# Über die Einwirkung der Höhenstrahlung auf Eisenmeteorite

Von K. H. EBERT \* und H. WÄNKE

Aus dem Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz

(Z. Naturforschg. 12 a, 766-773 [1957]; eingegangen am 9. August 1957)

Herrn Professor F. A. Paneth zum 70. Geburtstag

In einer Reihe von Eisenmeteoriten wurde der Helium- und Neongehalt bestimmt. Sowohl Helium als auch Neon entstehen als Reaktionsprodukte bei der Wechselwirkung von Teilchen der Höhenstrahlung mit den Atomkernen der Meteorite. Diese Reaktionen werden eingehend studiert, insbesondere auch der Anteil der Sekundärteilchen an der Heliumproduktion. Der Massenverlust der Meteorite beim Durchgang durch die Atmosphäre konnte berechnet werden; er beträgt etwa 78% der ursprünglichen Meteoritmasse. Unter der Annahme einer zeitlichen und räumlichen Konstanz der Höhenstrahlung ( $J_0$ =0,25 Teilchen cm<sup>-2</sup> sec<sup>-1</sup> sterad<sup>-1</sup>) ergab sich bei einem der Meteorite (Mt. Ayliff) aus dem Neongehalt für die Dauer der Einwirkung der Höhenstrahlung ein Zeitraum von 920 Millionen Jahren.

Bereits 1952 konnten Mayne, Paneth und Reasbeck zeigen, daß das in Eisenmeteoriten aufgefundene Helium seinen Ursprung zum überwiegenden Teil der Einwirkung der kosmischen Strahlung verdankt. Die massenspektrometrische Analyse dieses Heliums ergab einen Gehalt an Helium der Masse 3 bis zu 25%. Bis dahin machte man für den Heliumgehalt der Eisenmeteorite den radioaktiven Zerfall von Uran und Thorium verantwortlich, doch kann dabei natürlich immer nur Helium der Masse 4 entstehen.

Da die mittlere freie Weglänge eines Teilchens der Höhenstrahlung in Eisen etwa 15 cm beträgt, so ist auch bei Berücksichtigung des Einflusses von Sekundärteilchen in Meteoriten hinreichender Größe ein sog. "Tiefeneffekt" zu erwarten <sup>2, 3, 4</sup>, d. h. die Meteorite sollten in der Nähe ihrer Oberfläche einen größeren Heliumgehalt aufweisen als im Inneren. Tatsächlich konnten Paneth und Mitarb. eine solche Tiefenabhängigkeit am Meteoriten Carbo nachweisen <sup>5</sup>.

Dalton und Mitarb. 6 errechneten für die von ihnen untersuchten Eisenmeteoriten aus den Heliumgehalten bzw. aus daraus abgeschätzten radiogenen Anteilen und aus den Uran- und Thoriumgehalten

- \* Derzeitige Adresse: Institut für chemische Technologie der Technischen Hochschule München, Arcisstr. 21.
- <sup>1</sup> K. I. Mayne, F. A. Paneth u. P. Reasbeck, Geochim. Cosmochim. Acta 2, 300 [1952].
- <sup>2</sup> C. A. Bauer, Phys. Rev. 72, 354 [1947].
- <sup>3</sup> C. A. Bauer, Phys. Rev. 74, 225 [1948].
- <sup>4</sup> C. A. Bauer, Phys. Rev. 74, 501 [1948].
- <sup>5</sup> K. I. Mayne, F. A. Paneth u. P. Reasbeck, Nature, Lond. 172, 200 [1953].
- <sup>6</sup> J. C. Dalton, J. Golden, G. R. Martin, E. R. Mercer u. S. J. Thomson, Geochim. Cosmochim. Acta 3, 272 [1953].
- <sup>7</sup> G. R. Martin, Geochim. Cosmochim. Acta 3, 288 [1953].
- <sup>8</sup> H. C. UREY, Proc. Nat. Acad. Sci. 41, 127 [1955].
- <sup>9</sup> G.W. Reed u. A. Turkevich, Nature, Lond. 176, 794 [1955].

im Mittel ein Alter von ca. 100 Millionen Jahren. Dieses Alter ist in guter Übereinstimmung mit dem von Martin <sup>7</sup> auf Grund der Heliumproduktion der Höhenstrahlung errechneten Alter von ca. 200 Millionen Jahren.

Die von Dalton und Mitarb. gefundenen Uranund Thoriumwerte wurden bereits von UREY 8 angezweifelt. Bei so extrem kleinen Urankonzentrationen ist offenbar die Gefahr einer Verunreinigung wesentlich größer als bisher allgemein angenommen. In neuester Zeit konnten Reed und Turkevich 9 mit Hilfe der Neutronenaktivierungsanalyse die obere Grenze des Urangehaltes von Eisenmeteoriten auf ca. 1,5 · 10<sup>-10</sup> g U/g Met. festsetzen. Privaten Mitteilungen nach haben die gleichen Forscher diese obere Grenze inzwischen auf unter 10<sup>-11</sup> g U/g Met. herabgesetzt. Mit diesen so äußerst geringen Urankonzentrationen wird die daraus resultierende Heliumproduktion selbst in Zeiträumen von einigen 109 Jahren gegenüber den aufgefundenen Heliummengen zumindest für die heliumreichen Meteorite vernachlässigbar klein und die oben erwähnten Altersbestimmungen daher hinfällig.

Für Steinmeteorite scheint heute ein Alter von etwa 4,5 · 10<sup>9</sup> Jahren ziemlich gesichert zu sein <sup>10-19</sup>.

