entnahme des Aliquots. Danach ist es wichtig, daß möglichst wenig Fremdverbindungen die AMS-Probe verunreinigen. Zur Qualitätskontrolle wurde deshalb die letzte Hydroxidfällung noch einmal aufgelöst und auf ein definiertes Volumen von 10 ml verdünnt, um 1 ml für die ICP-AES Messung abzunehmen. Danach wurde nochmals gefällt und der Niederschlag in die Quarztiegel überführt. Die so erhaltenen Reinheitsgrade lagen beim Al im Mittel bei 86% und beim Be bei 95%. Der geringere Reinheitsgrad beim Al liegt an der fehlenden Trennung vom intrinsischem Cr. Das Gewichtsverhältnis Al / Cr des synthetischen Durchschnittschondriten liegt bei 0.11. Es wurden Versuche unternommen, Cr durch Oxidation in saurer Lösung mit Peroxodisulfat der Hydroxidfällung zu entziehen. Zum Teil ließen sich auch geringere Cr-Mengen nachweisen [NEU93], ein positiver Effekt in den AMS-Meßergebnissen in Form von höheren Strömen und somit kleineren statistischen Fehlern und kürzerer Meßdauer blieb jedoch aus. Da die Cr-Abtrennung keine Verbesserung der AMS Messung erbrachte, wurde auf sie im folgenden verzichtet.

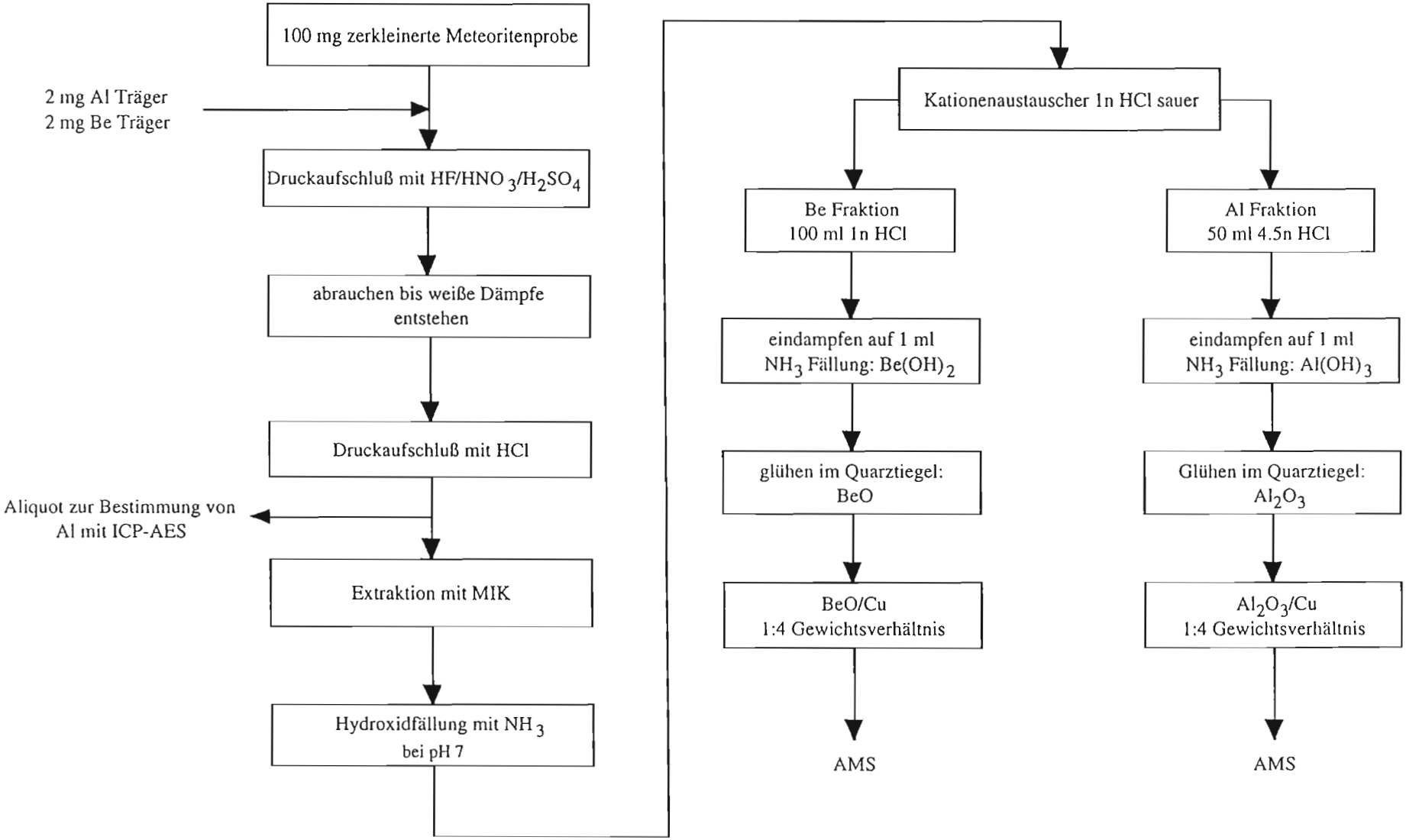


Abb. 4.13: Fließschema des neuen Trennungsganges zur AMS-Analyse von ^{10}Be und ^{26}Al

4.3 Qualitätskontrolle

4.3.1 Camel Donga und Meteoritenstandard ("Dhurmsalastandard")

Mit einer systematischen Untersuchung auf der Basis eines synthetischen Standards ist es, wie oben beschrieben, gelungen, verschiedene Probleme des alten Trennungsgangs aufzuzeigen und Verbesserungsvorschläge anzubieten. Es zeigten sich massive Einflüsse verschiedener Bestandteile (z.B. Mg) des Meteoriten auf die Al- bzw. Be-Separation. Aufgrund der Analysen nach jedem Separationsschritt sind Fehlinterpretationen erkannt worden, wie z.B. Fluoridverbindungen, die für Silikatverbindungen gehalten wurden. Trotzdem blieben einige Fragen ununtersucht:

1. Findet während des Druckaufschlusses eine Äquilibrierung aller Bestandteile einschließlich der zugefügten Träger statt ?
2. Welchen Einfluß haben die wechselnden Konzentrationen der Haupt- und Nebenbestandteile unterschiedlicher Meteoritenklassen, insbesondere die stark schwankenden Al-Konzentrationen ?
3. Läßt sich ein mit einer Lösung untersuchter und erstellter Trennungsgang auf festes Meteoritenmaterial übertragen ?

Meteorite sind wertvolle, seltene Exemplare extraterrestrischer Materie. Zu materialaufwendigen analytischen Versuchszwecken werden sie nicht zur Verfügung gestellt. Der Trennungsgang mußte aber an einem Meteoriten erprobt werden, dessen Zusammensetzung und ^{26}Al- bzw. ^{10}Be-Konzentrationen bekannt sind. Weiter ist es von Vorteil einen Meteoritenstandard für wiederholende Analysen zur Verfügung zu haben, um die Fehlerbreiten bzw. die Reproduzierbarkeiten der Ergebnisse zu ermitteln. Es sollte zwischen einem Chemiefehler (Fehler der chemischen Aufarbeitung) und einen AMS-Fehler (statistischer und analytischer Fehler) unterschieden werden können. Wird ein solcher Meteoritenstandard an verschiedene Labore geschickt, können die Ergebnisse der kosmogenen Nuklide ähnlich einer Ringprobe verglichen und damit ein Gesamtfehler ermittelt werden. Dadurch wird eine gemeinsame Basis für die Interpretation und den Vergleich einmaliger Meteoritenproben gelegt. Durch häufiges Wiederholen der Analyse des Standards wird auch die Häufigkeit möglicher Ausreißer sichtbar. Weiterhin steht für die Zukunft die Möglichkeit offen, neue Analysen- und Separationsverfahren zu testen.

Es wurden eine Reihe von Meteoriten untersucht, von denen bereits von anderen Autoren Werte vorlagen (s. Kap. 7). Dabei wurden verschiedene Meteoritenklassen untersucht, um

auch den Einfluß verschiedener chemischer Zusammensetzungen zu studieren. Ein Meteorit, der im Rahmen dieser Arbeit eingehend untersucht wurde und von dem auch in der Literatur Daten existieren, ist der Eukrit Camel Donga (s. Tab. 4.4). Eukrite sind durch ihre hohen Al-Gehalte besonders kritisch, da Verluste vor der Aliquotierung und mangelnde Equilibrierung deutlich zu sehen sind. Für Camel Donga wurden drei ^{26}Al-Messungen durchgeführt:

1. "Camel Donga alt" nach "altem Trennungsgang" in Hannover separiert.
2. "Camel Donga alt ohne Träger" nach "altem Trennungsgang" in Köln (Nuklearchemie) ohne Zusatz von Al- bzw. Be-Träger separiert.
3. "Camel Donga neu" nach "neuem Trennungsgang" in Hannover separiert.

Der Al-Gehalt des Meteoriten Camel Donga beträgt nach E. Jarosewich [JAR90] 66.1 mg/g. Der Wert ist mit Hilfe der Röntgenfluoreszenz-Analyse analysiert worden. In der folgenden Tabelle sind alle Al-Analysen zusammengefaßt worden:

Tab.4.4: Mit ICP-AES ermittelte Al-Gehalte von Camel Donga

Probenbezeichnung	Al Träger [mg]	Al-Gehalt der Probe* [mg/g]	Al-Gehalt des Meteoriten** [mg/g]
Camel Donga alt	1.98	47	29
Camel Donga alt ohne Träger	0.00	45	45
Camel Donga neu	1.98	91	67
Camel Donga nach Jarosewich	---	---	66.1

* relativer Al-Gehalt der Proben mit Hilfe des ICP-AES ermittelt (nach den Aufschlüssen), beinhaltet Einwaage und gegebenfalls Träger

** relativer Al-Gehalt des Meteoriten, berechnet nach den ermittelten ICP-AES Werten der Proben

Der Al-Gehalt der Probe ist mit Hilfe des ICP-AES durch die Messung eines Aliqouts ermittelt worden. Daraus errechnet sich der Al-Gehalt des Meteoriten, wenn gegebenenfalls der zugefügte Träger subtrahiert wird. Um diese Werte der verschiedenen Analysen zu vergleichen, wurden sie auf 1 g Meteoriteneinwaage bezogen.

Schon die Werte der Proben zeigen hohe Differenzen. Doch erst mit der Berechnung der Al-Gehalte des Meteoriten ist ein direkter Vergleich möglich. Die Werte haben einen Streubereich von 38 mg/g beziehungsweise einen relativen Streubereich von 81 %. Im Vergleich stimmt die Analyse des 'Camel Donga neu' am besten mit dem Literaturwert

überein, während nach dem alten Trennungsgang zu wenig Al gefunden wurde. Wird anhand des Literaturwerts die Al-Konzentration in den Proben berechnet, befanden sich im 'Camel Donga alt' 85 mg/g und in 'Camel Donga alt ohne Träger' 66 mg/g Al.

Im Vergleich der AMS-Ergebnisse, d.h. der errechneten ^{26}Al-Aktivitäten setzt sich dieser gravierende Unterschied fort. Die folgende Tabelle zeigt die Einwaagen, ermittelten Al-Gehalte der Proben in mg, AMS-Verhältnisse und Aktivitäten:

Tab.4.5a: Camel Donga ^{26}Al AMS- und γ–γ Koinzidenz-Ergebnisse

Probenbezeichnung	Einwaage [mg]	Al-Gehalt der Proben [mg]	^{26}Al/^{27}Al durch AMS [10^{-12}]	^{26}Al-Aktivität des Meteoriten [dpm/kg]
Camel Donga alt	107.2	5.06	22.50	43.5
Camel Donga alt (o.Tr.)	126.2	5.75	28.99	54.0
Camel Donga neu	79.8	7.31	24.97	94.1
γ–γ Koinzidenz [HER92]	---	---	---	95.5

Die ^{26}Al-γ–γ-Koinzidenzmessung ergab eine Aktivität von 95.5 dpm/kg [HER92]. Dieser Wert stimmt mit den 94.1 dpm/kg sehr gut überein und bestätigt die Vorgehensweise nach dem neuen Trennungsgang. Die niedrigen Aktivitäten der beiden Proben nach dem alten Trennungsgang resultieren aus den Al-Verlusten bis zur Aliquotierung, wobei möglicherweise größere Al-Gehalte des Meteoriten auch größere Fehler bewirken.

Tab.4.5b: Camel Donga ^{10}Be AMS-Ergebnisse

Probenbezeichnung	Einwaage [mg]	^{10}Be/^{9}Be durch AMS [10^{-12}]	^{10}Be-Aktivität des Meteoriten [dpm/kg]
Camel Donga alt	107.2	19.21	20.7
Camel Donga alt (o.Tr.)	126.2	---	---
Camel Donga neu	79.8	14.24	20.6

Die ^{10}Be-Aktivitäten des "Camel Donga alt" und "Camel Donga neu" stimmen erstaunlich gut überein. Die Be Analytik nach dem alten Trennungsgang bereitete manchmal nur in der Ausbeute Probleme. Das wiederum hat auf das Verhältnis ^{10}Be/^{9}Be und ^{10}Be Aktivität keine Auswirkung.

Camel Donga wurde hier exemplarisch behandelt. Den Schwerpunkt dieser Ausführungen bildete die experimentelle Chemie. Der Vergleich der Aktivitäten auch von anderen Autoren untersuchter Meteoriten folgt in Kapitel 8. Im folgenden wird auf die Herstellung eines Meteoritenstandards eingegangen.

Zur Verwendung eines Standards wurden zwei Möglichkeiten diskutiert. Zur Verfügung stand eine künstlich bestrahlte Steinkugel (Material Gabbro). Besser geeignet wäre ein Meteorit, der gesättigte ^{10}Be- und ^{26}Al-Aktivitäten aufweist. Das Kriterium der hinreichend großen Masse wurde von der Steinkugel gut erfüllt, nur würden die hohen Aktivitäten von ^{22}Na ($t_{1/2}$ = 2.602a) und ^{54}Mn ($t_{1/2}$ = 312.2d) Kontaminationsprobleme verursachen. Ein Meteorit der noch in relativ hoher Masse zur Verfügung stand, war der LL6 Chondrit Dhurmsala (Stück 2/3a) der Nuklearchemie der Universität Köln. Ein 74 g schweres Teil des Stückes wurde bis auf eine Korngröße <125 µm zerkleinert. Der elementare Metallbestandteil des Meteoriten (Fe, Ni) wurde beim Mörsern aussortiert und kam separat zur Messung [NEU93]. Es kamen 70 g homogenisiertes Material zusammen, wovon 32 g an die Nuklearchemie der Universität in Köln zurückgingen. Mit einer durchschnittlichen Einwaage von 150 mg sind mit einer Masse von 38 g 253 Analysen möglich.

4.3.2 ^{10}Be und ^{26}Al im Dhurmsalastandard

18 Proben des Dhurmsalasstandards sind bisher in Hannover bearbeitet worden. Neben den ^{10}Be- und ^{26}Al-Daten existieren auch die ICP-AES Analysen der Aliquots und der Al- bzw. Be-Fraktionen nach Analysenschritt 8a bzw. 8b (s. Abb. 4.13). So lassen sich Fehlerbreiten der Analyse des Al-Gehaltes im Aliquot bestimmen und Ausbeute sowie Reinheit der Meßproben berechnen.

Die mittlere ^{26}Al-Aktivität errechnet sich zu 69.7±3.3 dpm/kg, der Gesamtfehler liegt bei 4.88%, der sich aus dem Chemiefehler von 3.5% und dem AMS-Fehler von 3.4% zusammensetzt. Die mittlere ^{10}Be-Aktivität beträgt 21.4±1.1 dpm/kg mit einem Gesamtfehler von 5.3% (Chemiefehler 4.9%, AMS Fehler 2.0%). Der mit dem ICP-AES ermittelte Aluminiumgehalt des Standards liegt im Mittel bei 1.08±0.04%, das einem Fehler von 3.7% entspricht. Bei den

Be-AMS-Meßproben ist eine durchweg höhere Reinheit festzustellen ($\bar{x}$= 90±5.6%) als bei den Al-Proben ($\bar{x}$= 85±4.4%). Das liegt vor allem an der unvollständigen Abtrennung des Cr, das einen Anteil von 10% hat.

*Tab.4.6: Aktivitäten, Al-Gehalt und Reinheit der AMS Proben des Dhurmsala Standards. Die mit * gekennzeichneten Proben wurden von Herrn Dipl.Chem. U. Neupert im Rahmen seiner Diplomarbeit untersucht. Die mit ** gekennzeichneten Ergebnisse sind Zweitmessungen.*

Proben-bezeichnung	Al-Gehalt des Meteoriten [%]	Al Gehalt# der AMS-Proben [%]	Be Gehalt# der AMS-Proben [%]	^{26}Al-Aktivität des Meteoriten [dpm/kg]	^{10}Be-Aktivität des Meteoriten [dpm/kg]
1*	1.14	87	93	70.0±3.4	24.0±1.3
2*	1.04	85	92	68.4±3.3	20.9±1.1
3*	1.09	86	94	76.5±3.7	21.6±1.1
					20.4±1.1 **
4*	1.07	89	93	65.6±3.2	21.2±1.1
				$	21.9±1.2 **
5*	1.05	86	91	$	21.4±1.1
6*	1.18	$$	$$	$	21.0±1.1
7*	1.09	$$	$$	$	22.1±1.2
8*	1.11	$$	$$	$	20.0±1.1
9*	$$	$$	$$	$	22.0±1.2
1	1.05	83	91	$	21.8±1.2
2	1.07	88	92	67.0±3.3	21.4±1.1
3	1.02	88	93	70.9±3.5	22.2±1.2
4	1.11	86	94	65.7±3.2	23.5±1.2
2.3.	1.06	---	87	---	20.3±1.1
12.3.	1.13	88	81	71.9±3.5	20.4±1.1
25.3.	1.11	87	97	71.6±3.5	19.8±1.1
18.5.	1.07	86	93	$	20.7±1.1
5.11.	1.11	71	75	$	21.6±1.2

Vor der letzten Hydroxidfällung der Be- bzw. Al-Zweige
$ Zur AMS-Messung in Zürich, Daten lagen bei Abschluß der Arbeit noch nicht vor
$$ ICP-AES Messungen noch nicht abgeschlossen

Erstaunlich ist der höhere Be-Chemiefehler (4.9%) im Vergleich zum Al-Chemiefehler (3.5%), obwohl mit den Be-Proben reinere Proben vorliegen. Der Aluminiumgehalt eines LL Chondriten nach Mason beträgt im Mittel 1.12%. Dieser Literaturwert stimmt mit unserem Wert (1.02±0.04) gut überein.

4.3.3 AMS Spektren beispielhafter Proben

Eine weitere Möglichkeit, die Qualität des neuen Trennungsgang zu beurteilen, sind die während der AMS-Messung aufgenommen Spektren. Wichtig für die Berechnung des Verhältnisses ist die Eindeutigkeit eines Peaks im Softwaregate des ΔE_1-Spektrums (vgl. Kap. 4.1) Sollten sich dort mehrere Peaks überlagern, muß unter Umständen das D1 Spektrum korrigiert werden. Korrekturen aber vermindern die Genauigkeit des Verhältnisses. Anhand des ΔE_1-Spektrums werden in Abb. 4.14 und 4.15 mehrere Analysen, separiert nach neuem Trennungsgang und herkömmlichem Verfahren, verglichen.

Der Blank b zeigt einen sauberen Untergrund und keine Ereignisse im Softwaregate (vgl. Kap. 4.1). Demgegenüber kann beim Spektrum a weder von einem eindeutigen Untergrund noch von besonderer Reinheit gesprochen werden. Auch bei den beiden weiteren Spektren e und f ist im Gegensatz zu den Spektren c und d eine klare Trennung zwischen Untergrund und Peak zu sehen.

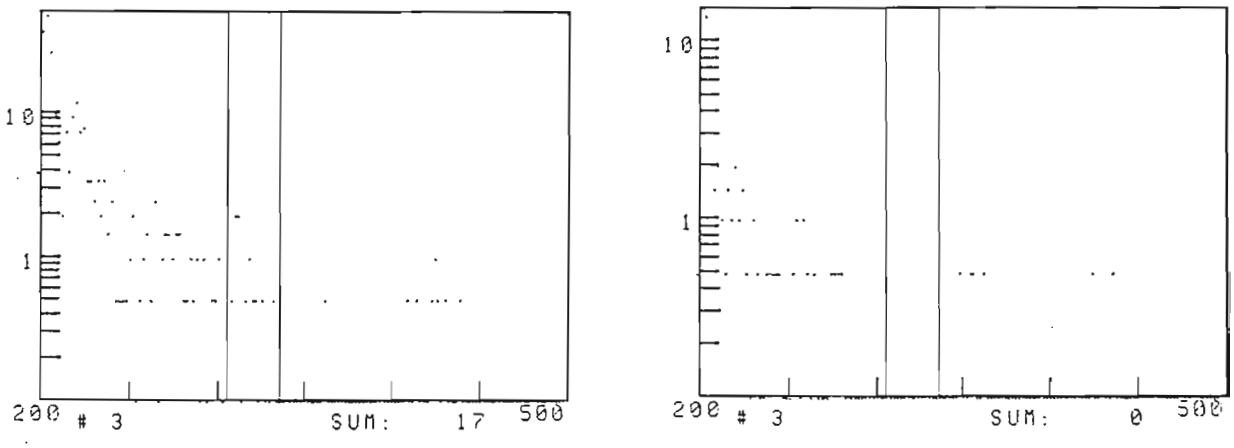


Abb. 4.14: ΔE_1-AMS Spektren: Vergleich zweier Blanks links nach altem Trennungsgang (a) und rechts nach neuem Trennungsgang (b) gekocht.

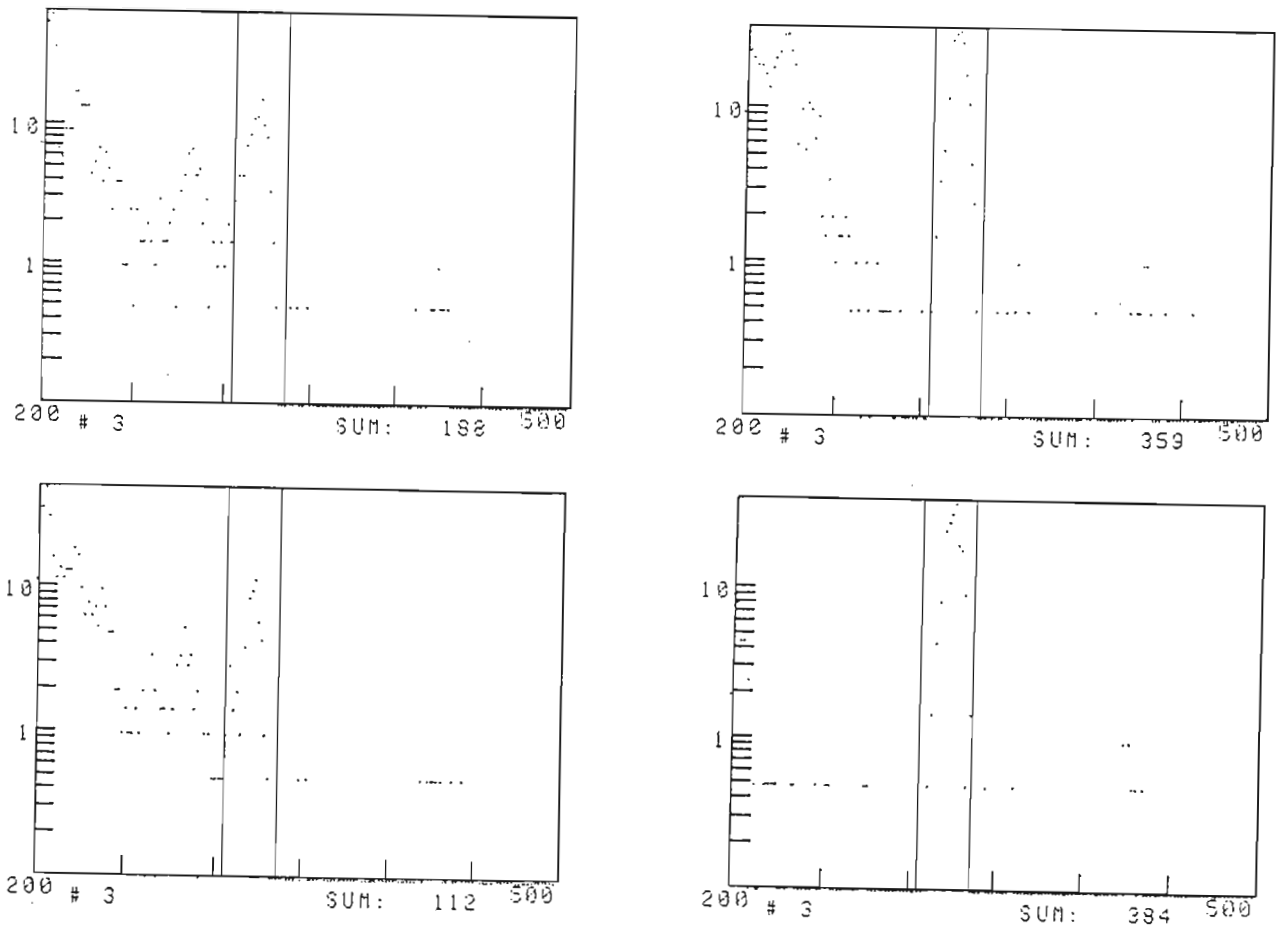


Abb. 4.15: ΔE_1-AMS Spektren: Vergleich von je zwei Meteoritenproben links nach dem alten Trennungsgang (c, d) und rechts nach dem neuen Trennungsgang (e, f) gekocht.

Durch die ICP-AES Messung der Al- bzw. Be-Gehalte vor der letzten Hydroxidfällung ist mit dem neuen Trennungsgang eine weitere Kontrolle der zur AMS-Messung kommenden Proben eingeführt worden. Dadurch können systematische Fehler in der Handhabung des neuen Trennungsgangs vor der AMS-Messung erkannt werden. Durch Einführung des Meteoritenstandards wurde ein Gesamtfehler definiert, der sich aus einem Chemiefehler und einem AMS-Fehler zusammensetzt. Mit Hilfe einiger beispielhafter ΔE_1-Spektren wurde gezeigt, daß AMS-Proben des neuen Trennungsgangs weniger Verunreinigungen in der Nähe des software gates erzeugen als Proben, die nach dem alten Trennungsgang gekocht wurden.

5. Nachweis von ^{14}C in Steinmeteoriten

5.1 Historischer Überblick der ^{14}C Analysen von Meteoriten

Schon kurze Zeit nach dem von Libby vorgestellten Modell der ^{14}C-Altersbestimmung terrestrischer Proben [AND47] wurden Versuche unternommen, ^{14}C als kosmogenes Nuklid in Meteoriten zu analysieren. Mit einer Halbwertszeit von 5730 a [GEY90] kann es bei bekannter Produktionsrate in extraterrestrischer Materie zur Bestimmung terrestrischer Alter bis zu 40000 a benutzt werden. Kein anderes kosmogenes Radionuklid ist für diesen Zeitraum so gut wie ^{14}C geeignet.

Erste Untersuchungen von Meteoriten wurden von Suess und Wänke 1961 [SUE61] und Goel und Kohman 1962 [GOE62] durchgeführt. Es folgten weitere Untersuchungen von Boeckl 1972 [BOE72], Born und Begemann 1975 [BOR75] sowie Fireman 1978 [FIR78]. Alle diese Messungen wurden durch Zählung der Zerfälle des β-Strahlers ^{14}C durchgeführt. Ihnen gemeinsam ist der Gang der Analyse: Zerkleinern, Ausheizen, Reinigen und Messung als CO_2 in Zählrohren. Im einzelnen unterscheiden sie sich in der Einwaage, dem Ausheizprofil und der Art der Reinigung sowie der Wahl des Meßgases und des Zählrohres. Die wesentliche Entwicklung dieser Analysenverfahren liegen in der Art der Reinigung. Während Suess und Wänke [SUE62] das ausgeheizte CO_2 Gas in Ammoniakwasser einleiteten, es neutralisierten und mit Sr als $SrCO_3$ fällten, benutzte Boekl 1972 [BOE72] die Möglichkeit des fraktionierten Ausfrierens mit Trockeneis-Aceton Kältemischungen (-78.5 °C) und flüssigen Stickstoff (-196 °C), was die Kontamination mit terrestrischem CO_2 verminderte. Schon Goel und Kohman [GOE62] benutzten Katalysatoren (CuO), um entstehendes CO zu CO_2 zu oxidieren, eine bis heute gängige Methode. Wenn mit einem Zählrohr die Aktivität des ^{14}C gemessen werden soll, stellt das aus der Uran Zerfallsreihe stammende ^{222}Rn mit einer Halbwertszeit von 3.825 d ein Problem dar. Dies wurde schon von Boeckl erkannt. Er lagerte das Zählgas 3 Wochen lang, bevor es zur Messung kam. Fireman reduzierte das CO_2 mit Zn bei 300°C als Katalysator zu CO und kühlte mit fl. N_2 vorhandenes Rn (bp. -61°C) aus und oxidierte wiederum mit CuO/650°C zu CO_2. Als Zählgas wurde entweder CO_2 selbst oder C_2H_2 benutzt. Das Acetylen wird durch Lithium nach folgender Reaktion generiert:

$$10\ Li + 2\ CO_2 \rightarrow Li_2C_2 + 4\ Li_2O \qquad \text{(Gl. 5.1)}$$

$$Li_2C_2 + 2\ H_2O \rightarrow C_2H_2 + 2\ LiOH \qquad \text{(Gl. 5.2)}$$

Zusammenfassend sind diese 5 Analysenmethoden in Tab. 5.1 wiedergegeben.

Tab. 5.1: Meteoritenanalysen zum Nachweis von ^{14}C mit Hilfe von Zählrohren

	Suess / Wänke 1962	Goel / Kohman 1962	Boeckl 1972	Born / Begemann 1975	Fireman 1978
Einwaage [g]	100	10 - 20	10	8 - 15	10
Vorbereitungen	1. zerkleinern 2. +CO_2 Träger	1. zerkleinern 2. + 45g $PbCrO_4$, 5g Na_2CrO_4	1. zerkleinern 2. + 60g V_2O_5	1. zerkleinern	1. zerkleinern 2. 150°C / 12h im Vakuum
Ausheizprofil	1. 1200°C, 2h 2. O_2 3. 1200°C, 12h	1. 1000°C 4h O_2 100 Torr	1. 800°C 3.5h O_2 200 Torr	Separation nach Goel / Koehman	1. 400, 600, 800, 1000°C schmelzen (>1600°C) je 4 h
Reinigung	1. NH_4OH 2. H^+ 3. $SrCO_3$ 4. Li / H_2O	1. CuO / 700°C 2. Ag / Pt / Ag 400°C 3. NaOH 4. H^+ 5. Ag/CuO/Cu/CuO/Ag	1. Fraktionierung 2. Li 3. H_2O 4. 3 Wochen lagern	1. Li / H_2O	1. CuO / 650°C 2. Zn / 300°C 3. Fraktionierung (von ^{222}Rn) 4. CuO / 650°C
Zählgas	C_2H_2	CO_2	C_2H_2	C_2H_2	CO_2
Zählrohr	Oeschger- Houterman	Anti-Koinzidenz	Anti-Koinzidenz	Oeschger- Houterman	Davis Typ

Tab. 5.2: ^{14}C Analyse von Meteoriten mit Hilfe der AMS

	Brown et al. 1984	Jull et al. 1984	Beukens et al. 1988	Jull et al. 1988	Jull et al. 1989
Einwaage [g]	7 - 20	5 - 10	1	0.16 - 0.76	0.2 - 1.0
Vorbereitungen	1. zerkleinern 2. 150°C /12h im Vakuum	wie Brown 84	wie Brown 84	1. zerkleinern 2. vorheizen 500°C im Muffelofen *	1. zerkleinern 2. + 3g Fe Körner 3. in Al_2O_3 Tiegel
Ausheizprofil	wie Fireman 78			im Induktionsofen im O_2-Strom	im Induktionsofen im O_2-Strom
Reinigung	1. CuO / 650°C 2. CO_2 Ausfrieren mit fl. N_2 3. + ^{14}C freies CO_2			1. MnO_2 2. Pt / CuO / 500°C 3. Ausfrieren -78°C 4. mit CO_2 verdünnen	1. MnO_2 2. Pt / CuO / 500°C 3. Ausfrieren -78°C 4. mit CO_2 verdünnen
Reduktion	Mg / 900°C			1. Zn / 500°C zu CO 2. Fe / 700°C zu C	1. Zn / 400°C zu CO 2. Fe / 625°C zu C
AMS	Chalk River	Tucson	Toronto	Tucson	Tucson

Mit der Anwendung der AMS-Methode für kosmogene Nuklide wurden erstmals 1984 von Brown et al. [BRO84] auch ^{14}C-AMS-Messungen durchgeführt. Nach dem Verfahren von Fireman 1978 [FIR78] wurde das CO_2 separiert und mit Mg als Katalysator bei 900°C zum C reduziert. Es folgten Analysen von Jull et al. [JUL84, 88, 89] und Beukens et al. [BEU88] bei denen der größte Fortschritt in der Verringerung der Meteoriteneinwaage zu sehen ist. Wenn Suess und Wänke [SUE62] noch Probenmassen von 100g benutzten, waren Jull et al. [JUL88] in der Lage, die Einwaage auf 0.16 - 0.76g zu senken. Jull et al. benutzten 1988 auch zum ersten Mal einen Induktionsofen, mit dem es möglich war, die Probe einem Sauerstoffstrom auszusetzen. Einen kurzen Überblick der Probenpräparation zur AMS Messung gibt Tab. 5.2 .

5.2 Separation und Oxidation des Kohlenstoffs in Meteoriten

Ungeachtet der Tatsache, daß ^{14}C-Analysen von Meteoriten erst dann genau interpretiert werden können, wenn je nach Meteoritenzusammensetzung tiefenabhängige Produktionsraten bekannt sind, wurden ^{14}C-Analysen von Meteoriten durchgeführt, wobei als Produktionsraten die gemessenen Aktivitäten von Steinmeteoriten mit bekanntem terrestrischen Alter benutzt wurden. Im Anfang wurde der L6 Chondrit Bruderheim untersucht. Zum Aufbau einer ^{14}C-Anlage ist es aus Vergleichszwecken sinnvoll, mit Meteoritenanalysen zu beginnen und ein standardisiertes Verfahren zu entwickeln.

Eine Anlage für die ^{14}C-Analyse von Meteoriten hat folgende Bedingungen zu erfüllen:

1. Aufgrund des Haupttargetelementes O für die Produktion von ^{14}C müssen in der Erhitzungsphase die Temperaturen so hoch sein, daß selbst natürlicher Quarz geschmolzen werden kann.
2. Kontaminationen, z.B. durch Außenluft oder Oberflächenadsorption von CO_2 an Apparaturwandungen und Meteoritenproben müssen vermieden oder beseitigt werden.

Als erstes stellt sich die Frage, wie hohe Temperaturen von bis zu 1700°C in einer Meteoritenprobe realisiert werden können. Diese Temperaturen sind notwendig, um alles an silikatischen Verbindungen einschließlich natürlichem Quarz (Schmelzpunkt des β-Cristobalit: 1705°C) zum Schmelzen zu bringen.

5.2.1 Erzeugung hoher Temperaturen

Hohe Temperaturen können durch verschiedene physikalische Methoden erreicht werden. Man unterscheidet zwischen künstlichen lichtoptischen Systemen (z.B. LASER), Lichtbogen, Plasmafackel, Widerstandsheizung und Induktionserwärmung. Direkte Einwirkungen von Lichtbogen oder Plasmafackel kommen wegen Kontaminationen nicht in Frage. Lichtoptische Systeme eignen sich wegen ihres hohen apparativen Aufwandes nicht. Die Entscheidung sollte zwischen der Widerstands- und Induktionserwärmung fallen.

Ein Widerstandsofen muß aus hochschmelzenden Werkstoffen gebaut sein um Temperaturen von 2000°C zu erreichen. Zur Auswahl stehen Graphit, Molybdän, Wolfram und Tantal, die aber bei diesen hohen Temperaturen nur unter Schutzgas chemisch stabil sind. Da die Temperatur durch Wärmestrahlung und -leitung an die geschlossene, evakuierbare Apparatur und damit an Tiegel und Meßprobe übertragen werden kann, müßte der Werkstoff der Apparatur ebenfalls aus hochschmelzenden Materialien gefertigt werden. Grundsätzlich sollte als Werkstoff Glas Verwendung finden, wegen schneller, leichter Bearbeitung und chemischer Beständigkeit. Damit tritt das schwer zu realisierende Problem eines stabilen Metall - Glas Übergangs zwischen Reaktionsraum und Glasapparatur auf. Es wurde gegen einen Widerstandsofen entschieden.

Kennzeichen der Induktionserwärmung ist die Erzeugung der Wärme unmittelbar im Werkstück. Die übertragene Leistung ist wie in Tab. 5.3 zu sehen im Vergleich zu anderen Techniken wesentlich größer. Die Erwärmung findet kontaktlos statt, stellt kein chemisches Problem dar, läßt sich ideal um eine geschlossene Apparatur bauen und benötigt als dessen Werkstoff nichtleitendes Material wie z.B. Glas oder Quarz. Es wurde der Induktionsofen HTG-1500 / 0,5 mit abgesetztem HF-Teil von der Fa. Linn High Therm GmbH gekauft.

Tab. 5.3: Leistungsübertragung bei verschiedenen Verfahren [BEN90]

Erwärmungsart	Leistungsübertragung W/cm^2
Konvektion (Wärmemitnahme durch Molekularbewegung)	0,5
Strahlung (Elektroofen, Muffelofen)	8
Berührung, Wärmeleitung (Kochplatte, Salzbad)	20
Flamme (Brenner)	1000
Induktionserwärmung	30000

5.2.2 Prinzip der Induktionserwärmung

Jeder Leiter in dem ein Strom fließt, baut ein elektromagnetisches Feld auf. Handelt es sich um Wechselstrom, so schwingt das elektromagnetische Feld im Rhythmus des Wechselstroms um einen Nullpunkt. Diese Schwingungen können in einem zweiten Leiter einen Strom induzieren, der in umgekehrter Richtung fließt (Abb. 5.1). Es entsteht Wärme nach dem Jouleschen Gesetz $Q = I^2Rt$ (bei nichtferromagnetischen Werkstoffen) die, wenn der Strom groß genug ist, den zweiten Leiter zum Schmelzen bringen kann. Der Widerstand ist frequenzabhängig. Handelt es sich bei dem zweiten Leiter um ein elektrisch leitendes Werkstück, so wird der erste Leiter Induktor genannt. Eine mehrwindige Induktorspule mit n Windungen läßt den Sekundärstrom im Werkstück theoretisch um den n-fachen Wert des Primärstroms ansteigen. Die entstehende Wärme wird Widerstands- oder Wirbelstromwärme genannt.

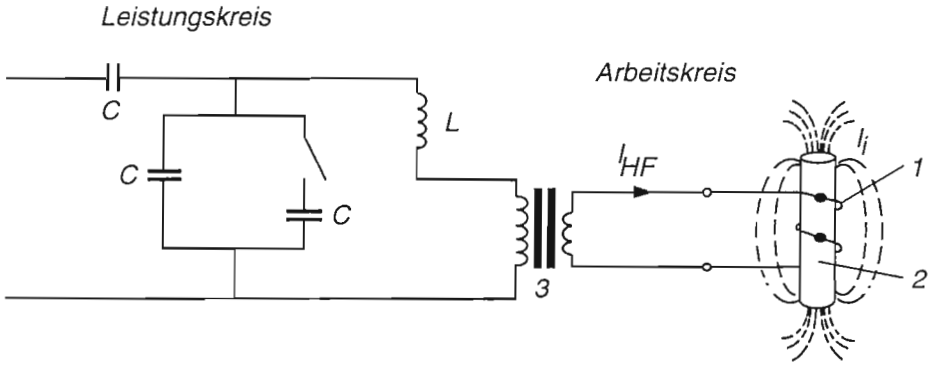


Abb. 5.1: Prinzip der Induktionserwärmung [BEN90]
1 Induktor; 2 Werkstück; 3 HF-Transformator; I_i induzierter Strom; I_{HF} HF-Strom
C Schwingkreiskapazität; L Induktivität

Induzierte Ströme, ob im Werkstück oder Induktor, fließen an der Oberfläche. Bei höheren Frequenzen des Wechselstroms entstehen im Inneren des Leiters Wirbelströme, die einen höheren Widerstand erzeugen und den primären Strom an die Oberfläche des Leiters drängen. Dieser Skin- oder Hauteffekt nimmt mit größer werdender Frequenz zu, wobei der effektive Widerstand des Leiters wesentlich ansteigt. So hat ein Kupferdraht mit einem Durchmesser von 5 mm bei einer Frequenz f von ca. 400 kHz einen um den Faktor 10 erhöhten effektiven Widerstand gegenüber seinem Gleichstromwiderstand. Ähnlich verhält es sich mit einem eingebrachten Werkstück. Die Stromdichte nimmt nach einer e-Funktion von der Oberfläche zum Innern hin ab. Sie ist abhängig von der relativen Permeabilität μ_r, vom spezifischen Widerstand des Werkstücks ρ_2 und von der Frequenz des Induktors. Ist die Stromdichte auf

1/e = 0,368 gesunken, wird diese Tiefe als Stromeindringtiefe δ bezeichnet. Sie läßt sich wie folgt berechnen:

$$\delta = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{\rho_2 \cdot 10^7}{f\mu}} \approx 503\sqrt{\frac{\rho_2}{f\mu}} \text{ in mm} \qquad \text{(Gl. 5.3)}$$

Da sich aber der spezifische Widerstand und die Permeabilität des Werkstücks mit der Temperatur ändert, was bei einem Aufheizvorgang ständig der Fall ist, ändert sich auch die Eindringtiefe δ .