- <sup>10</sup> C. Festa u. M. Santangelo, Ann. Geofis. 3, 251 [1950].
- <sup>11</sup> K. K. Gerling u. T. G. Pavlova, Dokl. Akad. Nauk, USSR 77, 85 [1951].
- A.S. Wasserburg u. R. J. Hayden, Phys. Rev. 97, 86 [1955].
   Claire C. Patterson, Geochim. Cosmochim. Acta 7, 151 [1955].
- <sup>14</sup> S. J. Thomson u. K. I. Mayne, Geochim. Cosmochim. Acta 7, 169 [1955].
- <sup>15</sup> P. Reasbeck u. K. I. Mayne, Nature, Lond. 176, 186 [1955].
- <sup>16</sup> E. Schumacher, Z. Naturforschg. 11 a, 206 [1956].
- <sup>17</sup> C.C. Patterson, Geochim. Cosmochim. Acta 10, 230 [1956].
- 18 E. K. Gerling, Dokl. Akad. Nauk, USSR 107, 555 [1956].
- <sup>19</sup> E. K. Gerling u. L. K. Levski, Dokl. Akad. Nauk, USSR 110, 750 [1956].

Im Falle der Eisenmeteorite erhielten Fireman und Zähringer <sup>20</sup> ein etwa gleich großes Alter.

Durch die zu hohen Urangehalte erklärt sich nun auch der scheinbare Unterschied <sup>21</sup> am Alter der beiden Phasen von Steineisenmeteoriten. Die Arbeiten von Fireman <sup>22</sup>, sowie von Currie, Libby und Wolfgang <sup>23</sup>, welche die Tritiumerzeugung in Eisen, ausgelöst durch Protonen von 2 GeV, studierten, scheinen auch das von Martin auf Grund der Heliumproduktion der Höhenstrahlung errechnete Alter der Eisenmeteorite stark in Zweifel zu ziehen. Tatsächlich sind die von diesen Autoren gemessenen Erzeugungsquerschnitte wesentlich kleiner als die von Martin aus Kernphotoplattenexperimenten errechneten.

Alle diese Untersuchungen waren an Eisenmeteoriten vorgenommen worden, da hier die Verhältnisse wegen der einheitlichen chemischen Zusammensetzung wesentlich einfacher liegen. Wir wollen uns im folgenden ebenfalls auf Eisenmeteorite beschränken.

#### 1. Die Primärkomponente der Höhenstrahlung

Wie eingangs erwähnt, entsteht das in den Eisenmeteoriten aufgefundene Helium zum überwiegenden Teil durch die Einwirkung der Primärteilchen der Höhenstrahlung auf die Atomkerne der Meteorite. Die Primärteilchen der Höhenstrahlung bestehen etwa aus <sup>24</sup>

87% Protonen, 12%  $\alpha$ -Teilchen, 1% Kerne mit Z>2. Etwa 12% aller Höhenstrahlteilchen sind also Heliumatome, dennoch spielt der direkte Einfang dieser Heliumatome nur eine untergeordnete Rolle, und man kann ruhig so verfahren, als wären alle Teilchen Protonen. Neben der Natur der Teilchen der Höhenstrahlung interessiert uns hier auch noch ihre Intensität und ihre Energieverteilung. Der Gesamtfluß der Primärteilchen beträgt  $^{25,26}$ :

$$J_0 = 0.25~\rm Teilchen~sec^{-1}~cm^{-2}~sterad^{-1}$$
 .

Das Energiespektrum ist für mittlere Energien auf Grund von Messungen der Vertikalintensität oberhalb der Atmosphäre in verschiedenen geographischen Breiten recht gut bekannt <sup>25, 26, 27</sup>.

$$F(E) dE = 0.28 \cdot E^{-1.9} dE$$
,  $1.3 < E < 15 \text{ GeV}$ . (1a)

Nach kleineren Energien hin erfolgt eine deutliche Abnahme der Intensität. Wenngleich die genaue Lage des Maximums des differentiellen Energiespektrums nicht bekannt ist, so kann doch als gesichert angenommen werden, daß das Energiespektrum unterhalb 1 GeV sehr rasch gegen Null hin abfällt <sup>28</sup>.

$$F(E) dE = 0$$
,  $E < 1.3 \text{ GeV}$ . (1b)

Für Energien oberhalb 15 GeV fällt das Energiespektrum steiler ab als in Gl. (1a) ausgedrückt. Auf Grund von Experimenten mit großen Luftschauern scheint hier für das integrale Spektrum ein Exponent von -1.8 zu gelten  $^{29}$ .

Für das differentielle Energiespektrum gilt in diesem Energiebereich

$$F(E) dE = 3.3 E^{-2.8} dE$$
,  $E > 15 GeV$ . (1 c)

Somit erhalten wir für den gesamten in Frage kommenden Energiebereich

$$\begin{array}{llll} F(E) \ \mathrm{d}E = 0 \ , & E < 1.3 \ \mathrm{GeV} \ , \\ = 0.28 \ E^{-1.9} \ \mathrm{d}E \ , & 1.3 < E < 15 \ \mathrm{GeV} \ , \\ = 3.3 & E^{-2.8} \ \mathrm{d}E \ , & E > 15 \ \mathrm{GeV} \ . \end{array}$$

## 2. Wechselwirkung der Höhenstrahlteilchen mit den Eisenkernen der Meteorite

Trifft nun ein schnelles Teilchen der Höhenstrahlung auf einen Eisenkern auf, so wird es sehr bald mit einem Proton oder Neutron des Kerns zusammenstoßen und zumindest einen Teil seiner kinetischen Energie an dieses abgeben. Bei diesen Stoßprozessen kommt es zur Produktion von  $\pi$ -Mesonen, die mit mittleren Energien von etwa 600 MeV  $^{30}$  den Kern verlassen und deren Winkelverteilung eine starke Bevorzugung der Vorwärtsrichtung aufweist. Das getroffene Kernnukleon stößt weitere Nukleonen an, man spricht von der Ausbildung einer Nukleonen-

<sup>&</sup>lt;sup>20</sup> E. L. Fireman u. J. Zähringer, Private Mitteilung.