Liegen die Werkstückabmessungen in der Größenordnung der theoretischen Eindringtiefen δ oder sind sie kleiner, liegt eine ungünstige Anpassung des Induktionssystems an das zu erhitzende Werkstück vor. Handelt es sich z.B. um ein rundes Werkstück mit einem Radius von der Größe der Eindringtiefe, heben sich die gegenläufigen Stromflüsse teilweise wieder auf und tragen so nicht zur Erwärmung des Werkstücks bei. Für eine optimale Anpassung oder eine Energieübertragung mit bestem Wirkungsgrad muß folgendes beachtet werden:

1. Das Verhältnis Induktordurchmesser D / Werkstückdurchmesser d sollte so klein wie möglich sein, das heißt, daß der Abstand zwischen Induktor und Werkstück so gering wie möglich sein sollte. Durch diese konstruktive Maßnahme wird eine optimale Kopplung erreicht.

2. Das Verhältnis δ^2 / d^2 sollte klein sein. Da die Eindringtiefe auch von der Frequenz abhängig ist, kann dieses durch die richtige Frequenzwahl erreicht werden.

3. Der spezifische Widerstand des Induktors ρ_1 ist klein zu halten. Das wird durch gut leitende Werkstoffe wie z.B. Kupfer erreicht. In besonderen Fällen kann Kupfer mit Silber galvanisch überzogen werden. Um eine geringe Eigenwärme des Induktors zu gewährleisten, sind sie meist aus Rohren gefertigt, die mit kühlendem Wasser durchflossen werden.

Zur Berechnung des Wirkungsgrades steht für Rundinduktoren eine Gleichung zur Verfügung. Sie beschreibt den Übertragungswirkungsgrad η_{th}, auch thermischer Wirkungsgrad genannt:

$$\eta_{th} = \frac{1}{1 + \frac{D^2}{d^2}\left(1 + 6{,}25\frac{\delta^2}{d^2}\right)\sqrt{\frac{\rho_1}{\mu_1 \rho_2}}} \qquad \text{(Gl. 5.4)}$$

D	Induktordurchmesser
d	Werkstückdurchmesser
δ	Eindringtiefe
ρ_1	spezifischer Widerstand des Induktors
ρ_2	spezifischer Widerstand des Werkstücks
μ_r	relative Permeabilität

Der Faktor $\left(1 + 6{,}25\frac{\delta^2}{d^2}\right)$ sollte größer als 1 sein. Es wird ein maximaler Wirkungsgrad bei einem Wert von 1.1 erreicht [BEN90]. Aufgrund dessen läßt sich das Verhältnis Eindringtiefe zu Werkstückdurchmesser abschätzen:

$$\frac{\delta}{d} \leq \frac{1}{8} \qquad \text{(Gl. 5.5)}$$

Damit die Eindringtiefe nicht größer als 1/8 des Werkstückdurchmessers wird, ergibt sich eine minimale Frequenz [BEN90]:

$$f_{\min} = 16 \cdot 10^6 \frac{\rho}{\mu d^2} \quad \text{in Hz} \qquad \text{(Gl. 5.6)}$$

Zusammenfassend ist folgendes festzuhalten: Die Intensität des Magnetfeldes um den Induktor und damit die Generatorleistung ist für die Erwärmung des Werkstücks verantwortlich; das Verhältnis der Eindringtiefe zum Werkstückdurchmesser sollte maximal 1/8 betragen; der Abstand Induktor-Werkstück bestimmt die Ankopplung; die magnetischen und elektrischen Eigenschaften des Werkstoffs beeinflussen den Wirkungsgrad.

5.2.3 Generatorleistung

Die in der induktiven Erwärmung benötigte Leistung richtet sich nach den Anforderungen, die durch das Erwärmungsproblem gestellt werden. Neben der Masse m und der spezifi-

schen Wärme c des Werkstücks ist auch die Aufwärmzeit und die Endtemperatur von Bedeutung. Die Wärmemenge Q berechnet sich nach:

$$Q = mc(T_2 - T_1) \quad \text{in kJ} \qquad \text{(Gl. 5.7)}$$

Hierbei ist nur die Masse m des Werkstücks zu berücksichtigen, die durch die Eindringtiefe erwärmt wird. Die real benötigte Wärmemenge aber ist insbesondere bei höheren Temperaturen wesentlich höher, da sich durch Wärmeleitung und -strahlung Energieverluste ergeben. Mit Hilfe der Heizzeit t_{Hz} und unter Berücksichtigung des thermischen Wirkungsgrades η_{th} errechnet sich die Aufheizleistung P_{auf} im Werkstück:

$$P_{auf} = \frac{Q}{\eta_{th}\, t_{Hz}} \qquad \text{(Gl. 5.8)}$$

5.2.4 Leistungsverluste

Durch die Ausbreitung der Wärme kommt es zu Leistungsverlusten. Je nachdem, welcher Medien sich die Wärmeenergie zur Ausbreitung bedient, unterscheidet man zwischen Wärmeleitung, Konvektion, Wärmestrahlung und Wärmedurchgang.

— Wärmeleitung

Findet der Wärmeaustausch zwischen unmittelbar benachbarten Teilchen in festen oder unbewegt gedachten flüssigen oder gasförmigen Stoffen statt, spricht man von Wärmeleitung. Bei der induktiven Erwärmung fließt die Wärme von der Oberfläche des Werkstoffs in sein Inneres. Sie ist umso größer, je länger die Aufheizzeit ist. Die Wärmemenge Q läßt sich berechnen:

$$Q = \frac{\lambda A t (T_2 - T_1)}{l} \quad \text{in W} \cdot \text{h} \qquad \text{(Gl. 5.9)}$$

A	[m²]	Fläche des Körpers (Querschnitt)
t	[h]	Zeit
T_2 - T_1	[K]	Temperaturdifferenz
l	[m]	Länge des Körpers
λ	[W/mK]	Wärmeleitzahl

— Konvektion

Wird die Wärme durch bewegte Teilchen mitgeführt, spricht man von Konvektion. Die abfließende Wärme P_K läßt sich wie folgt berechnen:

$$P_K = \alpha A t (T_2 - T_1) \quad \text{in W} \cdot \text{s} \qquad \text{(Gl. 5.10)}$$

α	[W/m²K]	Wärmeübergangszahl

— Wärmestrahlung

Wärmestrahlung ist jede elektromagnetische Strahlung, die von einem auf einen anderen Körper übergeht. Sie kann Wärme übertragen, je nach Emissions- und Absorptionsvermögen eines Körpers. Ausgehend vom Stefan - Boltzmannschen Gesetz für einen vollkommen schwarzen Körper berechnet sich die Wärmestrahlung P_{St} für nicht absolut schwarze Körper unter Berücksichtigung des Emissionsfaktors ε und unter Vernachlässigung der Strahlungsaufnahme aus der Umgebung wie folgt:

$$P_{St} = \varepsilon C_S A t \left(\frac{T}{100}\right)^4 \quad \text{in W} \cdot \text{h} \qquad \text{(Gl. 5.11)}$$

ε	Emissionsfaktor
C_S	Strahlungszahl für schwarzen Körper (5,67 W/(m²K⁴))

— Wärmedurchgang

Der Wärmetransport von einer Flüssigkeit oder einem Gas durch eine feste Wand auf eine andere Flüssigkeit oder ein Gas wird Wärmedurchgang genannt.

Bei den hohen Temperaturen, die zur Aufheizung von Meteoritenproben notwendig sind, geht durch Wärmestrahlung der größte Wärmeanteil verloren. Wenn es aufgrund der Leitfähigkeit des Werkstoffs, mangelnder Generatorleistung oder ungünstiger Anpassung nicht zu den gewünschten hohen Temperaturen kommt, kann durch einfache Maßnahmen wie z.B. eine Reflexion der Strahlung mit Hilfe von Quarzbändern, die um die Spule gewickelt werden, eine Temperaturerhöhung erreicht werden.

Mit Hilfe der oben geschilderten Gesetzmäßigkeiten kann eine optimale Anpassung des Induktionsofens an das Erwärmungsproblem berechnet werden. Da aber die Induktionserwärmung in den meisten Fällen zur Härtung von Werkstoffen benutzt wird, fehlen häufig in den Tabellenwerken der physikalischen und elektrischen Eigenschaften die Daten ungewöhnlicher Materialien bei den in dieser Arbeit benötigten Temperaturen. Daher mußte trotz der dargestellten theoretischen Grundlagen die Anpassung empirisch ermittelt werden.

5.3 Aufbau der ^{14}C Apparatur

Der Vorteil der kontaktlosen Erwärmung ist deren Erzeugung direkt am beabsichtigten Objekt, soweit dessen Materialeigenschaften dies zulassen. Dadurch kann als Apparaturwerkstoff Glas zum Einsatz kommen. Eventuelle Adsorptionen von CO_2 an Glas sind wesentlich geringer als an Metallen. Durch Verwendung von Quarzglas an thermisch stark beanspruchten Stellen sind Temperaturen bis zu 1350°C möglich, ansonsten kann Duranglas verwendet werden.

Nach der Entscheidung für einen Induktionsofen mußte die ^{14}C-Apparatur entsprechend daran angepaßt werden. Prinzipiell kann die Apparatur in drei Teile unterteilt werden: 1. der Reaktionsraum, 2. der Katalysatorraum und 3. der Kühlfallenraum mit Abschmelzvorrichtung. Es muß eine O_2 - und CO_2 - Zufuhr sowie Unterdruck- und Differenzdruckmessung möglich sein. Eine schematische Darstellung der ^{14}C Apparatur ist in Abb. 5.2 zu sehen.

Am 1. Teil, dem Reaktionsraum, befinden sich die CO_2- und O_2-Zuführungen, sowie ein Pirani Unterdruckmeßgerät. Der Meßbereich des Pirani erstreckt sich von 10^{-3} bis 1000 mbar und ist im Bereich >10 mbar gasartabhängig. Der Katalysatorraum besteht aus einem langen Quarzrohr (350x13 mm) mit einer kurzen Verjüngung des Durchmessers im ersten Drittel, um den MnO_2-Katalysator vom CuO/Pt-Katalysator zu trennen. Der MnO_2-Katalysator oxidiert Schwefelverbindungen zum Schwefeltrioxid, damit der CuO-Katalysator nicht zu Kupfer-Schwefelverbindungen umgesetzt wird. Das CuO oxidiert ausgeheiztes CO zum CO_2, das mit fl. N_2 (-196°C) ausfrierbar ist.

Die Oxidation des C zu CO_2 mit Sauerstoff ist eine exotherme Reaktion. Dadurch erhöht sich die Temperatur an der Kohlenstoffoberfläche auf über 1000°C. In Abwesenheit von Sauerstoff reagieren das entstandene CO_2 und C in endothermer Reaktion zu CO. Diese

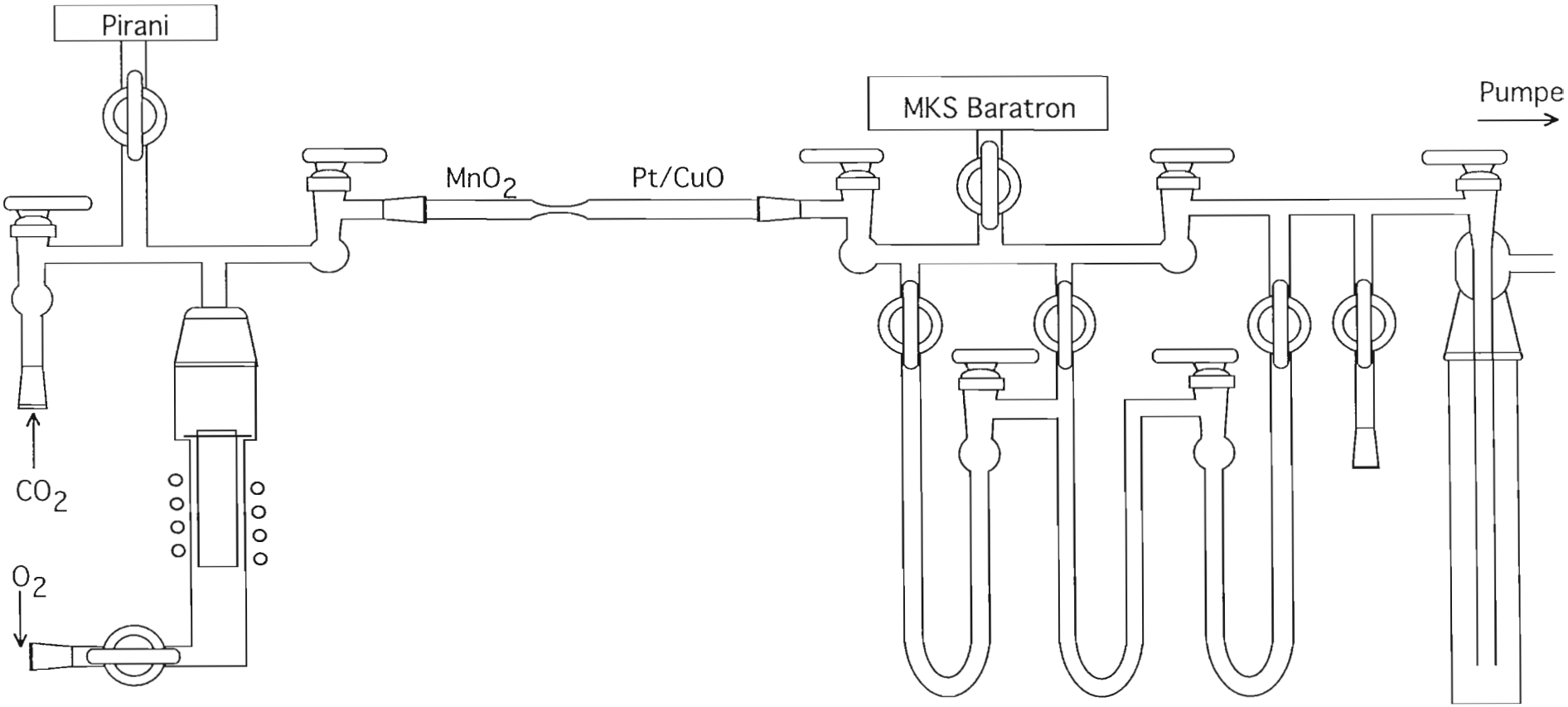


Abb. 5.2: Apparatur zum Ausheizen des Kohlenstoffs in Meteoriten mit anschließender Oxidation zum CO_2 sowie Kühlfallensystem mit Abschmelzvorrichtung

Reaktion wird "Boudouard-Gleichgewicht" genannt. Das Gleichgewicht verschiebt sich mit steigender Temperatur zum CO. Bei Atmosphärendruck und einer Temperatur von 1000°C hat sich ein Anteil von 99 Vol.% CO gebildet.

$$175.58kJ + CO_2 + C = 2CO \qquad \text{(Gl. 5.12)}$$

Insgesamt läuft die Oxidation des Kohlenstoffs mit Sauerstoff bei hohen Temperaturen und Kohlenstoffüberschuß exotherm zu Kohlenmonoxid.

$$2C + O_2 = 2CO + 221.19kJ \qquad \text{(Gl. 5.13)}$$

Bei den hohen Temperaturen zur Entgasung eines Meteoriten liegt das Gleichgewicht auf der rechten Seite. Deshalb muß mit einem Katalysator im Anschluß an die Entgasung zum CO_2 oxidiert werden.

Im Kühlfallensystem kann das Gas durch die Kühlfallen oder an ihnen vorbei geführt werden. Dieser 3. Teil der Anlage ist zum Reinigen und Messen von Druckdifferenzen des CO_2 Gases gedacht. Die Reinigung kann beliebig oft wiederholt werden. Die Kühlfallen werden zur besseren Kennzeichnung durchnummeriert, wobei die erste die linke Kühlfalle ist. An diesem Teil ist ein Membran-Differenzdruckmesser (MKS-Baratron) angebracht. Es ist ein Membranmeßgerät und mißt Unterdruckdifferenzen im Bereich von 0.1 - 1000 mbar. Es folgt der Schliff für das Abschmelzröhrchen und die große Kühlfalle vor der Pumpe zum Schutz der Pumpe und der Apparatur.

5.4 Entwicklungsarbeit

Bevor mit einer Messung begonnen werden konnte, mußte erst sogenanntes totes CO_2 zum Verdünnen der Proben gefunden werden. Tot bedeutet in diesem Fall ein ^{14}C / ^{12}C Verhältnis im Bereich von 10^{-14}. Am einfachsten für diese Anlage ist es, totes CO_2 in einer Gasflasche zur Verfügung zu haben. Doch werden Sondergase dieser Art nicht angeboten. So wurde überlegt, Kohle, Öl oder Calcit selbst zu vergasen. Der Aufwand wäre sehr groß und würde möglicherweise wechselnde ^{14}C-Konzentrationen produzieren. Besser wäre es, Kohlendioxid aus einer Kohlendioxidquelle tief in der Erde zu bekommen, möglicherweise Kohlendioxid, das die Getränkeindustrie für ihr Mineralwasser benutzt. Verschiedene Telefonate führten zur AGA Gas GmbH, die eine Testkohlensäure 4.5 (Sondergas: Reinheit

99.995%) aus der Eifel anbieten konnte. Eine Kontrollmessung an der ETH in Zürich ergab ein ^{14}C / ^{12}C Verhältnis von $<1.5 \cdot 10^{-14}$.

Zur Umrechnung des Gasdrucks in die Stoffmenge muß das Volumen bekannt sein. Die Genauigkeit ist entscheidend für die Größe der Fehler der späteren Messung. Zuerst wurde versucht, eine Differenzwägung mit und ohne Wasser durchzuführen. Leider konnten nicht alle Luftblasen im Kühlfallenteil verdrängt werden. Mit dem Baratron aber war es möglich, mit einem definiertem Vergleichsvolumen, dem Normaldruck und einem eingestelltem Unterdruck in dem zu ermittlenden Volumenelement Druckdifferenzen zu messen, die volumenabhängig sind und somit zur Volumenermittlung dienen können. Zur Berechnung wurde das ideale Gasgesetz angewendet, da Gesetze für reale Gase nur Veränderungen im Promillebereich bewirkten, aber einen erheblich größeren Rechenaufwand bedeuteten. Die ermittelten Volumina bzw. deren Berechnung sind im Anhang zu finden.

Der Teil des Reaktionsraumes, der mit der Induktionsspule umgeben ist, wurde in der Entwicklungsphase mehrfach verändert. Die Schwierigkeiten lagen vor allem an der Energieübertragung bzw. der geometrischen Anpassung des Tiegels an die Spule. Prinzipiell sollte der HTG 1500/0,5 mit einer Ausgangsleitung von 1500 W und einer Blindleistung am Induktor von 53 - 96 kVA_r bei einem maximalen Spulendurchmesser von 3 cm Eisenpulver in einem Al_2O_3-Tiegel zum Schmelzen und auf Temperaturen von 1800°C bringen. Solche Versuche wurden als Kaufkriterium verlangt und nach Rücksprache auch als erfolgreich bestätigt. Die Integration des Gerätes in eine geschlossene Apparatur erwies sich allerdings als sehr schwierig.

5.4.1 Anpassung des Induktionsofens an die Apparatur

Zum Aufschmelzen des silikatischen Anteils eines Meteoriten sind Temperaturen um 1700°C nötig. Der Reaktionsraum besteht aus Quarzglas mit einer Erweichungstemperatur von ca. 1400°C. Es mußte also ein Temperaturgefälle vom Tiegel zur Reaktionsrohrwand von mindestens 300°C eingehalten werden. Deshalb wurde versucht, entgegen einer optimalen Anpassung der Spule an den Werkstoff, den Spulendurchmesser einerseits so groß wie möglich und den Al_2O_3-Tiegelinnendurchmesser so klein wie möglich zu halten. In einem werksseitig vorgegebenen Spuleninnendurchmesser von 30 mm, mußten das Quarzrohr und der Tiegel Platz finden. Mit einer Rohrstärke von 1.5 mm reduzierte sich der nutzbare Raum auf 27 mm. Ein Vorversuch mit einem mit 3 g Eisenpulver gefüllten Tiegel von 20 mm ø, außerhalb der Apparatur durchgeführt, erbrachte Temperaturen von ca. 800°C (s. Tab. 5.4).

Die Temperaturen wurden mit einem Pyrometer gemessen. Da es unmöglich war, mit noch größeren Tiegeldurchmessern zu arbeiten, wurden diese Dimensionen nicht auf die Apparatur übertragen.

Tab. 5.4: Parameter und Ergebnis des 1., 2. und 3.Versuches zur Anpassung des Induktionsofens an die ^{14}C-Apparatur

Spule ø [mm]	Tiegel	Durchmesser [mm]	Werkstoff	Einwaage [g]	Potentiometer [Skt]	Druck [mbar]	Temperatur [°C]
30	Al_2O_3	20	Fe Pulver	3	9.99	1000	800
20	Al_2O_3	10	Fe Pulver	3	9.99	1000	900
20	Al_2O_3	10	Fe Späne	3	9.99	1000	1100

Folgende Veränderungen der verschiedenen Komponenten waren möglich, um die Temperatur zu steigern:

1. Vergrößern des Tiegels
2. Verkleinern des Spulendurchmessers
3. Vergrößern der Spulenwindungenszahl
4. Erhöhung der Einwaage
5. Neben Pulver auch Späne, Draht, Rohre oder Stäbe einsetzen
6. Verschiedene Metalle mit guter Leitfähigkeit ausprobieren
7. Werksseitige Änderung der Einstellung des Induktionsofens
8. Höhere Leistung des Induktionsofens (z.B. 3 kW)

Als erstes wurde aus einem 5 mm Cu-Rohr eine neue Spule mit 7 Windungen und einem Durchmesser von 20 mm gedreht. Ein Al_2O_3-Tiegel von ca. 10 mm Durchmesser und einer Länge von 50 mm wurde an einem Iridiumdraht im Reaktionsraum aufgehängt. Der Iridiumdraht wiederrum wurde um einen Al_2O_3-Stab gewickelt, der quer zur Rohrachse auf einem verbreiterten Rohrstück lag. So ließ sich ein optimaler Abstand zur Glaswandung einstellen. Trotzdem gelang es nicht, mit 3 g Eisenpulver die Temperatur im Gegensatz zum Vorversuch nennenswert zu steigern (s. Tab. 5.4). Eine weitere Veränderung der Reaktionsraumdimensionen kam nicht mehr in Frage. Vielmehr sollten nun Eisenspäne zum Einsatz

kommen. Es wurde eine Temperatur von 1100°C gemessen (s. Tab. 5.4). Die Späne waren immer noch zu erkennen, ein Zusammensintern war kaum feststellbar.

Welche Faktoren führten zu Energieverlusten? Zum einen wirkte sich eine Oxidation des Werkstoffs, d.h. des Eisenpulvers oder der Späne negativ auf den Stromfluß aus, der elektrische Widerstand stieg an, die Temperatur sank. Zum anderen sorgten die umgebenden Gasteilchen bei Atmosphärendruck für eine intensive Wärmeleitung zur Glaswandung. Beide Ursachen lassen sich durch ein Vakuum vermeiden. Die Versuche wurden deshalb unter einem Vakuum von $<10^{-2}$ mbar wiederholt.

Der Unterdruck betrug $<10^{-2}$ mbar, die Einwaage 3 g Eisenpulver. Erst bei einer Potentiometereinstellung von 7 (max. 9.99) Skt. konnte eine leichte Rotfärbung wahrgenommen werden. Die Temperatur betrug bei 9.99Skt. 1100°C. Bei 1450°C liegt der Dampfdruck des Eisens bei etwa 10^{-2} mbar, deshalb wurden pyrometrische Temperaturkontrollen durch sich an der Glaswandung niederschlagendes Eisen bei mehrfachem Aufheizen immer schwieriger. Nach maximal zweifachem Erhitzen mußte das Reaktionsrohr gereinigt werden. Eisenspäne verhielten sich ähnlich.

Tab. 5.5: Parameter und Ergebnis des 4., 5. und 6.Versuches zur Anpassung des Induktionsofens an die ^{14}C-Apparatur

Spule ø [mm]	Tiegel	Durchmesser [mm]	Werkstoff	Einwaage [g]	Potentiometer [Skt]	Druck [mbar]	Temperatur [°C]
20	Al_2O_3	10	Fe Pulver	3	9.99	10^{-2}	1100
20	Al_2O_3	10	Fe Späne	3	9.99	10^{-2}	1100
20	Al_2O_3	10	Fe Preßling	0.9	9.99	10^{-2}	1340

Da induzierte Ströme an der Oberfläche fließen, der Stromfluß aber bei Pulver oder Spänen an der äußeren nicht geschlossenen Fläche behindert ist, wurde aus dem Eisenpulver ein Preßling hergestellt. Die Einwaage betrug 0.9 g, der Durchmesser 5 mm. Es wurde eine Temperatur von 1340°C bei einem Unterdruck $<10^{-2}$ mbar erreicht. Durch den niedrigen Schmelzpunkt des Eisens (Smp. 1539°C) und der immer noch großen Oberfläche des Preßlings behinderten Verdampfungsvorgänge die weitere Temperaturkontrolle.

Die Temperatur ließ sich bei gleichem Material aber anderer Formgebung um rund 200°C steigern. Neben den physikalischen Eigenschaften wie Schmelzpunkt und spezifischer Widerstand ist ein ungehinderter Stromfluß an der Oberfläche von großer Bedeutung. Deshalb sollte als nächstes ein Rohrstück zum Einsatz kommen. Als Werkstoff bot sich Nickel an, das einen etwas geringeren Schmelzpunkt hat (1453°C), aber auch einen sehr viel geringeren spezifischen Widerstand (bei 20°C: Ni 6.9μΩcm; Fe 10.1μΩcm). Es stand ein Ni-Rohr von 6 mm Außendurchmesser und 1 mm Wandstärke zur Verfügung. Ein 15 mm langes Rohr wurde im Al_2O_3-Tiegel plaziert. Wegen eines möglichen Metallspiegels sollte der Versuch bei Normaldruck durchgeführt werden. Schon beim ersten Versuch, noch bevor die maximale Temperatur erreicht wurde, schmolz, begleitet von einer hellen Lichterscheinung, der Iridiumdraht durch und der Tiegel fiel auf den Boden des Reaktionsrohrs. Vermutlich reichte der Iridiumdraht zu weit in das Magnetfeld hinein. Obwohl der Schmelzpunkt des Iridium bei 2410°C liegt und die Drahtstärke 0.25 mm betrug, also eine gute Ankopplung des Induktors an den Draht wegen ungünstiger Größenverhältnisse unwahrscheinlich war, scheint eine Funkenentladung die nötige Energie bereitgestellt zu haben. Um diesen Versuch trotzdem noch durchführen zu können, wurde der Tiegel auf Glasperlen im Reaktionsrohr gestellt. Bereits ab Potentiometerstufe 6 bildete sich ein Nickelspiegel und die Temperatur betrug 1450°C, bei Stufe 8 konnte noch eine Temperatur von 1650°C erkannt werden (s. Tab. 5.6), bei Stufe 9 konnte nur noch eine helle Lichterscheinung wahrgenommen werden. Nach Erkalten bildeten Reaktionsrohr, Glasperlen, Tiegel und Nickel eine zusammengeschmolzene Masse.

Wie oben dargestellt, sind spezifischer Widerstand und Form des Werkstücks entscheidene Parameter. Bis jetzt können also folgende Bedingungen gemacht werden:

1. Wegen eines Metallspiegels sollte der Schmelzpunkt des ankoppelnden Metalls so hoch wie möglich sein.
2. Der spezifische Widerstand des Werkstücks sollte so gering wie möglich sein. (Wegen fehlender Daten kann nur auf den spezifischen Widerstand bei 20°C als Auswahlkriterium zurückgegriffen werden. Leider ergeben sich mit Temperaturerhöhungen drastische Änderungen.)
3. Die Oberfläche des Werkstücks sollte geschlossen und glatt sein.

Nach diesen Versuchen sollte Ni als Rohr auch unter Vakuum gemessen werden. Zuvor aber mußte das Problem der Aufhängung gelöst werden. Ein Draht schien nicht die richtige Lösung zu sein. Vielmehr gab es die Möglichkeit, den Al_2O_3-Tiegel direkt mit einem Al_2O_3-Stab aufzuhängen. Der Tiegel mußte also so lang sein, daß er aus den 7 Windungen der Spule

noch herausragte (das Reaktionsrohr hat im Bereich der Aufhängung einen größeren Durchmesser (30 mm)). Diese 7 Windungen nehmen eine Breite von 5 cm in Anspruch. Der Tiegel sollte mit einer Länge von 9 - 10 cm genügend lang sein. Zu Testzwecken wurden 3 solche Tiegel bestellt, mit der Bitte, die zwei Aufhängungsbohrungen genau senkrecht fluchtend zu bohren, damit der Tiegel nicht schief hängt.

Ein 2 cm langes Ni-Rohrstück (6 x 1) wurde im Tiegel plaziert und der Tiegel im Reaktionsrohr aufgehängt. Der Unterdruck betrug $<10^{-2}$ mbar. Schon bei Potentiometerstufe 6 wurde eine Temperatur von 1600°C gemessen (s. Tab. 5.6), bevor ein Nickelspiegel die Sicht erschwerte. Ein Ni-Rohr schien also die richtige Wahl zu sein.

Tab. 5.6: Parameter und Ergebnis des 7., 8. und 9.Versuches zur Anpassung des Induktionsofens an die ^{14}C-Apparatur

Spule ø [mm]	Tiegel	Durchmesser [mm]	Werkstoff	Größe [mm x mm]	Potentiometer [Skt]	Druck [mbar]	Temperatur [°C]
20	Al_2O_3	10	Ni Rohr	6x1	8	1000	1650
20	Al_2O_3	10	Ni Rohr	6x1	6	10^{-2}	1600
20	Al_2O_3	10	Ni Rohr	6.1x0.5	5	10^{-2}	1450

Um Kontaminationen mit terrestrischen CO_2 vorzubeugen, mußte das Werkstück in besonderer Reinheit erhältlich sein. Das hierfür geeigneteste Ni Rohr NI007655 der Fa. Goodfellow GmbH hat einen Außendurchmesser von 6.1 mm und eine Wandstärke von 0.5 mm. Eine Qualitätskontrolle von Goodfellow gibt maximal 100 ppm Kohlenstoff an. Eine Blankmessung sollte die Eignung dieses Materials prüfen.

Es wurde wieder ein 2 cm langes Stück im Tiegel plaziert, dieser im Reaktionsrohr aufgehängt und ein Unterdruck von $<10^{-2}$ mbar eingestellt. Der CuO-Katalysator hatte eine Temperatur von 550°C. Schon bei der Potentiometerstufe 3 war eine rot-weiße Färbung zu erkennen. Die Temperatur betrug 1000°C. Bei Stufe 5 emittierte das Ni-Rohr bereits intensiv weißes Licht, das einer Temperatur von 1450°C entsprach (s. Tab. 5.6). Plötzlich aber erlosch die Strahlung, ohne daß das Potentiometer verstellt wurde. Weiteres Steigern des Potentiometers hatte keine Wirkung. Nach öffnen der Apparatur stellte sich heraus, daß das Rohr an einer Seite einen Riß hatte, das Ni war an dieser Stelle geschmolzen. Eine größere

Wandstärke als 0.5 mm ist bei Fa. Goodfellow nicht im Programm. Sonderanfertigungen waren nicht möglich.

Neben Metallpulver, -spänen und -rohren könnte sich auch Metalldraht eignen, der in verschiedenen Stärken und Längen in entsprechender Reinheit zu haben ist. Es wurden Eisen-, Nickel-, Molybdän- und Wolframdraht bestellt, um nicht nur die Eignung des Drahtes sondern auch hochschmelzende Metalle zu testen. Die physikalischen Eigenschaften sind in der folgenden Tabelle zusammengefaßt:

Tab. 5.7: physikalische Eigenschaften von Fe, Ni, Mo, W

		Fe	Ni	Mo	W
Schmelzpunkt	[°C]	1535	1453	2617	3410
Siedepunkt	[°C]	2750	2732	4612	5660
spez. Widerstand bei 20°C	[μΩcm]	10.1	6.9	5.7	5.4
Temp. bei 0.01 Torr Dampfdruck	[°C]	1447	1510	2533	3309

Nach der Tabelle sollte sich Wolfram am besten eignen, Eisen oder Nickel aber sind aus Kostengründen, wenn möglich, dem Wolfram oder Molybdän vorzuziehen. Es wurden Drähte von 1 mm Stärke (Fe: 0.9 mm) bestellt. Obwohl verschiedene Wicklungen ausprobiert wurden, gelang es unabhängig vom Material nicht, auf entsprechend hohe Temperaturen zu kommen. Erfreulich war nur die Feststellung, daß W noch die hellste Rotfärbung erzeugte. Es mußte also ein Rohr oder vielleicht ein Stab sein.

Eine andere Alternative aber war es, den Werkstoffdurchmesser zu vergrößern, um das Durchmesserverhältnis günstiger zu gestalten, wenn ganz auf einen Al_2O_3-Tiegel verzichtet wird und statt dessen ein W-Tiegel benutzt wird. Bevor Wolfram schmilzt, sollte auch das Quarz-Reaktionsrohr und die Cu-Spule durch die Wärmestrahlung geschmolzen sein. Ein W Stab von 10 mm Durchmesser und 50 mm Länge sollte dazu eine Bohrung von 6 mm und 40 mm Tiefe erhalten. Zur Aufhängung mußten senkrecht dazu am oberen Ende zwei Löcher gebohrt werden.

Tab. 5.8: Parameter und Ergebnis des 10. Versuches zur Anpassung des Induktionsofens an die ^{14}C-Apparatur

Spule ø [mm]	Tiegel	Durch-messer [mm]	Werkstoff	Größe [mm x mm]	Potentio-meter [Skt]	Druck [mbar]	Temperatur [°C]
20	Al_2O_3	10	W	10x2	7	10^{-2}	1700

Erhitzt wurde nur das untere Drittel des Stabes. Die Ankopplung war sehr gut. Bereits bei Potentiometerstufe 4 konnte in nur ca. 30 sec. eine Temperatur von 1200°C gemessen werden. Zusätzlich wurde die Spule und das Reaktionsrohr mit Quarzwolle umwickelt, um Strahlungsverluste zu minimieren. Ein Stück natürlicher Quarzkristall sollte als Testprobe geschmolzen werden. Bei einer Potentiometerstufe von 7 und einem Unterdruck von $<10^{-2}$ mbar wurde durch die Isolierung hindurch eine Temperatur von 1700°C gemessen (Dauer ca. 30 sec.) (s. Tab. 5.8). Ein Stück Quarzkristall schmolz zu einem Tropfen zusammen, es bildete sich an der Quarzglaswandung ein W-Spiegel und das Quarzglas selbst schien leicht angeschmolzen und wieder kristallisiert zu sein, das Glas war milchig trüb. Mit diesem W-Tiegel konnten die ersten Ausheizversuche an silikatischen Matrizes und Meteoriten begonnen werden.

5.4.2 Thermische Entgasung von Meteoritenproben

Meteoriten können je nach Verwitterungsgrad unterschiedlich stark mit terrestrischem ^{14}C kontaminiert sein. Um keine verfälschten Aktivitäten zu erhalten, ist eine Dekontaminierung nötig. Dekontaminiert werden kann nur, wenn das terrestrische ^{14}C vom kosmogenen ^{14}C unterscheidbar ist. Kosmogenes ^{14}C entsteht in den Verbindungen , in denen sich die Targetelemente befinden, hauptsächlich aus den in den Silikaten befindlichen Elementen Sauerstoff, Silicium, Aluminium und Eisen. Diese Silikate sind höherschmelzende Verbindungen und das kosmogene ^{14}C sitzt auf Zwischengitterplätzen dieser Verbindungen. Terrestrisches ^{14}C stammt aus dem in der Atmosphäre befindlichen CO_2. Das CO_2 hat in der Luft einen Volumenanteil von 0.034 % mit einem ^{14}C / ^{12}C Verhältnis von $1.2 \cdot 10^{-12}$. Trotz dieser sehr geringen Konzentration bilden sich im Laufe von mehreren Tausend bis mehreren Zehntausend Jahren Carbonate, die selbst die Chondren in den Chondriten durchsetzen können. Zusätzlich muß mit einer Kontamination des terrestrischen CO_2 in Form von

chemischer und physikalischer Oberflächenadsorption gerechnet werden. Das ^{14}C, ob terrestrisch oder kosmogen, wird erst durch das Schmelzen der Verbindungen und Oxidieren zum CO_2 in die Gasphase überführt. Aufgrund der verschiedenen Schmelzpunkte der Verbindungen ist eine Unterscheidbarkeit des terrestrischen vom kosmogenen ^{14}C gegeben. Durch das Erhitzen des Meteoriten sollte zuerst das terrestrische ^{14}C in Form von CO_2 entgasen, bevor bei höherer Temperatur das kosmogene ^{14}C entweicht. In einer Vorfraktion mit einer Ausheiztemperatur bis 1000°C werden die kontaminierten Gase angesammelt, bevor mit Temperaturen bis über 1700°C die Hauptfraktion gewonnen wird.

Grundlage dieser Entscheidung für eine Vorfraktion mit einer Ausheiztemperatur bis max. 1000°C ist zum einen die Arbeit von Beukens et al. 1988 [BEU88] und basiert zum anderen auf zwei Ausheizprofilen der Wüstenmeteorite Acfer 074 und Acfer 023, die Intensitätsprofile in Abhängigkeit von der Temperatur zeigen (siehe Abb. 5.3).

Diese Messungen von Prof. Dr. K. Heide von der Friedrich-Schiller-Universität in Jena sollten Aussagen über den Verwitterungsgrad von Meteoriten erlauben, indem die Menge des während der Verwitterung gebildeten Carbonats über das entgasende CO_2 gemessen wird. Zwei Proben unterschiedlichen Verwitterungsgrads kamen zur Messung: der L6-Chondrit Acfer 074 als stark verwitterte und der H3-Chondrit Acfer 023 als relativ junge Probe. Es wurde in beiden Fällen 6.1 mg eingewogen. Entgast wurde bis 1400°C, was 140 min entspricht. Die Entgasungsprofile wurden mit ihren Massen pro Ladung (m/e) gekennzeichnet. Die m/e = 18 entspricht dem Wasser, m/e = 44 dem CO_2, m/e = 48 ist einem Schwefelfragment (SO) zuzuordnen. Die Molmasse 46 g/mol könnte von einem Distickstoffoxid N_2O stammen.

Im Temperaturbereich von 100 bis 200°C erfolgt eine stufenweise Entgasung von Wasser und der damit freigesetzten Kohlensäure. Bei Temperaturen zwischen 400 und 700°C ist ein Peak zu erkennen, der der Zersetzung des Carbonats zuzuordnen ist. Eine schwächer ausgeprägte Entgasung von CO_2 findet sich im Temperaturbereich von 900 - 1300°C.

Phänomenologisch gleichen sich beide Spektren. Die Probe des H3-Chondriten Acfer 023 aber zeigt ein wesentlich ausgeprägteres Spektrum. Im Vergleich der Intensitäten der Entgasungsprofile zeigt Acfer 023 einen höheren CO_2- und H_2O-Gehalt.

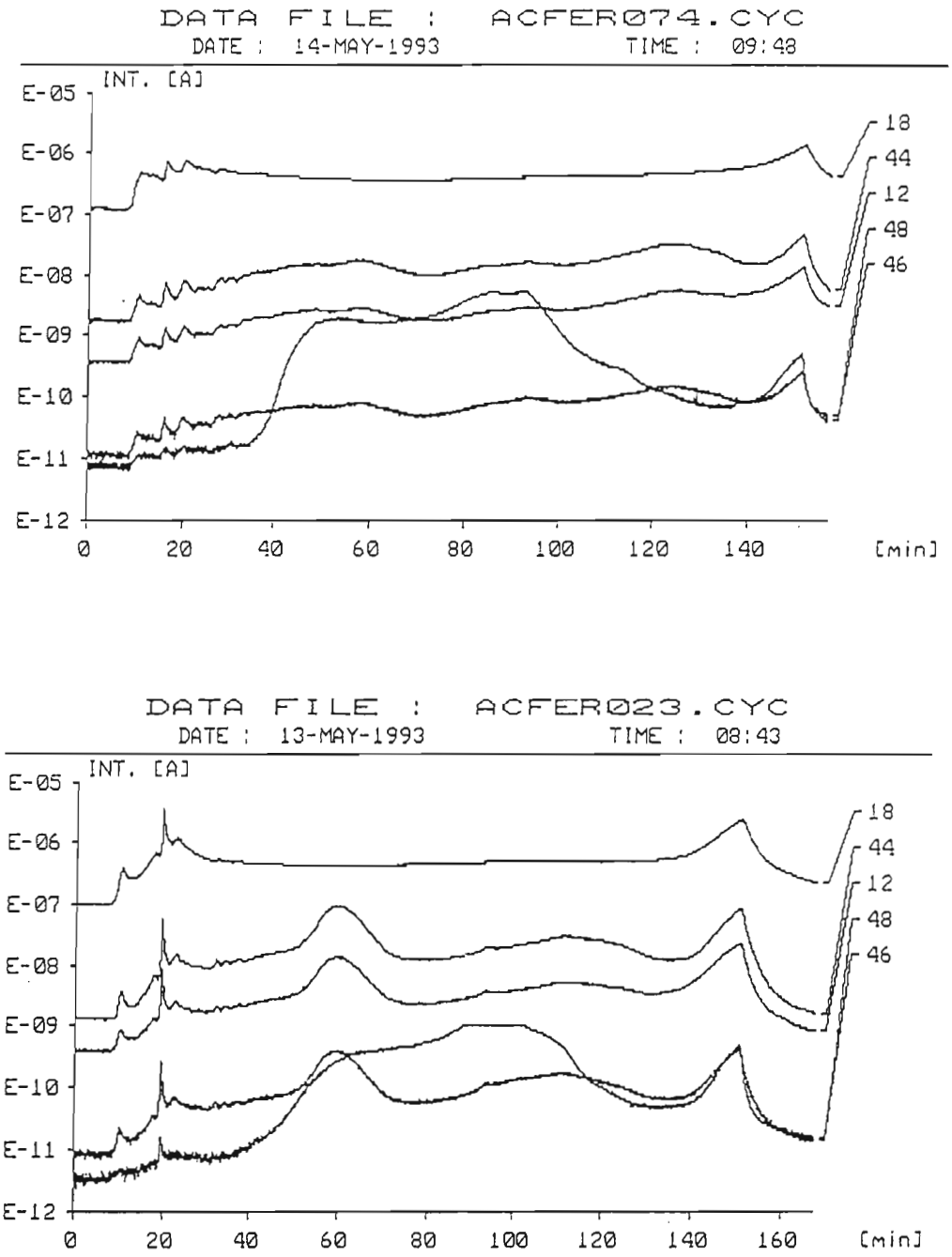


Abb. 5.3: Thermische Entgasung der Meteorite Acfer 023 und 074. Aufgetragen sind Ausheizminuten gegen Intensität. Pro Minute wurde die Temperatur um 10°C gesteigert. 140 min entsprechen 1400°C. Die Massenzahlen rechts kennzeichnen die Analysenkurven. Masse 44 entspricht dem CO_2 [HEI93].

Wie in den Entgasungsprofilen zu sehen ist, haben die Proben bis 700°C einen relativ hohen CO_2 Gehalt. Das aus dem Carbonat stammende CO_2 wird erst bei Temperaturen bis 700°C freigesetzt. Die von Jull benutzte Ausheiztemperatur von nur 500°C lassen erwarten, daß noch etwa 2/3 des Carbonat in der Probe verbleiben. Dieser Anteil gelangt dann in den für die ^{14}C Messung bestimmte Hauptfraktion.

Chondritische Minerale, wie Olivin, Pyroxen und Plagioklas gehen beim Erhitzen verschiedene Modifikationen ein und schmelzen ab einer Temperatur von >1100°C. Das darin enthaltene kosmogene ^{14}C kann somit erst oberhalb 1100°C entweichen. Im Entgasungsprofil ist noch ein schwächerer CO_2 Peak im Temperaturbereich von 900 - 1300°C zu sehen. Aus welchen Verbindungen dieses CO_2 entweicht, ist nur zu vermuten. Es könnten höherschmelzende Carbonate sein. Ob sie durch Verwitterungen entstanden oder mineralogischer Bestandteil von Meteoroiden sind, kann anhand der vorliegenden Spektren nicht gesagt werden. Das kosmogene ^{14}C ist aufgrund der höherschmelzenden Mineralien der Meteorite in einer Fraktion unterhalb von 1000°C nicht zu entgasen. Deshalb wurde als Dekontaminationstemperatur eine Temperatur bis max. 1000°C gewählt. Kosmogenes ^{14}C ist in diesen Spektren nicht zu sehen. Eine Einwaage von 6.1 mg und eine Aktivität von 60 dpm/kg würde eine ^{14}C-Konzentration von $3.70 \cdot 10^{-14}$ mg ergeben, die in den Spektren weit unterhalb des Untergrundes zu finden wären.

Die ^{14}C-Aktivitäten des L6-Chondriten Bruderheim von Beukens et al. [BEU88] mit 47.6 dpm/kg und Jull et al. [JUL89] mit 48 dpm/kg stimmen gut überein. Beukens hat mit einer Einwaage von 1.148 g eine Fraktion bis 1000°C genommen, die eine Aktivität von 22.3±0.2 dpm/kg hatte. Die anschließende Schmelzfraktion ergab eine Aktivität von 47.6±0.3 dpm/kg. Eine Wiederaufschmelzen der Probe brachte 2.5±0.1 dpm/kg. Jull et al. probierte mehrere Dekontaminationstemperaturen aus. Für Einwaagen von 0.124 bis 0.333 g erhielt Jull et al. bei Vorheiztemperaturen von >250 bis >500°C (insgesamt 11 Proben) eine mittlere Aktivität von 46.8 dpm/kg. Die Übereinstimmung der Werte beider Arbeitsgruppen mit einer Vorheiztemperatur von 1000°C von Beukens et al. bestätigten die Entscheidung für eine Dekontaminierungstemperatur bis 1000°C.

5.4.3 Erste Standardmessungen

Nachdem hohe Temperaturen durch optimale Anpassung möglich waren, wurde ein Verfahren zur Entgasung von Kohlenstoff entwickelt. Das Verfahren mußte reproduzierbare CO_2-Volumen freisetzen und eine Entgasungsausbeute von nahezu 100% haben.

Zur Messung von Gasen enthält die ^{14}C-Anlage im Kühlfallenbereich einen Membrandifferenzdruckmesser für den Druckbereich von 0.1 - 1000 mbar. Dieses Gerät muß vor jeder Messung auf Null gestellt werden, wenn der Unterdruck kleiner als 10^{-2} mbar ist. Kontrolliert wird der Unterdruck durch das Piranidruckmeßgerät im Reaktionsraumteil der Anlage. Damit kann eine Kalibration auf den Nullpunkt des Differenzdruckmessers durchgeführt werden. Eine Probe mit definiertem Kohlenstoffgehalt sollte entgast werden, um über den angezeigten Druck des Differenzdruckmessers mit Hilfe des idealen Gasgesetzes und Kenntnis des Volumens die entgaste CO_2-Stoffmenge errechnen zu können und die Kohlenstoffäquivalente mit dem Kohlenstoffgehalt der eingewogenen Probe zu vergleichen. Daraus errechnet sich die Ausbeute an extrahiertem Kohlenstoff. Über die immer gleiche Temperatur und das bekannte Volumen für jede zu messende Probe besteht zwischen der Stoffmenge und der Druckdifferenz ein linearer Zusammenhang. Dadurch reicht eine Kalibration über zwei Meßpunkte aus.

Für diese Kalibration wurden Carbon Silikat Standards (NIST Standard Reference Material 1216, Carbon Modified Silica) benutzt. Es handelte sich um drei Standards mit folgenden Kohlenstoffgehalten: I mit 0.70 ± 0.12 %, II mit 9.06 ± 0.24 % und III mit 17.04 ± 0.43 %. Die ersten Kalibrationsversuche sollten noch ohne Sauerstoffzufuhr durchgeführt werden. Es wurde nach folgender Methode vorgegangen:

1. Anlegen eines Vakuums bis $<10^{-2}$ mbar
2. Erhitzen des CuO-Katalysators auf ca. 500°C
3. Spülen der Anlage mit totem CO_2
4. Wiederholtes evakuieren bis $<10^{-2}$ mbar
5. Isolieren des Reaktionsrohrs mit Quarzwolle
6. Reaktionsrohr, Katalysatorraum und 1. Kühlfalle öffnen
7. Fl. N_2 kühlt in der 1. Kühlfalle entstehende, kondensierbare Gase aus
8. Einschalten des HF
9. Langsames Aufheizen bei Stufe 1 (ca. 15 min, bis max. 600°C)
10. Steigern der Temperatur durch Erhöhen auf Stufe 3 (ca. 10 min, bis max.1000°C)
11. Ca. 1 min bei Stufe 5 (ca. 1300°C)
12. Ca. 30 sec. auf Stufe 7 (ca. 1700°C)
13. Ausschalten des HF
14. Nach Abkühlen schließen der ersten Kühlfalle (der Unterdruck sollte nun wieder unter 10^{-2} mbar sein)
16. Durch Trockeneis/Methanol-Gemisch H_2O von CO_2 trennen
17. Messen des CO_2 Drucks mit dem Baratron

Es wurden 100 mg Carbon Standard III in den W-Tiegel eingewogen. Mit einer Konzentration von 17.04% C, das entspricht 1.42 mmol auf 100 mg, sind in 217.5 ml Volumen 159 mbar CO_2 Gas zu erwarten. Es wurde ein Vakuum angelegt. Es konnte beobachtet werden, wie der sehr feinpulvrige Standard (vom Hersteller sind keine Korngrößen angegeben) durch den Zug der Pumpe aus dem Tiegel wanderte und sich am Boden des Reaktionsrohrs sammelte. Weitere Versuche mit minimaler Evakuierungsrate brachten keine Besserung.

Es wurden auch erste Versuche mit dem Dhurmsala-Standard durchgeführt. Der Tiegel mußte für Standard- oder AMS-Proben gereinigt werden. Nach ersten unbefriedigenden chemischen Versuchen mit halbkonz. HNO_3, sollte der Tiegel ausgebohrt werden. Durch die hohen Temperaturen beim Entgasen war der Tiegel spröde und hart geworden. Beim Bohren (Drehbank) zerbrach der Tiegel und konnte nicht mehr benutzt werden. Pro Messung je einen Tiegel zu benutzen, war nicht möglich. Deshalb mußte eine andere Aufheizmethode und damit eine erneute Anpassung gefunden werden.

5.4.4 Erneute Methodenentwicklung

Wenn ein Ni-Rohr mit einem Außendurchmesser von 6 mm problemlos schmilzt, warum sollte dann nicht auch ein W-Stab von 6 mm Ø ideal ankoppeln und sogar mehrmals benutzbar sein, da weder der Schmelzpunkt überschritten wird, noch eine hoher Dampfdruck unter diesen Bedingungen die Masse drastisch verkleinert ?

Es wurde ein Wolframstab der Firma Goodfellow mit einem Durchmesser von 6.35 mm bestellt. Zur Erwärmung sollte ein 2 cm langes Stück ausreichen. Die Teilung des 10 cm langen Stabes in 5 Stücke konnte vom Glasbläser übernommen werden. Der W-Stab wurde in einen Al_2O_3-Tiegel gestellt und im Reaktionsrohr aufgehängt. Es wurden mehrere Temperaturteste durchgeführt. Bei einer Potentiometerstufe von 7 konnte durch den Al_2O_3-Tiegel hindurch eine Temperatur von 1350°C gemessen werden. Obwohl im Inneren des Tiegels eine höhere Temperatur herrschte, wurde ein im Tiegel plaziertes Quarzstück nicht geschmolzen. Nach einem weiteren Versuch mit einer Potentiometerstellung von 8 für ca. 1 min war der Quarz immer noch ungeschmolzen (s. Tab. 5.9). Als das gesamte Leistungsband des HF-Ofens ausgenutzt wurde und eine Potentiometerstufe von 9.9 eingestellt sowie Spule und Reaktionsrohr mit Quarzglaswolle isoliert wurde, brach der Tiegelboden ab und schmolz das Reaktionsrohr an.

Bevor auch diese Methode verworfen wurde, sollte mit zwei Wolframstäben übereinander gearbeitet werden, wobei ein Quarzstück, was die Probe symbolisiert, zwischen den Stücken angeordnet war. Außerdem sollte sehr langsam erhitzt werden, damit sich eine wie schon vorher teilweise beobachtete W-Schutzschicht an der Innenseite des Al_2O_3-Tiegels bilden kann (Vorteil: reflektiert Strahlungswärme, koppelt wegen zu geringer Dicke nicht an). Bei einem Unterdruck von $<10^{-2}$ mbar wurde der HF-Ofen angeschaltet und auf eine Potentiometerstufe von 1 gestellt. Nach ca. 30 min war eine schwache Rotfärbung zu erkennen, die in etwa 800°C entspricht. Nach weiteren 30 min stand das Potentiometer auf Stufe 8 und die Temperatur, durch den Tiegel hindurch gemessen, lag bei 1600°C. Nach Abkühlen zeigte eine Untersuchung, das der Quarz geschmolzen war und die Masse der Wolframstäbe um ca. 1/10 abgenommen hatte (s. Tab. 5.9). Dafür belegte die Tiegelinnenseite eine silbern glänzende Wolframschicht, die, in der Vergrößerung erkennbar, aus vielen kleinen kondensierten Kügelchen bestand.

Tab. 5.9: Parameter und Ergebnis des 11. und 12. Versuches zur Anpassung des Induktionsofens an die ^{14}C-Apparatur

Spule ø [mm]	Tiegel	Durchmesser [mm]	Werkstoff	Größe [mm]	Potentiometer [Skt]	Druck [mbar]	Quarz
20	Al_2O_3	10	W-Stab	6.35	8	10^{-2}	nicht geschmolzen
20	Al_2O_3	10	2xW-Stab	6.35	8	10^{-2}	geschmolzen

Nun sollten Tests auf Reaktionen des Wolfram mit CO_2 bei diesen hohen Temperaturen nachgeholt werden. Nachdem Tiegel und W-Stäbe eingehängt waren, wurde die Apparatur bis zur großen Kühlfalle vor der Pumpe geöffnet und mit 14.5 mbar totem CO_2 gefüllt. Die Temperatur wurde wie oben beschrieben geregelt. Nach der H_2O-Trennung konnte ein Druck von 14.5 mbar abgelesen werden. Eine Reaktion des Wolfram mit Kohlendioxid ist somit auszuschließen. Trotzdem wurde eine leichte Oxidation an den W-Stäben festgestellt. Es mußte also das CO_2 zum CO reduziert worden sein, um dann vom CuO Katalysator wieder zum CO_2 oxidiert zu werden.

Zur Erhitzung von 50 - 500 mg Proben werden ein Al_2O_3-Tiegel, ein Korund-Stab zum Aufhängen des Tiegels und zwei W-Stäbe gebraucht, wovon der Korund-Stab und die W-Stäbe nach Reinigung wiederbenutzbar sind. Die Al_2O_3-Tiegel werden vor der Messung im Muffelofen bei 1000°C ausgeheizt. Die zu messende Probe wird im grobkörnigem Zustand in den Tiegel zwischen den W-Stäben plaziert.

5.4.5 Standardmessungen zur Kalibration

Mit der veränderten Ausheizmethode konnten Versuche zur Kalibration der Anlage mit dem Silikatstandard wiederholt werden. Es wurde der Silikat Standard III eingewogen. Durch seine Feinkörnigkeit ist allerdings eine Plazierung zwischen den W-Stäben nicht möglich gewesen. Ein erster Versuch ergab eine Wiederfindungsrate von 48% (s. Tab. 5.10). Es ist nicht sicher, ob und wieviel Silikat sich durch den Unterdruck der Erwärmung entzog. Möglicherweise aber lag die Ursache auch am Sauerstoffmangel.

Zum zweiten Versuch wurde am unteren Ende des Reaktionsrohr ein Schliff angebracht, um das O_2-Gas (Reinheit 5.6) von unten am Tiegel vorbeiströmen zu lassen. Erst im Anschluß an das Ausheizen wurde auf eine Potentiometerstufe von 1 zurückgeregelt, die folgende O_2 Zugabe von ca. 10 mbar (Volumen einschließlich erster Kühlfalle) bewirkte eine rasche Abkühlung des Wolframs. Der Sauerstoff sollte bis zum ehemaligen Unterdruck (Unterdruck vor der O_2-Zugabe) abreagieren. Die Wiederfindungsrate stieg auf 89% (s. Tab. 5.10). Das Wolfram war oxidiert worden. Der untere blaue Stab hatte aufgrund geringerer Sauerstoffkonzentration das blauviolette Oxid $W_{10}O_{29}$ gebildet, während der obere gelbe Stab oberflächlich zum "Wolframocker" WO_3 oxidierte. Ein Aufheizen im Vakuum löste die oberflächliche Oxidation und die W-Stäbe erschienen wieder metallisch glänzend.

Obwohl die Wiederfindungsrate beachtlich gestiegen war, konnte immer noch nicht mit Sicherheit eine Ursache für die fehlenden 11% angegeben werden. Prinzipiell bestätigt dieser Versuch die Möglichkeit, mit dieser Anlage und diesem Verfahren Kohlenstoff aus einem Silikat auszuheizen und zum Kohlendioxid zu oxidieren. Trotzdem wäre eine höhere Wiederfindungsrate wünschenswert, bzw. sollte die Ursache für einen Verlust erkennbar sein. Nur wenn die Methode eine nahezu 100%ige Wiederfindungsrate gewährleistet, kann von einer Linearität zwischen Druck und Stoffmenge gesprochen werden. Ohne diese Linearität ist eine Kalibration mit zwei Meßpunkten nicht zu machen. Deshalb wurde ein Stahl-Standard (NIST Steel-Standard 337a, Kohlenstoffgehalt 0.969%) benutzt. Wenn die geringe Ausbeute des Silikat-Standards durch Verluste des feinkörnigen Materials aus dem Tiegel zu erklären ist

und beim Stahl-Standard eine vollständige Ausbeute zu beobachten ist, dann sind die Ergebnisse des Stahl-Standards und der Meteoritenproben (silikatische Mineralien) über den Silikat-Standard kompatibel.

Tab. 5.10: Parameter und Ergebnisse der Kalibration mit dem Carbon Silica (NIST SRM 1216) und dem Carbon Steel (NIST SRM 337a) Standards

Standard	Tiegel / ø - / [mm]	Werkstoff / ø [mm]	O_2 Zugabe	Druck [mbar]	Wiederfindungsrate [%]
Silica	Al_2O_3 / 10	2xW (6.35)	nein	10^{-2}	48
Silica	Al_2O_3 / 10	2xW (6.35)	ja	10^{-2}	89
Steel	Al_2O_3 / 10	2xW (6.35)	ja	10^{-2}	>96
Steel	Al_2O_3 / 10	2xW (6.35)	ja	10^{-2}	101
Steel	Al_2O_3 / 10	2xW (6.35)	ja	10^{-2}	98

Der Stahl-Standard bestand aus Körnern mit einem Durchmesser von 0.5 bis 1.0 mm. Als erstes wurde die Ankopplung der Stahlkörner an das magnetische Wechselfeld getestet. Mit einer Einwaage von 1.9 g emittierte der Stahl schon bei einer Potentiometerstufe von 6 weißes Licht (>1100°C). Nach ca. einer Minute blähte sich der Tiegelboden auf, fiel auf den Schliff und zerstörte ihn. Die Ankopplung war besser als erwartet. Wahrscheinlich lief die Erwärmung zu schnell und möglicherweise hatte der Tiegel einen Materialfehler, da die Bruchstelle wie ein gerader Schnitt aussah. Der Versuch wurde mit einer Einwaage von 1.174 g wiederholt. Mit einer Kohlenstoffkonzentration von 0.969% wurden in einem Volumen von 215.7 ml 107 mbar erwartet. Nach der Abtrennung des H_2O konnten 103 mbar gemessen werden. Das ist eine Wiederfindungsrate >96% (s. Tab. 5.10). Zwei weitere Versuche bestätigten dieses Ergebnis durch Wiederfindungsraten von 101% und 98%. Der chemische Fehler könnte Schätzungsweise bei ±3-4% liegen. Wenn der AMS-Fehler um ±1% berücksichtigt wird, liegen die Fehler der ^{14}C-Messung bei ca. ±5%. Genauere Fehlerangaben lassen sich erst nach wiederholten Analysen auf ^{14}C (z.B. vom Dhurmsalastandard) machen.

Zusammenfassend werden im folgenden noch einmal alle Schritte der Kohlenstoffextraktionsmethode gezeigt, so, wie sie letztendlich an dieser Anlage praktiziert wurde:

1. Ca. 150 mg Meteorit grob zerkleinern und in einen Al_2O_3Tiegel einwiegen
2. Tiegel mit zwei W-Stäben füllen (6.35 x 16 mm) und im Reaktionsrohr aufhängen
3. Anlegen eines Vakuums bis $<10^{-2}$ mbar
4. Erhitzen des CuO-Katalysators auf ca. 500°C
5. Spülen der Anlage mit totem CO_2
6. Wiederholtes Evakuieren bis $<10^{-2}$ mbar
7. Isolieren des Reaktionsrohrs mit Quarzwolle
8. Reaktionsrohr, Katalysatorraum und 1. Kühlfalle verbinden
7. Kühlen der 1. Kühlfalle mit fl. N_2
8. Einschalten des HF
9. Langsames Aufheizen bei Stufe 1 (ca. 30 min, ca. 800°C)
10. Steigern der Temperatur durch erhöhen auf Stufe 3 (<1000°C)
11. Abschalten des HF und schließen der 1. Kühlfalle
12. Aufbereitung der 1. Fraktion (siehe ab Schritt 20)
13. Anschalten des HF, Potentiometer ca. 10 min auf 1 - 3 (<1000°C)
14. Ca. 5 min auf Stufe 5 (ca.1200°C)
15. Ca. 2 min auf Stufe 7 (ca. 1400°C)
16. Ca. 30 sec bis 1 min auf Stufe 8 - 9 (manchmal auch 9.99, >1700°C)
17. Herunterregeln auf 1- 3 (800°C)
18. Zufuhr von O_2 bis ca. 10 mbar
19. O_2 abreagieren lassen ($<10^{-2}$ mbar)
20. Schließen der ersten Kühlfalle
21. Durch Trockeneis/Methanol Gemisch H_2O von CO_2 trennen
22. Messen des CO_2 Drucks mit dem Baratron
23. Kondensieren des CO_2 im Abschmelzröhrchen
24. Einleiten einer 1.5 mg C entsprechenden Menge an totem CO_2
25. Reinigen des toten CO_2 durch fraktioniertes Kondensieren
26. Messen des Drucks mit dem Baratron
27. Kondensieren des Träger CO_2 im Abschmelzröhrchen
28. Abschmelzen der Probe

Zur besseren Anschaulichkeit sind die wichtigsten Schritte des Extraktionsgangs mit mehr chemischer Hintergrundinformation in zwei Fließdiagrammen dargestellt (s. Abb. 5.4 u. 5.5):

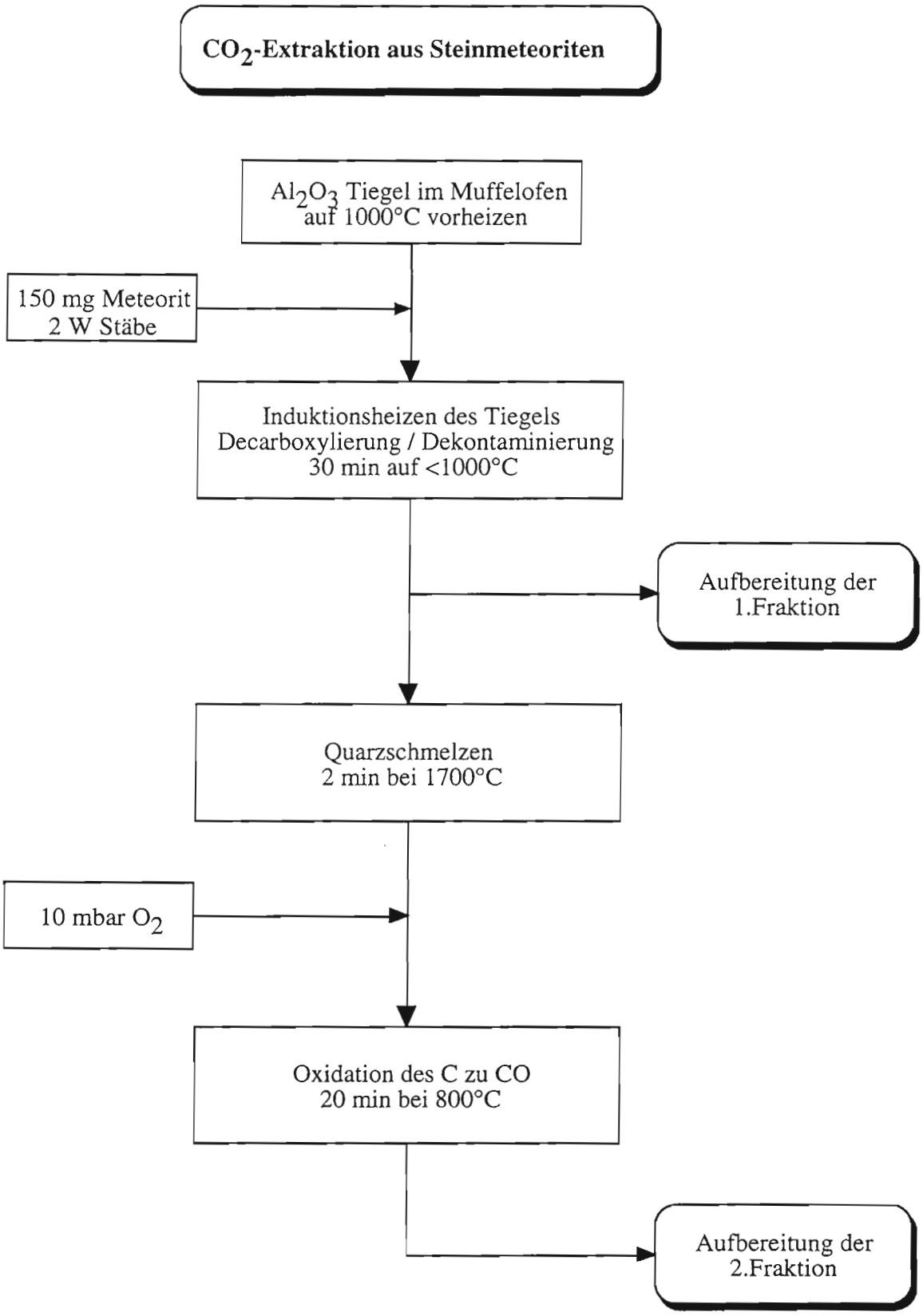


Abb. 5.4: Flußdiagramm der CO_2 Extraktion aus Steinmeteoriten

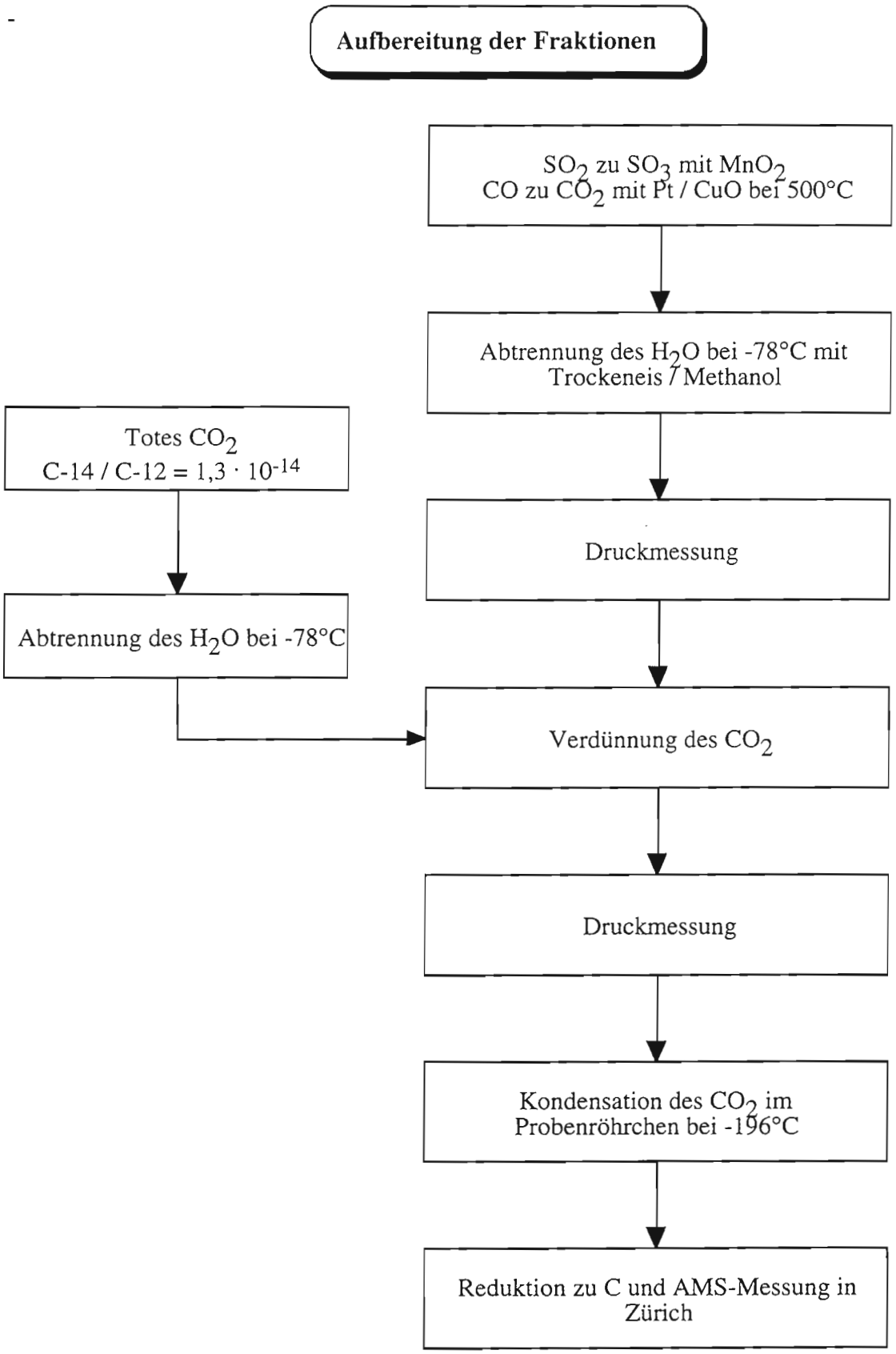


Abb. 5.5: Flußdiagramm der Aufbereitung der CO_2 Fraktionen

5.5 Erste ^{14}C Messungen an Meteoriten

Der Meteorit Bruderheim ist am 4. März 1960 in Alberta, Kanada, gefallen. Die Masse seiner Fragmente betrug zusammengenommen 303 kg, die in einem Umkreis von 3 km zusammengetragen wurden. Er wurde 28.6 Ma bestrahlt, wie Edelgasanalysen gezeigt haben ($^{21}Ne = 10.14 \cdot 10^{-8}$ cm^3/g; $^{22}Ne/^{21}Ne = 1.096$ [SchER93]).

Prinzipiell werden zur Ermittlung von Produktionsraten Fälle bevorzugt, da das terrestrische Alter bekannt ist und Verwitterungen noch keinen Einfluß auf den Meteoriten hatten. So entwickelte sich neben anderen ' Fällen ' der Meteorit Bruderheim zu einem geeigneten Objekt für ^{14}C Messungen. Einerseits konnte aufgrund der langen Exposition von einer ^{14}C-Sättigung ausgegangen werden, in der die spezifische Aktivität gleich der Produktionsrate ist, zum anderen wurde er Wissenschaftlern leicht zugänglich, weil er in viele kleine Fragmente zerfallen war. Er wurde im Laufe der Zeit zu einem " ^{14}C Standard ", da jede Arbeitsgruppe, die ^{14}C Messungen veröffentlichte, auch Ergebnisse einer ^{14}C Bruderheim Analyse vorlegte.

Tab. 5.11: Darstellung der ^{14}C Aktivitäten des L-Chondriten Bruderheim von verschiedenen Autoren, mit Hinweis auf die Analysenmethode Zählrohr (1) oder AMS (2).

Autoren	Jahr	Methode	Bruderheim ^{14}C [dpm/kg]	Bemerkung	Referenz
Suess und Wänke	1962	1	55.8 ± 3.0		[SUE62]
Goel und Kohman	1962	1	63 ± 5		[GOE62]
Boeckl	1971	1	56.5 ± 5.0		[BOE71]
Fireman	1978	1	57 ± 3		[FIR78]
Fireman und Norris	1981	1	23 ± 2 38 ± 2	<1000°C Schmelze	[FIR81]
Kigoshi und Matsuda	1986	1	52.9 ± 2.3		[KIG86]
Fireman	1983	2	49.8 ± 1.8		[FIR83]
Beukens et al.	1988	2	22.3 ± 0.2 47.6 ± 0.3 2.5 ± 0.1	<1000°C Schmelze 2. Schmelze	[BEU88]
Jull und Donahue	1988	2	66.4 ± 0.6		[JUL88]
Jull et al.	1989	2	46.8 ± 1.4	>500°C	[JUL89]

In Tabelle 5.11 ist ein Überblick über die bisher veröffentlichten Bruderheim ^{14}C Aktivitäten gegeben. Die ersten ^{14}C Messungen des Meteoriten Bruderheim wurden von Suess und Wänke [SUE62] und Goel und Kohman [GOE62] veröffentlicht. Wie schon in Kap. 5.1 erwähnt, analysierten sie mit Hilfe eines Zählrohres. Auch Kigoshi und Matsuda [KIG86] benutzten 1986 noch das Zählrohr, während Fireman 1983 [FIR83] bereits mit Hilfe der AMS analysierte.

Die durchschnittliche Produktionsrate aller Messungen zusammen beträgt 58.2 dpm/kg. Werden die Werte nach diesen zwei Methoden getrennt, so ergeben sich mittlere Produktionsraten von 57.7 dpm/kg für die Zählmethode und 58.8 dpm/kg für die AMS-Methode. Bis auf Fireman und Norris [FIR81] sowie Beukens et al. [BEU88] und Jull et al. [JUL89] sind keine Aussagen über Vorfraktionen zur Dekontaminierung von terrest-rischem ^{14}C veröffentlicht worden. Diese Produktionsraten, die als sogenannte Schmelz-fraktionen bezeichnet wurden, liegen um ca. 10 dpm/kg (bzw. 20 dpm/kg bei Fireman und Norris) niedriger als der Durchschnitt.

Unsere Messung wurde nach dem oben beschriebenen Verfahren durchgeführt. Die Einwaage betrug 162.5 mg. Der Meteorit wurde grob gemörsert. Nach Abschmelzen der zwei Fraktionen wurden die CO_2-Proben nach Zürich geschickt. Dort, in der ETH Hönggerberg, werden sie zu Kohlenstoff reduziert, im Gewichtsverhältnis von 1 : 4 mit Co vermischt und in Probenhalter gepreßt, die zur AMS-Messung kommen. Werden ^{14}C-Ionen detektiert, ist es für die Standardisierung wichtig, neben dem ^{12}C- auch den ^{13}C-Strom zu messen. Mit dem $^{13}C/^{12}C$ Verhältnis können Abweichungen vom normalen Isotopenverhältnis von 1.1% erkannt und so ^{14}C Konzentrationen in bezug auf Isotopenfraktionierungen korrigiert werden. Die Abweichungen werden in Promille relativ zum PDB-Kalkstandard (Peedee-Formation, Schich-ten des Schwanzstachels der Belemniten in Süd-Carolina) als $\delta\ ^{13}C$ angegeben. Für das kosmogen produzierte Nuklid ^{14}C in Meteoriten stellt sich die Frage der Isotopen-fraktionierung nicht. Für weitere Informationen über die Messung von ^{14}C an der PSI/ETH-Tandem-AMS-Anlage an der ETH Hönggerberg in Zürich verweise ich auf Suter et al. 1984 [SUT84], Wölfli 1987 [WÖL87] und Suter 1990 [SUT90].

Die erste Fraktion mit einer Ausheiztemperatur bis 1000°C erbrachte 9.7 dpm/kg. Die zweite Fraktion, d.h. die Schmelzfraktion mit Temperaturen über 1000°C ergab eine Aktivität von 47.6 dpm/kg. Tab. 5.12 zeigt einen Vergleich zwischen den drei Messungen von Beukens, Jull et al. und dieser Arbeit:

Tab. 5.12: ^{14}C Messungen des L-Chondriten Bruderheim von Autoren, die in Vorfraktionen dekontaminierten und mit Hilfe der AMS analysierten.

Autor	Einwaage [g]	Ausheiztemperatur [°C]	Aktivität [dpm/kg]	Referenz
Beukens et al.	1.148	>1000, melt + remelt	50.1 ± 0.3	[BEU88]
Jull et al.	0.124 - 0.333	>250 - >500	46.8 ± 1.4	[JUL89]
diese Arbeit	0.1625	>1000	47.6 ± 2.0	diese Arbeit

Die Aktivitäten aller drei Messungen stimmen sehr gut überein. Dabei scheint es unerheblich, ob mit Ausheiztemperaturen bis 250 oder bis 1000°C gearbeitet wird. Zu bedenken ist allerdings, daß es sich hier um einen sehr jungen Meteoriten ohne Verwitterungsspuren handelt. Wie in Kap. 5.4.2 gezeigt wurde, kann bei ' Funden' je nach Verwitterungsgrad terrestrisches ^{14}C in Carbonaten auftreten, die sich erst bei höheren Temperaturen als bis 250°C zersetzen. Wichtig in diesem Zusammenhang ist die Tatsache, daß mit einer Ausheiztemperatur von 1000°C kein kosmisches ^{14}C verloren geht. Das ist mit diesem Vergleich gezeigt worden.

Ein Stück des LL6-Chondriten Dhurmsala wird, wie in Kap. 4.3.2 beschrieben, als Interlaboratoriumsstandard genutzt. Er ist 1860 in Indien gefallen. Eine Analyse nach dem oben beschriebenen Verfahren ergab eine ^{14}C Aktivität von 53.0 ± 2.3 dpm/kg. Die Größenordnung dieser Aktivität stimmt sehr gut mit dem für Bruderheim überein. Diese 53.0 dpm/kg können als Produktionsrate bezeichnet werden.

Mit diesen Ergebnissen ist das in dieser Arbeit entwickelte Verfahren zur Bestimmung des kosmogenen ^{14}C in Meteoriten bestätigt worden. Das Verfahren sollte auch an anderen Klassen der Steinmeteorite anwendbar sein. Eine Übertragung auf die Analyse von Bestrahlungstargets muß im Einzelfall geprüft werden.

6. Experimentelle Ergebnisse

Im Rahmen dieser Doktorarbeit wurden 37 Meteorite auf ^{10}Be und ^{26}Al untersucht. Für 15 dieser Meteorite wurden ^{14}C Analysen durchgeführt. Es handelt sich um 19 H-Chondrite, 8 L-Chondrite, 3 LL-Chondrite, je einen CV- und CM-Chondriten und je einen Eucriten, Diogeniten, Aubriten und Howarditen als Achondrite.

12 der untersuchten Meteorite sind in der Antarktis gefunden worden (s. Tab. 6.1) und stammen ausschließlich aus dem Allan Hills Icefield am Rande des Polarplateaus in Victoria Land auf ca. 2000 m Höhe. Die Meteorite wurden während der deutschen GANOVEX V Expedition der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe Hannover gesammelt [DEL89], die vom Dezember 1988 bis Januar 1989 stattfand. Alle 12 Meteorite sind auf ^{10}Be und ^{26}Al analysiert worden. 9 der untersuchten Meteorite sind H-Chondrite, 2 gehören zu den L- und einer ist ein LL-Chondrit. Der größte Meteorit ist der ALH 88002 mit einer Masse von 358.4 g. Mit steigender Nummerierung werden die Massen kleiner. Der ALH 88019 hatte eine Fundmasse von 57.4 g. Von ihm wurden wegen ungewöhnlicher ^{10}Be und ^{26}Al Werte zwei Fragmente untersucht, wovon das erste Fragment zweimal analysiert wurde. Vom ALH 88019 gibt es in der Literatur Edelgaswerte [SchER93], wie in der Fußnote der Tabelle X.X zu sehen ist. Auch der ALH 88012 ist zweimal analysiert worden, da die erste ^{26}Al Analyse keinen Strom ergab. Thermolumineszenzdaten stehen nur für den ALH 88014 zur Verfügung [BEN91].

13 Meteorite, die in dieser Arbeit untersucht wurden, sind in der Sahara gefunden worden (s. Tab. 6.2). Es handelt sich um Chondrite aus den Regionen Acfer (9), Adrar (1), Hammadah al Hamra (1), Ilafegh (1) und Tanezrouft (1). Bis auf den Hammadah al Hamra 004 stammen alle Saharameteorite aus Algerien. Die Acfer's und der Adrar 003 wurden in dem Departement Agemour gefunden. Die Meteorite Tanezrouft 006 und Ilafegh 013 kommen aus dem Departement Tanezrouft. Der Hammadah al Hamra 004 kommt aus Libyen, aus einer Ebene im Jabal al Gharb. Diese Meteorite wurden zwischen 1989 und 1990 gefunden. 9 Meteorite gehören zu den H-Chondriten, 3 zu den L-Chondriten und einer zu den LL-Chondriten. Ihre Fundmassen liegen zwischen 745 und 118 g, nur der Acfer 028 hat ein höheres Gewicht von 3130 g. Neben den ^{10}Be und ^{26}Al Analysen wurden die Saharameteorite auch auf ^{14}C untersucht (s. Tab. 6.2). Zu sehen sind pro Meteorit zwei auf ^{14}C analysierte Fraktionen: Die Fraktion über 1000°C bis zur Schmelze (s. >1000°C) und die Fraktion bis 1000°C (s. <1000°C). Das Verfahren der Berechnung der Aktivitäten aus den

konventionellen ^{14}C Altern, in denen die ^{14}C Ergebisse üblicherweise angegeben werden, ist im Anhang zu sehen.

Die restlichen 12 Meteorite werden unter sonstige Meteorite zusammengefaßt. Sie bilden eine Gruppe mit den 4 seltenen Achondriten der Unterklassen Eucrit, Diogenit, Aubrit und Howardit, mit je einem CV- und CM-Chondriten, mit einem LL- und H-Chondriten und 4 L-Chondriten. Die Hälfte der 12 Meteorite sind sogenannte Fälle* . Sie sind in Tabelle 6.3 mit # gekennzeichnet. Die Fundmassen variieren über einen sehr großen Bereich. So hat der Aubrit Norton County ein Gewicht von 1000 kg und repräsentiert damit in der Auswahl der Meteorite in dieser Arbeit eine Masse, die größer ist als alle anderen zusammengenommen. Analysiert wurden diese Meteorite auf ^{10}Be und ^{26}Al mit Ausnahme des Meteoriten Bruderheim, der auf ^{14}C untersucht wurde. Zusätzlich existieren in der Literatur ^{53}Mn sowie ^{21}Ne und $^{22}Ne/^{21}Ne$ Edelgasdaten. In Tabelle 6.3 sind die daraus berechneten Expositionsalter zu sehen. Für den Meteoriten Murchison konnte kein $^{22}Ne/^{21}Ne$ Verhältnis in der Literatur gefunden werden. Dafür wurde das mittlere Verhältnis $^{22}Ne/^{21}Ne = 1.11$ aus dem Meteoriten St. Severin benutzt, der einen effektiven Radius von 27 cm** hat.