<sup>&</sup>lt;sup>21</sup> K. F. CHACKETT, P. REASBECK u. E. J. WILSON, Geochim. Cosmochim. Acta 3, 261 [1953].

<sup>&</sup>lt;sup>22</sup> E. L. Fireman, Phys. Rev. **97**, 1303 [1955].

<sup>&</sup>lt;sup>23</sup> L. A. Currie, W. F. Libby u. R. L. Wolfgang, Phys. Rev. 101, 1557 [1956].

<sup>&</sup>lt;sup>24</sup> E. P. Ney u. D. M. Thon, Phys. Rev. 81, 1069 [1951].

J. A. van Allen u. S. F. Singer, Phys. Rev. 78, 819 [1950].
 L. M. Meredith, J. A. van Allen u. M. G. Gottlieb, Phys. Rev. 99, 198 [1955].

<sup>&</sup>lt;sup>27</sup> J. R. Winckler, T. Stix, D. Dwight u. R. Sabin, Phys. Rev. 79, 656 [1950].

<sup>&</sup>lt;sup>28</sup> R. A. Ellis, M. B. Gottlieb u. J. A. van Allen, Phys. Rev. 95, 147 [1954].

<sup>&</sup>lt;sup>29</sup> Vgl. P. Budini u. G. Moliere, Kosmische Strahlung von W. Heisenberg, Springer-Verlag 1953, S. 380.

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup> U. CAMERINI, W. O. LOCK U. D. H. PERKINS, Progress in Cosmic Ray Physics von J. G. Wilson, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, S. 25.

kaskade im Kern. Die Nukleonen der Kaskade verlassen den Kern ebenfalls unter starker Bevorzugung der Vorwärtsrichtung mit Energien von 25 bis 500 MeV 31. Die austretenden Nukleonen werden häufig in Anlehnung an das Aussehen ihrer Spuren in Kernemulsionen als "graue" Teilchen bezeichnet. Diese "grauen" Nukleonen stoßen, bevor sie den Kern verlassen, noch mit weiteren Kernnukleonen zusammen, so daß es schließlich zu einer gleichmäßigen Anregung aller Kernnukleonen kommt. Die Kerntemperatur kann nun so hoch werden, daß es weiteren Nukleonen möglich wird, aus dem Kern zu entkommen. Es kommt zu einer Kernverdampfung, neben einzelnen Protonen und Neutronen können auch zusammengesetzte Gebilde den Kern verlassen. wie D, T, 3He, 4He, selbst 6Li wurde beobachtet 32. Die Energie dieser abdampfenden Teilchen ist mit etwa 8 MeV relativ gering, sie werden also kaum weitere Kernreaktionen hervorrufen. Hingegen sind die oben erwähnten  $\pi$ -Mesonen, sowie auch die "grauen" Nukleonen der Kaskade sehr wohl in der Lage, zu sekundären Kernumwandlungsprozessen Anlaß zu geben.

Die Zahl der auftretenden Verdampfungsteilchen hängt nur relativ wenig von der Energie des primären Teilchens ab, hingegen nimmt die Zahl der Sekundärteilchen mit zunehmender Primärenergie wesentlich zu; doch bleibt ihre mittlere Energie fast konstant <sup>30</sup>. Während des Abdampfprozesses kühlt sich der Atomkern immer mehr ab, schließlich reicht die Anregungsenergie nicht mehr zur Emission von Partikeln aus, und der Kern geht durch γ-Emission wieder in den Grundzustand über. Sowohl Massenzahl als auch Kernladungszahl dieses Restkernes sind nun aber je nach der Höhe der ursprünglichen Anregungsenergie von denen des Eisens mehr oder weniger verschieden.

Die in den Meteoriten aufgefundenen <sup>3</sup>He- und <sup>4</sup>He-Kerne sind also Verdampfungsteilchen, von den Restkernen konnten Reasbeck und Mayne <sup>33, 34</sup> die Neonisotope 20, 21, 22, Gentner und Zährlinger <sup>35, 36</sup> die Argonisotope 36 und 38 in Meteoriten nachweisen.

<sup>32</sup> R. Hagedorn u. W. Macke, s. Kosmische Strahlung von W. Heisenberg, Verlag Springer, S. 201.

<sup>33</sup> P. Reasbeck, Thesis "University Durham", 1953.

### 3. Experimenteller Teil

Wir haben nun versucht, sowohl die Helium- als auch die Neongehalte einer Reihe von Eisenmeteoriten mit möglichst hoher Genauigkeit zu bestimmen, um daraus nähere Kenntnisse über den Ablauf der durch die Höhenstrahlung ausgelösten Reaktionen in den Meteoriten zu erhalten. Bei den zu unseren Versuchen ausgewählten Meteoritproben handelte es sich mit einer Ausnahme um solche, von denen bereits Messungen des Heliumgehaltes und des 3He/4He-Verhältnisses vorlagen 34. Die Proben zu diesen früheren Messungen stammten alle aus der Sammlung von Herrn Prof. Paметн, aus der auch alle unsere Proben herrührten. Aus diesem Grunde bestand die Möglichkeit, unsere Messungen mit Proben derselben Meteoritstücke auszuführen und sie mit den früheren Messungen 37 a zu vergleichen. Alle unsere Bestimmungen wurden mit einer Apparatur zur Mikroanalyse von Edelgasen ausgeführt, die der von Chackett u. Mitarb. ausführlich beschriebenen sehr ähnlich war 21.

Je nach der Höhe des zu erwartenden Helium- bzw. Neongehaltes wählten wir Einwaagen zwischen 1 und 10 g Meteorit. Die Proben wurden in Form von Frässpänen in die Vakuumapparatur eingebracht und mit einer salzsauren CuCl<sub>2</sub> - KCl-Lösung gelöst. Bei dieser Art der Auflösung entsteht Wasserstoff nur in Spuren. Lösungskolben und Lösungsflüssigkeit waren vorher evakuiert, und mit reinstem Sauerstoff (Helium- bzw. Neongehalt  $< 5 \cdot 10^{-10}$  Volumprozent), den wir uns elektrolytisch herstellten, mehrfach durchgespült. An Hand von Leerversuchen konnten wir nachweisen, daß es so möglich war, auch die letzten Spuren von Helium und Neon zu entfernen. Nach dem Lösen der Proben wurden alle freigewordenen Gase mit Sauerstoff aus dem Kolben herausgespült und der Wasserstoff im Sauerstoffüberschuß an einem auf etwa 350 °C erhitzten Palladiumkontakt verbrannt. Aus dem verbleibenden Gasgemisch wurden die uns interessierenden kleinen Mengen von Helium und Neon in einer 15-stufigen Absorptionskolonne 21, 38 bei der Temperatur des siedenden Stickstoffs abgetrennt. Die praktisch reinen Fraktionen von Helium bzw. Neon wurden schließlich in einem in siedenden Stickstoff tauchenden Pirani-Manometer gemessen. Es war uns mit dieser Apparatur möglich, Mengen von  $10^{-7}$  cm<sup>3</sup> Helium bzw. Neon noch mit einer Genauigkeit von etwa 2-3% zu messen.

Die Ergebnisse unserer Messungen sind in Tab. 1 dargestellt. Sämtliche Heliumwerte sind auf mindestens 2% genau. Die Genauigkeit der Neonwerte der neonarmen Meteorite ist etwas geringer, doch ist

<sup>&</sup>lt;sup>31</sup> U. Camerini, J. H. Davies, P. H. Fowler, G. Franzinetti, H. Muirhead, W. O. Lock, D. H. Perkins u. G. Yekutieli, Phil. Mag. 42, 1241 [1951].

<sup>&</sup>lt;sup>34</sup> P. Reasbeck u. K. I. Mayne, Nature, Lond. 176, 733 [1955].

<sup>35</sup> W. Gentner u. J. Zähringer, Z. Naturforschg. 10 a, 498 [1955].

<sup>&</sup>lt;sup>36</sup> W. Gentner u. J. Zähringer, Geochim. Cosmochim. Acta 11, 60 [1957].

J. C. Dalton, F. A. Paneth, P. Reasbeck, S. J. Thomson u. K. I. Mayne, Nature, Lond. 172, 1168 [1953].
 E. Glückauf, Proc. Roy. Soc., Lond. A 185, 98 [1945].

	$^{\rm He~in}_{\rm 10^{-6}~cm^3/g}$	$^3\mathrm{He}/^4\mathrm{He}$	$^3{ m He~in} \ 10^{-6}~{ m cm^3/g}$	${\rm Ne~in} \atop 10^{-8}~{\rm cm^3/g}$	$\mathrm{He/Ne}$	$^3{ m He/Ne}$
Mt. Ayliff	36,2	0,315	8,68	26,7	136	32,5
Thunda	29,0	0,307	6,81	18,9	153	36,0
Tamarugal	23,1	0,309	5,46	14.7	157	37,1
Carbo 3 cm	20,9	0,288	4,67	12,3	170	38,0
,, 17 cm	17,2	0,278	3,74	9.78	176	38,3
,, 26 cm	16,9	0,277	3,67	9,61	176	38,1
Toluca (Durham)	18,7	0,297	4,28	11,5	163	37,2
Bendegó	7,62		, , , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	4,70	162	,
Gibeon (Amalia)	3,51	0,278	0.76	1,98	177	38,6
San Martin	1,77	0,254	0,36	0.94	188	38,2

Tab. 1.

der Fehler auch hier nie größer als 5%. Alle angegebenen Werte sind Mittelwerte aus mindestens zwei Messungen.

Die von uns erhaltenen Heliumgehalte stimmen mit den von Reasbeck 37a gemessenen Werten größtenteils hervorragend überein. Kleine Abweichungen erklären sich durch geringfügige Unterschiede in den Proben. Für zwei der von uns gemessenen Meteoriten lagen auch bereits Messungen des Neongehaltes von Reasbeck und Mayne 34 vor. Die genannten Autoren fanden für "Thunda" einen Gehalt von  $29,05 \cdot 10^{-6} \,\mathrm{cm}^3 \,\mathrm{He/g}$  und von  $18,9 \cdot 10^{-8} \,\mathrm{cm}^3 \,\mathrm{Ne/g}$ , für "Toluca Durham" lauten die entsprechenden Zahlen  $18.6 \cdot 10^{-6}$  cm<sup>3</sup> He und  $11.4 \cdot 10^{-8}$  cm<sup>3</sup> Ne/g. Ein Vergleich mit den in Tab. 1 aufgeführten von uns gemessenen Werten zeigt die ausgezeichnete Übereinstimmung der beiden Messungen. Ein weiterer Beweis für die Zuverlässigkeit unserer Messungen ergab sich im Falle des Meteoriten "San Martin". Hier war ursprünglich für das <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He-Verhältnis ein Wert von 0,168 angegeben worden 37 b; dieser Wert ergab aber mit dem von uns gemessenen Neongehalt ein völlig aus der Reihe fallendes <sup>3</sup>He/Ne-Verhältnis. Die neue massenspektrometrische Analyse ergab einen völlig anderen Wert ( ${}^{3}\text{He}/{}^{4}\text{He} = 0.254$ ). Der daraus berechnete Helium 3-Gehalt lieferte ein mit den anderen gut übereinstimmendes 3He/Ne-Verhältnis. Der zu niedrige ältere Wert für das Isotopenverhältnis des Heliums aus "San Martin" erklärt sich vermutlich aus einer Verunreinigung der Probe mit atmosphärischem Helium. Jedenfalls gelang es uns, aus dem gemessenen Neongehalt diesen Fehler aufzuspüren.