---

* Fälle: Meteoroide , die bei ihrem Fall beobachtet wurden

** St. Severin: LL6 Chondrit mit der Form eines Ellipsoids mit den Hauptachsen der Längen 40 cm, 25 cm und 20 cm

Tab. 6.1: ^{10}Be und ^{26}Al Meßergebnisse der antarktischen Meteorite

Meteorit	Klass.	Fundmasse [g]	^{10}Be [dpm/kg]	^{26}Al [dpm/kg]	$^{26}Al/^{10}Be$
ALH 88002	L4	358.4	18.6±1.1	52.1±3.4	2.80
ALH 88004	LL4	315.7	13.2±0.8	73.4±4.5	5.56
ALH 88008	H4/5	153.5	18.6±1.1	55.6±4.3	2.99
ALH 88010	H4/5	141.5	16.6±1.0	42.7±3.1	2.57
ALH 88011	H3	103.0	14.8±0.9	38.3±2.9	2.59
ALH 88012	L6	102.5	19.1±1.2		
			18.1±1.2	65.3±5.4	3.61
ALH 88013	H4	89.3	15.1±0.9	52.6±3.9	3.48
ALH 88014*	H5	84.1	15.5±1.0	56.5±4.1	3.65
ALH 88016	H4	73.7	19.9±1.2	56.4±4.1	2.83
ALH 88017	H4	70.4	20.0±1.2	56.8±4.8	2.84
ALH 88018	H5	67.1	19.4±1.2	53.1±3.5	2.74
ALH 88019**	H5	57.4	6.0±0.4	10.3±1.2	1.72
			5.4±0.5	10.5±1.3	1.94
ALH 88019b	H5		5.4±0.5		

* ALH 88014 Thermolumineszenzdaten [BEN91]: 32.0±0.1 krad

** ALH 88019 Edelgasdaten [SchER93]: $^{21}Ne = 11.56 \cdot 10^{-8}$ cm^3/g, $^{3}He = 52.41 \cdot 10^{-8}$ cm^3/g,
$^{38}Ar = 1.68 \cdot 10^{-8}$ cm^3/g, $^{22}Ne/^{21}Ne = 1.138$
$^{3}He/^{21}Ne = 4.53$

Tab. 6.2: ^{10}Be, ^{14}C und ^{26}Al Meßergebnisse der Sahara-Meteorite.

Meteorit	Klass.	Fundmasse [kg]	^{10}Be [dpm/kg]	^{26}Al [dpm/kg]	$^{26}Al/^{10}Be$	^{14}C (>1000°C) [dpm/kg]	^{14}C (<1000°C) [dpm/kg]
Acfer 022	H3.7	0.192	17.4±1.1	53.7±4.2	3.09	13.5±0.6	4.4±0.2
Acfer 023	H3	0.118	20.4±1.5	61.4±4.7	3.01	3.5±0.2	2.7±0.1
Acfer 129	H3	0.162	21.0±1.4	88.7±6.4	4.73	4.4±0.2	2.7±0.1
Acfer 153	H3	0.211	15.6±1.3	$		8.5±0.4	6.6±0.3
Acfer 171	H3	0.313	18.7±1.3	$		15.2±0.8	6.2±0.3
Acfer 028	H3.8	3.130	20.4±1.5	53.2±4.5	2.61	14.7±0.6	8.9±0.4
Ham. el H. 004	H5	0.296	13.0±0.9	28.9±2.3	2.22	10.5±0.5	6.8±0.3
Ilafegh 013	H3	0.745	9.1±0.7	31.1±2.5	3.42	22.2±1.1	6.3±0.3
Tanezrouft 006	H3	0.331	16.2±1.1	47.0±3.9	2.90	13.2±0.7	6.0±0.3
Acfer 039	L3	0.225	17.6±1.2	46.3±4.1	2.63	18.1±0.8	3.2±0.1
Acfer 066	L3	0.517	17.6±1.2	51.9±5.0	2.95	5.9±0.3	2.7±0.1
Acfer 080	L3.9	0.574	14.5±1.1	40.6±3.4	2.80	18.0±0.8	2.9±0.1
Adrar 003	LL3	0.287	23.3±1.5	$		19.9±1.0	10.3±0.5

$ Zur AMS Messung in Zürich, Daten lagen bei Abschluß der Arbeit noch nicht vor.

*Tab. 6.3: ^{10}Be, ^{14}C und ^{26}Al Meßergebnisse sonstiger Meteorite mit ^{21}Ne und $^{22}Ne/^{21}Ne$ Edelgaswerten aus der Literatur und berechneten Expositionsalter. Beobachtete Fälle sind mit # gekennzeichnet, andere sind gefunden worden. Mit * markierte Expositionsalter sind nach theoretischen Rechnungen aus Herpers et al. 1994 [HER94] geschätzt worden.*

Meteorit	Klass.	Fundmasse [kg]	^{10}Be [dpm/kg]	^{26}Al [dpm/kg]	$^{26}Al/^{10}Be$	^{21}Ne [10^{-8} ccm/g]	$^{22}Ne/^{21}Ne$	$t_{exp.}$ [10^6 a]	^{53}Mn [dpm/kg Fe]
Leoville	CV3	8.1	21.1±1.3	$		2.38	1.416	>10	299 ± 30
Murchison#	CM2	100.	10.7±0.8	39.5±3.0	3.69	0.38	1.11	1.4	121 ± 8
Mills	H6	167.4	16.4±1.5	52.1±3.5	3.18				445 ± 32
Floyd	L4	13.	20.6±1.8	71.3±4.6	3.46	3.91	1.092	10.8	426 ± 34
Armel Yuma	L5	9.2	18.3±1.4	59.1±4.9	3.23	4.03	1.14	13.8	468 ± 24
Bruderheim#*	L6	303.	---	---	---	10.14	1.096	28.6	
Calliham	L6	40.	19.4±1.5	54.3±6.8	2.80	8.60	1.112	26.1	494 ± 49
Dhurmsala#	LL6	14.8	21.5±1.6	69.9±4.3	3.25	4.70	1.083	12.4	450 ± 45
Dh.Std.*	LL6	0.072	21.5±1.1	69.7±3.3	3.24				
Camel Donga	Euc	2.9	20.6±1.3	94.1±7.3	4.57	4.80	1.144	18.*	
Johnstown#	Dio	40.3	23.7±1.4	79.5±5.1	3.35	8.30	1.096	29.*	
Norton County#	Aub	1000.	27.3±2.0	80.2±6.7	2.94	54.3	1.109	155.*	
Washougal#	How	0.23	24.3±1.6	97.7±6.3	4.02	12.80	1.078	35.*	

* Bruderheim: ^{14}C (<1000°C) = 9.7±0.4 dpm/kg; ^{14}C (>1000°C) = 47.6±2.0 dpm/kg; wegen begrenztem Analysenmaterial konnte kein ^{10}Be und ^{26}Al analysiert werden. Dh.Std.: ^{14}C (>1000°C) = 53.0 dpm/kg.

$ Zur AMS Messung in Zürich, Daten lagen bei Abschluß der Arbeit noch nicht vor.

7. Produktionsraten kosmogener Nuklide in Meteoriten

Produktionsraten kosmogener Nuklide ermöglichen die Beschreibung der Geschichte bestrahlter Körper im Sonnensystem und der kosmischen Strahlung selbst. Die Produktionsrate hängt ab von der Größe des Körpers, der Abschirmungstiefe der aus ihm entnommenen Probe und seiner chemischen Zusammensetzung sowie der Art, der spektralen Verteilung und der Intensität der einfallenden Teilchen (s. Kap. 2). Um die Geschichte bestrahlter Materie zu interpretieren, werden Modelle zur tiefen- und größenabhängigen Wechselwirkung hochenergetischer Teilchen mit den relevanten Targetelementen benötigt.

Meteoroide erhitzen sich bei Eintritt in die Erdatmosphäre, sodaß die Oberfläche verdampft. Diese sogenannte Ablation verhindert meist eine Analyse von SCR produzierten Nukliden. Die SCR hat im Gegensatz zur GCR eine niederenergetischere Spektralverteilung und bildet kaum sekundäre Teilchenfelder aus. Darum beziehen sich die Modelle der Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit Meteoroiden hauptsächlich auf die GCR.

Mit Hilfe von Monte Carlo Methoden können tiefen- und größenabhängige Spektren für primäre und sekundäre GCR Protonen und für sekundäre Neutronen berechnet werden [LAN94]. Abb. 7.1 zeigt die Flußdichten von primären und sekundären Protonen und sekundären Neutronen abhängig vom Radius im Zentrum von H-Chondriten [MIC91].

Die Daten sind normiert auf einen Fluß primärer Protonen von J (E>10 MeV) = 1 $cm^{-2}s^{-1}$ und wurden berechnet für Zentren von Meteoroiden mit Radien bis 120 cm. Der Fluß primärer Protonen fällt mit steigendem Radius exponentiell ab. Die sekundären Teilchenflüsse durchlaufen stattdessen ein Maximum. Während die sekundären Protonenflüsse ihr Maximum bei einem Radius von 30 cm erreichen, liegt das Flußmaximum der sekundären Neutronen in größerer Tiefe bei etwa 65 cm. In einem 65 cm Meteoriten liegt der Anteil der sek. Neutronen an der Gesamtheit aller Teilchen mit Energien über 10 MeV bei 75 %.

In Abb. 7.2 sind die tiefenabhängigen Flußdichten primärer und sekundärer Protonen und sekundärer Neutronen eines H-Chondriten mit 65 cm Radius zu sehen [MIC91]. Während in einem Meteoriten mit dem Radius nahe Null (z.B. IDP's (s. Kap. 1.1)) kaum sekundäre Teilchenfelder ausgebildet werden (s. Abb. 7.1), wird auch an der Oberfläche eines 65 cm Meteoriten durch eine intranukleare Kaskade ein sekundäres Teilchenfeld gebildet.

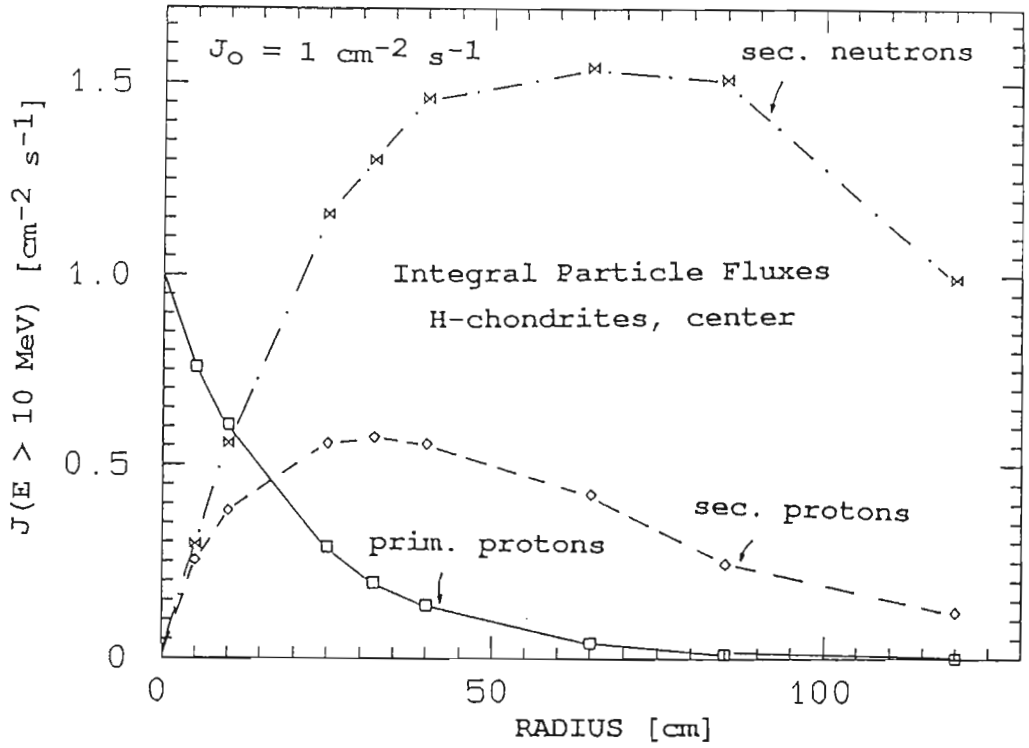


Abb. 7.1: Integrale Flußdichte (E>10 MeV) von prim. und sek. Protonen und sek. Neutronen als eine Funktion der Meteoritenradien im Zentrum von H-Chondriten [MIC91].

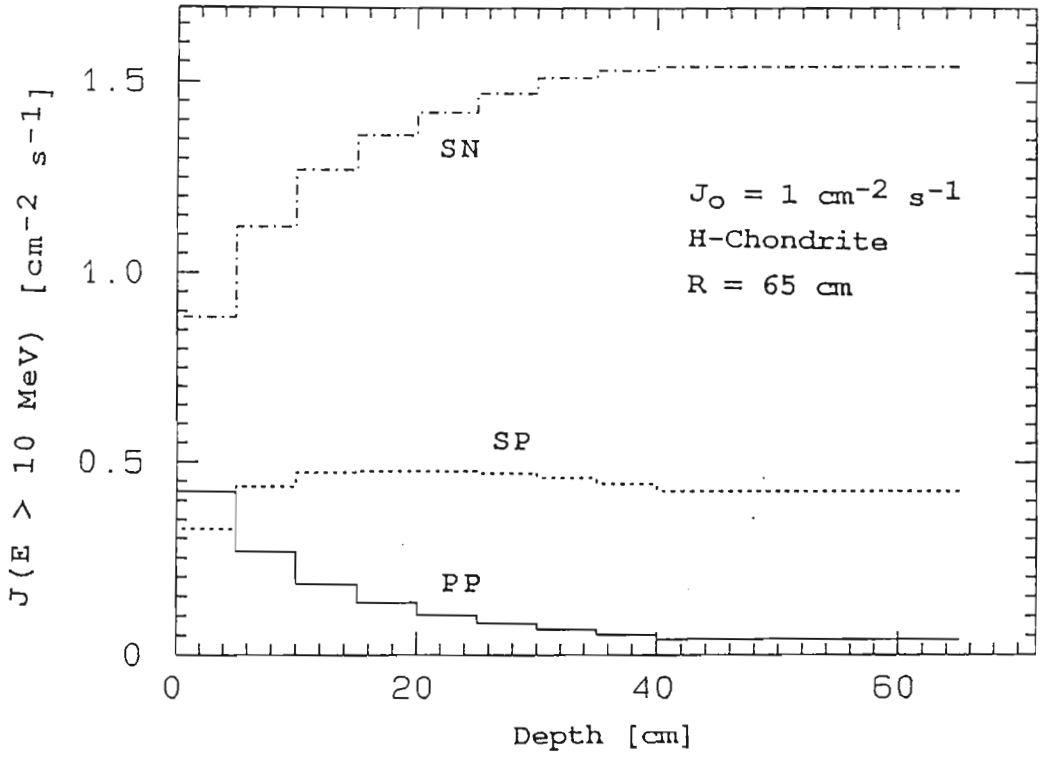


Abb. 7.2: Integraler FLuß von primären und sekundären Protonen und sekundären Neutronen als Funktion der Tiefe in einem H-Chondriten mit 65 cm Radius [MIC91].

Die berechneten Spektren werden mit experimentell ermittelten oder mittels Kernreaktionsmodellen berechneten Anregungsfunktionen gefaltet, wie in Kap. 2.6 beschrieben wurde. Sind Wirkungsquerschnitte nicht wie für ^{10}Be oder ^{26}Al durch die Analyse von Dünntarget-Bestrahlungsexperimenten zugänglich, dann muß, wie derzeit bei ^{14}C, auf semiempirische Formeln von Silberberg und Tsao [SIL73] oder theoretische Anregungsfunktionen nach dem Code ALICE LIVERMORE 82 [BLA83] zurückgegriffen werden. Die so erhaltenen theoretischen Produktionsraten können mit den experimentell analysierten Produktionsraten bestimmter Meteorite verglichen werden. Bei guter Übereinstimmung der theoretischen und experimentellen Produktionsraten für mehrere Meteorite kann durch das Modell eine mittlere Flußdichte der GCR angegeben werden.

7.1 Produktion von ^{10}Be und ^{26}Al in Steinmeteoriten

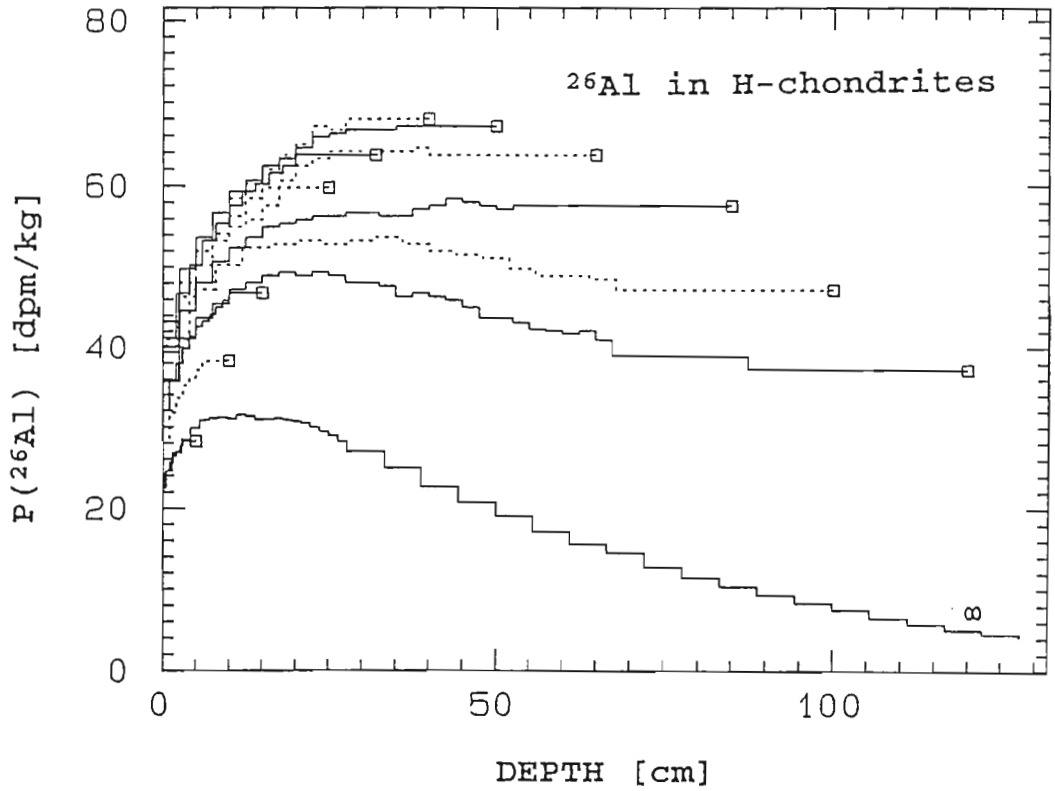


Abb. 7.3: ^{26}Al Produktionsraten von H-Chondriten in Abhängigkeit der Tiefe und Größe des Meteoriten [MIC91].

Die Produktion kosmogener Nuklide ist energieabhängig. Liegt die Schwelle der Energie für eine Reaktion niedrig, so handelt es sich um ein Niederenergieprodukt, wie es für die Produktion von ^{26}Al zutrifft. Die Haupttargetelemente von ^{26}Al sind Mg, Al, Si und Fe.

Aufgrund der bevorzugten Bildung von ^{26}Al durch Reaktion dieser Targetelemente mit sekundären Neutronen zeigen sich charakteristische Tiefenprofile (s. Abb. 7.3).

Während die Produktionsrate bei kleinen H-Chondriten durch den noch geringen Anteil eines sekundären Teilchenfeldes nur 30 dpm/kg beträgt, bewirkt es für größere Meteorite mit 40 cm Radius eine Steigerung auf 68 dpm/kg, also mehr als das Doppelte. Ab einem Radius von 65 cm beginnt die Produktionsrate zu sinken. L-Chondrite haben eine höhere Konzentration von Mg, Al und Si und liegen mit ihren Produktionsraten um ca. 8% höher als H-Chondrite. Durch Variationen der chemischen Zusammensetzung bestrahlter Materie ändert sich die Produktionsrate für ^{26}Al der verschiedenen Klassen der Steinmeteorite bis zu einem Faktor 2. Berechnete Produktionsraten von ^{26}Al, ^{10}Be und ^{14}C für Chondrite und differenzierte Meteorite sind in Tab. 7.1 zu sehen.

Tab. 7.1: Bereiche der berechneten Produktionsraten für Chondrite und differenzierte Meteorite mit Radien zwischen 5 cm und 120 cm [BHA93, HER94, MIC91]

	^{10}Be [dpm/kg]	^{26}Al [dpm/kg]	^{14}C [dpm/kg]
CM-Chondrite	16.6 - 21.8	18.2 - 54.1	19.9 - 68.6
CV-Chondrite	15.3 - 20.1	22.8 - 67.3	18.5 - 59.8
L-Chondrite	16.1 - 21.2	24.4 - 74.8	18.8 - 61.2
H-Chondrite	15.2 - 19.8	23.0 - 69.1	18.0 - 57.6
Howardite	16.7 - 22.5	35.5 - 105.7	20.5 - 70.4
Eucrite	15.8 - 21.3	42.1 - 120.4	19.3 - 66.9
Diogenite	18.1 - 24.4	28.3 - 90.5	22.5 - 76.1
Aubrite	18.7 - 25.2	31.0 - 101.3	23.7 - 77.4

Mittlere Produktionsraten wurden definiert, als noch keine detaillierten Kenntnisse über Tiefen- und Größenabhängigkeiten existierten. Andererseits kann durch unterschiedliche mittlere Produktionsraten der verschiedenen Klassen gezeigt werden, welche Auswirkungen die chemische Zusammensetzung auf die Produktionsrate hat. Sollten einzelne Meteorite stark abweichende Werte von den mittleren Produktionsraten zeigen, kann dies ein Hinweis auf veränderte terrestrische Alter, bestimmte Fundorte oder andersartige Größenverteilung sein. Tab. 7.2 zeigt mittlere ^{26}Al-Produktionsraten verschiedener Autoren.

Tab. 7.2: Mittlere ^{26}Al Produktionsraten verschiedener Autoren für H- und L-Chondrite. Die Anzahl der gemittelten Werte dieser Arbeit und der Data Compilation von Nishiizumi steht in Klammern.

	^{26}Al [dpm/kg] H-Chondrite	^{26}Al [dpm/kg] L/LL-Chondrite
diese Arbeit Antarktis	51.5 ± 7.1 (8)	63.6 ± 10.8 (3)
diese Arbeit Nichtantarktis	52.0 ± 18.7 (8)	56.2 ± 11.5 (7)
Fuse und Anders* [FUS69]	55. ± 8.	59. ± 9.
Hampel et al.* [HAM80]	56.1 ± 9.8	60.2 ± 8.4
Herpers und Englert* [HER83]	56.8 ± 10.8	58.4 ± 10.0
Nishiisumi Antarktis [NIS87]	50.2 ± 10.5 (107)	49.5 ± 10.7 (114)
Nishiisumi Nichtant. [NIS87]	53.0 ± 10.6 (80)	60.1 ± 11.4 (118)
Vogt et al.* [VOG90]	56.1 ± 1.0	60.2 ± 0.8

* Fälle

Die mittleren Produktionsraten der antarktischen und nichtantarktischen H-Chondrite von Nishiisumis Data Compilation und dieser Arbeit stimmen gut überein, während die Ergebnisse der anderen Autoren insgesamt höher liegen. Die hohe mittlere ^{26}Al-Produktionsrate der antarktischen L/LL-Chondrite ist durch die 3 relativ hohen Werte gegeben (s. Tab. 6.1). Ansonsten liegt die nichtantarktische mittlere ^{26}Al Produktionsrate dieser Arbeit mit 56.2 dpm/kg um 2 bis 4 dpm/kg tiefer als die der anderen Autoren. Bis auf die Produktionsraten dieser Arbeit und Nishiisumis Data Compilation handelt es sich in Tab. 7.2 um Produktionsraten von Fällen, um sicherzugehen, daß es sich tatsächlich um ^{26}Al-Produktionsraten handelt. Diese Aussage kann bei 'Funden' nicht gemacht werden. Deshalb können bei letzteren niedrigere mittlere ^{26}Al Aktivitäten ermittelt werden, die dann möglicherweise als Produktionsraten fehlinterpretiert werden. Im Falle des ^{26}Al müßte das mittlere terrestrische Alter >100000 a sein, damit eine Abweichung von >10 % auftritt.

Im allgemeinen liegen die Produktionsraten von L/LL-Chondriten um 7% höher als die der H-Chondrite. Dieser Trend ist auch bei den Autoren Fuse und Anders, Hampelet al. und Vogt et al. zu beobachten. Die Abweichungen liegen bei 7.3%. Die Produktionsraten nichtantarktischer L/LL-Chondrite dieser Arbeit liegen im Vergleich zu den H-Chondriten im

Mittel um 8.1% höher. Doch mit Nishiisumis Data Compilation tendieren die Produktionsraten bei den antarktischen Meteoriten um 1.3% gegen den Trend und bei den nichtantarktischen Meteoriten steigen sie im Mittel um 13.4%. Die Statistik der antarktischen L/LL-Chondrite dieser Arbeit ist wegen der geringen Anzahl der Meteorite für solche Aussagen nicht geeignet.

^{10}Be ist ein Hochenergieprodukt und wird aus seinen Targetelementen O, Mg, Al, Si, Ti, Fe und Ni durch Neutronen mit 3 - 4 mal höherer Ausbeute produziert als durch Protonen [HER91, MIC94]. In Abb. 7.4 sind berechnete ^{10}Be Tiefenprofile für verschiedene Meteoritenradien zu sehen.

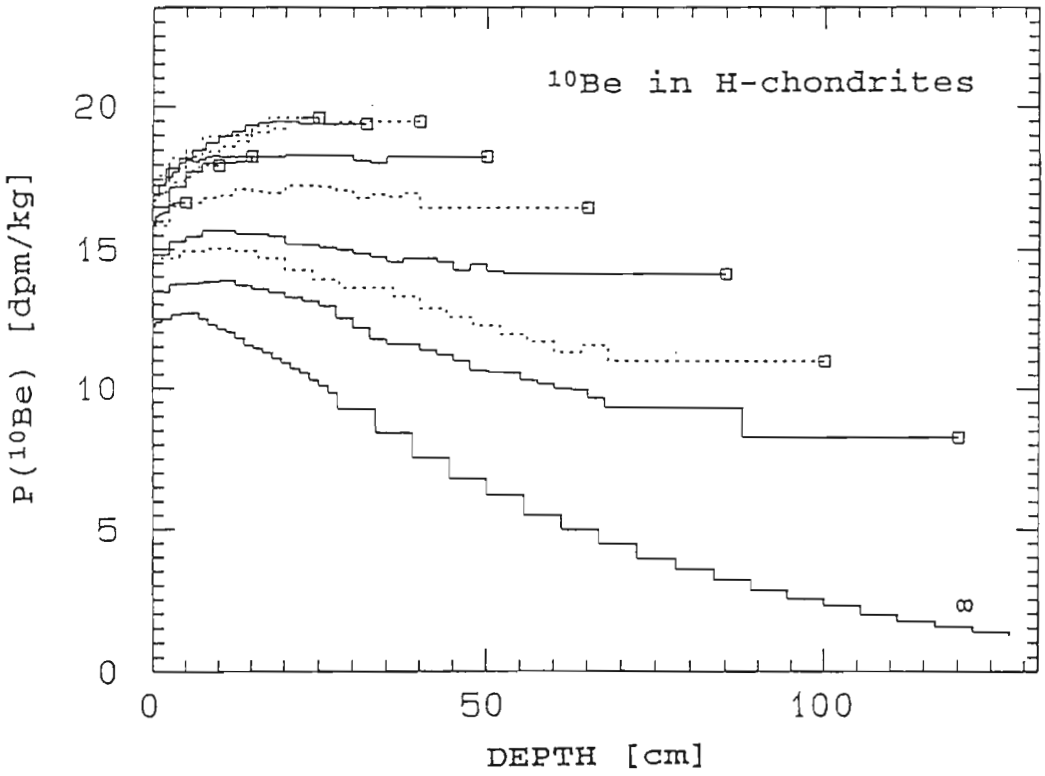


Abb. 7.4: Berechnete Tiefenprofile für die Produktion von ^{10}Be in H-Chondriten für Meteoroidenradien von 5 cm bis 120 cm und für 2π Bestrahlungsbedingungen [MIC91].

^{10}Be zeigt als Hochenergieprodukt an der Oberfläche der Meteoroide schon hohe Produktionsraten. Das Maximum der ^{10}Be Produktionsrate liegt in einer Tiefe von 40 cm, die Steigung bis dorthin ist im Gegensatz zum Niedrigenergieprodukt nicht so groß und ausgeprägt. Bei größeren Radien verschiebt sich das Maximum zu kleineren Tiefen und kleineren Produktionsraten. Im weitern Verlauf der Profile zu größeren Tiefen verkleinern sich die Produktionsraten.

Die Bereiche berechneter ^{10}Be-Produktionsraten für verschiedene Klassen der Steinmeteorite unterscheiden sich um maximal 25%. Bei Aubriten können Produktionsraten bis zu 25 dpm/kg auftreten, für H-Chondrite wurden minimal 15 dpm/kg berechnet (s. Tab. 7.1). Hier zeigt sich eine geringere Abhängigkeit von der chemischen Zusammensetzung als wie für ^{26}Al.

Die mittleren ^{10}Be Produktionsraten dieser Arbeit im Vergleich zu Nishiisumis Data Compilation [NIS87] und Vogt et al. [VOG90] sind in Tab. 7.3 zu sehen.

Tab. 7.3: Mittlere Produktionsraten von H- und L-Chondriten für ^{10}Be verschiedener Autoren im Vergleich

	^{10}Be [dpm/kg]	
	H-Chondrite	L/LL-Chondrite
diese Arbeit Antarktis	18.3 ± 2.2 (8)	19.2 ± 1.6 (6)
diese Arbeit Nichtantarktis	17.6 ± 2.1 (9)	15.9 ± 3.8 (2)
Nishiisumi Antarktis [NIS87]	17.2 ± 3.1 (23)	17.4 ± 4.9 (23)
Nishiisumi Nichtantarktis [NIS87]	17.7 ± 3.2 (26)	18.4 ± 4.5 (33)
Vogt et al. [VOG90]	20.6 ± 1.0	22.1 ± 1.1

Auch hier stimmen die mittleren Produktionsraten dieser Arbeit mit denen von Nishiisumis Data Compilation gut überein. Aufgrund geringerer Meteoritenanalysen in dieser Arbeit ist ein signifikanter Unterschied zwischen H- und L-Chondriten, wie bei Vogt et al. oder den theoretischen Berechnungen nicht zu sehen. Nur in der Statistik der antarktischen Meteorite dieser Arbeit sind höhere Produktionsraten der L/LL-Chondrite zu beobachten. Sie betragen ca. 5%. Die Werte von Vogt et al. liegen für beide Klassen um ca. 11 bzw. 15% höher. Sie übertreffen als Mittelwerte sogar die Maximalwerte der theoretischen Berechnungen (s. Tab. 7.1). Die Theorie beschreibt für ^{10}Be die Produktionsraten kleiner Meteorite gut, unterschätzt aber die Produktionsraten großer Meteorite [BHA93].

Durch die Verschiedenartigkeit der Tiefenprofile von Hochenergie- und Niedrigenergieprodukten ist es möglich, das Verhältnis ^{26}Al/^{10}Be einer bestimmten Tiefe eines Meteoriten zuzuordnen. So kann, vorausgesetzt es handelt sich um Produktionsraten, das Verhältnis als

Größen- und Tiefenindikator dienen. Abb. 7.5 zeigt eine Auftragung der Produktionsraten von ^{26}Al gegen ^{10}Be für H-Chondrite.

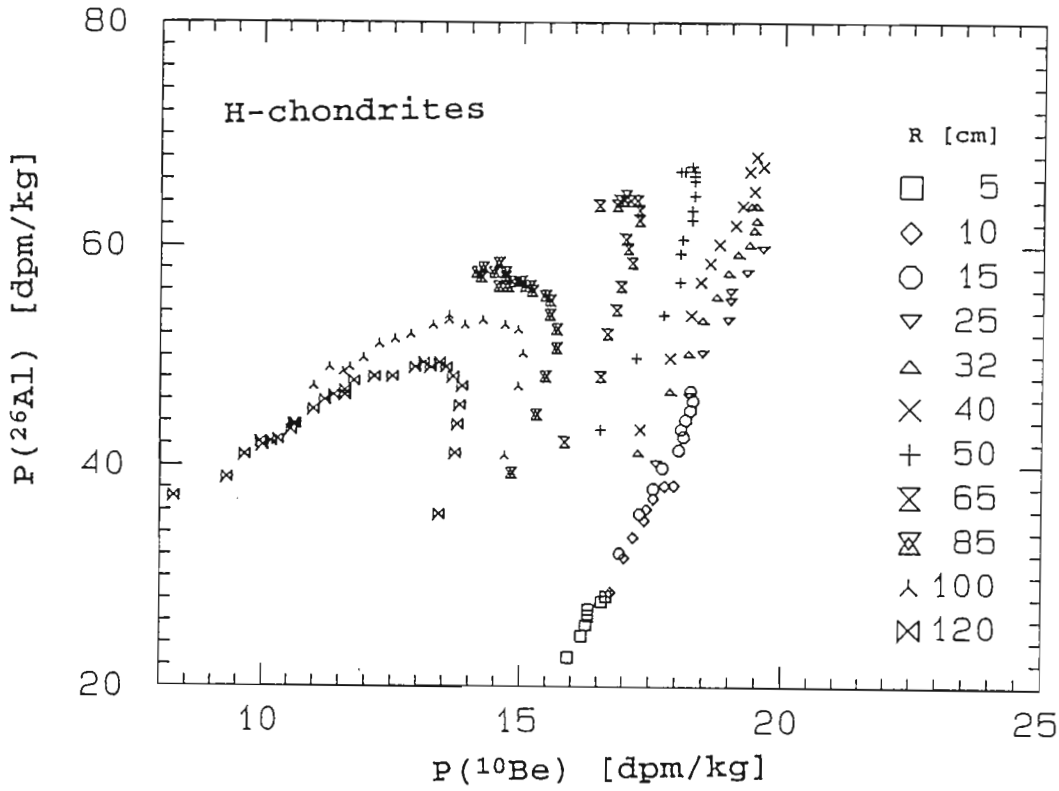


Abb. 7.5: Produktionsraten von ^{26}Al aufgetragen gegen ^{10}Be für H-Chondrite mit Radien von 5 bis 120 cm [MIC94].

Unten rechts mit einem Verhältnis von 1.7 beginnend handelt es sich um Meteorite mit 5 cm und 10 cm Radius. Wenn an der rechten Seite die Datenpunkte weiter nach oben rechts verfolgt werden, macht sich die Tiefenabhängigkeit bis zu einem Radius von 50 cm bemerkbar. Das Verhältnis beträgt am oberen Ende 3.4 (68/20; 50 cm Meteorit). Für größere Radien nimmt die Produktionsrate des Hochenergieprodukts schneller ab als die Produktionsrate von ^{26}Al. Die ^{26}Al-Produktionsrate fällt nicht unter 40 dpm/kg, während ^{10}Be auch unter 10 dpm/kg sinkt. So verschieben sich die Verhältnisse mit größerer Tiefe nach links unten. Die Verhältnisse erstrecken sich maximal bis 4.5 . Sollten experimentell ermittelte Verhältnisse von Meteoriten außerhalb des Bereichs zu finden sein, handelt es sich möglicherweise um kurze Expositionsalter, langem terrestrischem Alter, komplexer Bestrahlung, hohem ^{10}Be Verlust oder SCR produziertem ^{26}Al.

7.2 Produktion von Neon-Isotopen in Steinmeteoriten

Neon hat drei stabile Isotope, ^{20}Ne, ^{21}Ne und ^{22}Ne. Für die Meteoritenforschung sind ^{21}Ne zur Bestimmung des Expositionsalters und das Verhältnis $^{22}Ne/^{21}Ne$ als Größen- und Tiefenindikator von Bedeutung (s. Kap. 2.5).

^{21}Ne entsteht aus den Targetelementen Na, Mg, Al, Si, S, Ca, Ti, Fe und Ni. Abb. 7.6 zeigt die Produktionsrate von ^{21}Ne in H-Chondriten in Abhängigkeit von der Tiefe und Größe des Meteoriten.

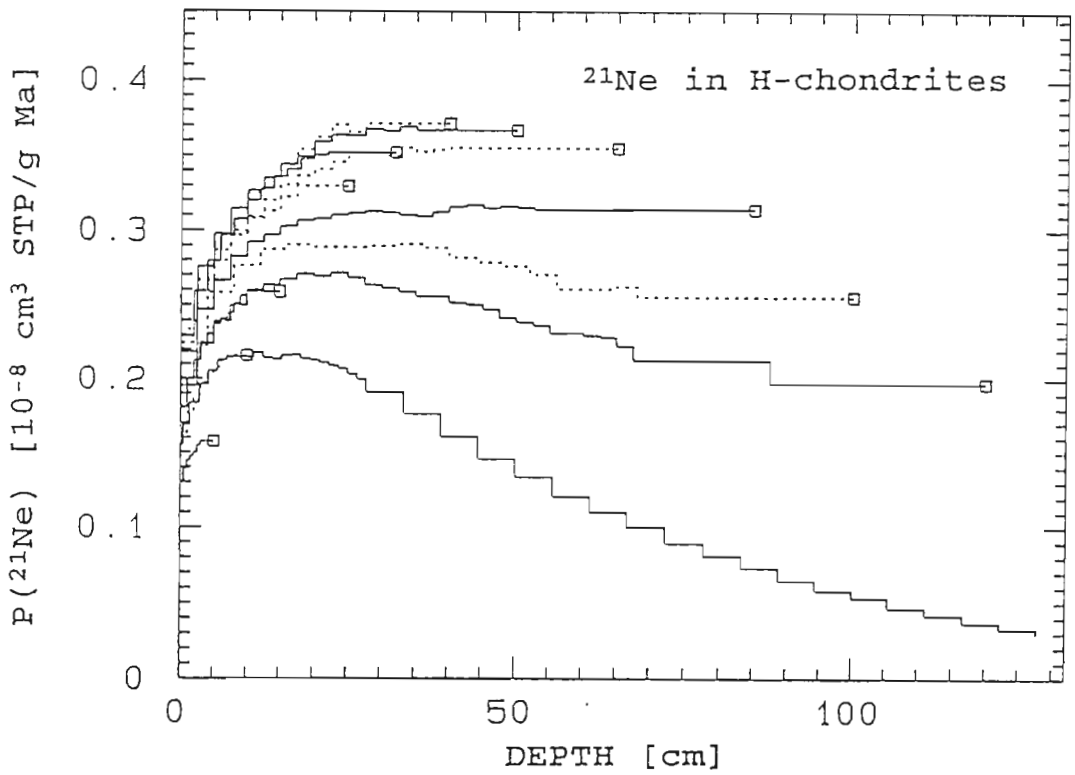


Abb. 7.6: Berechnete Produktionsraten von ^{21}Ne in H-Chondriten mit Radien von 5 bis 120 cm sowie einer 2π Bestrahlung (∞). Die Produktionsrate ist in 10^{-8} cc STP / (g Ma) (cm^3 Gas unter Standardbedingungen pro g und 10^6 a Expositionszeit) angegeben.

Eine maximale ^{21}Ne Produktionsrate der H-Chondrite von $0.371 \cdot 10^{-8}$ cm^3 / g Ma ist in einer Tiefe von 40 cm zu sehen. Die Steigungsrate von der Oberfläche eines 40 cm Meteoriten zum Zentrum beträgt 35 %. Zu kleineren Radien hin sinkt die Produktionsrate bis auf $0.129 \cdot 10^{-8}$ cm^3 / g Ma. Aufgrund des großen Bereichs von 0.129 bis $0.371 \cdot 10^{-8}$ cm^3 / g Ma und der hohen Steigungsrate von der Oberfläche zum Zentrum, ist anzunehmen, daß ^{21}Ne bevorzugt durch niederenergetische sekundäre Teilchen produziert wird, ist also wie auch

^{26}Al zu den Niedrigenergieprodukten zu zählen. Dadurch ergeben sich starke Abhängigkeiten von der chemischen Zusammensetzung, wie Tab. 7.4 mit theoretisch berechneten Produktionsraten für verschiedene Klassen von Steinmeteoriten zeigt.

Tab. 7.4: Bereiche berechneter ^{21}Ne Produktionsraten und $^{22}Ne/^{21}Ne$ Verhältnissen von Chondriten und differenzierten Steinmeteoriten mit Radien von 5 bis 120 cm.

Meteoritenklasse	^{21}Ne [10^{-8} cm^3 / g Ma]	$^{22}Ne/^{21}Ne$
CM-Chondrite	0.115 - 0.311	1.257 - 1.074
CV-Chondrite	0.129 - 0.370	1.255 - 1.064
L-Chondrite	0.137 - 0.396	1.260 - 1.086
H-Chondrite	0.129 - 0.371	1.256 - 1.085
Howardite	0.131 - 0.348	1.234 - 1.094
Eucrite	0.112 - 0.265	1.219 - 1.161
Diogenite	0.151 - 0.432	1.215 - 1.051
Aubrite	0.195 - 0.581	1.253 - 1.051

^{22}Ne ist ein etwas höherenergetisches Produkt als ^{21}Ne, das bevorzugt mit niederenergetischen Neutronen über die Reaktion ^{24}Mg (n, α) ^{22}Ne gebildet wird. Dies bedingt unterschiedliche Tiefenprofile von ^{21}Ne und ^{22}Ne. Dabei steigt ^{21}Ne mit Tiefe und Größe des Meteoroiden stärker an als ^{22}Ne. Aufgrund der verschiedenen Tiefenprofile von ^{21}Ne und ^{22}Ne ändert sich mit der Tiefe auch das Verhältnis ^{22}Ne / ^{21}Ne. An der Oberfläche von H-Chondriten wird ein hohes Verhältnis von 1.256 (s. Tab. 7.4) beobachtet, das mit zunehmender Tiefe auf 1.085 sinkt.