Wie ebenfalls aus Tab. I ersichtlich, bleiben die He/Ne- bzw. <sup>3</sup>He/Ne-Verhältnisse ziemlich konstant, obwohl die absoluten Helium- bzw. Neongehalte um etwa einen Faktor 20 variieren; ein weiterer Beweis dafür, daß sowohl Helium als auch Neon durch die Einwirkung der Höhenstrahlung entsteht. Wie bereits früher festgestellt <sup>34</sup>, haben bei dem in den Meteoriten aufgefundenen Neon alle drei Isotope größenordnungsmäßig die gleiche Häufigkeit

$$(^{20}\text{Ne}/^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne} = 43/36/21)$$
,

wie man es auch nach der Kernverdampfungstheorie erwarten würde.

Die Unterschiede in den absoluten Konzentrationen von Helium und Neon beruhen nicht etwa auf einer unterschiedlichen Zeitdauer der Einwirkung der Höhenstrahlung auf die einzelnen Meteorite, sondern es ist hierfür in erster Linie der Abstand der Stelle, von der die Proben genommen wurden, von der Oberfläche des Meteoriten maßgeblich, und zwar muß dabei die ursprüngliche Gestalt des Meteoriten vor seinem Eintritt in die irdische Atmosphäre betrachtet werden. Wie später gezeigt werden wird, schrumpft der Radius eines kugelförmigen Meteoriten beim Durchgang durch die Atmosphäre auf etwa 0,60 R (R Radius des Meteoriten vor seinem Eintritt in die Atmosphäre), d. h. etwa 78% der ursprünglichen Masse eines Meteoriten geht beim Durchgang durch die Atmosphäre verloren.

Verschieden große Meteorite verlieren daher beim Durchgang durch die Atmosphäre verschieden große Schichtdicken. Der mittlere Heliumgehalt von großen Meteoriten ist daher stets geringer als der von kleinen. Tatsächlich zeigt auch der kleinste der von uns

<sup>&</sup>lt;sup>37 b</sup> Dr K. I. Mayne, der auch die früheren massenspektrometrischen Messungen durchführte <sup>37</sup>, erklärte sich freundlicherweise bereit, von einer von uns aus dem Meteoriten abgetrennten Heliumprobe das Isotopenverhältnis nochmals zu messen.

untersuchten Meteorite (Mt. Ayliff) den höchsten Helium- bzw. Neongehalt. Die jetzige Oberfläche dieses Meteoriten war vor seinem Eintritt in die Atmosphäre nur durch eine etwa 5 cm dicke Schicht abgeschirmt.

#### 4. Diskussion der Ergebnisse

Wie bereits erwähnt, hatte schon Martin in einer ausführlichen Arbeit 7 versucht, die durch die Höhenstrahlung verursachte Heliumproduktion in Eisenmeteoriten zu berechnen. Er verwendete jedoch zu seinen Rechnungen die teilweise recht ungenauen Daten aus Experimenten mit Kernphotoplatten. Auch liegen die Massenzahlen der schweren Atomkerne der Kernphotoplatten (Silber und Brom) schon ziemlich weit von der des Eisens entfernt.

Auf Grund der in den letzten Jahren bekannt gewordenen Arbeiten mit sehr energiereichen Teilchen (E > 2 GeV) ist es heute möglich, die Helium- bzw. Neonproduktion genauer abzuschätzen. Die Energien der Primärteilchen der Höhenstrahlen liegen sämtlich weit über der Gesamtbindungsenergie des Eisenkerns. Wir können daher eine etwaige Energieabhängigkeit der Erzeugungsquerschnitte vernachlässigen und für alle Primärteilchen mit den gleichen Querschnitten rechnen. Die totalen Wirkungsquerschnitte (op) für Protonen oberhalb 1 GeV sind bei allen Elementen etwas kleiner als der geometrische Kernquerschnitt. So wurde für Protonen zwischen 1 und 5 GeV ein Wert von 0,75 σ<sub>0</sub> gefunden <sup>39</sup>  $(\sigma_0 = \text{geometrischer Querschnitt})$ . Für noch energiereichere Protonen (E > 5 GeV) wird  $\sigma_p = \sigma_0$ . Mit  $\sigma_0 = 890 \text{ mb}$  erhalten wir also für die Primärteilchen einen totalen Wirkungsquerschnitt von 730 mb. Für den Wirkungsquerschnitt der Sekundärteilchen ( $\sigma_{\rm s}$ ) gilt etwa  $\sigma_s = \sigma_0 = 890 \text{ mb}$ .

Wie schon eingangs erwähnt, haben Currie, Libby und Wolfgang <sup>23</sup> die Tritiumerzeugung durch Protonen von 2 GeV in einer Reihe von Elementen untersucht. Aus dieser Arbeit und der von Fireman <sup>22</sup> errechneten wir für eine den Meteoriten entsprechende Eisennickellegierung einen Tritiumerzeugungsquerschnitt von etwa 65 mb.

Wegen der im Vergleich zu dem Alter der Meteorite geringen Halbwertszeit des Tritiums (12,26

Jahre) findet sich das gesamte in den Meteoriten gebildete Tritium als Helium 3. Daneben wird aber bei der Kernverdampfung des Eisens auch Helium 3 direkt gebildet. MARTIN, MAYNE, THOMSON und Wardle 40 fanden für die wesentlich kleinere Protonenenergie von 340 MeV ein <sup>3</sup>He/T-Verhältnis von 0,6. Bei den uns interessierenden Energien haben wir sicherlich ein größeres Verhältnis zu erwarten. Mit einem <sup>3</sup>He/T-Verhältnis von 0,85 erhalten wir für die Gesamterzeugung von Helium 3 einen Querschnitt von ca. 120 mb. Unter Verwendung eines aus der Kernverdampfungstheorie 41 hergeleiteten <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He-Verhältnisses von 0,35 (die in den Meteoriten aufgefundenen Werte liegen etwas tiefer, doch handelt es sich hier stets um ein Gemisch von durch Primär- und durch Sekundärteilchen entstandenem Helium) gelangen wir zu einem totalen Erzeugungsquerschnitt für Helium (<sup>3</sup>He + <sup>4</sup>He) von 460 mb.