Da es sich hier um stabile Nuklide handelt, reichern sie sich mit zunehmender Expositionszeit an. Das Verhältnis verändert sich dadurch nicht. Es bleibt bei Abbruch der Exposition erhalten. Einfluß auf das Verhältnis kann nur die Kontamination mit terrestrischen Neonisotopen oder Verluste durch Verwitterungen nehmen. Kontaminationen sind aber durch das bekannte terrestrische Neonisotopenverhältnis (^{20}Ne : ^{21}Ne : ^{22}Ne = 90.51 : 0.27 : 9.22) korrigierbar. Das Verhältnis ^{22}Ne / ^{21}Ne ist der bisher beste Tiefen- und Größenindikator. Nur sie bilden die einzige zuverlässige Basis für Tiefen- und Größenkorrekturen von Produktionsraten. Tiefen- und Größenkorrekturen mit Radionukliden, wie beispielsweise

^{26}Al / ^{10}Be, sind prinzipiell möglich, sollten aber durch Edelgasverhältnisse überprüft werden.

7.3 Produktion von ^{14}C in Steinmeteoriten

Die Produktion von ^{14}C in Meteoriten ist, obwohl schon seit 1962 [SUE62] Analysen vorliegen, von den hier erwähnten kosmogenen Nukliden das am wenigsten verstandene Nuklid. Es herrscht ein großer Mangel an Wirkungsquerschnitten der Produktion des ^{14}C aus seinen Targetelementen N, O, Mg, Al, Si, S, Ca, Ti, Fe und Ni. Es existieren relativ frühe Experimente von Tamers und Delibrias 1961 [TAM61] sowie neuere von Sisterson et al. [SIS91, 92] über protoneninduzierte Reaktionen am Sauerstoff. Sie erstrecken sich über einen kleinen Energiebereich von ca. 25 bis 180 MeV [SIS91, 92] sowie einen Wert bei 2600 MeV [TAM61]. Zusätzlich existieren noch drei weitere Wirkungsquerschnitte aus Silizium mit Energien <170 MeV. Obwohl die Bestrahlungsexperimente zur Produktion von ^{14}C bei verschiedenen Energien abgeschlossen sind, ist erst frühestens 1995 mit Ergebnissen zu rechnen.

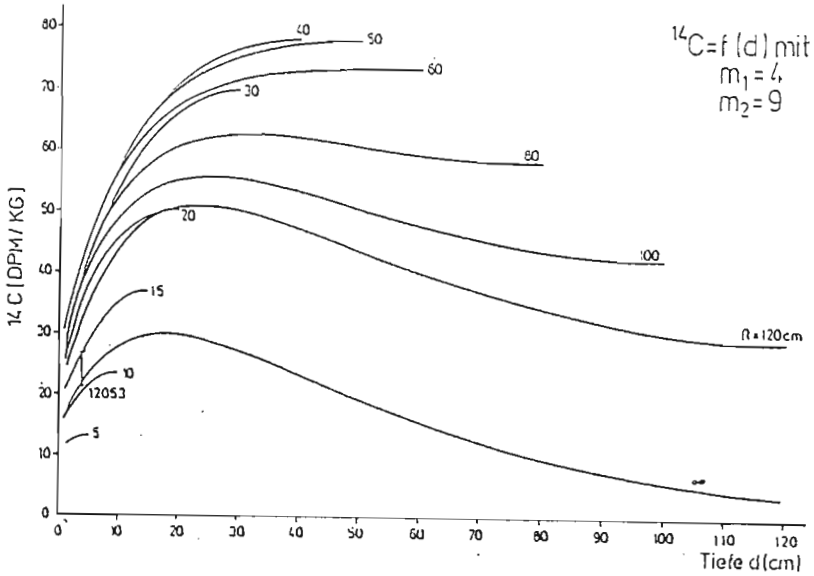


Abb. 7.7: ^{14}C Tiefenprofile von Meteoriten mit Radien von 5 - 120 cm und unter 2π Bestrahlungsbedingungen berechnet von Born 1973 [BOR73] nach Yokoyama et al [YOK72].

^{14}C Tiefenprofile sind deshalb weitgehend durch rein theoretische oder semiempirische Ansätze entstanden, denen noch die experimentelle Bestätigung fehlt. So gibt es frühe Rechnungen von Born 1973 [BOR73], die nach Yokoyama et al. [YOK72] gerechnet wurden. In Abb. 7.7 ist das ^{14}C Tiefenprofil in Abhängigkeit der Meteoritenradien zu sehen.

Schon in dieser frühen Rechnung ist deutlich eine Größen- und Tiefenabhängigkeit der ^{14}C Produktion in Meteoriten zu sehen. Die Produktionsraten liegen im Bereich von 12 bis 80 dpm/kg.

Eine neuere Modellrechnung von Michel mit den experimentellen Ergebnissen des Knyahinya Profils als Berechnungsgrundlage ist in Abb. 7.8 zu sehen.

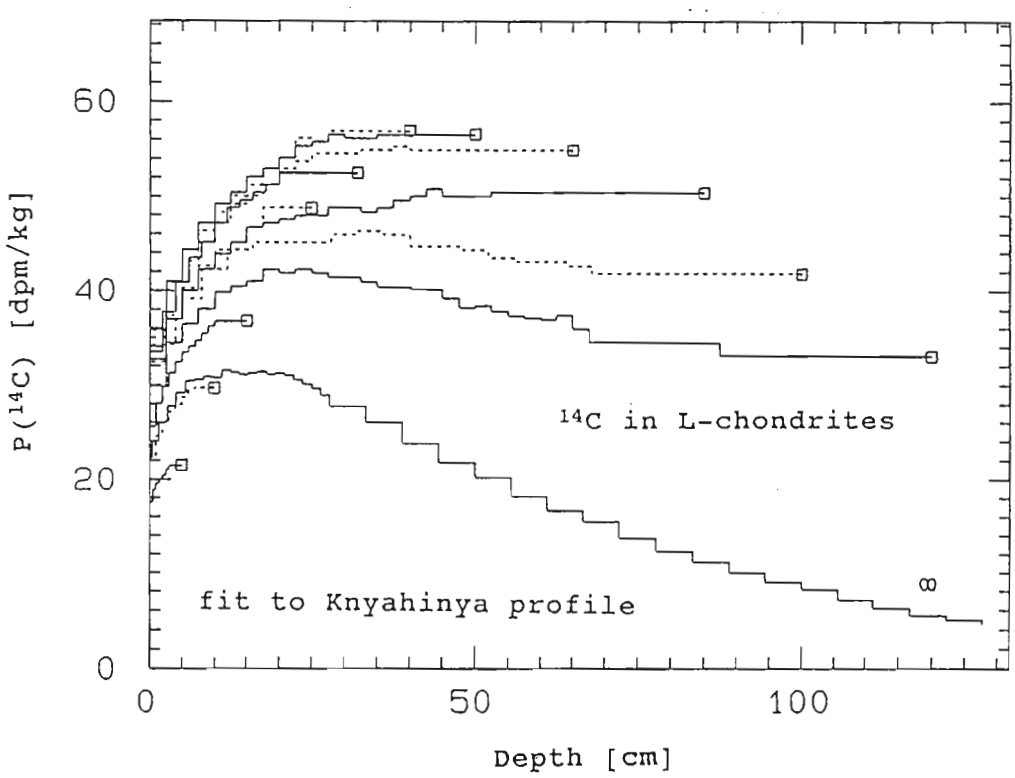


Abb. 7.8: ^{14}C Tiefenprofile von L-Chondriten mit Radien von 5 - 120 cm und unter 2π Bestrahlungsbedingungen. Die Rechnungen sind an die experimentellen Ergebnisse des Knyahinya Profils angepaßt worden [REE93].

Auch hier wird die Tiefen- und Größenabhängigkeit bestätigt. Allerdings hat sich der Produktionsratenbereich verkleinert und erstreckt sich nun von 18 - 58 dpm/kg. Den höchsten Wert erreicht ein 40 cm Meteorit im Zentrum. Seine Oberflächenaktivität beträgt ca. 35 dpm/kg. Die Steigungsrate der ^{14}C Produktionsraten von der Oberfläche bis zum Maximum ist mit ca. 40% bei einem 40 cm Meteoriten relativ hoch und mit dem Profil von ^{26}Al vergleichbar. ^{14}C ist also auch ein Niederenergieprodukt, das bevorzugt durch das moderierte sekundäre Teilchenfeld produziert wird. Die Bereiche der berechneten ^{14}C Pro-

duktionsraten (Tab. 7.1) zeigen allerdings keine so große Abhängigkeit von der chemischen Zusammensetzung wie ^{26}Al. Das kann aber an der geringen Konzentrationsschwankung der Haupttargetelemente O und Si liegen.

Neben dem Knyahinya Profil existiert noch ein Apollo 15 core Tiefenprofil von Jull et al. 1991 (s. Abb. 7.9).

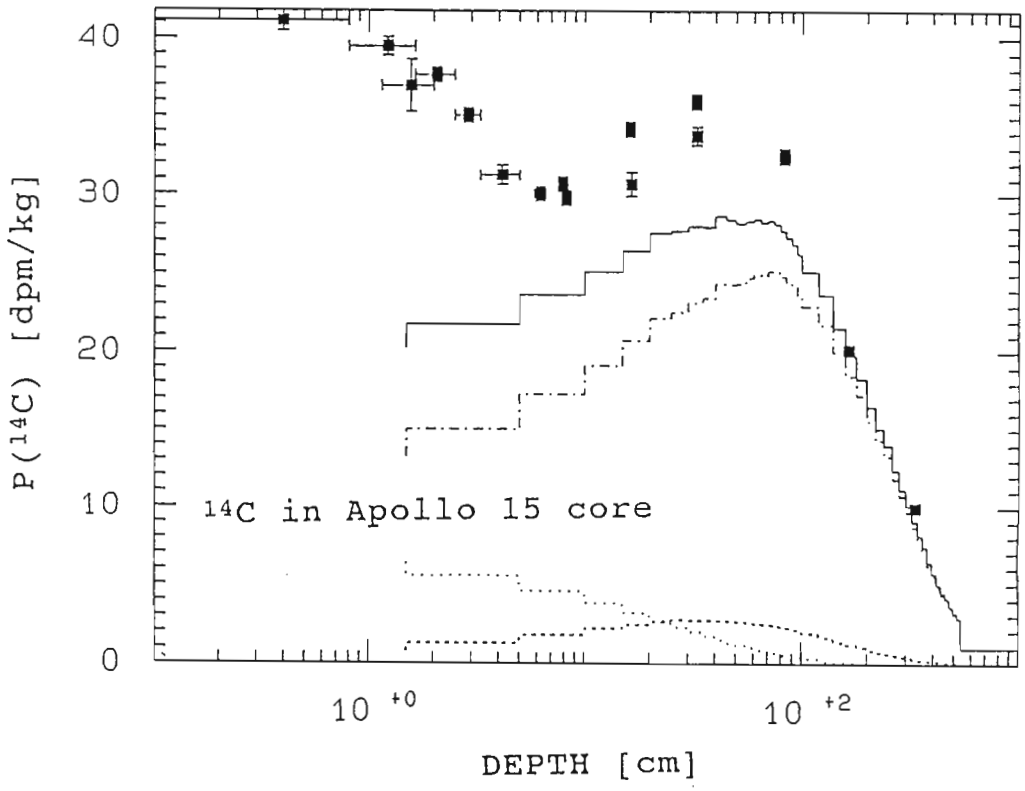


Abb. 7.9: ^{14}C in Apollo 15 core Tiefenprofil [JUL91] mit theoretischen Rechnungen von Michel.

Bei Mondproben handelt es sich um 2π Bestrahlungen, vergleichbar mit dem Radius unendlich des ^{14}C Tiefenprofils von L-Chondriten. Während bis zu einer Tiefe von 10 g/cm^2 die SCR Produktion dominiert und von 3 cm Tiefe bis zur Oberfläche ein Anstieg zu sehen ist, ist GCR produziertes ^{14}C erst ab einer Tiefe von 10 g/cm^2 zu sehen. Das GCR Profil durchläuft ein Maximum bei einer Tiefe von ca. 30 cm mit einer Produktionsrate von 33 dpm/kg. Danach fällt die Produktionsrate bis in einer Tiefe von 300 g/cm^2 auf 10 dpm/kg ab. Da es sich beim Mond um eine 2π Bestrahlung handelt, Meteorite aber einer 4π Bestrahlung unterliegen, ist die Produktionsrate von Meteoriten in entsprechender Tiefe auch doppelt so hoch. Aus dem Durchgangsmaximum in 30 cm Tiefe kann eine maximale Produktionsrate von ca. 60 dpm/kg in Meteoriten abgeschätzt werden. Das steht in guter

Übereinstimmung mit den neueren Tiefenprofilberechnungen von Michel (s. Abb. 7.9). Die Rechnung des Apollo 15 core unterschätzt das Durchgangsmaximum um ca. 30%. Die Ursachen liegen wieder an der mangelnden Verfügbarkeit von Wirkungsquerschnitten. So konnten nur die wenigen protoneninduzierten Reaktionen am Sauerstoff verwendet werden. Für die Targetelemente Mg, Si und Fe wurden Rechnungen nach Silberberg und Tsao benutzt, wobei für Si an experimentelle Daten angepaßt wurde. Für die neutroneninduzierten Reaktionen am Sauerstoff wurden ALICE-Rechnungen verwendet.

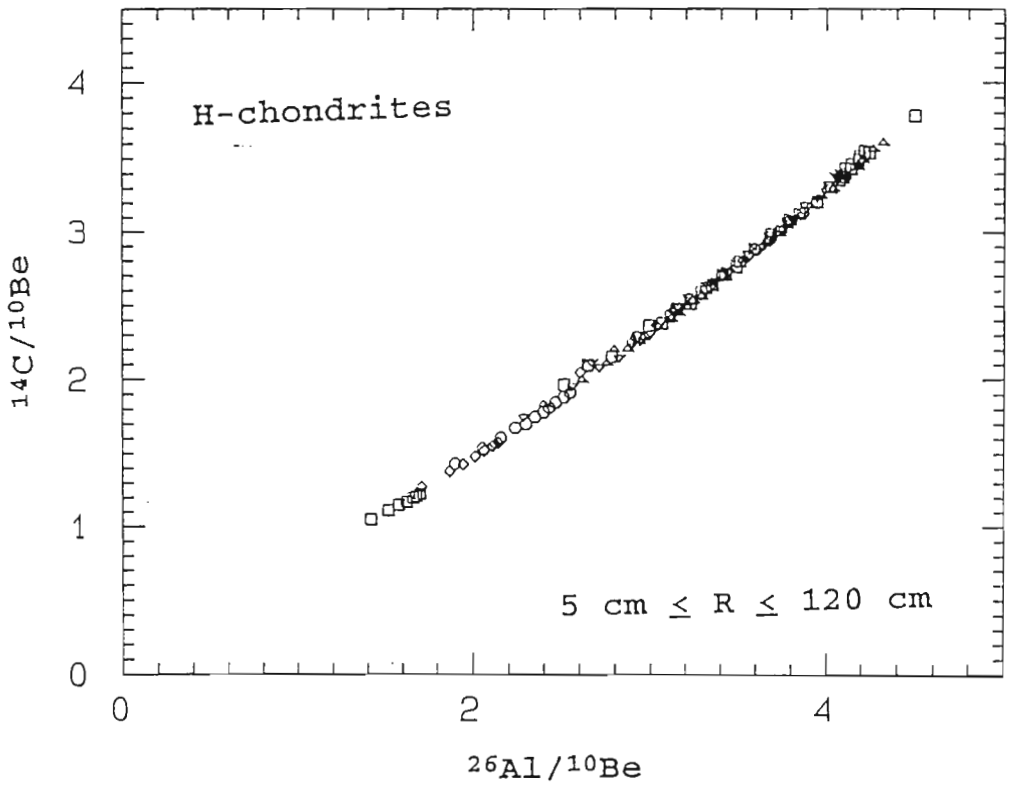


Abb. 7.10: Drei-Isotopenplott: Auftragung des ^{14}C / ^{10}Be Verhältnis gegen das ^{26}Al / ^{10}Be Verhältnis für H-Chondrite mit Radien von 5 - 120 cm [MIC94].

Auch mit ^{14}C als Niedrigenergieprodukt ist es möglich mit dem Hochenergieprodukt ^{10}Be das Verhältnis ^{14}C / ^{10}Be als Tiefen- und Größenindikator zu benutzen, sofern es sich um gesättigte Produktionsraten handelt. Wegen der relativ kurzen Halbwertszeit des ^{14}C im Vergleich zum terrestrischen Alter der Meteorite ist es problematisch, aus experimentell ermittelten Verhältnissen auf bestimmte Tiefen oder Größen zu schließen. Die Idee ist vielmehr, durch das Verhältnis ^{26}Al / ^{10}Be eine berechnete Produktionsrate von ^{14}C zu erhalten. Dazu ist ein 4 Isotopenplott notwendig. Abb. 7.10 zeigt das Verhältnis ^{14}C / ^{10}Be gegen ^{26}Al / ^{10}Be aufgetragen.

Es zeigt sich eine leicht gekrümmte Gerade. Kleine Meteorite haben niedrige Verhältnisse. Wird die Gerade weiterverfolgt, steigen die Radien bis zum Ende der Gerade auf 50 cm. Für größere Radien werden die Datenpunkte wieder kleiner. Sind die Produktionsraten eines H-Chondriten für ^{26}Al und ^{10}Be bekannt, so läßt sich mit Hilfe dieses Plotts die Produktionsrate von ^{14}C abschätzen. Dadurch ist es möglich, gemessene ^{14}C Aktivitäten einer gesättigten ^{14}C Produktionsrate zuzuordnen um dann terrestrische Alter zu ermitteln, die größen- und tiefenkorrigiert sind. Voraussetzungen sind aber gesättigte ^{10}Be und ^{26}Al Werte. Für eine endgültige Diskussion der ermittelten terrestrischen Alter kann allerdings auf Edelgasdaten nicht verzichtet werden.

8. Diskussion

Zur vollständigen Interpretation der Bestrahlungsgeschichte und Bestimmung des terrestrischen Alters werden neben den in dieser Arbeit ermittelten ^{10}Be, ^{14}C und ^{26}Al Werte, sofern vorhanden, auch kosmogene Nuklide anderer Autoren wie ^{53}Mn, ^{21}Ne und $^{22}Ne/^{21}Ne$ sowie Thermolumineszenzdaten mit einbezogen. Alle vorhandenen Informationen der untersuchten Meteorite mit berechneten Ergebnissen sind in den Tabellen 8.1 bis 8.3 zusammengefaßt. Es handelt sich um die antarktischen Meteorite (Tab. 8.1), den Sahara-Meteoriten (Tab. 8.2) und sonstige Meteorite, die nicht aus der Sahara oder Antarktis stammen (Tab. 8.3).

Zu einigen Meteoriten existieren in der Literatur auch ^{10}Be und ^{26}Al Werte. Sie sind in einem Vergleich in Tab. 8.4 bzw. Tab. 8.5 zu sehen. Die ^{10}Be Daten stimmen mit denen anderer Autoren gut überein. Es fällt auf, daß für den Meteoriten Johnstown Moniot et al. [MON83] eine relativ hohe ^{10}Be Aktivitäten gefunden haben, während für den Aubriten Norton County der in dieser Arbeit ermittelte Wert im Vergleich zu Matsuda et al. [MAT69] höher liegt. Hier könnten sich Tiefeneffekte bemerkbar machen, denn es handelt sich bei beiden um Meteorite mit relativ hohen Massen. Im Vergleich zu den theoretisch berechneten Werten für Diogenite und Aubrite (Kap. 7.1) liegen beide höheren Aktivitäten über den theoretischen Maximalwerten, was aber bei der Berechnung auf die Unterschätzung der Größeneffekte zurückzuführen sein könnte. In allen Fällen aber berühren sich die Werte in ihren Fehlerbereichen und die hier analysierten ^{10}Be Aktivitäten werden durch den Vergleich bestätigt.

Wesentlich schwieriger ist der Vergleich der ^{26}Al Aktivitäten mit den Untersuchungsergebnissen anderer Autoren. Es handelt sich hier auch um Meteorite mit relativ hohen Massen, sodaß sich gerade bei einem Niedrigenergieprodukt wie ^{26}Al hohe Aktivitätsunterschiede durch Tiefeneffekte bemerkbar machen können. So liegen die Werte der Meteorite Calliham, Floyd, Johnstown und Mills im Vergleich mit den Ergebnissen anderer Autoren weit auseinander, sodaß sie sich in ihren Fehlerbereichen nicht berühren. Doch auch im Vergleich der Werte anderer Autoren untereinander finden sich große Unterschiede, wie bei Leoville, Murchison oder Norton County zu beobachten ist. Trotzdem kann es sich hier um realistische Aktivitäten handeln, die in den jeweiligen Meteoritfragmenten tatsächlich existierten. Für eine genaue Betrachtung müßten die Tiefen der Proben, aus denen die Ergebnisse stammen, bekannt sein. Erst dann könnte diskutiert werden, ob die Abweichungen zwischen den Literaturdaten auf systematischen Fehlern der Analysen beruhen.

Tab. 8.1: ^{10}Be und ^{26}Al Meßergebnisse und $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnisse der antarktischen Meteorite

Meteorit	Klass.	Fundmasse [g]	^{10}Be [dpm/kg]	^{26}Al [dpm/kg]	$^{26}Al/^{10}Be$
ALH 88002	L4	358.4	18.6±1.1	52.1±3.4	2.80
ALH 88004	LL4	315.7	13.2±0.8	73.4±4.5	5.56
ALH 88008	H4/5	153.5	18.6±1.1	55.6±4.3	2.99
ALH 88010	H4/5	141.5	16.6±1.0	42.7±3.1	2.57
ALH 88011	H3	103.0	14.8±0.9	38.3±2.9	2.59
ALH 88012	L6	102.5	19.1±1.2		
			18.1±1.2	65.3±5.4	3.61
ALH 88013	H4	89.3	15.1±0.9	52.6±3.9	3.48
ALH 88014*	H5	84.1	15.5±1.0	56.5±4.1	3.65
ALH 88016	H4	73.7	19.9±1.2	56.4±4.1	2.83
ALH 88017	H4	70.4	20.0±1.2	56.8±4.8	2.84
ALH 88018	H5	67.1	19.4±1.2	53.1±3.5	2.74
ALH 88019**	H5	57.4	6.0±0.4	10.3±1.2	1.72
			5.4±0.5	10.5±1.3	1.94
ALH 88019b	H5		5.4±0.5		

* ALH 88014 Thermolumineszenzdaten [BEN91]: 32.0±0.1 krad

** ALH 88019 Edelgasdaten [SchER93]: ^{21}Ne= $11.56 \cdot 10^{-8}$ cm^3/g, ^{3}He= $52.41 \cdot 10^{-8}$ cm^3/g,
^{38}Ar= $1.68 \cdot 10^{-8}$ cm^3/g, $^{22}Ne/^{21}Ne$= 1.138
$^{3}He/^{21}Ne$= 4.53

Tab.8.2: *^{10}Be, ^{14}C und ^{28}Al Aktivitäten, $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnisse mit daraus berechneten $^{14}C/^{10}Be$ Verhältnissen und theoretischen ^{14}C Produktionsraten sowie tiefengrößenabhängige terrestrische Alter im Vergleich zu terrestrischen Altern mit fixen ^{14}C Produktionsraten von 59 bzw. 44 dpm/kg. Thermolumineszenzdaten von Benoit et al. 1993.*

Meteorit	Klasse	Fundm. [kg]	Verwitterung	^{10}Be [dpm/kg]	^{26}Al [dpm/kg]	26/10	^{14}C (>1000°C) [dpm/kg]	^{14}C (<1000°C) [dpm/kg]	14/10	P(^{14}C) [dpm/kg] Theorie	$T_{terr.}$ [ka] diese Arbeit	$T_{terr.}$ [ka] 59 dpm/kg	$T_{terr.}$ [ka] 44 dpm/kg	NTL 300°C [krad]
Acfer 022	H3.7	0.192	B	17.4±1.1	53.7±4.2	3.09	13.5±0.6	4.4±0.2	2.42	42.1	9.4	12.2	9.8	0.10±0.01
Acfer 023	H3	0.118	B	20.4±1.5	61.4±4.7	3.01	3.5±0.2	2.7±0.1	2.35	47.9	21.6	23.4	20.9	3.1 ±1.2
Acfer 028	H3.8	3.130	B	20.4±1.5	53.2±4.5	2.61	14.7±0.6	8.9±0.4	2.0	40.8	8.4	11.4	9.1	0.43±0.08
Acfer 039	L3	0.225	A/B	17.6±1.2	46.3±4.1	2.63	18.1±0.8	3.2±0.1	2.0	35.2	5.5	9.8	7.3	9. ±1.
Acfer 066	L3	0.517	B/C	17.6±1.2	51.9±5.0	2.95	5.9±0.3	2.7±0.1	2.22	39.1	15.6	19.0	16.6	12. ±1.
Acfer 080	L3.9	0.574	B	14.5±1.1	40.6±3.4	2.80	18.0±0.8	2.9±0.1	2.12	30.7	4.4	9.8	7.4	28. ±3.
Acfer 129	H3	0.162	C	21.0±1.4	88.7±6.4	4.73	4.4±0.2	2.7±0.1	2.91*	61.2	21.7	21.5	19.0	0.44±0.02
Acfer 153	H3	0.211	B/C	15.6±1.3	$		8.5±0.4	6.6±0.3				16.0	13.6	7.2 ±0.1
Acfer 171	H3	0.313	B	18.7±1.3	$		15.2±0.8	6.2±0.3				11.2	8.8	20.5 ±5.
Adrar 003	LL3	0.287	B	23.3±1.5	$		19.9±1.0	10.3±0.5				9.0	6.6	
Ha. el H. 004	H5	0.296	B	13.0±0.9	28.9±2.3	2.22	10.5±0.5	6.8±0.3	1.65	21.5	5.9	14.3	11.8	8. ±3.
Ilafegh 013	H3	0.745	A/B	9.1±0.7	31.1±2.5	3.42	22.2±1.1	6.3±0.3	2.77	25.2	1.0	8.1	5.7	23. ±2.
Tanezrouft 006	H3	0.331	B/C	16.2±1.1	47.0±3.9	2.90	13.2±0.7	6.0±0.3	2.25	36.5	8.4	12.4	10.0	4. ±2.

$ Zur AMS-Messung in Zürich, Daten lagen bei Abschluß der Arbeit noch nicht vor

* gefunden für eine ^{26}Al-Aktivität von 78 dpm/kg

Tab. 8.3: ^{10}Be, ^{26}Al, ^{53}Mn und ^{21}Ne Daten sowie die Verhältnisse $^{26}Al/^{10}Be$ und $^{22}Ne/^{21}Ne$ für Meteorite, die nicht aus der Antarktis oder Sahara stammen.

Meteorit	Klass.	Fundmasse [kg]	^{10}Be [dpm/kg]	^{26}Al [dpm/kg]	26/10	21 [$10^{-8}cm^3/g$]	22/21	Bestrahlungsalter [10^6a]	Ref. Ne	53 [dpm/kg Fe]	Ref. Mn
Leoville	CV3	8.1	21.1±1.3			2.38	1.416	>10	Mazor70	299±30	Heima74
Murchison #	CM2	100.	10.7±0.8	39.5±3.0	3.69	0.31	1.11*	1.4	Bogard71	121±8	Engle78
Mills	H6	167.4	16.4±1.5	52.1±3.5	3.18					445±32	Engle82a
Floyd	L4	13.	20.6±1.8	71.3±4.6	3.46	3.91	1.092	10.8	Saraf84	426±34	Engle78
Armel Yuma	L5	9.2	18.3±1.4	59.1±4.9	3.23	4.03	1.14	13.8	Schult74	468±24	Engle78
[1]Bruderheim #	L6	303.	a	b		10.14	1.096	28.6	Schere93		
Calliham	L6	40.	19.4±1.5	54.3±6.8	2.80	8.60	1.112	26.1	Saraf84	494±49	Heima74
Dhurmsala #	LL6	150.	21.5±1.6	69.9±4.3	3.25	4.70	1.083	12.4	Engl86	450±45	Heima74
[2]Dh.Std.	LL6	0.072	21.5±1.1	69.7±3.3	3.24						
Camel Donga	Euc	2.924	20.6±1.3	94.1±7.3	4.57	4.80	1.144	18.*	Engl.86		
Johnstown #	Dio	40.3	23.7±1.4	79.5±5.1	3.35	8.30	1.096	29.*	Megrue68		
Norton County #	Aub	>1000.	27.3±2.0	80.2±6.7	2.94	54.3	1.109	155.*	Herzog77a	413±32 / 559±4	Engle84
Washougal #	How	0.225	24.3±1.6	97.7±6.3	4.02	12.80	1.078	35.*	Ganapa69		

[1] Bruderheim ^{14}C (>1000°C): 47.6±2.0 dpm/kg; ^{14}C (<1000°C): 9.7±0.4 dpm/kg Ref. Lit: 46.8±1.4 dpm/kg [JUL89]; 50.1±0.3 dpm/kg [BEU88]

a) 19.2±2.0 Honda61c; b) 60.0±6.0 Honda61c; 58.0±3.0 Firem67

[2]Dhurmsala Standard ^{14}C (>1000°C): 53.0 dpm/kg

Tab. 8.4: Vergleich von ^{10}Be-Gehalten, die in dieser Arbeit bestimmt wurden, mit Untersuchungsergebnissen anderer Autoren

Meteorit	Klass.	Fundmasse [kg]	^{10}Be [dpm/kg] diese Arbeit	Literatur	Referenz
Armel Yuma	L5	9.2	18.3±1.4	18.6±0.8 19.7±0.8	SAR84 SAR85
Calliham	L6	40.	19.4±1.5	19.6±0.6	SAR84
Dhurmsala	LL6	150.	21.5±1.6	21.9±2.0 bis 24.4±1.5*	ENG86
Floyd	L4	13.	20.6±1.8	19.9±0.8	SAR84
Johnstown	Dio	40.3	23.7±1.4	26.3±3.2	MON83
Murchison	CM2	100.	10.7±0.8	11.6±1.3	MON83
Norton County	Aub	1000.	27.3±2.0	25.0±2.0	MAT69

* Tiefenprofil

Tab. 8.5: Vergleich von ^{26}Al-Gehalten, die in dieser Arbeit bestimmt wurden, mit Untersuchungsergebnissen anderer Autoren

Meteorit	Klass.	Fundmasse [kg]	^{26}Al [dpm/kg] diese Arbeit	Literatur	Referenz
Armel Yuma	L5	9.2	59.1±4.9	58.9±2.7	CRE76a
				69.0±2.0	EVA79
				69.9±2.2	HER83
Calliham	L6	40.	54.3±4.3	61.5±7.7	WOL66
				72.0±8.0	ROW71
				68.0±3.1	CRE76a
				71.0±2.0	EVA79
Dhurmsala	LL6	150.	69.9±4.3	50.3±2.6 bis 68.2±3.4*	ENG86
Floyd	L4	13.	71.3±4.6	82.5±4.0	HER83
Johnstown	Dio	40.3	79.5±5.1	67.2±2.4	FUS69
Leoville	CV3	8.1	$	46.8±3.2	HEI74
				60.1±2.7	CRE76a
Mills	H6	8.8	52.1±3.5	64.4±2.6	ENG82a
				58.0±4.0	CAM74
				63.0±2.0	EVA79
Murchison	CM2	100.	39.5±3.0	37.0±5.0	WRI70
				37.0±4.0	BOG71
				43.0±2.0	CRE72a
				36.0±2.0	EVA82
				54.7±2.0	HER83
Norton County	Aub	1000.	80.2±6.7	73.0±8.0	MAT69
				72.0±8.0	ROW71
				79.4±4.0	HER71a
				97.6±3.3	HER77b
				79.0±2.7	HER77b
				93.8±4.7	HER83

* Tiefenprofil

$ Zur AMS-Messung in Zürich, Daten lagen bei Abschluß der Arbeit noch nicht vor

8.1 Diskussion der Meteorite, die nicht aus der Antarktis oder Sahara stammen

Für viele der Gruppe der sonstigen Meteorite stehen neben den ^{10}Be und ^{26}Al Aktivitäten noch die Edelgase ^{21}Ne und $^{22}Ne/^{21}Ne$ und das Radionuklid ^{53}Mn zur Verfügung. Für die Meteorite Bruderheim und Dhrumsala Standard sind ^{14}C Ergebnisse als Fußnote unter der Tabelle festgehalten. Wegen Materialmangels war es nicht möglich, vom Bruderheim ^{10}Be und ^{26}Al Analysen zu erstellen. Hier muß auf Werte in der Literatur zurückgegriffen werden, die in der Fußnote zu sehen sind. Mit Hilfe des ^{21}Ne und des $^{22}Ne/^{21}Ne$ Verhältnisses lassen sich nach Gl. 2.7 (Kap. 2.5) Expositionsalter berechnen. Sie sind in Tab. 8.3 aufgelistet. Für den Meteoriten Mills existieren in der Literatur keine Edelgasdaten. Bei dem Meteoriten Murchison wurde kein $^{22}Ne/^{21}Ne$ Verhältnis gefunden. Deshalb wurde der mittlere Wert des St.Severin von 1.11 benutzt. Gl. 2.7 (Kap. 2.5) eignet sich nur für Chondrite. Die Meteorite Camel Donga, Johnstown, Norton County und Washougal sind Achondrite. Zur Berechnung des Expositionsalters mußte daher auf theoretische Berechnungen aus Herpers et al. 1994 [HER94] zurückgegriffen werden. Neben den Radionukliden ^{10}Be und ^{26}Al existieren für einige Meteorite in der Literatur auch ^{53}Mn Werte. ^{53}Mn Aktivitäten werden in dpm/kg Fe angegeben, d.h. auf den Eisengehalt des Meteoriten bezogen und sind somit klassenunabhängig. Die maximale Produktionsrate beträgt 515 dpm/kg Fe [BHA92].

Die Expositionsalter dieser Meteorite sind in der Tab. 8.3 in 10^6 a Einheiten angegeben. Der Meteorit Norton County wurde mit $155 \cdot 10^6$ Jahren am längsten bestrahlt. Er fiel 1948 in Kansas, USA und hat damit ein definiertes terrestrisches Alter von 46 Jahren. Aufgrund des langen Expositions- und des kurzen terrestrischen Alters handelt es sich für die Radionuklide ^{10}Be, ^{26}Al und ^{53}Mn um Produktionsraten. Wie schon oben erwähnt liegt der ^{10}Be Wert mit 27.3 dpm/kg über dem theoretisch berechneten Bereich von 18.7 - 25.2 dpm/kg. Das ist möglicherweise auch auf lokale chemische Inhomogenitäten der analysierten Probe zurückzuführen. ^{26}Al liegt mit 80.2 dpm/kg in dem theoretisch berechneten Bereich von 31.0 - 101.3 dpm/kg.

Das kürzeste Expositionsalter mit $1.4 \cdot 10^6$ a hat der CM2 Chondrit Murchison. Er fiel 1969 in Victoria, Australien mit einer Masse von 100 kg. Nach Gl. 2.8 (Kap. 2.5) läßt sich die gesättigte Produktionsrate errechnen:

$$A_{sat} = \frac{A(t_{\exp})}{1 - e^{-\lambda t_{\exp}}} \qquad \text{(Gl. 8.1)}$$

Mit der oben genannten Expositionszeit und einer ^{10}Be Aktivität von 10.7 dpm/kg beträgt die gesättigte Produktionsrate 22.6 dpm/kg. Für ^{26}Al berechnet sich eine Produktionsrate von 53.2 dpm/kg. Beide Produktionsraten liegen an der oberen Grenze der berechneten Bereiche für CM-Chondrite in Tab. 7.1 (Kap. 7.1) von 16.6 - 21.8 dpm/kg für ^{10}Be und 18.2 - 54.1 dpm/kg für ^{26}Al. Die berechnete Produktionsrate von ^{53}Mn beträgt 524 dpm/kg Fe und liegt somit nur knapp über dem theoretischen Grenzwert von 515 dpm/kg Fe. Durch diese Radionukliddaten und den berechneten Produktionsraten im Vergleich zu theoretisch berechneten Produktionsratenbereichen kann die kurze Expositionszeit von ca. $1.4 \cdot 10^6$ a bestätigt werden.

Vom H6 Chondriten Mills existieren in der Literatur keine Edelgasdaten. Deshalb wird mit Hilfe von ^{53}Mn eine minimale Expositionszeit berechnet (Gl. 2.9, Kap.2.5):

$$t_{\exp} = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{A_{sat}}{A_{sat} - A(t_{\exp})} \qquad \text{(Gl. 8.2)}$$

Die maximale Produktionsrate beträgt 515 dpm/kg Fe, gemessen wurden 445 dpm/kg Fe [ENG82a]. Es berechnet sich eine minimale Expositionszeit von $10.7 \cdot 10^6$ a. Das ist die 7-fache ^{10}Be Halbwertszeit und die 15-fache ^{26}Al Halbwertszeit. In dieser Zeit ist ^{10}Be zu mehr als 99% gesättigt. Daher stellen auch bei Mills die gemessenen ^{10}Be und ^{26}Al Aktivitäten gesättigte Produktionsraten dar. ^{10}Be liegt mit 16.4 dpm/kg an der unteren Grenze der berechneten Produktionsraten von 15.2 - 19.8 dpm/kg (s. Tab. 7.1), während ^{26}Al mit 52.1 dpm/kg in der Mitte des Bereichs von 23.0 - 69.1 dpm/kg liegt. Bei einer Dichte von 3.5 g/cm^3 entsprechen eine Masse von 167.4 kg einem Kugelradius von 22 cm. Mit den einzelnen Produktionsraten läßt sich der Radius des Meteoroiden gemäß berechneter Tiefenprofile (s. Abb. 7.3 und Abb. 7.4, Kap. 7.1) auf einen Bereich von 30 - 70 cm einschränken. Aufgrund des $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnisses von 3.18 kann es sich um Zentrumsproduktionsraten eines 32 cm Meteoroiden, einer Tiefe von 25 cm in einem 40 cm, einer Tiefe von 15 cm in einem 50 cm und einer Tiefe von 10 cm in einem 65 cm Meteoroiden handeln. Werden die Produktionsraten in Abb. 7.5 eingetragen, wo ^{10}Be gegen ^{26}Al aufgetragen ist, so ergibt sich im Schnittpunkt ein 65 cm Meteoroid.

Die restlichen Meteorite liegen mit ihren Expositionszeiten zwischen 10 - $35 \cdot 10^6$ a. Ihre ^{10}Be und ^{26}Al Aktivitäten sind alle als gesättigte Produktionsraten anzusehen. Bis auf den ^{10}Be Wert des Howarditen Washougal liegen alle anderen Produktionsraten in dem theoretisch berechneten Bereich (Tab. 7.1, Kap. 7.1).

8.2 Diskussion der antarktischen Meteorite

Von den antarktischen Meteoriten existieren lediglich ^{10}Be und ^{26}Al Werte (s. Tab. 8.1). Wegen hoher terrestrischer Alter bis zu 1 Million Jahren [NIS89] ist eine Analyse auf ^{14}C wenig erfolgversprechend. Hier eignet sich bevorzugt ^{36}Cl bzw. in manchen Fällen auch ^{26}Al zur Altersbestimmung. Vom ALH 88014 sind in der Literatur Thermolumineszenzdaten und vom ALH 88019 Edelgasdaten vorhanden, die als Fußnote in Tab. 8.1 einzusehen sind. Der ALH 88019 wurde wegen seiner ungewöhnlichen Werte zweimal analysiert. Um Namensverwechslungen vorzubeugen, wurde auch ein neues zweites Fragment bearbeitet und hier als ALH 88019b bezeichnet.

Im Vergleich mit den theoretisch berechneten Produktionsratenbereichen (s. Tab. 7.1) von L- und H-Chondriten liegen der ALH 88004 mit ^{10}Be und der ALH 88019 mit ^{10}Be und ^{26}Al unterhalb der angegebenen Bereiche. Aber auch der ALH 88011 mit 14.8 dpm/kg ^{10}Be, der ALH 88013 mit 15.1 dpm/kg ^{10}Be und der ALH 88014 mit 15.5 dpm/kg ^{10}Be haben relativ niedrige Werte. Hier stellt sich die Frage, ob es sich um Produktionsraten handelt, was bei geringen ^{10}Be Werten auf große Radien der Meteorite hinweist, oder ob noch nicht näher erklärbare Be Verluste dafür verantwortlich sind. Prinzipiell könnten auch kurze Expositionsalter für zwar gesättigte ^{26}Al Aktivitäten aber noch ungesättigten ^{10}Be Aktivitäten in Frage kommen. Das wird sich allerdings erst mit der Analyse der Edelgase aufklären. Alle anderen Daten können als Produktionsraten angesehen werden. Aufgrund des sehr hohen $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnisses von ALH 88004 ist der hohe ^{26}Al Wert von 73.4 dpm/kg, obwohl er innerhalb der theoretisch berechneten Bereichsgrenze der L-Chondrite liegt, nicht zu den gewöhnlichen Produktionsraten zu zählen. Der Mittelwert der übrigen H-Chondrite liegt bei 18.9 dpm/kg ^{10}Be und 54.9 dpm/kg ^{26}Al. Werden die ^{10}Be Werte von ALH 88011, ALH 88013 und ALH 88014 in den Mittelwert mit einbezogen, ergibt sich 17.7 dpm/kg ^{10}Be. Im Vergleich mit den mittleren Produktionsraten von Nishiisumis Data Compilation [NIS87] mit 17.9 dpm/kg ^{10}Be und 52.0 dpm/kg ^{26}Al (s. Tab. 7.2) stimmt der ^{10}Be Mittelwert von 17.7 dpm/kg gut überein. Der ^{26}Al Mittelwert liegt etwas höher, was auf nicht zu hohe terrestrische Alter schließen läßt. Die mittleren Produktionsraten von Vogt et al. [VOG90] aber sind bei ^{10}Be sowie auch bei ^{26}Al um ungefähr 2 dpm/kg höher.

Die $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnisse für H-Chondrite erstrecken sich über einen Bereich von 1.72 bis 3.65. Das niedrige Verhältnis stammt vom ALH 88019 der gesondert diskutiert wird. Wenn allen übrigen H-Chondriten ein Sättigungscharakter unterstellt wird, können mit den

Verhältnissen Tiefen- und Größenbestimmungen durchgeführt werden. In Tab. 8.6 sind zu den jeweiligen Verhältnissen die Tiefen- und Größenbereiche angegeben.

Tab. 8.6: Tiefe der Probe und Größe des Meteoroiden durch experimentelle $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnisse, die mit theoretisch berechneten Tiefen- und Größenprofilen von H-Chondriten. verglichen wurden

Meteorit	Klasse	Fundmasse [g]	$^{26}Al/^{10}Be$	Tiefe [cm]	Größe [cm]
ALH 88010	H4/5	141.5	2.57	9	15
				5	25
				2	32
ALH 88011	H3	103.0	2.59	8	15
				5	25
				2	32
ALH 88018	H5	67.1	2.74	5	25
				2	32
				0	40
				0	50
ALH 88016	H4	73.7	2.83	7	25
				5	32
				4	40
				4	50
ALH 88017	H4	70.4	2.84	7	25
				5	32
				4	40
				4	50
ALH 88008	H4/5	153.5	2.99	14	25
				7	32
				7	40
				6	50
				5	65
				5	85
ALH 88013	H4	89.3	3.48	30	40
				20	50
				17	65
				15	85
ALH 88014	H5	84.1	3.65	32	50
				25	65
				20	85
				20	100
				20	120

Tab. 8.7: Tiefe der Probe und Größe des Meteoroiden durch experimentelle $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnisse, die mit theoretisch berechneten Tiefen- und Größenprofilen von L-Chondriten. verglichen wurden.

Meteorit	Klasse	Fundmasse [g]	$^{26}Al/^{10}Be$	Tiefe [cm]	Größe [cm]
ALH 88012	L6	102.5	2.59	8	15
				2	32
				1	40
ALH 88002	L4	358.4	2.80	6	25
				5	32
				4	40
				4	50
				0	65

Die experimentell ermittelten Verhältnisse wurden mit theoretisch berechneten Verhältnissen, die aus den Tiefen- und Größenprofilen für H- und L-Chondrite stammen, verglichen und mögliche Tiefen- und Größenbereiche bestimmt. Die Größe der Meteoroide erstreckt sich bei kleinen Verhältnissen über einen Bereich von 17 cm und erreicht bei höheren Verhältnissen einen Bereich von bis zu 70 cm Differenz. Die Tiefen werden mit abnehmendem Radius immer größer. Kleine Verhältnisse bedeuten kleinere Größen, hohe Verhältnisse finden sich erst in Meteoroiden >40 cm Radius.

Trotz der hohen Differenz minimaler und maximaler Größen für ein $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnis, kann die Unsicherheit dieser Bestimmungen noch größer sein. Da es sich hier um Radionuklide handelt, ändert sich deren Konzentration mit der Zeit. Je nach terrestrischem Alter oder nicht näher erklärbarem aber möglichem Be-Verlust verändern sich die Werte nach unten oder oben. Endgültige Aussagen mit präziseren Angaben über Größe und Tiefe können erst mit Hilfe der Ne-Isotopen Analysen gemacht werden. Solange sie aber nicht zur Verfügung stehen, ist dies ein erstes Mittel zur Interpretation.

Die H4-Chondrite ALH 88016 und ALH 88017 stimmen neben den gleichen Klassen auch in den ^{10}Be- und ^{26}Al-Werten überein. Bei diesen Meteoriten ist ein Pairing nicht auszuschließen. Analysen der Edelgase könnten dies bestätigen.

Die Chondrite ALH 88004 und ALH 88019 weisen ungewöhnliche $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnisse auf. Sie werden im folgenden gesondert diskutiert.

Der ALH 88004 ist ein LL4-Chondrit mit einer relativ hohen Fundmasse von 315.7 g. Der ^{10}Be Wert liegt mit 13.2 dpm/kg unter der unteren Grenze des theoretisch berechneten Bereichs von 16.2 - 21.6 dpm/kg [HER94b]. Die ^{26}Al Aktivität dagegen ist mit 73.4 dpm/kg an der oberen Grenze des berechneten Bereichs von 24.3 - 74.6 dpm/kg zu finden. Das daraus resultierende Verhältnis hat dadurch einen sehr hohen Wert von 5.56 . Der Bereich der Verhältnisse aus Produktionsraten umfaßt Werte von 1.8 - 4.5 . Zu höheren oder niedrigeren Werten kann es nur bei langen terrestrischen Altern, kurzen Expositionen, komplexen Bestrahlungen, Be-Verlusten oder SCR produziertem ^{26}Al kommen. Für den ALH 88004 kommen folgende Fälle in Frage:

1. kurze Exposition
2. Be Verluste
3. SCR produziertes ^{26}Al

zu 1: Die hohe ^{26}Al Aktivität entsteht in LL-Chondriten nur im Zentrum eines 40 bzw. 50 cm (Radius) Meteoroiden. Dort ist die Produktionsrate am größten. Übertragen auf ^{10}Be Tiefenprofile für LL-Chondrite beträgt die Produktionsrate in entsprechender Tiefe 20 - 22 dpm/kg. Die analysierte Probe aber hat eine ^{10}Be Aktivität von 13.2 dpm/kg. Nach Gl. 8.2, Kap. 8.1 betrug die Expositionszeit für ^{10}Be $2.16 \cdot 10^6$ Jahre. Das sind ungefähr 1.4 ^{10}Be und 3.0 ^{26}Al Halbwertszeiten. Drei Halbwertszeiten entspricht einer 87.5% Sättigung. Demnach würde die ^{26}Al Produktionsrate ca. 84 dpm/kg betragen. Dieser Fall scheint sehr unwahrscheinlich zu sein, da derart hohe ^{26}Al Produktionsraten in LL-Chondriten durch die GCR nicht bekannt sind.

zu 2: Be-Verluste sind in antarktischen Meteoriten zwar beobachtet worden, Mechanismen allerdings unbekannt. Anstatt eine kurze Exposition anzunehmen, könnte auch ^{10}Be verloren worden sein. Entsprechend der hohen ^{26}Al Aktivität beträgt die ^{10}Be Produktionsrate im Zentrum eines 40 oder 50 cm Meteoroiden ca. 21 dpm/kg. Mit den analysierten 13.2 dpm/kg läge der Verlust bei 37%. Solche hohen Verluste können beobachtet werden. Doch aufgrund des sehr hohen ^{26}Al Gehaltes kann der ALH 88004 kein sehr hohes terrestrisches Alter haben, sodaß derartige Verluste in kürzerer Zeit einer näheren Erklärung bedürfen, die momentan nicht verfügbar ist. Be-Verluste scheinen eher unwahrscheinlich zu sein.

zu 3: Das Energiespektrum der SCR ist niederenergetischer als das der GCR. Dadurch können Hochenergieprodukte wie ^{10}Be nicht produziert werden. Niederenergieprodukte wie ^{26}Al können durch die SCR entstehen. Die ^{26}Al Produktionsrate der SCR ist wesentlich höher, als die der GCR. Dadurch finden sich in oberflächennähe hohe Konzentrationen niederenergetischer kosmogener Nuklide. Meist verglüht die Oberfläche des Meteoroiden bei Eintritt in die Erdatmosphäre. Mit dem ALH 88004 könnte es sich um einen Chondriten handeln, der aufgrund der hohen Aktivität SCR produziertes ^{26}Al enthält. Sollte es sich um eine oberflächennahe Probe handeln, so muß es aufgrund der niedrigen ^{10}Be Aktivität ein großer Meteoroid gewesen sein. Erst ab einem Radius von 120 cm sinkt die ^{10}Be Produktionsrate unter 15 dpm/kg. Der niedrige ^{10}Be Wert kann aber andererseits durch einen geringen Verlust oder eine kürzere Bestrahlung erklärt werden. Mit größter Wahrscheinlichkeit handelt es sich hier um SCR produziertes ^{26}Al.

Der ALH 88019 ist ein H5-Chondrit mit einer Fundmasse von 57.4 g. Von ihm existieren neben den ^{10}Be und ^{26}Al Aktivitäten noch Edelgasdaten aus der Literatur [SchER93]. Diese umfassen die Nuklide ^{21}Ne ($=11.56 \cdot 10^{-8} cm^3/g$), ^{3}He ($=52.41 \cdot 10^{-8} cm^3/g$) und ^{38}Ar ($=1.68 \cdot 10^{-8} cm^3/g$) sowie die Verhältnisse $^{22}Ne/^{21}Ne$ (=1.138) und $^{3}He/^{21}Ne$ (=4.53). Die Radionukliddaten waren so ungewöhnlich, daß eine Probe zweimal und eine weitere Probe analysiert wurden. Die Mittelwerte der Aktivitäten betragen für ^{10}Be 5.6 dpm/kg und für ^{26}Al 10.4 dpm/kg. Daraus ergibt sich ein Verhältnis von 1.85 .

Die Edelgase geben nach Gl. 2.7, Kap. 2.5 folgende Expositionsalter:

$$T_{exp}(^{3}He) = 33.62 \text{ Ma}$$
$$T_{exp}(^{21}Ne) = 42.03 \text{ Ma}$$
$$T_{exp}(^{38}Ar) = 40.48 \text{ Ma}$$

Zur Mittelwertbildung bleibt das ^{3}He Expositionsalter wegen He Verlusten während des Falls auf die Erde unberücksichtigt. Dadurch ergibt sich ein Expositionsalter von $\langle T_{exp} \rangle = 41.3$ Ma. In dieser Zeit, die einer 27-fachen ^{10}Be- oder 58-fachen ^{26}Al- Halbwertszeit entspricht, wären beide Radionuklide in Sättigung. Doch weder ^{10}Be mit 5.6 dpm/kg noch ^{26}Al mit 10.4 dpm/kg sind Produktionsraten. Drei Fälle sind zu unterscheiden:

1. einfache Bestrahlung, $R \leq 50$ cm
2. einfache Bestrahlung, $R \geq 50$ cm
3. komplexe Bestrahlung

zu 1: In einem Meteoroiden mit einem Radius bis 50 cm berechnet sich aufgrund des $^{22}Ne/^{21}Ne$ Verhältnisses eine tiefenkorrigierte ^{26}Al Produktionsrate von 40 dpm/kg und eine ^{10}Be Produktionsrate von 16 dpm/kg. Mit einer ^{26}Al Aktivität von 10.4 dpm/kg sind 74% zerfallen. Daraus berechnet sich ein terrestrisches Alter von:

$$T_{terr} = 1.39 \text{ Ma.}$$

Das ist das längste jemals beobachtete terrestrische Alter. Wird das terrestrische Alter mit Hilfe des ^{10}Be ermittelt, so folgt aus einer Aktivität von 5.6 dpm/kg und einer Produktionsrate von 16 dpm/kg ein Zerfall von 65%, das einem Alter von 2.25 Ma entspricht. Für einen Zeitraum von 1.39 Ma wäre die Aktivität um 7.5 dpm/kg auf 8.5 dpm/kg gefallen. Mit 5.6 dpm/kg sind nur noch 66% der berechneten Aktivität vorhanden. Es muß ein ^{10}Be Verlust von 33% angenommen werden.

zu 2: In einem Meteoroiden mit einem Radius größer als 50 cm liegt die Produktionsrate von ^{26}Al bei 40 dpm/kg und von ^{10}Be in dem Bereich zwischen 10 und 16 dpm/kg. Für ein terrestrisches Alter von 1.39 Ma berechnet sich, ausgehend von der jetzigen Aktivität von 5.6 dpm/kg, eine ^{10}Be Produktionsrate von 10.6 dpm/kg. Das entspricht einer Produktionsrate im Zentrum eines 120 cm Meteoroiden. Nach Modellrechnungen von Michel [MIC94] nimmt das $^{22}Ne/^{21}Ne$ Verhältnis mit der Tiefe der Probe ab, um aber in großen Tiefen wieder anzusteigen, wie für das Zentrum eines 120 cm Meteoroiden mit $^{22}Ne/^{21}Ne = 1.135$ berechnet wurde. Für einen Meteoroiden mit einem Radius von 120 cm stimmen das terrestrische Alter von 1.39 Ma mit den ^{26}Al und ^{10}Be Aktivitäten sowie dem $^{22}Ne/^{21}Ne$ Verhältnis überein, ohne ^{10}Be Verluste einzukalkulieren.

zu 3: Komplexe Bestrahlungen können nur bei einer langen ersten und kurzen zweiten Bestrahlung beobachtet werden. In einer ersten 2π Bestrahlung müßte sich in der Probe eine hohe Konzentration der Edelgase ansammeln ohne nennenswerte ^{10}Be und ^{26}Al Aktivitäten. Dafür muß die Probe aus einer größeren Tiefe stammen. In einer zweiten 4π Bestrahlung, nachdem Fragmente des Körpers durch ein Kollisionsereignis freigesetzt wurden und sich die Tiefe der Probe geändert hat, werden auch nennenswerte ^{10}Be und ^{26}Al Aktivitäten gebildet. Dauert die zweite Bestrahlung so lange, daß sich typische Produktionsraten ergeben, ist eine Unterscheidung in erste und zweite Bestrahlung nicht mehr möglich. Liegen aber niedrigere, mit einer einfachen Bestrahlung nicht erklärbare Aktivitäten vor, kann mit Hilfe der Edelgase zwischen beiden Bestrahlungen unterschieden werden. So kann auch der ALH 88019 wegen seiner ungewöhnlichen Aktivitäten aber langen Exposition komplex bestrahlt sein. Wird für eine erste 2π Bestrahlung ein $^{22}Ne/^{21}Ne$ Verhältnis berechnet, so ergeben sich für große Tiefen (bis 500 g/cm^2) Werte im Bereich von 0.94 - 1.0 . Das heißt, daß der größte Teil des

^{22}Ne in der zweiten 4π Bestrahlung produziert wurde. Damit tritt die Diskussion um eine komplexe Bestrahlung in den Hintergrund, denn es kann nach dem Fall auf die Erde von ^{10}Be und ^{26}Al Produktionsraten ausgegangen werden, damit das $^{22}Ne/^{21}Ne$ Verhältnis erklärbar bleibt. Eine komplexe Bestrahlung ist nicht auszuschließen, aber zur Interpretation dieser Daten unrelevant.

Mit dem ALH 88004 wurde ein Meteorit analysiert, der mit größter Wahrscheinlichkeit SCR produzierte kosmogene Nuklide aufweist, was an hohen Konzentrationen der Niederenergieprodukte zu sehen ist.

Der ALH 88019 konnte aufgrund der Verfügbarkeit der Edelgasanalysen umfassend diskutiert werden. Es wurde das bisher längste terrestrische Alter von 1.39 Ma festgestellt. Trotz der geringen Fundmasse handelt es sich wahrscheinlich um eine Probe aus dem Zentrum eines 120 cm Meteoroiden. Nur wenn ein ^{10}Be Verlust von 33% einkalkuliert wird, könnte die Probe aus Meteoroiden mit Radien bis 50 cm stammen. Die Bestätigung dieser Ergebnisse z.B. durch die Messung des ^{36}Cl ($t_{1/2}$ = 300 ka) steht noch aus.

8.3 Diskussion der Sahara Meteorite

Von den Sahara Meteoriten liegen ^{10}Be, ^{26}Al, ^{14}C und NTL Daten vor (s. Tab. 8.2). Die Fundmasse dieser Meteorite liegt zwischen 118 und 3130 g. Durchschnittlich beträgt die Masse dieser Auswahl 546 g im Gegensatz zu den antarktischen Meteoriten mit 135 g. Verantwortlich dafür sind unter anderem die unterschiedlichen Suchmethoden. Während in der Antarktis durch Meteoritenfallen die Meteorite auf kleinem Raum konzentriert werden und zudem einen sehr guten Kontrast zum Eis bilden, liegen die Sahara Meteorite auf einer großen Ebene verteilt, die mitunter mit cm-großen, gelblich-grauen Steinen übersät ist (Acfer-Region), auf der möglicherweise kleinere Meteorite übersehen werden.

Diesen Meteoriten wurden drei Verwitterungsgrade zugeordnet: A kaum verwittert, B verwittert und C stark verwittert. Die meisten Meteorite zeigen den mittleren Verwitterungsgrad B. Der Acfer 129 ist mit C stark verwittert, die Meteorite Acfer 066, Acfer 153 und Tanezrouft 006 stehen zwischen B und C, der Acfer 039 und der Ilafegh 013 sind weniger verwittert und wurden zwischen A und B eingeteilt.

4 der 13 Meteorite, der Acfer 080, Adrar 003, Hammadah al Hamra 004 und Ilafegh 013 liegen mit ihren ^{10}Be Werten unterhalb der in Tab. 7.1 angegebenen Produktionsraten-

bereiche. Für die restlichen 9 Meteorite, wie in Tab. 8.8 zu sehen, ergeben sich durchschnittliche ^{10}Be Produktionsraten von 18.5 dpm/kg für H-Chondrite (7 Werte) und 17.6 dpm/kg für L-Chondrite (2 Werte). Im Vergleich mit Nishiizumis Data Compilation [NIS87] für ^{10}Be in nichtantarktischen H-Chondriten mit 17.7 dpm/kg (26 Werte) und L/LL-Chondriten mit 18.4 dpm/kg (33 Werte) ist eine gute Übereinstimmung der Mittelwerte zu sehen. Bedingt durch die geringe Anzahl der Meteorite dieser Arbeit, die in die Statistik eingingen, ist der Mittelwert der L-Chondrite kleiner als der der H-Chondrite. Die mittlere ^{10}Be Produktionsrate von Vogt et al. [VOG90], die sich aus Werten gefallener Meteorite zusammensetzt, ist um ca. 2 dpm/kg für H-Chondrite und 4.5 dpm/kg für L-Chondrite größer als die Werte dieser Arbeit. Es handelt sich bei den Sahara Meteoriten also um Meteorite mit beträchtlichem terrestrischen Alter oder unter Berücksichtigung der Tiefen- und Größenabhängigkeit auch um Proben aus ungewöhnlichen Tiefen.

Tab. 8.8: Mittlere ^{10}Be und ^{26}Al Produktionsraten von Saharameteoriten dieser Arbeit im Vergleich mit den Mittelwerten nichtantarktischer Meteorite Nishiisumis Data Compilation.

Meteorite	kosm. Nuklid	Klasse	Anzahl	mittl. Produktionsrate [dpm/kg]	Autor
Sahara	^{10}Be	H	7	18.5	diese Arbeit
Sahara	^{10}Be	L	2	17.6	diese Arbeit
Nichtantarktisch	^{10}Be	H	26	17.7	[NIS87]
Nichtantarktisch	^{10}Be	L/LL	33	18.4	[NIS87]
Sahara	^{26}Al	H	6	45.9	diese Arbeit
Nichtantarktisch	^{26}Al	H	80	53.0	[NIS87]

Der Acfer 129 hat mit 88.7 dpm/kg eine ungewöhnlich hohe ^{26}Al Aktivität. Dieser Wert liegt weit über dem theoretisch berechneten Produktionsratenbereich der H-Chondrite von 23.0 - 69.1 dpm/kg. Die restlichen H-Chondrite haben eine mittlere Produktionsrate von 45.9 dpm/kg (6 Werte). Nishiizumis Data Compilation [NIS87] gibt einen Mittelwert für nichtantarktische H-Chondrite von 53.0 dpm/kg (80 Werte). Die mittlere ^{26}Al Produktionsrate dieser Arbeit ist um 7 dpm/kg niedriger, das entspricht ungefähr 13% von 53.0 dpm/kg. Ob sich ein mittleres terrestrisches Alter von ca. 144 ka ergibt, was rechnerisch einem Zerfall von 13% ^{26}Al entspricht oder ob es sich um Tiefen- und Größeneffekte handelt, werden die ^{14}C Analysen zeigen.

Tab. 8.9: Tiefe der Probe und Größe des Meteoroiden durch experimentelle $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnisse, die mit theoretisch berechneten Tiefen- und Größenprofilen von H- bzw. L-Chondriten verglichen wurden.

Meteorit	Klasse	Fundmasse [g]	$^{26}Al/^{10}Be$	Tiefe [cm]	Radius [cm]
Ham al H.	H5	296	2.22	5	10
				6	15
Acfer 028	H3.8	3130	2.61	9	15
				3	25
				2	32
				0	40
Acfer 039	L3	225	2.63	9	15
				3	25
				2	32
				0	40
Tanez. 006	H3	331	2.90	5	25
				4	32
				4	40
				4	50
				3	65
Acfer 066	L3	517	2.95	6	25
				5	32
				5	40
				5	50
				4	65
Acfer 023	H3	118	3.01	10	25
				10	32
				8	40
				8	50
				5	65
				5	85
Acfer 022	H3.7	192	3.09	12	25
				12	32
				10	40
				10	50
				8	65
				8	85
Ilafegh 013	H3	745	3.42	25	40
				20	50
				15	65
				15	85
				12	100
				12	105

Werden die $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnisse gebildet, können den Meteoritenproben Größen- und Tiefenbereiche zugeordnet werden (s. Tab. 8.9). Je kleiner das Verhältnis ist, umso kleiner sind die Radien der Meteoroide. Innerhalb eines angegebenen Größenbereichs verringern sich die Tiefen mit zunehmendem Radius des Meteoroiden. Mit zunehmendem $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnis und somit Größe des Meteoroiden, ist eine Zunahme der Fundmasse nicht zu beobachten.

^{14}C Produktionsraten können nur bei sehr jungen oder gefallenen Meteoriten definiert werden, da die relatv kurze Halbwertszeit von 5730 Jahren einen raschen Zerfall bewirkt. Sahara Meteorite wurden erstmals von Jull et al. auf ^{14}C analysiert. Das terrestrische Alter liegt zwischen 3500 und 35000 Jahren [JUL90]. Das heißt, Sahara Meteorite sind im allgemeinen für die Bestimmung terrestrischer Alter durch die ^{14}C Methode geignet. Der theoretisch berechnete Produktionsratenbereich ist, für ein Niederenergieprodukt typisch, entsprechend groß und beträgt für H-Chondrite 18.0 - 57.6 dpm/kg und für L-Chondrite 18.8 - 61.2 dpm/kg. Diese großen Tiefen- und Größenbereiche machen eine Unterscheidung in Produktionsrate und verminderter Aktivität durch längere terrestrische Alter schwierig.

Bevor mit Hilfe von ^{14}C terrestrische Alter berechnet werden können, muß die Produktionsrate für die analysierte Probe bekannt sein. Je nach Größe des Meteoroiden und Tiefe der Probe variiert sie über einen Bereich von ca. 40 dpm/kg bei H- und L-Chondriten. Wenn Edelgasdaten zur Verfügung stehen, lassen sich Tiefen- und Größenbereiche stark einengen und ^{14}C Produktionsraten festlegen. Zu Proben dieser Arbeit existieren noch keine Edelgasuntersuchungen. Um eine Auswertung der ^{14}C Daten vornehmen zu können, bieten sich deshalb drei verschiedene Methoden an:

1. Alle Daten werden auf eine mittlere Produktionsrate von 44 dpm/kg bezogen [JUL88].

2. Alle Daten werden auf eine maximale Produktionsrate von 59 dpm/kg bezogen.

3. Es werden für jede Probe Produktionsraten mit Hilfe von ^{10}Be und ^{26}Al theoretisch berechnet.

zu 1: Bereits Jull et al. [JUL88] haben bereits mit einer mittleren ^{14}C Produktionsrate von 44 dpm/kg terrestrische Alter in Meteoriten ermittelt. Das terrestrische Alter läßt sich mit Hilfe des radioaktiven Zerfalls berechnen:

$$-\frac{1}{\lambda}\ln\frac{A}{A_0} = t_{terr} \qquad \text{(Gl. 8.3)}$$

A	^{14}C Aktivität der Probe
A_0	^{14}C mittlere Produktionsrate 44 dpm/kg
λ	Zerfallskonstante: $\ln 2 / t_{1/2} = 1.210 \cdot 10^{-4}$
t_{terr}	terrestrisches Alter

Die nach dieser Methode berechneten terrestrischen Alter sind in Tab. 8.2 aufgelistet. Die Alter bewegen sich zwischen 5.7 und 20.9 ka. Das mittlere terrestrische Alter dieser Proben liegt nach dieser Methode bei 11.3 ka. Der jüngste Meteorit ist der Ilafegh 013, der älteste der Acfer 023. Aufgrund der niedrigen ^{14}C Aktivitäten dieser Proben, der höchste hat eine Aktivität von 22.2 dpm/kg, läßt sich diese Methode ohne Schwierigkeiten anwenden. Erst wenn gefallene Meteorite mit hohen Produktionsraten berechnet werden sollen, kann es Probleme geben. So ergibt sich für den H5-Chondriten Jilin, der 1976 in China gefallen ist und eine Produktionsrate von 59 dpm/kg hatte, ein terrestrisches Alter von -2425 Jahren.

zu 2: Um die Berechnung negativer terrestrischer Alter zu vermeiden, gibt es die Möglichkeit, die Anfangsaktivität A_0 auf eine maximale ^{14}C Produktionsrate von 59 dpm/kg, wie in Jilin analysiert, zu setzen. Es ergeben sich terrestrische Alter von 8.1 bis 23.4 ka. Das mittlere terrestrische Alter beträgt nach dieser Methode 13.7 ka. An der Reihenfolge der jüngsten bis ältesten Meteoriten ändert sich im Vergleich zu Methode 1 nichts. Die Alter erhöhen sich um 10 bis 45 %. Diese Methode setzt voraus, daß alle analysierten Proben aus dem Zentrum eines 40 oder 50 cm Meteoroiden stammen, weil nur dort mit dieser maximalen Produktionsrate gerechnet werden kann. Dadurch bleiben, genauso wie in Methode 1, die Größen der Meteoroide und die Tiefen der Proben unberücksichtigt.

zu 3: Neben dem Edelgasverhältnis $^{22}Ne/^{21}Ne$ eignet sich, wie oben und in Kap.6 gezeigt, das Radionuklidverhältnis $^{26}Al/^{10}Be$ für entsprechende Größen- und Tiefenindikationen. Werden die theoretisch berechneten Produktionsratenverhältnisse für Meteoroiden mit Radien zwischen 5 und 120 cm von $^{14}C/^{10}Be$ und $^{26}Al/^{10}Be$ in einem Drei-

isotopenplot gegeneinander aufgetragen, so ergibt sich eine leicht konkav gekrümmte Kurve, wie in Abb. 8.1 für H-Chondrite zu sehen ist [MIC94].

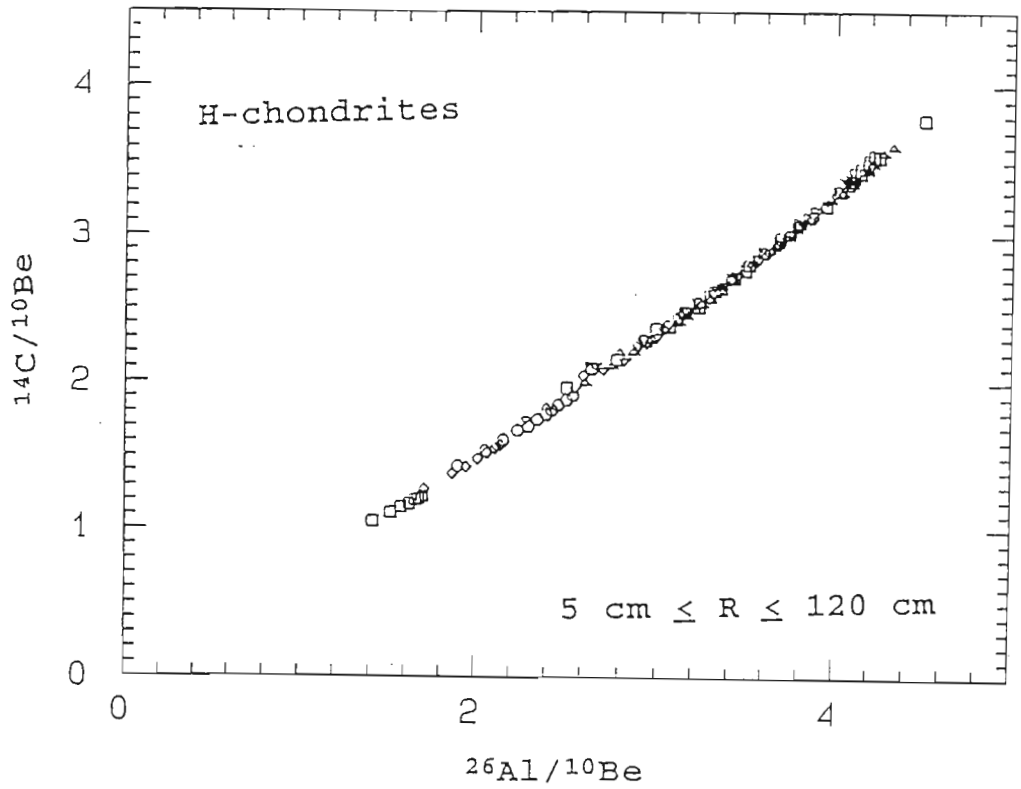


Abb. 8.1: Theoretisch berechnete $^{14}C/^{10}Be$ und $^{26}Al/^{10}Be$ Produktionsratenverhältnisse für H-Chondrite mit Radien von 5 bis 120 cm in einem 3-Isotopen Plot gegeneinander aufgetragen zur Ermittlung tiefen- und größenabhängiger ^{14}C Produktionsraten [MIC94].

Für kleine Meteoroide berechnen sich kleine Verhältnisse. Mit größer werdenden Tiefen und Größen steigen die Verhältnisse an. Bei einem Radius von 50 cm erreichen die Verhältnisse ihren größten Wert, um mit größeren Radien wieder kleiner zu werden. Diese Auftragung eignet sich zur Ermittlung tiefen- und größenabhängiger ^{14}C Produktionsraten bei bekannten ^{10}Be und ^{26}Al Produktionsraten der analysierten Probe. Es wird graphisch ausgewertet. Mit Hilfe eines $^{26}Al/^{10}Be$ Verhältnisses einer Probe wird ein $^{14}C/^{10}Be$ Wert abgelesen. Der ^{10}Be Wert der Probe ist bekannt und wird mit dem $^{14}C/^{10}Be$ Verhältnis multipliziert. Die so ermittelte ^{14}C Produktionsrate entspricht den ^{26}Al und ^{10}Be Produktionsraten. Allerdings werden nur dann realistische ^{14}C Produktionsraten erhalten, wenn es sich auch bei den anderen Radionukliden um Produktionsraten handelt. Ein langes terrestrisches Alter, die die ^{26}Al Aktivität verringert oder SCR produziertes ^{26}Al mit höheren Aktivitäten als üblich sowie kurze oder komplexe Bestrahlungen würden fehlerhafte Werte ergeben.

Die ^{14}C Produktionsraten sind in Tab. 8.2 zu sehen. Den niedrigsten Wert von 21.5 dpm/kg besitzt der Hammadah al Hamra 004, bedingt durch die sehr niedrige ^{26}Al Aktivität von 28.9 dpm/kg und dadurch kleinem Verhältnis. Ob es sich hier tatsächlich um die Oberflächenproduktionsrate eines kleinen 5 oder 10 cm Meteoroiden handelt oder um einen größeren Meteoroiden mit kurzer Bestrahlung, kann letztendlich nur durch die Analyse der Edelgase geklärt werden.

Der höchste Wert von 61.2 dpm/kg ^{14}C Produktionsrate wurde für den Acfer 129 ermittelt. Dabei wurde eine ^{26}Al Produktionsrate von 70 dpm/kg zugrundegelegt, das Verhältnis beträgt dann 3.33 und kann im Gegensatz zu 4.73 in Abb. 8.1 abgelesen werden. Die erhöhte ^{26}Al Produktionsrate von 88.7 dpm/kg ist auf zwei Ursachen zurückzuführen, die später diskutiert werden.

Die mittlere Produktionsrate dieser berechneten ^{14}C Werte beträgt 37 dpm/kg, ist also um 7 dpm/kg niedriger als die mittlere ^{14}C Produktionsrate von Jull et al. [JUL88]. Werden die Meteorite Hammadah al Hamra 004 und Ilafegh 013 wegen ihrer möglicherweise ungesättigten ^{10}Be und ^{26}Al Werte aus der Mittelwertbildung herausgenommen, steigt die mittlere Produktionsrate auf 41.5 dpm/kg. Der Mittelwert der gemessenen ^{14}C Aktivitäten dieser Wüstenmeteorite beträgt 13 dpm/kg. Mit dem Mittelwert von 37 dpm/kg errechnet sich ein mittleres terrestrisches Alter von 8600 a, mit 41.5 dpm/kg ein Alter von 9600 a und mit 44 dpm/kg ein Alter von 10100 a.

Die gemessenen ^{14}C Aktivitäten (>1000°C) erstrecken sich über einen Bereich von 3.5 bis 22.2 dpm/kg. Zur Berechnung des terrestrischen Alters wird folgende Gleichung benutzt:

$$-\frac{1}{\lambda}\ln\left(\frac{A}{P(^{14}C)}\right) = t_{terr} \qquad \text{(Gl. 8.4)}$$

$P(^{14}C)$	^{14}C Produktionsrate der Probe in dpm/kg
A	^{14}C Aktivität der Probe in dpm/kg
λ	Zerfallskonstante: $\ln 2 / 5730 = 1.21 \cdot 10^{-4}\ a^{-1}$
t_{terr}	terrestrisches Alter in a

Es errechnen sich terrestrische Alter zwischen 1.0 und 21.7 ka. Der Mittelwert beträgt 10170 Jahre und stimmt mit dem mittleren terrestrischen Alter von 10100 Jahren, der auf eine mittlere ^{14}C Produktionsrate von 44 dpm/kg bezogen wurde, gut überein. Das bestätigt die

mittlere ^{14}C Produktionsrate von 44 dpm/kg. Wie aber in Tab. 8.2 zu sehen ist, differieren die einzelnen terrestrischen Alter im Vergleich zur 1. Methode zwischen 0.7 und 5.9 ka und zur 2. Methode zwischen 0.2 und 7.1 ka.

Am Acfer 129 wurde der höchste Verwitterungsgrad C festgestellt (s. Tab. 8.2). Dies korreliert sehr gut mit dem terrestrischen Alter von 21.7 ka, dem in dieser Arbeit höchstem Alter. Demgegenüber sind die am wenigsten verwitterten Meteorite Acfer 039 und Ilafegh 013 mit dem Verwitterungsgrad A/B auch sehr junge Meteorite mit terrestrischen Altern von 5.5 bzw. 1.0 ka. Insgesamt ist zwischen Verwitterungsgrad und den terrestrischen Altern dieser Arbeit kein Widerspruch zu finden. Der Trend je verwitterter desto älter wird durch diese Werte sehr gut wiedergegeben.

Tab. 8.10: Mittlere terrestrische Alter von H- und L/LL-Chondriten dieser Arbeit im Vergleich mit anderen Autoren. Fundorte und Methoden sowie Anzahl der Meteorite, die in die Statistik mit eingingen, sind angegeben.

Meteorite	Klasse	Methode	Anzahl	mittl. terr. Alter [ka]	Autor
Sahara Algerien	H	^{14}C / AMS	7	10.9	diese Arbeit
Sahara Algerien	L/LL	^{14}C / AMS	3	8.5	diese Arbeit
Sahara Libyen	H	^{14}C / AMS	8	5.8	[JUL90]
Sahara Libyen	L/LL	^{14}C / AMS	5	12.4	[JUL90]
North Texas	H	^{14}C / AMS	7	14.3	[JUL90]
North Texas	L	^{14}C / AMS	8	18.9	[JUL90]
Roosevelt Country	H	^{14}C / counting	7	6.6	[BOE72]
Roosevelt Country	L	^{14}C / counting	5	5.8	[BOE72]
Roosevelt Country	H	^{14}C / AMS	7	14.9	[JUL90]
Roosevelt Country	L	^{14}C / AMS	5	13.8	[JUL90]
Antarktis ALHA	H	^{36}Cl / AMS	22	117.	[NIS89]
Antarktis ALHA	L/LL	^{36}Cl / AMS	37	277.	[NIS89]
Antarktis Yamato	H	^{14}C / AMS	3	14.1	[BEU88]
Antarktis Yamato	L/LL	^{14}C / AMS	4	12.3	[BEU88]
Antarktis ALHA	H	^{14}C / counting	4	>31.8	[FIR81]
Antarktis ALHA	L	^{14}C / counting	6	>30.5	[FIR81]

Das mittlere terrestrische Alter der Saharameteorite dieser Arbeit beträgt für H-Chondrite 10.9 ka (7 Werte) und für L/LL-Chondrite 8.5 ka (3 Werte), wie in Tab. 8.10 zu sehen ist. Jull et al. [JUL90] haben libysche Saharameteorite auf ^{14}C untersucht und mittlere terrestrische Alter von 5.8 ka (8 Werte) für H-Chondrite und 12.4 ka (5 Werte) für L/LL-Chondrite ermittelt. Der hohe Mittelwert für L/LL-Chondrite wird durch den Daraj 119 geprägt, der ein Alter von 35 ka besitzt. Ohne ihn würde sich mit 4 Werten ein mittleres Alter von 6.8 ka ergeben. Im Vergleich sind in dieser Arbeit im Mittel höhere Alter festgestellt worden als bei Jull et al. . Wahrscheinlich kann mit derart wenigen Werten kaum eine vergleichende Statistik betrieben werden.

Interessant ist der Vergleich terrestrischer Alter antarktischer Meteorite. Während Fireman et al. 1981 [FIR81] bei der Untersuchung von ALHA's* mit der ^{14}C-Zähltechnik an die Grenzen dieser Methode kamen und nur minimale Alter angeben konnten, haben Nishiisumi et al. 1989 [NIS89] in ihrer ^{36}Cl Data Compilation das für antarktische Meteorite besser geeignete Nuklid ^{36}Cl gewählt und mittlere Alter von 117 ka für H-Chondrite und 277 ka für L/LL-Chondrite gefunden. Die ^{14}C Methode kommt nur für ausgewählte antarktische Meteorite mit Altern unter 30 ka in Frage. Ein Beispiel sind die Werte von Beukens et al. 1988 [BEU88] mit 14.1 (H) bzw. 12.3 ka (L/LL).

Die Thermolumineszensdaten (NTL) der Sahara Meteorite können zusätzlich zu den Klassen und kosmogenen Radionukliden Hinweise auf Pairing geben. Die NTL sind in Tab. 8.2 aufgelistet. So hat beispielsweise der Acfer 028 einen ähnlichen Wert wie der Acfer 129, es handelt sich bei beiden um H-Chondrite, die ^{10}Be Aktivitäten stimmen annähernd überein, doch weder die ^{26}Al noch die ^{14}C Aktivitäten und damit auch die terrestrischen Alter sprechen für einen gemeinsamen Meteoroiden. Innerhalb dieser Auswahl der Saharameteorite kann ein Pairing ausgeschlossen werden.

Der Meteorit Acfer 129 hat, trotz starker Verwitterung, hohe ^{10}Be und ^{26}Al Produktionsraten. Ungewöhnlich ist die für H-Chondrite zu hohe ^{26}Al Produktionsrate von 88.7 dpm/kg. Dafür könnte es zwei Ursachen geben, die im folgenden näher diskutiert werden.

Zum einen hatte die analysierte Probe des Acfer 129 ungewöhnlich hohe Al, Mg und Fe Konzentrationen (s. Anhang). Leider kann im Rahmen dieser Analysen kein Si analysiert werden, das Haupttargetelement des ^{26}Al. Es kann aber angenommen werden, daß bei höherer Al und Mg Konzentration auch der Anteil der Mineralien, in denn diese Kationen vorkommen, größer ist. Diese Mineralien sind vor allem Silikate wie Olivin, Pyroxen oder

* ALHA: Meteorite aus dem Allan Hills Gebiet, ab ca. 1984 Bezeichnung auf ALH verkürzt.

Plagioklas. Sie setzen sich aus Mg, Fe, Ca, Na, Al, Si und O zusammen. Eine Erhöhung einzelner Konzentrationen muß aber zu Lasten einer dieser Haupt- und Nebenbestandteile gehen. Deshalb ist eine zusätzliche erhöhte Si Konzentration fragwürdig, zumal dann auch der Sauerstoffanteil steigen müßte. Bevor mit höheren Targetkonzentrationen neue, für H-Chondrite untypisch hohe Produktionsraten errechnet werden, sollte die chemische Zusammensetzung genauestens bekannt sein. Dazu bedarf es neuer Analysen.

Zum anderen handelt es sich bei diesem Meteoriten um einen H-Chondriten mit leicht differenziertem Charakter der Mineralien an der Oberfläche des Meteoriten. Obwohl die Oberfläche eines Meteoroiden beim Durchfliegen der Erdatmosphäre vergast, hat sich bei diesem Chondriten oberflächennahe Materie mit starken Erhitzungsspuren erhalten. Eine Produktion von Niederenergieprodukten, wie beispielsweise ^{26}Al, durch die SCR, kann in Oberflächennähe eine höhere Produktionsrate bewirken, als mit der GCR möglich wären. Damit wäre eine Produktionsrate von 88.7 dpm/kg erklärbar. Zur Kalkulierung der ^{14}C Produktionsrate wird deshalb eine GCR ^{26}Al Produktionsrate von 70 dpm/kg geschätzt. Inwieweit ^{14}C durch die Erwärmung möglicherweise verloren ging, kann nicht mehr nachvollzogen werden. Diese hohen ^{10}Be, ^{14}C und ^{26}Al Produktionsraten lassen auf einen 40 bis 50 cm großen Meteoroiden schließen. Die Probe müßte aus dem Zentrum des Meteoroiden stammen.