Die Zahl der pro Kernverdampfung auftretenden Heliumatome wird häufig als die Multiplizität der Heliumerzeugung  $M_{\rm He}$  bezeichnet. Mit dem weiter oben angegebenen totalen Wirkungsquerschnitt der Eisenkerne für Primärteilchen von 730 mb ergibt sich

$$M_{
m He} = rac{460}{730} = 0.63$$

in ausgezeichneter Übereinstimmung mit anderen experimentellen Messungen <sup>23, 42</sup>.

Schwieriger gestaltet sich die Abschätzung des Erzeugungsquerschnittes von Neon. Friedländer und Mitarb.  $^{43}$  haben Kupfer mit Protonen von 2,2 GeV bestrahlt und neben vielen anderen Erzeugungsquerschnitten auch die der in der Nähe der stabilen Neonisotope liegenden Kerne Natrium 22 (1,8 mb), Natrium 24 (3,2 mb) und Fluor 18 (1,0 mb) gemessen. Von diesen Kernen geht Natrium 22 durch  $\beta^+$ Zerfall direkt in Neon 22 über. Durch Interpolation und Umrechnung auf Eisen erhielten wir für die gesamte Neonerzeugung ( $^{20}$ Ne +  $^{21}$ Ne +  $^{22}$ Ne) einen Querschnitt von 14 mb. Daraus folgt

$$M_{\rm Ne} = \frac{14}{730} = 0.019$$
.

Die Genauigkeit dieser Abschätzungen ist naturgemäß nicht sehr hoch, wir glauben jedoch, daß der Fehler einen Wert von 30% nicht übersteigt.

<sup>&</sup>lt;sup>39</sup> N. M. Kocharyan, G. S. Saakyom u. M. T. Aivazvan, Dokl. Akad. Nauk, USSR 107, 668 [1956].

G. R. Martin, K. I. Mayne, S. J. Thomson u. G. Wardle, Phil. Mag. 45, 410 [1954].

K. J. Le Couteur, Proc. Roy. Soc., Lond. A 63, 259 [1950].
 R. W. Deutsch, Phys. Rev. 97, 1110 [1955].

Aus den so erhaltenen Multiplizitäten ergibt sich für das Verhältnis der Helium- und Neonproduktion 0,63/0,019 = 33. Die von uns in den Meteoriten tatsächlich aufgefundenen He/Ne-Verhältnisse liegen aber etwa 4- bis 6-mal höher. Die Ursache für diese Diskrepanz ist in den Sekundärteilchen bzw. in den durch sie ausgelösten Kernverdampfungen zu suchen.

Wie in Abschnitt 2 ausgeführt, liegt die Energie der Sekundärteilchen zwischen etwa 100 und 600 MeV. Für diese Energie haben wir im Falle des Neon mit wesentlich kleineren Erzeugungsquerschnitten zu rechnen. So beträgt der Querschnitt für die Neonerzeugung bei einer Protonenenergie von 340 MeV <sup>43–46</sup> nur etwa <sup>1</sup>/<sub>40</sub> des Querschnittes für eine Protonenenergie von 2,2 GeV. In erster Annäherung dürfen wir also für die Erzeugung von Neon die Primärteilchen allein verantwortlich machen. Der Neongehalt einer Meteoritprobe ist daher ein Maß für den Fluß der Primärteilchen an dieser Stelle.

Die Heliumproduktion eines Sekundärteilchens ist hingegen nur wenig von der eines Primärteilchens verschieden. Der Tritiumerzeugungsquerschnitt in Eisen für Protonen von 450 MeV 23 ist etwa halb so groß wie für Protonen von 2,2 MeV. Mit einem <sup>3</sup>He/T-Verhältnis von 0,7 und einem <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He-Verhältnis von etwa 0,20 (siehe Meteorite mit kleinem Heliumgehalt, bei dem die Heliumproduktion durch Sekundärteilchen überwiegt) ergibt sich für Sekundärteilchen ein Gesamterzeugungsquerschnitt von Helium (3He + 4He) von etwa 360 mb. Die Sekundärteilchen der ersten Generation sind noch in der Lage eine zweite Generation von Sekundärteilchen zu erzeugen, welche trotz ihrer relativ geringen Energie durchaus noch zur Heliumerzeugung beitragen können. Die Winkelverteilung dieser nun wesentlich energieärmeren zweiten Generation von Sekundärteilchen, bzw. die weiterer Generationen weicht nun aber immer mehr von der Vorwärtsrichtung ab. Damit werden die Verhältnisse überaus kompliziert. Wir wollen deshalb dem Vorhandensein dieser zweiten und der weiteren Generationen von Sekundärteilchen nur insofern Rechnung tragen, als wir die durch sie gebildeten Heliummengen bereits der Produktion der ersten Generation der Sekundärteilchen

$$m_{\rm He} = \frac{470}{890} = 0.53$$
.

Nun soll die Absorption der Höhenstrahlen sowie die Produktion von Helium und Neon in Abhängigkeit des Abstandes von der Oberfläche des Meteoriten betrachtet werden. Wie mit Kernphotoplatten festgestellt wurde 47, treten bei den durch Primärteilchen ausgelösten Kernverdampfungen neben den bisher erwähnten Sekundärteilchen auch noch sehr energiereiche Protonen (E > 1 GeV) mit einer Multiplizität von 0,2 auf. Möglicherweise handelt es sich dabei um Reaktionen, bei denen das Primärteilchen nur einen Teil seiner Energie abgab. Wir betrachten diese Protonen hinsichtlich ihrer weiteren Reaktionen als mit den Primärteilchen identisch und nehmen deshalb für den effektiven Absorptionsquerschnitt einen kleineren Wert an als dem Wirkungsquerschnitt entsprechen würde ( $\sigma_a = \sigma_p/1, 2 = 610 \text{ mb}$ ). Der Einfachheit halber wollen wir die Oberfläche des Meteoriten als eben und unendlich ausgedehnt ansehen. Auf einen Quadratzentimeter dieser Oberfläche treffe je Sekunde ein Strom von  $J_0$  Primärteilchen senkrecht auf. Uns interessiert nun die Intensität von Primär- und Sekundärteilchen in Abhängigkeit des Abstandes x von der Oberfläche.