Der Meteorit Ilafegh 013 hat ungewöhnliche Radionuklidwerte. Während die ^{10}Be und ^{26}Al Aktivitäten mit 9.1 bzw. 31.1 dpm/kg sehr niedrig liegen, wurde an dieser Probe die höchste ^{14}C Aktivität von 22.2 dpm/kg gemessen. Aufgrund des sehr niedrigen ^{10}Be Wertes ist entsprechend auch eine sehr geringe ^{14}C Produktionsrate von 25.2 dpm/kg berechnet worden. Unter der Annahme, daß es sich hier um ^{10}Be und ^{26}Al Produktionsraten handelt, ergab sich das jüngste terrestrische Alter mit 1.0 ka. Wird versucht, den Radionuklidwerten eine Probentiefe zuzuordnen, ergeben sich Widersprüche. 9.1 dpm/kg ^{10}Be tritt erst bei sehr großen Tiefen auf, beispielsweise im Zentrum eines 120 cm Meteoroiden (s. Abb. 7.4). Demgegenüber sind ^{26}Al Produktionsraten von 31.1 dpm/kg nur in Oberflächennähe kleinerer Meteoroiden von 5 bis 15 cm Radius und an der Oberfläche eines 120 cm Meteoroiden zu beobachten (s. Abb. 7.3). Niedrige ^{14}C Produktionsraten von 25.2 dpm/kg wiederrum sind in kleinen Meteoroiden mit 10 bis 15 cm Radius in Oberflächennähe zu sehen. Es sollte aber beachtet werden, daß diese geringe ^{14}C Produktionsrate nur durch den niedrigen ^{10}Be Wert zustande kam. Möglicherweise aber handelt es sich um eine kurze Bestrahlung, sodaß ^{10}Be und ^{26}Al nicht in Sättigung waren. Für klarere Aussagen sind Analysen der Edelgase unverzichtbar.

Ähnlich, wenn auch nicht so extrem, verhält es sich mit dem H-Chondriten Hammadah al Hamra 004. Sein ^{10}Be Wert ist mit 13.0 dpm/kg unterhalb des theoretisch berechneten Produktionsratenbereichs. Wegen der niedrigen ^{26}Al Aktivität von 28.9 dpm/kg und entsprechend kleinem ^{26}Al/^{10}Be Verhältnis berechnet sich auch eine kleine ^{14}C Produktionsrate von 21.5 dpm/kg, die kleinste hier berechnete. So ergibt sich trotz einer eher niedrigen ^{14}C Aktivität von 10.5 dpm/kg ein relativ geringes terrestrisches Alter von 5.9 ka. Mit einer mittleren Produktionsrate von 44 dpm/kg erhöht sich das Alter um den Faktor 2 auf 11.8 ka. Mit einer ^{14}C Produktionsrate von 21.5 dpm/kg befindet sich die Probe nahe der Oberfläche eines 5 bis 10 cm Meteoroiden. ^{10}Be Produktionsraten von 13.0 dpm/kg treten aber erst in großen Meteoroiden mit 100 bis 120 cm Radius in Oberflächennähe oder Tiefen um 50 cm auf. Die ^{26}Al Produktionsrate von 28.9 dpm/kg wiederrum findet sich in kleinen Meteoroiden in 5 cm Tiefen. Auch hier kann nur die Analyse der Edelgase den Zusammenhang klären.

Leider mußte im Zeitrahmen dieser Arbeit auf eine Verwendung der ^{26}Al Aktivitäten der Meteorite Acfer 153, Acfer 171 und Adrar 003 verzichtet werden. Die Proben liegen meßbereit in der ETH Hönggerberg / Zürich. Die ^{26}Al Messungen mußten trotz mehrer Versuche immer wieder abgebrochen werden. Die Ionenstromquelle wurde aufgrund der sehr geringen Al Ströme zu heiß und mußte, um einer größeren Zerstörung vorzubeugen, abgeschaltet werden. Dieses Problem soll in Zukunft mit der Beschleunigung von Aluminiumoxid beseitigt werden. Allerdings erfordert diese Analyse eine modifizierte Chemie, die Proben dürfen nur noch sehr geringe Mg Anteile aufweisen, da Magnesiumoxid mitbeschleunigt wird und einen störenden Untergrund erzeugt.

9. Zusammenfassung

Kosmogene Nuklide entstehen durch Wechselwirkung von Materie mit der solaren und galaktischen kosmischen Strahlung. Bisher sind kosmischer Staub, Meteorite (darunter Mond- und Marsgestein) und Mondproben die einzige zugängliche extraterrestrische Materie. An Mondproben und Meteoriten wird einerseits die zeitliche Variation des Energiespektrums der kosmischen Strahlung rekonstruiert und andererseits die Kollisions- und Bestrahlungsgeschichte dieser kleinen Körper im Sonnensystem erforscht. Im Rahmen eines Projekts zur Untersuchung von Meteoritenpopulationen aus heißen und kalten Wüsten wurden in dieser Arbeit die kosmogenen Radionuklide ^{10}Be, ^{14}C und ^{26}Al mittels Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) bestimmt. Bei Meteoritenfunden, im speziellen aus heißen und kalten Wüsten, sind neben den Bestrahlungs- und Kollisionsgeschichten auch die terrestrischen Alter von Interesse.

Zur Separation der Radionuklide ^{10}Be ($t_{1/2}$ = 1.51 Ma) und ^{26}Al ($t_{1/2}$ = 716 ka) konnten existierende Trennungsgänge an die speziellen Laborbedingungen in Hannover angepaßt werden. Um auf Perchlorsäure beim Aufschluß verzichten zu können, wurde der Trennungsgang modifiziert. Detaillierte Analysen des alten und des neuen Trennungsgangs wurden durchgeführt. Mit der Entwicklung des neuen Trennungsgangs konnte die Ausbeute und Reinheit der Al- und Be-AMS-Proben verbessert werden, wodurch sich höhere Ionenströme und damit geringere AMS-Meßzeiten (bzw. kleinere statistische Fehler) an der PSI / ETH-Tandem-AMS-Anlage in Zürich ergaben.

An der seltenen und wertvollen extraterrestrischen Materie sind Wiederholungsmessungen nicht üblich. Da es sich aber bei den Steinmeteoriten um klassenähnliche Objekte handelt, kann aufgrund von Mehrfachuntersuchungen eines Meteoriten der ermittelte statistische Fehler des Analysenverfahrens auf alle Steinmeteorite übertragen werden. Deshalb wurde ein 72 g schweres Fragment des Chondriten Dhurmsala zerkleinert und auf <120 µm gemörsert, um mit diesem selbsterstellten Standard die Präzision des Verfahrens zu charakterisieren. Zusätzlich soll er als Interlaboratoriumsstandard dienen. Für die ^{10}Be-Produktionsrate ergab sich bei zwanzig Analysen ein Mittelwert von 21.4 ± 1.1 dpm/kg, wobei sich der Gesamtfehler von 5.3 % aus einem Chemiefehler von 4.9 % und einem AMS-Fehler von 2.0 % zusammensetzt. Mit neun ^{26}Al-Meßproben ergab sich ein Mittelwert von 69.7 dpm/kg mit einem Gesamtfehler von ± 3.3 dpm/kg, was einem relativem Fehler von 4.7 % entspricht (Chemiefehler 3.3 %, AMS-Fehler 3.4 %).

Für die ^{14}C-Analyse wurde eine Apparatur entwickelt, mit der das kosmogene ^{14}C aus der Meteoritenprobe vergast und als Kohlendioxid ausgefroren werden konnte. Die von kontaminiertem, terrestrischen CO_2 separierte ^{14}C-Probe wurde in Zürich mit Wasserstoff zu Graphit reduziert und mit Hilfe der AMS gemessen. Aufgrund von Ausheizprofilen von Wüstenmeteoriten, die von Heide [HEI92] erstellt wurden, konnte eine Ausheiztemperatur zur Dekontamination bis 1000°C begründet werden. Diese Vorfraktion wird im allgemeinen verworfen. Zur Qualitätskontrolle des chemischen Verfahrens wurde der Chondrit Bruderheim analysiert. Die Produktionsrate 47.6 ± 2.0 dpm/kg dieser Arbeit stimmt mit den Werten von Jull et al. [JUL89] von 46.8 ± 1.4 dpm/kg und Beukens et al. [BEU88] von 50.1 ± 0.3 gut überein.

Es wurden 12 antarktische Chondrite und 25 Meteorite aus anderen Erdteilen auf ^{10}Be und ^{26}Al analysiert. 13 der Meteorite stammen aus der Sahara, an denen zusätzlich ^{14}C-Messungen vorgenommen wurden. Die meisten Daten lassen sich im Rahmen von Größen- und Tiefenabhängigkeit der Produktionsraten erklären. Einige ^{10}Be-Resultate liegen unterhalb der normalen Be-Konzentrationen. Bei diesen Daten können die Größen der Meteorite und Tiefen der Proben durch das $^{26}Al/^{10}Be$-Verhältnis nicht mehr eindeutig zugeordnet werden. Hier müssen zur weiteren Betrachtung Edelgase gemessen werden. Die Daten des Chondriten ALH 88019 sind mit 5.6 dpm/kg ^{10}Be und 10.4 dpm/kg ^{26}Al außergewöhnlich niedrig. Die ^{14}C-Daten liegen deutlich tiefer als bei Fällen.

Alle verfügbaren Daten wurden mit theoretisch berechneten Tiefenprofilen verschieden großer Meteoroiden verglichen und diskutiert. Die Messung zweier kosmogener Nuklide, wie ^{10}Be und ^{26}Al, ermöglichte durch Bildung des $^{26}Al/^{10}Be$-Verhältnisses Rückschlüsse auf die präatmoshärische Größe des Meteoroiden und die Abschirmverhältnisse der Probe. In einem Dreiisotopenplot ($^{14}C/^{10}Be$ gegen $^{26}Al/^{10}Be$), der über Daten aus Modellrechnungen verfügt, konnte dem $^{26}Al/^{10}Be$-Verhältnis eine theoretische ^{14}C-Produktionsrate zugeordnet werden. Die ^{14}C-Produktionsraten variieren zwischen 20 und 60 dpm/kg.

Für den Meteoriten ALH 88019 existieren Edelgasdaten, aus denen ein Bestrahlungsalter von 42 Millionen Jahren folgt [SchER93]. Beim Fall des Chondriten mußten ^{10}Be und ^{26}Al in Sättigung gewesen sein. Aufgrund der jetzt sehr niedrigen Werte konnte im Vergleich mit Modellrechnungen das bisher höchste terrestrische Alter von 1.39 Millionen Jahren beobachtet werden. Der Acfer 129 weist aufgrund seines relativ hohen Wertes von 88.7 dpm/kg SCR produziertes ^{26}Al auf.

Mit Hilfe der tiefen- und größenkorregierten theoretisch berechneten ^{14}C-Produktionsraten und den experimentell ermittelten ^{14}C-Daten wurden für die Sahara-Meteorite terrestrische Alter berechnet, die zwischen 1000 und 22000 Jahren liegen. Ein Vergleich zwischen diesen Altern und den mit Hilfe einer mittleren Produktionsrate von 44 dpm/kg, sowie maximalen Produktionsrate von 59 dpm/kg berechneten terrestrischen Altern zeigte, daß Abschirmkorrekturen für die Berechnung terrestrischer Alter unerläßlich sind. Wenn Edelgasdaten vorliegen, können zur Tiefenkorrektur auch die Korrelation zwischen ^{14}C und den $^{22}Ne/^{21}Ne$-Verhältnissen dienen.

In dieser Arbeit wurden Verfahren zur AMS-Probenpräparation von ^{10}Be, ^{14}C und ^{26}Al in Steinmeteoriten entwickelt und AMS-Messungen an insgesamt 37 Meteoriten vorgenommen. Alle Daten wurden unter Berücksichtigung der Größen- und Tiefenabhängigkeit der Produktionsraten diskutiert. Die mit Hilfe von ^{14}C berechneten terrestrischen Alter wurden mit unkorrigierten Daten verglichen. Mit den Ergebnissen dieser Arbeit und noch ausstehenden Messungen kosmogener Edelgase, die im Rahmen eines DFG Gruppenvorhabens in anderen Laboratorien gemessen werden, wird es möglich sein, ein vollständiges Bild der Bestrahlungsgeschichte und der terrestrischen Geschichte der Meteorite zu entwerfen.

10. Literaturverzeichnis

[ALF77] H.G. Alfvén, G. Arrhenius und D.A. Mendis, Comets, Asteroids, Meteorites, Ed. A.H. Delsemme, Ohio: University of Toledo.

[ALL85] J.A. van Allen und B.A. Randall, J. Geophys. Res. **A90** (1985), 1399.

[ALS72] R.G. Alsmiller jr., R.T. Santaro, J. Barish und H.C. Claiborne, ORNL - RSIC - **35** (1972).

[ALV39] L.W. Alvarez, R. Gornog, Phys. Rev. **56** (1939), 379.

[AND47] E.C. Anderson, W.F. Libby, S. Weinhouse, A.F. Reid, A.D. Kirshenbaum, A.V. Grosse, Phys. Rev. **72** (1947), 931 - 936.

[ART88] E.D. Arthur, Rep. LA-UR-88-382 (1988).

[BEL88] J.F. Bell, Meteoritics **23** (1988), 256 - 257.

[BEN90] G. Benkowsky, Induktionserwärmung, Berlin: Verlag Technik (1987)

[BEN91] P.H. Benoit, H. Sears und D.W.G. Sears, Meteoritics **26**,3 (1991), 262

[BEN93] P.H. Benoit, A.J.T. Jull, S.W.S. McKeever und D.W.G. Sears, Meteoritics **28**.2 (1993), 196 - 203.

[BEU88] R.P. Beukens, J.C. Rucklidge und Y. Miúra, Proc. NIPR Symp. Antarct. Meteorites, **1** (1988), 224 - 230.

[BHA93] N. Bhandari, K.J. Mathew, M.N. Rao, U. Herpers, K. Bremer, S. Vogt, W. Wölfli, H.J. Hofmann, R. Michel, R. Bodemann und H.J. Lange, Geochim. Cosmochim. Acta **57** (1993), 2361 - 2375.

[BIN92] R.P. Binzel, Icarus **99** (1992), 238 - 240.

[BIN93] R.P. Binzel und S. Xu, Science **260** (1993), 186 - 191.

[BLA79] M. Blander, Asteroids, Ed. Tom Gehrels, Tucson: University of Arizona Press, (1979), 809 - 821.

[BLA83] M. Blann und H.K. Vonach, Phys. Rev. **C 28** (1983), 1475.

[BLA90] M. Blann, Computer-Code ALICE LIVERMORE 900, (1990).

[BOD93] R. Bodemann, Dissertation, Univ. Hannover (1993)

[BOE72] R. Boeckl, Nature **236** March 3 (1972), 25 - 26.

[BON87] G. Bonani, J. Beer, H.J. Hoffmann, H.J. Synal, M. Suter, W. Wölfli, C. Pfleiderer, B. Kromer, C. Junghans und K.O. Munnich, Nuc. Instr. Meth. Phys. Res. **B29** (1987), 87 - 90.

[BOR75] W. Born und F. Begemann, Earth Planet. Sci. Letters **25** (1975), 159 - 169.

[BOR73] W. Born, Dissertation, Univ. Mainz (1973).

[BRE92] K. Bremer, Dissertation, Univ. zu Köln.

[BRI91] D.T. Britt und C.M. Pieters, Lunar Planet. Sci. **22** (1991), 141 - 142.

[BRI92] D.T. Britt und C.M. Pieters, Geochim. Cosmochim. Acta (1992) (submitted).

[BRO47a] H.S. Brown und C. Patterson, Journal of Geology **55** (1947), 405 - 411.

[BRO47b] H.S. Brown und C. Patterson, Journal of Geology **55** (1947), 508 - 510.

[BRO48] H.S. Brown und C. Patterson, Journal of Geology **56** (1948), 85 - 111.

[BRO67] J. Brocas und E. Picciotto, J. Geophys. Res. **72** (1967), 2229.

[BRO81] L. Brown, I.S. Sacks, F. Tera, J. Klein und R. Middelton, Earth Planet. Sci. Lett. **55** (1981), 370

[BRO84] R.M. Brown, H.R. Andrews, G.C. Ball, N. Burn, Y. Imahori, J.C.D. Milton und E.L. Fireman, Earth Planet. Sci. Lett. **67** (1984), 1 - 8.

[BUR86] J.G. Burke, Cosmic Debris,University of California Press (1986).

[CAS80] W. Cassidy, Antarctic J. of the U.S. **15** (1980), 49 - 50.

[CAS92] W. Cassidy, R. Harvey, J. Schutt, G. Delisle und K. Yanai, Meteoritics **27** (1992), 490 - 525.

[CLA77] D.D. Clayton, Icarus **32** (1977), 255 - 269.

[CLA81] D.D. Clayton, Proc. Lunar Planet Sci. **12B** (1981), 1781 - 1802.

[CLA82] D.D. Clayton, Quart. J. Roy. Astron. Soc. **23** (1982), 174 - 212.

[CLA88] D.D. Clayton, Astrophys. J. **334** (1988), 191 - 195.

[CLA92] D.D. Clayton, Meteoritics **27** (1992), 5 - 17.

[CLA94] F.F.E. Chladni, Ueber den Ursprung der von Pallas gefundenen und anderer ihr ähnlicher Eisenmassen. Riga: J.F. Hartknoch (1794).

[CUL91] J.L. Culhane und C. Jordan (ed.): The Physicsof Solar Flares, The Royal Society, London (1991).

[CLO88] P. Cloth, D. Filges, R.D. Neef, G. Sterzenbach, Ch. Reul, T.W. Armstrong, B.L. Colborn, B. Anders und H. Brückmann, HERMES User' s Guide Jül.-2203 (1988).

[DEL89] G. Delisle, L. Schulz, B. Spettel, H.W. Weber, F. Wlotzka, H.Ch. Höfle, R. Thierbach, S. Vogt, U. Herpers, G. Bonani, M. Suter und W. Wölfli, Geol. Jb., **E38** (1989), 483 - 513.

[DEL91]. G. Delisle und J. Sievers, J. Geophys. Res. **E96** (1991), 15577 - 15587.

[DOD81] R.T. Dodd, Meteorites: A Petrological-chemical Synthesis (1981), Cambridge University Press.

[EHM58] W.D. Ehmann und T.P. Kohman, Geochim. Cosmochim. Acta **14** (1958), 364.

[EUG88] O. Eugster, Geochim. Cosmochim. Acta **52** (1988), 1649 - 1662.

[EVA87] J.C. Evans, J.H. Reeves und R.C. Reedy, 18th Lun. Pan. Sci. Conf. (Abstract) (1987), 271.

[FAR92] P. Farinella, C. Froeschle und R. Gonczi, Cel. Mech. (1992).

[FAR93] P. Farinella, C. Froeschle und R. Gonczi, Icarus **101** (1993), 174 - 187.

[FIR78] E.L. Fireman, Proc. Lunar Planet. Sci. Conf. 9th (1978), 1647 - 1654.

[FIR81] E.L. Fireman und T. Norris, Proc. Lunar Planet. Sci. **12B** (1981), 1019 - 1025.

[FIR83] E.L. Fireman, Memoirs of National Institut of Polar Research, Spec. Issue **30** (1983), 246 - 250.

[FUS69] K. Fuse und E. Anders, Geochim. Cosmochim. Acta **33** (1969), 653 - 670.

[GAF92] M.J. Gaffey, K.L. Reed, und M.S. Kelly, Icarus **100** (1992), 95 - 109.

[GAF93] M.J. Gaffey, T.H. Burbine und R.P. Binzel, Meteoritics **28** (1993), 161 - 187.

[GEY90] M.A. Geyh und H. Schleicher, Absolute Age Determination, Springer Verlag, 1990.

[GLO94] M. Gloris, priv. Mitt. (1994).

[GOE62] P.S. Goel und T.P. Kohman, Science Vol. **136** (1962), 875 - 876.

[GRI87] R. Grieve, Ann. Rev. of Earth and Plan. Sci., **15** (1987), 245 - 270.

[GRI90] R. Grieve, Spektrum der Wissenschaft, Juni 1990, 108 - 116.

[HAM80] W. Hampel, H. Wänke, H. Hofmeister, B. Spettel und G.F. Herzog, Geochim. Cosmochim. Acta **44** (1980), 539.

[HAR93] W.K. Hartmann, Moons and Planets (1993)

[HEI93] K. Heide, priv. Mitt. (1993)

[HER69] U. Herpers, Dissertation, Univ. Köln (1969).

[HER83] U. Herpers und P. Englert, J. Geophys. Res. **B88** (1983), 312 - 318.

[HER91] U. Herpers, R. Rösel, R. Michel, M. Lübke, D. Filges, P. Dragovitsch, W. Wölfli, B. Dittrich und H.J. Hoffmann, Meteoritics **26**.4 (1991), 344.

[HER92] U. Herpers, priv. comm., Workshop on Cosmogenic Nuclide Produktion in Extraterrestrial Matter, Ringberg Castle, June 9 - 12, 1992.

[HER94a] U. Herpers, priv. Mitt. (1994).

[HER94b] U. Herpers, S. Vogt, K. Bremer, H.J. Hofmann, M.Suter, W. Wölfli, R. Wieler, H.J. Lange und R. Michel, sub. to Planet. Space Sci. (1994).

[HUD82] B. Hudson, C.M. Hohenberg, B.M. Kennedy und F.A. Podosek, Lun. Planet. Sci. XIII (1982), 346 - 347.

[INT88] D.S. Intriligator, Solar-Terrestrial Relationships and the Earth Environment in the Last Millennia, ed. G. Castagnoli, North-Holland, Amsterdam (1988), 1

[JAN90] Jander Blasius, Einführung in das anorg. chem. Praktikum, S. Hirzel Verlag Stuttgart 1990.

[JAR90] E. Jarosewich, Meteoritics **25** (1990), 323 - 337.

[JUL84] A.J.T. Jull, D.J. Donahue, T.H. Zabel und E.L. Fireman, J. Geophys. Res. **89** (1984), Supplement, C329 - C335.

[JUL88] A.J.T. Jull und D.J. Donahue, Geochim. Cosmochim. Acta **52** (1988), 1309 - 1311.

[JUL89] A.J.T. Jull, D.J. Donahue und T.W. Linick, Geochim. Cosmochim. Acta **53** (1989), 2095 - 2100.

[JUL90] A.J.T. Jull, F. Wlotzka, H. Palme und D.J. Donahue, Geochim. Cosmochim. Acta **54** (1990), 2895 - 2898.

[JUL91] A.J.T. Jull, D.J. Donahue und R.C. Reedy, 22th Lunar Planet. Sci. Conf. (1991)

[KAL92] H. Kalka, Nuclear Data for Science and Technology (Jülich Conference), ed. S.M. Qaim, Springer, Berlin (1992), 897.

[KEL78] W.R. Kelly und G.J. Wasserburg, Geophys. Res. Lett. **5** (1978), 1079 - 1082.

[KER92] R.A. Kerr, Science **257** (1992), 878 - 880.

[KIG86] K. Kigoshi und E. Matsuda, Lunar Planet. Institute Techn. Phys. **86-01** (1986), 58 - 59.

[KOE88] C. Koeberl, Die Geowissenschaften **4** (1988), 106 - 132.

[KUB94] P.W. Kubik, priv. Mitt. (1994)

[KUR67] P.K. Kuroda, in: Radioactive Dating and Methods of Low-Level Counting, IAEA, Vienna (1967), 259 - 268.

[LAN94] H.J. Lange, Dissertation, Univ. Hannover (1994)

[LEE78] T. Lee, D.N. Schramm, J.P. Wefel und J.B. Blake, Geol. Surv. Open-File Rep.78 - 701 : 246 - 247 (1978).

[LEM81] K. Lemcke, Spektrum der Wissenschaft, Januar 1981, 111 - 121.

[LEY94] I. Leya, priv. Mitt. (1994).

[LÜP93] M. Lüpke, Dissertation, Univ. Hannover (1993)

[MAS60] B.H. Mason, J. Geophys. Res. **65** (1960), 2965 - 2970.

[MAS62a] American Museum Novitates, No. **2085** (1962), 1 - 20.

[MAS62b] B.H. Mason, Meteorites, John Wiley & Sons. Inc., New York (1962).

[MAS79] B. Mason, Data of Geochemistry, 6th Edition, **B** Cosmochemistry Part 1, Meteorites, Ed. M. Fleischer, (1979).

[MAT69] H. Matsuda, K. Horie und M. Honda, Geochem. J. **2** (1969), 167 - 174.

[MIC83] R. Michel und R. Stück, in: Nuclear Data for Science and Technology, ed. K.H. Böckhoff (1983), 952.

[MIC91] R. Michel, P. Dragovitsch, P. Cloth, G. Dagge und D. Filges, Meteoritics **26** (1991), 221 - 242.

[MIC91] R. Michel, P. Dragovitsch, P. Cloth, G. Dagge und D. Filges, Meteoritics **26** (1991), 221 - 242.

[MIC94] R. Michel, M. Lüpke, U. Herpers, R. Rösel, M. Suter, B. Dittrich-Hannen, P.W. Kubik, D. Filges und P. Cloth, submitted to Planet. Space Sci. April 1994.

[MON82] R.K. Moniot, T.H. Kruse, W. Savin, G.S. Hall, T. Milazzo und G.F. Herzog, Nucl. Instrum. Meth. **203** (1982), 495 - 502.

[MON83] R.K. Moniot, T.H. Kruse, C. Tuniz, W. Savin, G.S. Hall, T. Milazzo, D.K. Pal und G.F. Herzog, Geochim. Cosmochim. Acta **47** (1983), 1887 - 1895.

[NAR85] C. Narayan und J.I. Goldstein, Geochim. Cosmochim. Acta **49** (1985), 397 - 410.

[NEU93] U. Neupert, priv. Mitt., Diplomarbeit, Univ. Hannover (1993).

[NIS87] K. Nishiizumi, Nucl. Tracks Radiat. Meas. **13** (1987), No. 4, 209 - 273.

[NIS89] K. Nishiizumi, D. Elmore und P.W. Kubik, Earth Planet. Sci. Letters **93** (1989), 299 - 313.

[NIS90] K. Nishiizumi, H. Nagai, M. Imamura, M. Honda, K. Kobayashi, P.W. Kubik, P. Sharma, R. Wieler, P. Signer, J.N. Goswami, R.C. Reedy und J.R. Arnold, 53th Ann. meet. Soc. (Abstract) (1990) 115.

[OTT92] J. Otto, Chem. Erde **52** (1992), 33 - 40.

[PAN28] F. Paneth, H. Gehlen und P.L. Günther, Z. Elektrochem. **34** (1928), 645.

[PAN52] F.A. Paneth, P. Raesbeck und K.I. Mayne, Geochim. Cosmochim. Acta **2** (1952), 300.

[PRI86] M. Prinz, M.K. Weisberg, C.E. Nehru und J.S. Delaney, Lunar Planet. Sci. **17** (1986), 679 - 680.

[REE72] R.C. Reedy und J.R. Arnold, J. Geophys. Res. **77** (1972), 537.

[REE91] R.C. Reedy und K. Marti, in: The Sun in Time, eds. C.P. Sonett, M.S. Giampapa und M.S. Matthews, Univ. of Arizona Press (1991), 260.

[REE93] R.C. Reedy, J. Masarek, K. Nishiizumi, J.R. Arnold, R.C. Finkel, M.W. Caffee, J. Southon, A.J.T. Jull und D. Donahue, Lunar Planet. Sci. **24** (1993), 1195 - 1196.

[RUD66] G. Rudstam, Z. Naturforschung **21a** (1966), 1027.

[SAR85] R. Sarafin, Dissertation, Univ. Köln (1985).

[SchER93] P. Scherer, Dissertation, Univ. Mainz (1993).

[SchUL90] L. Schultz, in: Workshop on Antarctic Meteorite Stranding Surfaces, eds. W. Cassidy and I. Whillans (1990), 56 - 59.

[SCO78] E.R.D. Scott, Proc. Lun. Planet. Sci. Conf. **9** (1978).

[SEA88] D.W.G. Sears und R.T. Dodd, in: Meteorites and the Early Solar System, eds. J.F. Kerridge and M.S. Matthews, Univ. of Arizona Press (19889, 3 - 31.

[SHA92] V.L. Sharpton, G.B. Dalrymple, L.E. Marín, G. Ryder, B.C. Schuraytz und J. Urrutia-Fucugauchi, Nature **359** (1992), 819 - 821.

[SIL73] R. Silberberg und C.H. Tsao, Astrophys. J. Suppl. **25** (1973), 315.

[SIS91] J.M. Sisterson, H. Román, J.S. Vogel, J.R. Southon und R.C. Reedy, Lun. Planet. Sci. Conf. 22th (1991), 1267 - 1268.

[SIS92] J.M. Sisterson, A.M. Koehler, A.J.T. Jull, D.J. Donahue, L. McHargue, R.C. Reedy und P.A.J. Englert, Lun. Planet. Sci. Conf. 23th (1992).

[STU80] P.A. Sturrock (ed.): Solar Flares, Colorado Ass. Univ. Press (1980).

[SUE62] H.E. Suess und H. Wänke, Geochim. Cosmochim. Acta **26** (1962), 475 - 480.

[SUG71] K. Suga, H. Sakuyama, S. Kawaguchi und T. Hara, Phys. Rev. Lett. **27** (1971), 1604.

[SUT84] M. Suter, R. Balzer, G. Bonani, H. Hofmann, E. Morenzoni, M. Nessi, W. Wölfli, M. Andree, J. Beer und H. Oeschger, Nuc. Instr. Meth. Phys. Res. **B5** (1984), 117 - 122.

[SUT90] M. Suter, Nuc. Instr. Meth. Phys. Res. **B52** (1990), 211 - 223

[TAM61] M.A. Tamers und G. Delibrias, Compt. rend. acad. sci. **253** (1961), 1202 - 1203.

[THO84] D. J. Tholen, PhD thesis, Univ. of Arizona, Tuscon (1984), 150.

[URE53] H.C. Urey und H. Craig, GCA 4 : 36 - 82 (1953).

[VOG88] S. Vogt, Dissertation, Univ. Köln (1988).

[VOG90] S. Vogt, G.F. Herzog und R.C. Reedy, Rev. Geophys. **28** (1990), 253 - 275.

[WAR89] P.H. Warren und G.W. Kallmeyn, Proc. Lunar Planet. Sci. Conf. 19th (1989), 475 - 486.

[WAS74] J.T. Wasson, Meteorites, New York Springer Verlag (1974).

[WAS85] J.T. Wasson, Meteorites: Their Record of Early Solar System History, New York Freeman (1985).

[WEB86] W. R. Webber und J.A. Lockwood, Astrophys. J. **302** (1986), 511.

[WET85] G.W. Wetherill, Meteoritics **20** (1985), 1 - 22.

[WET87] G.W. Wetherill, Phil. Trans. R. Soc. Lond. A **323** (1987), 323 - 337.

[WET88] G.W. Wetherill, Icarus **76** (1988), 1 - 18.

[WIS85] J. Wisdom, Icarus **63** (1985), 272 - 289.

[WÖL87] W. Wölfli, Nuc. Instr. Meth. Phys. Res. **B29** (1987), 1 - 13.

[YOK72] Y. Yokoyama, R. Ogee, R. Bibron, R. Chesselet, F. Guishard, C. Leger, H. Mabuchi, J.L. Reyss und J. Sato, Geochim. Cosmochim. Acta **2** (1972), 1733 - 1746.

[YOU77] P.G. Young und E.D. Arthur, Rep. LA-6947 (1977).

Anhang

A.1 ^{10}Be- und ^{26}Al-AMS-Ergebnisse

A.1.1 ^{10}Be-Messung vom 1. 7. 91 bzw. 8. 7. 91

^{10}Be-AMS-Standard S433: $^{10}Be/Be = (93.1 \pm 2.3) \cdot 10^{-12}$.

Sampel Label	Comment	Be9 [nA]	Bor/Be9	Be10/Be9 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Be10 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
SH.840	ARY	200.5	0.22	34.897	(3.3)	1.980	0.22261	2074097	18.101927
SH.875	DHU	129.1	0.03	79.908	(1.7)	1.980	0.44400	2381186	20.782089
SH.876	MUR	143.1	0.03	16.965	(2.8)	1.980	0.18570	1208709	10.549150
SH.877	Blank Knauer	60.8	0.03	0.056	(55.4)	1.980	1.00000	746	0.006514
SH.878	MIL	106.0	0.09	42.349	(1.4)	1.980	0.28600	1959000	17.099000
SH.879	CAL	74.9	0.05	42.453	(2.1)	1.980	0.25080	2240000	19.546000

A.1.2 ^{10}Be-Messung vom 13. 12. 91

^{10}Be-AMS-Standard S433: $^{10}Be/Be = (93.1 \pm 2.3) \cdot 10^{-12}$.

Sampel Label	Comment	Be9 [nA]	Bor/Be9	Be10/Be9 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Be10 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
HB.001	ALH88008	118.6	0.97	34.206	(2.8)	1.980	0.21770	2078873	18.143616
HB.002	ALH88010	130.1	0.81	28.145	(5.7)	1.980	0.21500	1732022	15.116430
HB.003	ALH88011	115.0	1.37	19.398	(2.9)	1.980	0.16250	1579355	13.784008
HB.004	ALH88012	117.2	1.09	35.600	(2.8)	1.980	0.21650	2175601	18.987819
HB.005	ALH88014	110.0	1.04	44.738	(3.6)	1.980	0.36740	1611117	14.061214
HB.006	ALH88016	130.5	0.61	36.636	(2.6)	1.980	0.22580	2146694	18.735527
HB.007	ALH88002	233.4	0.43	15.479	(3.7)	1.980	0.09760	2098327	18.313405
HB.008	ALH88004	232.5	0.36	13.459	(2.7)	1.980	0.11690	1523311	13.294876
HB.009	Blank 1.10	226.1	0.73	0.118	(48.0)	1.000	1.00000	787	0.006873
HB.010	Washougal	142.0	0.21	21.036	(2.8)	1.980	0.10630	2618229	22.850908
HB.013	Camel Donga	69.2	1.19	19.210	(2.9)	1.980	0.10720	2370895	20.692275

A.1.3 ^{10}Be-Messung vom 22. 5. 92

^{10}Be-AMS-Standard S433: $^{10}Be/Be = (93.1 \pm 2.3) \cdot 10^{-12}$.

Sampel Label	Comment	Be9 [nA]	Bor/Be9	Be10/Be9 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Be10 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
HB0014	Blank 10.3	528.6	0.20	0.137	(12.8)	1.980	1.00000	1815	0.015838
HB0015	ALH88002	272.0	0.57	12.598	(1.6)	1.980	0.08480	1965544	17.154518
HB0016	ALH88004	508.2	0.16	17.824	(2.5)	1.980	0.13910	1695361	14.796466
HB0017	ALH88008	603.6	0.20	15.545	(1.6)	1.980	0.12170	1690002	14.749698
HB0018	Camel Donga 12.3	604.9	0.21	14.239	(1.6)	1.980	0.07980	2360778	20.603973

A.1.4 ^{10}Be-Messung vom 22. 12. 92

^{10}Be-AMS-Standard S555: $^{10}Be/Be = 95.5 \cdot 10^{-12}$.

Sampel Label	Comment	Be9 [nA]	Bor/Be9	Be10/Be9 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Be10 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
HB0020	Floyd 61.17 (A)	459.5	0.42	22.363	(3.9)	2.000	0.12660	2360772	20.603925
HB0021	Dhurmsala (Splitter)	478.6	0.44	22.438	(2.6)	2.000	0.12160	2466092	21.523117
HB0022	Mills H120.15	396.8	0.75	15.829	(3.8)	2.000	0.11260	1878779	16.397270
HB0023	Armel Yama 71.15	473.8	0.72	16.489	(2.6)	2.000	0.10510	2096705	18.299242
HB0024	Calliham 670.20	475.1	0.57	24.971	(2.6)	2.000	0.14990	2226281	19.430132
HB0025	Norton County N434	465.1	0.64	28.127	(2.6)	2.000	0.12040	3122133	27.248790
HB0026	Blank HB0019-0025	577.9	1.17	0.137	(29.6)	2.000	1.00000	1825	0.015929
HB0027	Washougal	491.2	0.46	22.746	(1.8)	2.000	0.10910	2786317	24.317914
HB0028	Johnstown	520.8	0.41	19.489	(1.2)	2.000	0.09590	2716008	23.704290
HB0029	ALH88002	515.8	0.45	20.232	(1.2)	2.000	0.12660	2135776	18.640245
HB0030	ALH88004	538.9	0.45	10.827	(1.5)	2.000	0.09580	1510407	13.182256
HB0031	ALH88008	501.9	0.42	15.287	(1.1)	2.000	0.09580	2132555	18.612132
HB0032	ALH88010	450.6	0.98	14.853	(1.3)	2.000	0.10440	1901368	16.594419
HB0033	ALH88011	539.9	0.56	12.529	(1.3)	2.000	0.09930	1692941	14.775347
HB0034	Blank HB0027-0033	495.7	1.62	0.037	(139.0)	2.000	1.00000	492	0.004295
HB0035	ALH88012	459.5	0.72	16.365	(1.2)	2.000	0.10020	2182736	19.050087
HB0036	ALH88013	559.2	0.51	13.706	(1.2)	2.000	0.10620	1724742	15.052889
HB0037	ALH88014	543.4	0.42	14.012	(1.2)	2.000	0.10570	1771639	15.462188
HB0038	ALH88016	562.5	0.43	18.413	(1.1)	2.000	0.10800	2278450	19.885447
HB0039	ALH88017	481.8	0.49	19.950	(1.1)	2.000	0.11660	2286644	19.956958
HB0040	ALH88018	508.4	0.26	19.245	(1.1)	2.000	0.11600	2217239	19.351218
HB0041	ALH88019	533.8	0.33	5.943	(1.6)	2.000	0.11610	684069	5.970296
HB0042	Blank HB0035-0041	493.3	0.96	0.008	(461.6)	3.000	1.00000	155	0.001353
HB0043	Murchison	450.9	0.40	9.459	(2.8)	2.000	0.10350	1221419	10.660079

A.1.5 ^{10}Be-Messung vom 11. 3. 93

^{10}Be-AMS-Standard S555: $^{10}Be/Be = 95.5 \cdot 10^{-12}$.

Sampel Label	Comment	Be9 [nA]	Bor/Be9	Be10/Be9 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Be10 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
HB0020	Floyd 61.17 (A)	792.5	0.36	22.868	(3.8)	2.000	0.12660	2414090	21.069257
HB0022	Mills H120.15	601.1	0.59	16.427	(5.5)	2.000	0.11260	1949673	17.016002
HB0026	Blank 19-25, 43	748.1	0.77	0.128	(73.0)	2.000	1.00000	1707	0.014894
HB0043	Murchison	639.8	0.39	9.990	(2.9)	2.000	0.10350	1289964	11.258317
HB0044	Dhurmsala 1	638.1	0.73	21.879	(3.2)	1.988	0.11640	2496938	21.792329
HB0045	Dhurmsala 2	611.9	0.77	18.846	(2.7)	1.992	0.10230	2452221	21.402050
HB0046	Dhurmsala 3	695.0	0.78	13.551	(2.3)	1.986	0.07080	2540013	22.168266
HB0047	Dhurmsala 4	678.1	0.76	18.538	(2.0)	1.987	0.09150	2690113	23.478283
HB0048	Acfer 022	679.1	0.71	28.862	(1.2)	0.997	0.09620	3857263	17.444765
HB0049	Acfer 023	652.4	0.71	35.514	(2.4)	0.981	0.10020	4746181	20.358499
HB0050	Acfer 028	663.5	0.78	36.024	(2.4)	0.990	0.10200	4814444	20.391396
HB0051	Blank 44-50	561.5	0.91	0.244	(57.5)	2.000	1.00000	3259	0.028440

A.1.6 ^{10}Be-Messung vom 21. 6. 93

^{10}Be-AMS-Standard S555: $^{10}Be/Be = 95.5 \cdot 10^{-12}$.

Sampel Label	Comment	Be9 [nA]	Bor/Be9	Be10/Be9 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Be10 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
HB0088	Blank 2.3	490.3	0.43	-0.086	(341.3)	1.910	1.00000	-1093	-0.009543
HB0089	Acfer 039	421.7	0.39	15.588	(1.9)	1.970	0.10200	2011806	17.558275
HB0090	Acfer 066	411.1	0.37	15.394	(1.9)	1.950	0.09940	2018036	17.612650
HB0091	Dhstd. 2.3	494.8	0.54	18.574	(1.9)	1.930	0.10280	2330185	20.336972
HB0092	Acfer 080	429.0	0.58	13.127	(2.4)	1.930	0.10180	1663029	14.514282
HB0093	Tanez. 006	512.8	0.56	15.050	(2.1)	1.930	0.10460	1855621	16.195153
HB0094	Hama. 004	467.2	0.69	15.046	(2.3)	1.930	0.13010	1491523	13.017443
HB0095	Dhstd. 12.3	483.6	0.61	17.527	(2.1)	1.970	0.09890	2332850	20.360230
HB0096	Blank 25.3	492.2	0.49	-0.163	(178.5)	1.930	1.00000	-2108	-0.018394
HB0097	Dhstd. 25.3	517.1	0.46	19.319	(2.1)	1.940	0.11020	2272569	19.834115
HB0098	Ilafegh 013	426.2	0.54	11.940	(2.8)	1.940	0.14920	1037415	9.054168
HB0099	Acfer 129	445.7	0.47	17.675	(1.9)	1.930	0.09480	2404538	20.985896
HB0100	Blank 10.5	466.6	0.41	0.008	(***.*)	2.000	1.00000	112	0.000979
HB0101	ALH88012	361.2	0.70	22.958	(1.8)	1.890	0.13990	2072479	18.087811
HB0102	ALH88019	245.6	0.96	5.530	(5.1)	1.990	0.11810	622687	5.434665
HB0103	Norton C.	456.8	0.37	33.699	(2.2)	2.000	0.15150	2972713	25.944707
HB0104	ALH88019b	381.0	0.52	6.531	(3.6)	1.960	0.13920	614480	5.362944
HB0105	Acfer 153	477.1	0.46	13.717	(3.2)	1.990	0.10180	1791759	15.637789
HB0106	Acfer 171	473.6	0.40	18.621	(1.8)	1.990	0.11530	2147575	18.743219
HB0107	Dhstd. 18.5	485.6	0.39	15.528	(2.5)	1.970	0.08600	2376920	20.744851

A.1.7 ^{10}Be-Messung vom 21. 1. 94

^{10}Be-AMS-Standard S555: $^{10}Be/Be = 95.5 \cdot 10^{-12}$.