Der Fluß der Primärteilchen im Abstande x von der Oberfläche ist dann gegeben durch

$$J_{\rm p} = J_{\rm 0} e^{-\mu_{\rm a} x} \quad \mu = \frac{L}{4} \varrho \sigma, \qquad (2)$$

wobei L die Loschmidtsche Zahl,  $\varrho$  die Dichte und A das Atomgewicht des Eisens ist.

Die Zahl der durch Primärteilchen im Kubikzentimeter pro Sekunde ausgelösten Kernverdampfungen ist dann

$$W_{\rm p} = \mu_{\rm p} J_{\rm p} = \mu_{\rm p} J_{\rm 0} e^{-\mu_{\rm a} x}$$
. (3)

Bezeichnen wir mit S die Zahl der pro Primärprozeß im Mittel gebildeten Sekundärteilchen, so ist deren Erzeugungsrate pro Kubikzentimeter Meteorit

$$N_{\rm s} = S W_{\rm p} = \mu_{\rm p} S J_{\rm 0} e^{-\mu_{\rm a} x}$$
 (4)

hinzurechnen, indem wir den fiktiven Erzeugungsquerschnitt der Sekundärteilchen um etwa 30% erhöhen. Für die Multiplizität der Heliumerzeugung durch Sekundärteilchen ergibt sich damit

D.H. Greenberg u. J. M. Miller, Phys. Rev. 84, 845 [1951].
 U. Camerini, J. H. Davies, P. H. Fowler, C. Franzinetti, H. Muirhead, W. Lock, D. H. Perkins u. G. Yekutieli, Phil. Mag. 42, 1241 [1951].

<sup>&</sup>lt;sup>43</sup> A. Friedländer, J. M. Miller, R. Wolfgang, J. Hudis u. E. Baker, Phys. Rev. 94, 727 [1954].

<sup>&</sup>lt;sup>44</sup> E. Batzel, D. R. Miller u. G. T. Seaborg, Phys. Rev. 84, 671 [1951].

<sup>&</sup>lt;sup>45</sup> L. Marquez u. I. Perlman, Phys. Rev. 81, 953 [1951].

Unter der Annahme, daß alle Sekundärteilchen in Vorwärtsrichtung emittiert werden und ihrerseits wieder mit den Eisenkernen reagieren ( $W_{\rm S} = \mu_{\rm s} \, I_{\rm s}$ ), lassen sich Erzeugung und Absorption durch die Differentialgleichung

$$\frac{\mathrm{d}J_{\rm s}}{\mathrm{d}x} = \mu_{\rm p} \, S \, J_0 \, e^{-\mu_{\rm a} \, x} - \mu_{\rm s} \, J_{\rm s} \tag{5}$$

ausdrücken. Nach Integration ergibt sich mit  $J_0=0$  für x=0 , für den Fluß der Sekundärteilchen

$$J_{\rm s} = \frac{\mu_{\rm p}}{\mu_{\rm s} - \mu_{\rm a}} S J_{\rm \theta} (e^{-\mu_{\rm a} x} - e^{-\mu_{\rm s} x}) \ . \eqno(6)$$

Die Heliumproduktion  $P_{\rm He}$  im Abstand x von der Oberfläche im Kubikzentimeter Eisen pro Sekunde ist gegeben durch

$$P_{\rm He} = \mu_{\rm p} \, M_{\rm He} \, J_0 \, e^{-\mu_{\rm a} \, x} \tag{7}$$

$$+\,\mu_{\rm s}\frac{\mu_{\rm p}}{\mu_{\rm s}\!-\!\mu_{\rm a}}\,S\,m_{\rm He}\,J_0(e^{-\mu_{\rm a}\,x}\!-\!e^{-\mu_{\rm s}\,x})$$

 $(m_{\rm He}$  Multiplizität der Heliumerzeugung durch Sekundärteilchen). Analog folgt für die Neonproduktion

$$P_{\text{Ne}} = \mu_{\text{n}} M_{\text{Ne}} J_{0} e^{-\mu_{0} x}. \tag{8}$$

Wie eine einfache Überlegung zeigt, gelten die gleichen Beziehungen auch für die Erzeugungsraten im Mittelpunkt eines kugelförmigen Meteoriten vom Radius x, der isotrop bestrahlt wird. Es soll nun zunächst die Neonproduktion betrachtet werden, da hier die Verhältnisse einfacher liegen. Nach dem Einsetzen der numerischen Werte erhalten wir mit  $J_0=0.25$  Teilchen cm² sec $^{-1}$  sterad $^{-1}$  für die Neonproduktion im Mittelpunkt eines kugelförmigen Meteoriten

$$H_{\rm Ne} = \frac{4\pi}{\varrho} P_{\rm Ne} = 0.47 \cdot 10^{-3} \, e^{-0.052 \, x} \, \frac{\rm Atome \ Neon}{\rm g \ Met. \ sec} \, \cdot \, (9)$$