Sampel Label	Comment	Be9 [nA]	Bor/Be9	Be10/Be9 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Be10 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
HB0108	Blank 5.11	285.5	0.39	0.044	(35.8)	3.000	1.00000	889	0.007761
HB0109	Adrar 003	419.5	0.02	27.478	(1.2)	2.160	0.14020	421830	23.325396
HB0110	Leoville	380.8	0.17	15.243	(1.4)	2.010	0.08470	2417126	21.095757
HB0111	Dhstd. 5.11	455.2	0.12	36.324	(1.3)	2.010	0.19730	2472783	21.581507

A.1.8 ^{26}Al-Messung vom 4. 11. 91

^{26}Al-AMS-Standard A109: $^{26}Al/Al = 1.19 \cdot 10^{-9}$.

Sampel Label	Comment	Al27 [nA]	Al26/Al27 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Al26 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
SA.507	Johnstown o.T.	15.3	254.233	(2.5)	1.700	0.08490	11361786	
SA.508	Washougal o.T.	21.7	60.462	(4.5)	2.900	0.11720	3339109	
SA.510	Camel Donga o.T.	47.1	28.823	(4.5)	5.750	0.12620	2931007	
SA.511	Johnstown	7.9	68.602	(13.8)	1.000	0.12710	1204654	
SA.512	Leoville	17.0	18.800	(9.1)	1.000	0.10550	397723	
SA.513	BL510-515, 518	25.1	0.112	(197.2)	1.000	1.00000	250	
SA.514	ALH88004	36.5	58.452	(2.9)	1.000	0.11690	1115990	
SA.515	ALH88002	42.5	37.037	(3.4)	1.000	0.09760	847009	
SA.516	Mills	17.7	68.308	(4.7)	1.000	0.28600	533068	
SA.517	Dhurmsala	18.0	86.662	(4.1)	1.000	0.44450	435140	
SA.518	Washougal	37.9	40.872	(7.9)	1.000	0.10630	858154	
SA.519	Calliham	20.3	60.885	(3.8)	1.000	0.25080	541822	
SA.520	Armel Yama	26.5	61.485	(5.6)	1.000	0.22610	606933	
SA.521	Murchison	28.0	37.097	(4.2)	1.000	0.18570	445864	
SA.522	BL516-521, 507-509	17.3	0.312	(70.5)	1.000	1.00000	696	
SA.523	Leoville o.T.	24.2	26.489	(6.5)	3.300	0.11330	1721963	

A.1.9 ^{26}Al-Messung vom 24. 4. 92

^{26}Al-AMS-Standard A109: $^{26}Al/Al = 1.19 \cdot 10^{-9}$.

Sampel Label	Comment	Al27 [nA]	Al26/Al27 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Al26 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
HA0001	Blank 30.10	12.1	0.833	(60.8)	1.980	1.00000	3680	0.0677
HA0002	ALH88008	16.3	62.828	(4.4)	1.000	0.21770	644123	11.8557
HA0003	ALH88010 A11	16.0	36.581	(5.6)	1.000	0.21500	379743	6.9896
HA0004	ALH88011	10.7	30.732	(7.4)	1.000	0.16250	422097	7.7691
HA0005	ALH88012	11.4	79.110	(5.1)	1.000	0.21650	815547	15.0110
HA0006	ALH88013	3.9	kein	Strom	1.000	0.23690		
HA0007	ALH88014	5.0	kein	Strom	1.000	0.36740		
HA0008	ALH88016	6.0	kein	Strom	1.000	0.22580		
HA0009	Blank 10.3	49.4	0.000	(0.0)	1.980	1.00000	0	0.0000
HA0010	Camel Donga 12.3	44.9	24.969	(4.3)	1.000	0.07980	698352	12.8539
HA0011	ALH88002 10.3	24.3	31.465	(5.0)	1.000	0.08480	828153	15.2430
HA0012	ALH88004 10.3	32.0	50.221	(3.8)	1.000	0.13910	805814	14.8318
HA0013	ALH88008 10.3	32.7	73.854	(3.3)	1.000	0.12170	1354436	24.9298
HA0014	Dhurmsala	12.7	98.574	(4.4)	1.000	0.44450	494955	9.1101

A.1.10 ^{26}Al-Messung vom 9. 12. 92

^{26}Al-AMS-Standard AL1092: $^{26}Al/Al = 133.0688 \cdot 10^{-12}$.

Sampel Label	Comment	Al27 [nA]	Al26/Al27 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Al26 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
HA0015	Murchison	20.8	32.371	(4.1)	1.000	0.10350	698063	12.8485
HA0016	Floyd 61.17A	30.5	66.652	(2.9)	1.000	0.12660	1175037	21.6277
HA0017	Dhurmsala Splitter	24.0	62.378	(2.7)	1.000	0.12160	1144911	21.0732
HA0018	Mills H120.15	33.4	48.760	(3.2)	1.000	0.11260	966500	17.7894
HA0019	Armel Yama 71.15	13.1	50.783	(4.8)	1.000	0.10510	1078422	19.8494
HA0020	Calliham 670.20	22.9	57.905	(9.0)	1.000	0.14990	862159	15.8689
HA0022	Blank HA15-21	35.1	0.096	(70.7)	1.000	1.00000	215	0.0040
HA0023	Washougal	46.2	45.124	(2.9)	1.000	0.10910	923124	16.9910
HA0024	Johnstown	26.3	74.977	(2.9)	1.000	0.95900	174496	3.2118
HA0025	ALH88002	36.2	48.308	(3.1)	1.000	0.12660	851642	15.6753
HA0026	ALH88004	26.6	56.975	(3.3)	1.000	0.09580	1327362	24.4314
HA0027	ALH88008	28.9	44.940	(4.2)	1.000	0.09580	1046983	19.2708
HA0028	ALH88010	34.6	36.248	(3.7)	1.000	0.10440	774924	14.2633
HA0029	ALH88011	36.4	29.038	(4.0)	1.000	0.09330	694649	12.7857
HA0030	Blank HA23-29	47.9	0.247	(68.01)	1.000	1.00000	550	0.0101
HA0032	ALH88013	25.1	44.711	(3.9)	1.000	0.10620	939649	17.2952
HA0033	ALH88014	26.7	47.154	(3.7)	1.000	0.10570	995680	18.3265
HA0034	ALH88016	26.6	48.117	(3.7)	1.000	0.10800	994381	18.3026
HA0035	ALH88017	32.6	49.339	(5.0)	1.000	0.11660	944430	17.3832
HA0036	ALH88018	41.8	47.306	(3.0)	1.000	0.11600	910185	16.7529
HA0037	ALH88019	28.9	9.220	(8.0)	1.000	0.11610	177247	3.2624
HA0038	Blank HA31-37	43.8	0.039	(183.5)	1.000	1.00000	86	0.0016

A.1.11 ^{26}Al-Messung vom 1. 7. 93

^{26}Al-AMS-Standard AL1092: $^{26}Al/Al = 133.0688 \cdot 10^{-12}$.

Sampel Label	Comment		Al27 [nA]	Al26/Al27 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Al26 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
HA0073	Blank 2.2		37.0	0.181	(83.1)	3.000	1.00000	1209	0.0223
HA0075	Dhstd.2		46.9	54.630	(2.7)	1.000	0.10230	1191881	21.9378
HA0076	Dhstd.3		35.5	45.277	(3.4)	1.000	0.07080	1427312	26.2711
HA0077	Dhstd.4		34.1	49.268	(11.9)	1.000	0.09150	1201763	22.1196
HA0078	Acfer 022		17.4	66.177	(4.4)	1.000	0.09620	1535353	28.2597
HA0079	Acfer 023		17.8	74.102	(4.2)	1.000	0.10020	1650586	30.3807
HA0080	Acfer 028		28.6	65.700	(4.9)	1.000	0.10200	1437612	26.4607
HA0081	Blank 2.3		41.7	0.286	(57.8)	3.000	1.00000	1912	0.0352
HA0082	Acfer 039	1x!	28.5	40.	(6.5)	1.000	0.10200		
HA0083	Acfer 066	1x!	26.0	41.	(4.6)	1.000	0.09940		
HA0084	Acfer 080	1x!	19.7	35.	(7.9)	1.000	0.10180		
HA0085	Tanezrouft 006	1x!	26.1	51.	(5.7)	1.000	0.10460		
HA0086	Ham.elHam.004	1x!	17.3	43.	(7.5)	1.000	0.19510		
HA0087	Dhstd. 12.3	1x!	27.9	56.	(5.3)	1.000	0.09890		
HA0089	Dhstd. 25.3	1x!	32.9	62.	(4.7)	1.000	0.11020		
HA0090	Ilafegh 013	1x!	24.5	38.	(6.7)	1.000	0.14920		
HA0091	Acfer 129	1x!	20.4	66.	(6.0)	1.000	0.09480		
HA0092	Blank 10.5.	1x! ??	21.7	7.8	(16.1)	3.000	1.00000		
HA0093	ALH88012	1x!	19.2	71.	(5.9)	1.000	0.13990		
HA0094	ALH88019	1x!	18.4	7.8	(17.5)	1.000	0.11810		
HA0095	Norton C.	1x!	31.6	140.	(3.6)	1.000	0.15150		

A.1.12 ^{26}Al-Messung vom 31. 1. 94

^{26}Al-AMS-Standard AL1092: $^{26}Al/Al = 133.0688 \cdot 10^{-12}$ und AL09: $^{26}Al/Al = 1190 \cdot 10^{-12}$.

Sampel Label	Comment	Al27 [nA]	Al26/Al27 [1E-12]	Error (%)	Carrier mg	Weight g	Al26 at./g [1E+4]	Activity [dpm/kg]
HA0082	Acfer 039	26.3	37.572	(5.4)	1.000	0.10200	822122	15.1320
HA0083	Acfer 066	24.8	41.437	(6.1)	1.000	0.09940	930412	17.1252
HA0084	Acfer 080	14.3	33.949	(4.9)	1.000	0.10180	744314	13.6998
HA0085	Tanezrouft 006	18.7	40.912	(4.8)	1.000	0.10460	872949	16.0675
HA0086	Ham.elHam. 004	14.7	43.133	(4.3)	1.000	0.19510	493432	9.0821
HA0087	Dhstd. 12.3	24.6	55.896	(3.6)	1.000	0.09890	1261421	23.2177
HA0089	Dhstd. 25.3	38.1	61.350	(2.8)	1.000	0.11020	1242532	22.8700
HA0090	Ilafegh 013	22.3	37.365	(4.6)	1.000	0.14920	558948	10.2880
HA0091	Acfer 129	19.0	59.315	(3.7)	1.000	0.09480	13.96463	25.7033
HA0092	Blank 10.5	32.1	5.111	(8.4)	3.000	1.00000	34224	0.6299
HA0093	ALH88012	12.1	64.550	(4.8)	1.000	0.13990	1029805	18.9546
HA0094	ALH88019	19.6	9.394	(9.3)	1.000	0.11810	177531	3.2676
HA0095	Norton C.	31.3	132.111	(4.8)	1.000	0.15150	1946261	35.8229

A.2 Berechnung der ^{10}Be- und ^{26}Al-Aktivitäten

A.2.1 ^{10}Be

Die ^{10}Be Aktivität in dpm/kg wird aus dem gemessenen AMS-Verhältnis $^{10}Be/^{9}Be$, dem Be-Gehalt der Meteoritenprobe und der Einwaage des Meteoriten berechnet (in diesem Fall ist die Be-Masse des Meteoriten zusätzlich des ^{9}Be-Trägers näherungsweise die Masse des Trägers) :

$$A(^{10}Be)[dpm/kg] = \frac{N_A}{M_{Be}} \cdot \lambda \cdot \frac{^{10}Be}{^{9}Be} \cdot \frac{^{9}Be}{m_{Probe}} \qquad \text{(Gl. A.1)}$$

$A(^{10}Be)$	Aktivität von ^{10}Be in dpm/kg
N_A	Avogadrosche Zahl: $6.022 \cdot 10^{23}$ in mol^{-1}
M_{Be}	Molmasse Be: 9.01 in g/mol
λ	Zerfallskonstante von ^{10}Be: $\ln 2/t_{1/2} = 8.734 \cdot 10^{-13}$ min^{-1}
$^{10}Be/^{9}Be$	Verhältnis aus der AMS Messung
^{9}Be	$^{9}Be \approx Be_{Gesamt}$ - Masse in g
m_{Probe}	Meteoriteneinwaage in kg

A.2.2 ^{26}Al

Zur Berechnung der ^{26}Al Aktivität wird wie bei ^{10}Be das $^{26}Al/^{27}Al$ Verhältnis, der ^{27}Al-Gehalt der Meteoritenprobe und die Einwaage des Meteoriten gebraucht (der ^{27}Al-Gehalt ist näherungsweise der Al-Gesamtgehalt der Meteoritenprobe: Al-Gehalt der Probe + Trägermenge) :

$$A(^{26}Al)[dpm/kg] = \frac{N_A}{M_{Al}} \cdot \lambda \cdot \frac{^{26}Al}{^{27}Al} \cdot \frac{^{27}Al}{m_{Probe}} \qquad \text{(Gl. A.2)}$$

$A(^{26}Al)$	Aktivität von ^{26}Al in dpm/kg
N_A	Avogadrosche Zahl: $6.022 \cdot 10^{23}$ in mol^{-1}
M_{Al}	Molmasse Al: 26.98 in g/mol
λ	Zerfallskonstante von ^{26}Al: $\ln 2/t_{1/2} = 1.842 \cdot 10^{-12}$ min^{-1}
$^{26}Al/^{27}Al$	Verhältnis aus der AMS Messung
^{27}Al	$^{27}Al \approx Al_{Gesamt}$ - Masse in g
m_{Probe}	Meteoriteneinwaage in kg

Die Al-Masse der Meteoritenprobe wird mit Hilfe des ICP-AES ermittelt. Häufig lagen zur AMS-Meßanmeldung noch keine ICP-AES Analysen vor, weshalb an der Stelle der Al-Masse üblicherweise eine 1.000 angegeben wurde. Die aus Zürich gelieferten Meßergebnisse (^{26}Al-Aktivitäten) waren somit auf einen Al-Gehalt von 1 g normiert und mußten mit dem Al-Gehalt in mg multipliziert werden, um die ^{26}Al-Aktivitäten zu erhalten.

A.3 Atom-Emissionsspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-AES)

Die Atom-Emissionsspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma, kurz ICP-AES, ist ein instrumentelles Routinemeßgerät zur Multi-Element-Bestimmung. Das rechnergesteuerte Gerät besteht aus dem Zerstäubersystem, dem Hochfrequenzteil und dem optischem System.

Eine zu analysierende wässrige Lösung wird zu einem Aerosol zerstäubt. Das Aerosol gelangt in eine Plasmafackel, dem Hochfrequenzteil. Dort wird entzündetes Argon über eine Spule durch ein hochfrequentes Wechselfeld ionisiert und derart angeregt, daß Temperaturen von 6000 - 10000 K entstehen. Das Aerosol wird in das Plasma eingebracht, verdampft, dissoziiert, angeregt und zum Teil ionisiert. Die Elektronen der Atome in dieser Fackel werden zu höheren Zuständen angeregt und emitieren beim Freiwerden dieser Energie für jedes Element charakteristische Spektren. Dieses Emissionsspektrum wird mit Hilfe eines Gitters zerlegt. Die einzelnen Linien werden mit Photomultiplieren in elektrische Signale umgewandelt, die in einem Rechner registriert werden. Die Intensität der Atomemission auf einer Wellenlänge ist direkt proportional zur Anzahl der Atome. Dadurch ist es möglich, Elementkonzentrationen relativ zu einem Standard zu messen.

Für die Analyse der Aliquots der Meteoritenprobe wurde das Spektroflame-ICP-AES der Firma Spectro Analytical Instruments benutzt. Das Gerät wurde mit wässrigen Lösungen der Konzentrationen 5 ppm, 10 ppm, 15 ppm, 20 ppm, 25 ppm, 30 ppm, 40 ppm,50 ppm, 100 ppm, 200 ppm und 333 ppm kalibriert, die die Elemente Al, Be, Fe, Mg, Cr, Ca, Mn und Ni enthielten. Die folgende Tabelle enthält die in dieser Arbeit benutzten Analysenlinien und die dazugehörigen Nachweisgrenzen:

Tab. A.1: In dieser Arbeit mit Hilfe des ICP-AES analysierte Elemente mit den dazugehörigen Analysenlinien und Nachweisgrenzen.

	Al	Be	Fe	Mg	Cr	Ca	Mn	Ni
nm	396.15	313.04	259.94	279.55	267.72	317.93	257.61	231.60
ng/ml	9	0.2	2	0.1	5	3	0.5	6

A.4 Meßergebnisse des ICP-AES

A.4.1 Ergebnisse der Analyse des alten Trennungsgangs

Analysiert wurden die in Tabelle X.X genannten Elemente. Die Elemente Al, Be, Fe und Mg als die wichtigsten wurden vollständig ausgewertet. Die restlichen Elementen wurden nur stichprobenartig auf mögliche Besonderheiten hin untersucht. Bis auf Cr, das mit einer Konzentration von ca. 3 - 10% in der Al-AMS-Probe zu finden ist, konnten keine Rückstände anderer Elemente beobachtet werden. In der folgenden Tabelle sind die Ergebnisse der Al-, Be-, Fe- und Mg-Analyse des alten Trennungsgangs zu sehen:

Tab. A.2: ICP-AES-Analysen des alten Trennungsgangs

Analysenschritt	Al	Be	Fe	Mg
1	synthetische Chondritenprobe mit Träger			
in mg	4.5	2.0	25.0	32.0
in %	100	100	100	100
2	Lösung nach dem Druckaufschluß			
in mg	1.5	1.98	16.1	9.3
in %	33	99	64.5	29
	Becherrückstand			
in mg	2.97	---	8.88	22.83
in %	66		35.5	71
3	Lösung nach Abrauchen und Lösen (Entnahme des Aliquot)			
in mg	3.42	1.87	23.68	27.74
in %	72	94	97	84
4	Lösung für die Anionensäule			
in mg	1.85	1.66	21.0	23.4
in %	41	83	84	73
	Becherrückstand			
in mg	1.58	0.22	2.78	4.26
in %	35	11	11	13

Fortsetzung der Tabelle auf der nächsten Seite

Fortsetzung der Tab. A.2:

Analysenschritt	Al	Be	Fe	Mg
5	Eluat der Anionensäule			
1	(20 ml konz. HCl)			
in mg	1.13	1.46	---	23.41
in %	25	73		73
2	(15 ml konz. HCl)			
in mg	0.82	1.43	---	23.41
in %	18	71		73
6	Hydroxidfällung			
in mg	1.10	1.40	---	16.81
in %	24	70		52
7a	Be-Eluat der Kationensäule			
1	45 ml Vorlauf, 100 ml 1n HCl Be-Fraktion			
in mg	0.41	1.34	---	16.81
in %	9.1	67		22
2	65 ml Vorlauf, 100 ml 1n HCl Be-Fraktion			
in mg	0.15	1.38	---	11.52
in %	3.3	69		36
7b	Al-Eluat der Kationensäule			
1	45 ml Vorlauf, 100 ml Be-Fr. (7a), 50 ml 4.5n HCl Al-Fraktion			
in mg	0.40	0.03	---	9.70
in %	8.8	2		30
2	65 ml Vorlauf, 100 ml Be-Fr. (7a), 50 ml 4.5n HCl Al-Fraktion			
in mg	0.37	0.04	---	5.19
in %	8.2	2		16
8a	Hydroxidfällung der Be-Fraktion (AMS-Probe)(von 7a 1)			
in mg	0.41	1.31	---	3.5
in %	9.1	66		11
8b	Hydroxidfällung der Al-Fraktion (AMS-Probe)(von 7b 1)			
in mg	0.40	0.02	---	4.8
in %	8.8	1		15

A.4.2 Ergebnisse der Analyse des neuen Trennungsgangs

Der neue neue Trennungsgang wurde soweit wie möglich an den alten Trennungsgang angepaßt. Verändert wurden Aufschlußverfahren und Eisenextraktion. Für die Trennung des Be vom Al über die Kationensäule wurden neue Elutionsprofile erstellt. In der folgenden Tabelle sind die Analysen der einzelnen Fraktionen dargestellt:

Tab. A.3: ICP-AES-Analyse verschiedener Fraktionen der Kationensäule: Fraktion 1 enthielt die ersten 50 ml 1n HCl, Fraktionen 2 - 10 die folgenden je 10 ml 1n HCl und Fraktion 11 enthielt 50 ml 4.5n HCl.

Fraktion	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Be in %	---	---	1.3	1.8	34.0	20.5	19.0	13.5	7	2.5	1
Al in %	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	94

Das Be wird in den Fraktionen 3 - 10 zu 99.6% eluiert. Das entspricht einem Vorlauf von 70 ml 1n HCl und einem Be-Eluat von 80 ml 1n HCl.

An den Stellen der veränderten Teile des alten Trennungsgangs wurden ICP-AES Analysen auf die oben genannten Elemente vorgenommen. Hier werden die Konzentrationen von Be und Al in der folgenden Tabelle dargestellt:

Tab. A.4: ICP-AES Analysen von Be und Al des neuen Trennungsgangs

Analysenschritt	Al	Be
Anfangskonzentration	100%	100%
nach HCl-Druckaufschluß	96%	96%
Nach Fe-Extraktion mit MIK	90%	90%
65 ml 1n HCl Vorlauf der Kationensäule	<1%	<1%
100 ml 1n HCl Be-Fraktion der Kationensäule	<1%	85%
50 ml 4.5n HCl Al-Fraktion der Kationensäule	83%	<1%

Die Al- und Be-Ausbeute der AMS-Proben wird bei allen Meteoritenproben kontrolliert, die nach dem neuen Trennungsgang separiert werden. Im Mittel liegen die Ausbeuten bei 50 - 60% für Al und Be. Die größten Al- und Be-Einbußen sind in der Routineseparation nach dem Kationentauscher zu beobachten. Die Reinheit der AMS-Proben beträgt für Be im Mittel 90%, für Al 85% (s. Kap. 4.3.2). Die Zusammensetzung der AMS-Meteoritenproben wird hier am Beispiel des Meteoriten Adrar 003 gezeigt:

Tab. A.5: Zusammensetzung der Al-AMS-Probe des Meteoriten Adrar 003:

	Al	Be	Fe	Mg	Cr	Ca	Mn	Ni
in %	76.2	4.7	1.2	0.2	17.3	0.4	<0.1	<0.1

Tab. A.6: Zusammensetzung der Be-AMS-Probe des Meteoriten Adrar 003:

	Al	Be	Fe	Mg	Cr	Ca	Mn	Ni
in %	13	85	0.4	1.2	0.2	<0.1	<0.1	<0.1

A.5 ^{14}C-AMS-Meßergebnisse

A.5.1 ^{14}C-AMS-Meßergebnisse vom 22. 7. 93:

Labor Nr.	Proben Nr.	Probenname	AMS-^{14}C Alter [y BP]	$\delta^{13}C$ [‰]	^{14}C / ^{12}C * [10^{-14}]
	HC001	CO_2-Blank**	>34960 ± 730	-1.0 ± 1.0	
	HC002	CO_2-Blank			
ETH-10455	HC003	Blank Ni-Rohr (6.1x0.5)	36220 ± 720	-3.9 ± 1.0	1.299
ETH-10456	HC004	Blank Ni-Rohr (6x1)	27060 ± 310	-4.1 ± 1.0	4.063
ETH-10457	HC005	Aktivkohle/Ni-Rohr (6x1)	2740 ± 70	-18.1 ± 1.0	83.880

* Über das AMS-Alter und dem modernen $^{14}C/^{12}C$ Verhältnis von $1.18 \cdot 10^{-12}$ berechnet, mit der Halbwertszeit von Libby von 5568 a.
** Proben HC001 und HC002 wurden vereinigt für eine Messung.

A.5.2 ^{14}C-AMS-Meßergebnisse vom 14. 1. 94:

Labor Nr.	Proben Nr.	Probenname	AMS-^{14}C Alter [y BP]	$\delta^{13}C$ [‰]	^{14}C / ^{12}C * [10^{-14}]
ETH-11030	HC006	Blank W-Tiegel	26680 ± 240	-8.6 ± 1.2	4.260
ETH-11031	HC007	Dhurmsala Std. / W-Tiegel	17970 ± 140	+2.1 ± 1.2	12.599
ETH-11032	HC008a	Dhstd. / W-Tiegel / 1700°C	15370 ± 100	+0.9 ± 1.2	17.415
ETH-11033	HC008b	Dhstd. / W-Tiegel / 1000°C	21230 ± 150	+0.7 ± 1.2	8.396
ETH-11034	HC009	Blank Al_2O_3-Tiegel	34310 ± 390	-0.9 ± 1.3	1.648
ETH-11035	HC010.1	Dhstd. / W-Stab / Al_2O_3-Tiegel / 1000°C	23300 ± 230	+27.3 ± 1.2**	6.489
ETH-11036	HC010.2	s. HC010.1 aber 1700°C	14580 ± 100	-1.2 ± 1.2	20.226

* Über das AMS-Alter und dem modernen $^{14}C/^{12}C$ Verhältnis von $1.18 \cdot 10^{-12}$ berechnet, mit der Halbwertszeit von Libby von 5568 a.
** Probe ist stark fraktioniert, es ist vermutlich im Reaktor während der Reaktion ein Leak aufgetreten

A.5.3 ^{14}C-AMS-Meßergebnisse vom 30. 3. 94:

Labor Nr.	Proben Nr.	Probenname	AMS-^{14}C Alter [y BP]	$\delta^{13}C$ [‰]	^{14}C / ^{12}C * [10^{-14}]
ETH-11320	HC011.1	Bruderheim / <1000°C	16650 ± 135	-8.4 ± 1.2	14.849
ETH-11321	HC011.2	Bruderheim / >1000°C	7250 ± 75	-8.4 ± 1.2	47.853
ETH-11322	HC012.1	Acfer 022 / <1000°C	18180 ± 190	-5.4 ± 1.2	12.227
ETH-11323	HC012.2	Acfer 022 / >1000°C	9975 ± 95	-9.2 ± 1.2	34.087
ETH-11324	HC013.1	Acfer 023	21760 ± 210	-10.4 ± 1.2	7.860
ETH-11325	HC013.2		21930 ± 180	-8.6 ± 1.2	7.696
ETH-11326	HC014.1	Acfer 028	17510 ± 130	-5.2 ± 1.2	13.342
ETH-11327	HC014.2		11110 ± 90	-6.0 ± 1.2	29.595
ETH-11328	HC015.1	Acfer 039	22190 ± 190	-5.2 ± 1.3	7.451
ETH-11329	HC015.2		8130 ± 80	-7.0 ± 1.2	42.888
ETH-11330	HC016.1	Acfer 066	23760 ± 200	-6.1 ± 1.2	6.128
ETH-11331	HC016.2		9640 ± 85	-6.4 ± 1.2	35.539
ETH-11332	HC017.1	Acfer 080	19510 ± 170	-10.1 ± 1.2	10.401
ETH-11333	HC017.2		5635 ± 70	-7.7 ± 1.2	58.510
ETH-11334	HC018.1	Acfer 129 / <1000°C	31520 ± 400	-8.8 ± 1.5	2.332

* Über das AMS-Alter und dem modernen $^{14}C/^{12}C$ Verhältnis von $1.18 \cdot 10^{-12}$ berechnet, mit der Halbwertszeit von Libby von 5568 a.

A.5.4 ^{14}C-AMS-Meßergebnisse vom 10. 5. 94:

Labor Nr.	Proben Nr.	Probenname	AMS-^{14}C Alter [y BP]	$\delta^{13}C$ [‰]	^{14}C / ^{12}C * [10^{-14}]
ETH-11335	HC019.1	Acfer 129 / <1000°C	22500 ± 190	-5.2 ± 1.2	7.169
ETH-11336	HC019.2	Acfer 129 / >1000°C	19340 ± 170	-16.6 ± 1.5	10.620
ETH-11581	HC020.1	Acfer 153	19940 ± 190	-6.6 ± 1.6	9.859
ETH-11582	HC020.2		18240 ± 130	-3.8 ± 1.5	12.180
ETH-11583	HC021.1	Acfer 171	18040 ± 140	-4.5 ± 1.7	12.490
ETH-11584	HC021.2		11080 ± 100	+0.8 ± 1.2	29.710
ETH-11585	HC022.1	Hammadah al Hamra 004	18580 ± 140	-1.7 ± 1.2	11.680
ETH-11586	HC022.2		15520 ± 110	-6.1 ± 1.2	17.090
ETH-11587	HC023.1	Tanezrouft 006	17420 ± 130	-4.2 ± 1.2	13.490
ETH-11588	HC023.2		11760 ± 95	-5.4 ± 1.2	27.300
ETH-11589	HC024.1	Ilafegh 013	17050 ± 130	-4.3 ± 1.2	14.130
ETH-11590	HC024.2		7745 ± 85	-4.0 ± 1.8	44.990
ETH-11591	HC025.1	Adrar 003	13450 ± 100	-4.2 ± 1.2	22.120
ETH-11592	HC025.2		4370 ± 65	-16.7 ± 1.2	68.490

* Über das AMS-Alter und dem modernen $^{14}C/^{12}C$ Verhältnis von $1.18 \cdot 10^{-12}$ berechnet, mit der Halbwertszeit von Libby von 5568 a.

A.6 Berechnung der ^{14}C-Aktivitäten

Zur Berechnung der ^{14}C-Aktivität in dpm/kg werden neben der Zerfallskonstante auch die Masse der Meteoritenprobe und die ^{14}C-Konzentration:

$$A(^{14}C) = \frac{N_A}{M_{14}} \cdot \lambda \cdot \frac{^{14}C_{Probe}}{m_{Probe}} \qquad \text{(Gl. A.3)}$$

$A(^{14}C)$	Aktivität von ^{14}C in dpm/kg
N_A	Avogadrosche Zahl: $6.022 \cdot 10^{23}$ in mol^{-1}
M_{14}	Molmasse von ^{14}C : 14 g/mol
λ	Zerfallskonstante für ^{14}C: $\ln 2/t_{1/2} = 1.2097 \cdot 10^{-4}\ min^{-1}$
^{14}C	^{14}C-Masse in g
m_{Probe}	Meteoriteneinwaage in kg

Die ^{14}C-Konzentration wird aus den AMS-Meßergebnissen in 4 Schritten berechnet:

1. $$\left(\frac{^{14}C}{^{12}C}\right)_{Sample} = \left(\frac{^{14}C}{^{12}C}\right)_0 \cdot e^{-\lambda_L t} \qquad \text{(Gl. A.4)}$$

$(^{14}C/^{12}C)_{Sample}$	$^{14}C/^{12}C$-Verhältnis der Probe einschließlich des Trägers
$(^{14}C/^{12}C)_0$	modernes $^{14}C/^{12}C$-Verhältnis: $1.18 \cdot 10^{-12}$
λ_L	Zerfallskonstante für ^{14}C nach Libby: $\ln 2/t_{1/2} = 1.2449 \cdot 10^{-4}$ in a^{-1}
t	AMS-Alter in a

2. $$^{14}C_{Träger} = \left(\frac{^{14}C}{^{12}C}\right)_{Blind} \cdot \left(^{12}C\right)_{Träger} \qquad \text{(Gl. A.5)}$$

$^{14}C_{Träger}$	^{14}C-Gehalt des Trägers in mg
$(^{14}C/^{12}C)_{Blind}$	$^{14}C/^{12}C$-Verhältnis der Probe HC009 als Blindprobe
$^{12}C_{Träger}$	^{12}C-Gehalt des Trägers $\approx$ ^{12}C-Gehalt des 'Samples' in mg

3. $$^{14}C_{Sample} = \left(\frac{^{14}C}{^{12}C}\right)_{Sample} \cdot \left(^{12}C\right)_{Sample}$$ (Gl. A.6)

$^{14}C_{Sample}$	^{14}C-Gehalt des 'Sampels' in mg
$(^{14}C/^{12}C)_{Sample}$	$^{14}C/^{12}C$-Verhältnis aus Gl. X.X
$^{12}C_{Sample}$	^{12}C-Gehalt des 'Samples' in mg

4. $$^{14}C_{Probe} = {}^{14}C_{Sample} - {}^{14}C_{Träger}$$ (Gl. A.7)

$^{14}C_{Probe}$	^{14}C-Gehalt der Probe in mg, zur Berechnung der ^{14}C-Aktivität nach Gl. X.X
$^{14}C_{Sample}$	^{14}C-Gehalt nach Gl.X.X in mg
$^{14}C_{Träger}$	^{14}C-Gehalt nach Gl.X.X in mg

A.7 Volumenmessung der ^{14}C-Apparatur

Das Volumen der ^{14}C-Apparatur wurde durch Luftdruckdifferenzmessungen mit einem bekannten Vergleichsvolumen ermittelt. Zur Berechnung des Volumens wurde folgende Gleichung benutzt:

$$V_2 = \frac{p_1 V_1 - p_{end} V_1}{p_{end} - p_2} \qquad \text{(Gl. A.8)}$$

V_1	Vergleichsvolumen: 504 ml
V_2	gesuchtes Volumen in ml
p_1	Normaldruck in mbar
p_2	Anfangsdruck in mbar (zwischen 10 und 20 mbar)
p_{end}	Enddruck

Ergebnisse:

Tab. A.7: Volumen der ^{14}C-Apparatur in ml

Apparaturteil	Bezeichnung	Volumen [ml]
a	CO_2-Cu-Leitung	40.9
b	O_2-Cu-Leitung	51.7
c	große Kühlfalle vor der Pumpe	166.6
d	Reaktionsraum (+ Pirani)	150.8
e	Katalysatorraum	38.2
f	Kühlfallensystem	114.5
f_1	Kühlfalle 1	37.3
f_2	Kühlfalle 2	41.3
f_3	Kühlfalle 3	35.9
g	Vergleichsvolumen	504.0
h	Gesamtvolumen	663.9

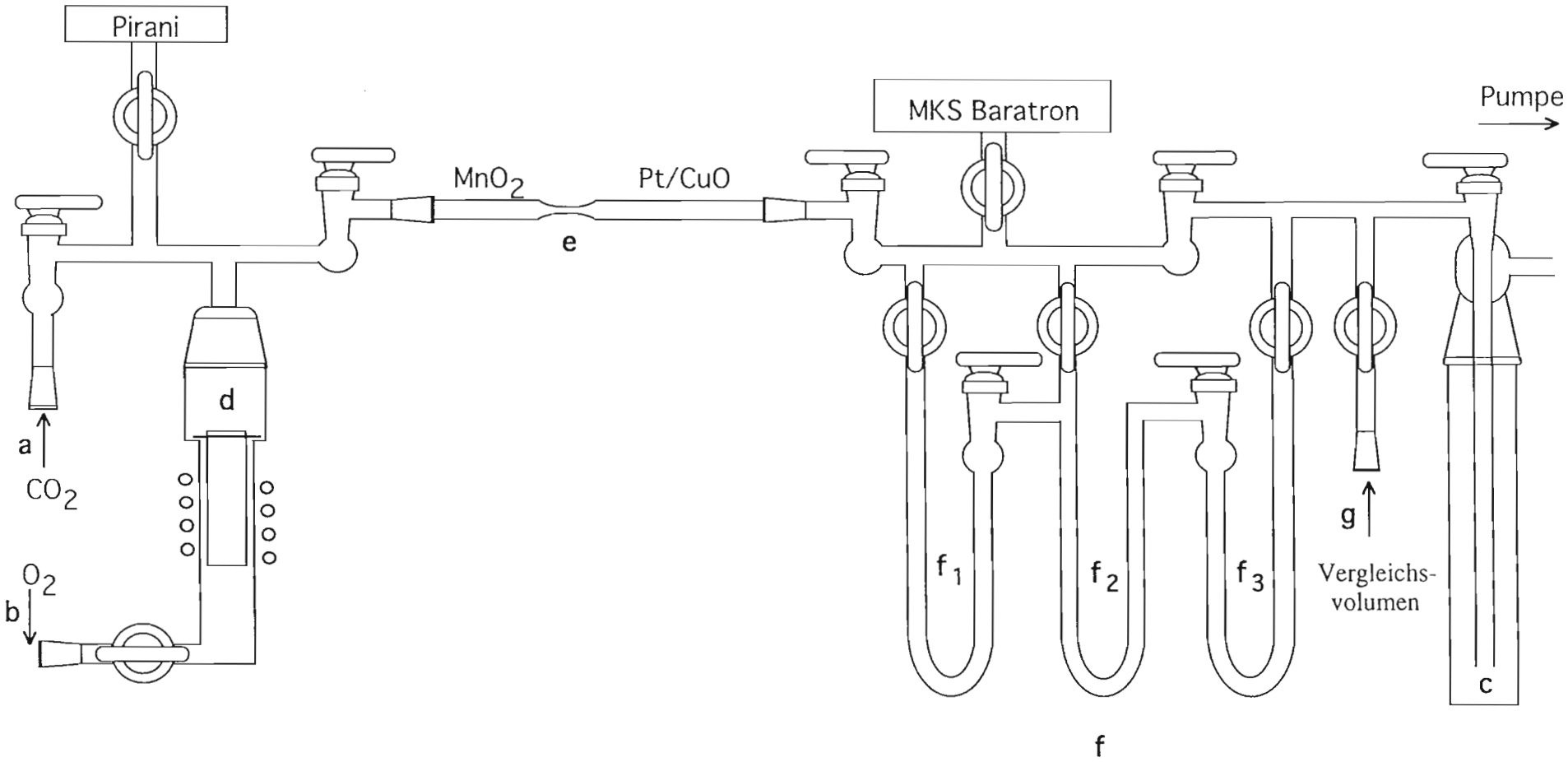


Abb. A.1: Apparatur zum Ausheizen des Kohlenstoffs in Meteoriten mit anschließender Oxidation zum CO_2 sowie Kühlfallensystem mit Abschmelzvorrichtung

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde in der Zeit von Februar 1991 bis Oktober 1994 an der Zentraleinrichtung für Strahlenschutz, ab Januar 1994 Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Universität Hannover durchgeführt.

Mein besonderen Dank gebührt Herrn Prof. Dr. G. Wünsch und Herrn Prof. Dr. R. Michel für die Anregung zu dieser Arbeit. Durch ihre engagierte Betreuung und stete Diskussionsbereitschaft haben sie wesentlich zur Freude an dieser Arbeit und zu ihrem Gelingen beigetragen.

Ganz herzlich bedanken möchte ich mich bei Herrn Dr. M. Müller, Mitarbeiter des Instituts für Anorganische Chemie, für die tatkräftige Unterstützung bei Fragen zu Laboreinrichtungen und Experimenten.

Den Herren Dr. R. Bodemann, Dr. M. Lüpke, I. Leya und M. Gloris danke ich für die langjährige gute Zusammenarbeit und für viele angeregte Diskussionen. Im besonderen möchte ich hier Dr. H. J. Lange und U. Neupert für ihre engagierte Unterstützung danken.

Den Mitarbeitern der ZSR danke ich für die freundliche Aufnahme und das angenehme Arbeitsklima.

Den Mitarbeitern der Abteilung Nuklearchemie der Universität zu Köln, insbesondere Herrn Dr. U. Herpers und den Herrn Dr. K. Bremer, Dr. C. Schnabel und R. Rösel danke ich für die gute Zusammenarbeit innerhalb der Kollaboration.

Frau Dr. B. Dittrich-Hannen und den Herren Dr. G. Bonani und Dr. P. W. Kubik danke ich für die Einführung in die Theorie und Praxis der Beschleunigermassenspektrometrie und ihren unermüdlichen Einsatz bei den Messungen.

Herrn Prof. Dr. K. Heide vom Institut für Geowissenschaften der Universität Jena danke ich für die Messung von Ausheizprofilen von Meteoriten, ohne denen die ^{14}C-Methode in dieser Art nicht erstellt werden konnte.

Allen Kollegen der Kollaboration, die nicht namentlich erwähnt sind, danke ich ebenfalls für die gute Zusammenarbeit.

Mein größter Dank gilt meinen Eltern, die mir dieses Studium erst ermöglichten, sowie allen Verwandten und Freunden, die mir immer wieder Mut zugesprochen haben.

Tabellarischer Lebenslauf

Name:	Markus Knauer
Geburt:	am 1. 2. 1964 in Hannover
Vater:	Otto Knauer
Mutter:	Barbara Knauer, geb. Böning
Familienstand:	ledig
Staatsangehörigkeit:	deutsch

Schulbildung:

1970 - 1974	Grundschule Uhlandschule / Hannover
1974 - 1980	Realschule Stresemannschule / Hannover
1980 - 1983	Gymnasium Elsa-Brändströmschule / Hannover

Berufsausbildung:

10/1983	Immatrikulation an der Universität Hannover im Fach Chemie-Diplom
06/1986	Vordiplom
01/1990	Diplomprüfungen
02/1990 - 09/1990	Diplomarbeit 'Untersuchungen von Karl Fischer Systemen'
09/1990	Beginn der Promotion: Photometrische Beobachtung von Redoxgleichgewichten
02/1991	Wechsel des Institutes: Zentraleinrichtung für Strahlenschutz der Universität Hannover Promotionthema: Analyse von extraterrestrischer Materie auf langlebige radioaktive Nuklide

Arbeitsverhältnisse:

09/1990 - 01/1991	Studentische Hilfskraft im Fachbereich 'Analytische Chemie'
02/1991 - 03/1994	Wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Zentraleinrichtung für Strahlenschutz