Von allen der von uns analysierten Meteoritproben wissen wir nur im Falle der Proben des Meteoriten "Carbo" über ihre Herkunft näher Bescheid. Diese Proben entstammen einem etwa in der längeren Hauptachse liegenden Bohrloch. Die Probe aus einer "Tiefe" von 26 cm entspricht ungefähr dem Massenmittelpunkt des etwa eiförmigen Meteoriten. Der Abstand des Massenmittelpunktes von der Oberfläche beträgt im Mittel etwa 19 cm. Wie schon frühere Untersuchungen ergaben <sup>21</sup>, zeigen kleine Meteoriten praktisch keinen Tiefeneffekt. Im Falle des Meteoriten "Mt. Ayliff" (Radius 7,3 cm) können

wir daher so vorgehen, als entspreche die von uns untersuchte Probe dem Mittelpunkt. Es wurde oben erwähnt, daß die Meteorite beim Durchgang durch die Atmosphäre einen beträchtlichen Massenverlust erleiden. Unter der Annahme einer konstanten geozentrischen Geschwindigkeit für alle Meteoriten erhalten wir für ihre Radien einen ebenfalls konstanten Schrumpfungsfaktor  $a^{7,48}$ 

$$a=r/R$$

(R ursprünglicher Radius vor dem Eintritt in die Atmosphäre; r Radius des aufgefundenen Meteoriten). Dieser Schrumpfungsfaktor a kann mit Hilfe der Gl. (9) und den gemessenen Neongehalten  $N_1$  und  $N_2$  zweier Meteorite mit den Radien  $r_1$  und  $r_2$  errechnet werden.

$$\frac{N_1}{N_2} - \frac{H_{\text{Ne},1}}{H_{\text{Ne},2}} = \frac{\exp[-\mu_a(r_1/a)]}{\exp[-\mu_a(r_2/a)]}$$

und daraus

$$a = \frac{\mu_{\rm a} (r_2 - r_1)}{\ln N_1 / N_2} \,.$$

Mit den Werten für "Mt. Ayliff" und "Carbo" erhalten wir

$$a = 0.60$$
.

Die ursprünglichen Radien der beiden Meteorite waren daher beim "Mt. Ayliff" 12,2 cm und beim "Carbo" 32 cm.

Aus den Gln. (7) und (8) können wir nun die Zahl der pro Primärprozeß im Mittel gebildeten Sekundärteilchen aus unserem Helium- bzw. Neongehalt ausrechnen. Mit den Werten für "Carbo  $26~{\rm cm}^{\circ}~H_{\rm He,~Carbo}/H_{\rm Ne,~Carbo}=176~{\rm ergibt~sich}$ 

$$S = 3,1$$
.

Der Anteil der Sekundärteilchen an der Heliumproduktion läßt sich ebenfalls aus Gl. (7) berechnen, er beträgt im Falle von "Carbo 26 cm" 81% der Gesamtheliumerzeugung.

Unter der Annahme, daß die Höhenstrahlung über lange Zeiträume konstant war, und daß ihre Intensität auch außerhalb der Erde dieselbe ist wie am Gipfel der Erdatmosphäre in großen geographischen Breiten, kann man aus dem in den Meteoriten gefundenen Neongehalt auch die Zeitdauer berechnen, in der die Meteorite der Höhenstrahlung ausgesetzt waren. Diese ergibt sich in Übereinstimmung mit den von anderen Autoren <sup>22, 23, 49</sup> aus verschiedenen

<sup>&</sup>lt;sup>48</sup> F. L. Whipple, Rev. Mod. Phys. 15, 246 [1943].

<sup>&</sup>lt;sup>49</sup> E. L. Fireman u. D. Schwarzer, Geochim. Cosmochim. Acta 11, 252 [1957].

Experimenten hergeleiteten Werten, für "Mt. Ayliff".  $t = 2.9 \cdot 10^{16} \text{ sec} = 9.2 \cdot 10^8 \text{ Jahre.}$ 

Dieser Zeitraum muß nicht notwendigerweise mit dem Alter, wie man es z.B. mit der Kalium-Argon-Methode erhält <sup>20</sup>, identisch sein, denn es ist durchaus denkbar, daß der für den Ursprung der Meteorite verantwortliche Himmelskörper erst längere Zeit

H. H. Uhlig, Geochim. Cosmochim. Acta 6, 282 [1954].
 H. H. Uhlig, Geochim. Cosmochim. Acta 7, 34 [1955].

nach dem Erkalten in kleinere Bruchstücke zerfallen ist, ohne daß sich diese dabei bis zu ihrem Schmelzpunkt erwärmt hatten. Eine solche Entstehung der Meteorite ist nach metallurgischen Studien <sup>50, 51</sup> sogar ziemlich wahrscheinlich, auch ist die Bildung der Widmannstätten-Figuren an so kleinen Körpern, wie es die Meteorite sind, sonst nicht erklärbar.

Herrn Professor F. A. Paneth danken wir aufrichtig für die weitgehende Förderung, die er uns im Laufe dieser Arbeit zuteil werden ließ.

## Massenspektrometer mit Doppelfokussierung zweiter Ordnung

Von H. HINTENBERGER und L. A. KÖNIG

Aus dem Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz (Z. Naturforschg. 12 a, 773—785 [1957]; eingegangen am 22. Juli 1957)

Herrn Professor F. A. Paneth zum 70. Geburtstag

Es werden Massenspektrometer mit vollständiger Doppelfokussierung zweiter Ordnung, d. h. mit korrigiertem Öffnungsfehler ( $\alpha^2$ ), korrigierter gemischt öffnungswinkel- und geschwindigkeitsabhängiger Aberration ( $\beta^2$ ) und mit korrigierter rein geschwindigkeitsabhängiger Aberration ( $\beta^2$ ) angegeben. Ihre Abmessungen stellen die Lösungen eines komplizierten Gleichungssystems von 5 Gleichungen dar. 3 von den 8 in die Gleichungen eingehenden Unbekannten (Ablenkwinkel  $\varphi_m$  und Einund Austrittswinkel  $\varepsilon'$  des Hauptstrahls am Magnetfeld) werden vorgegeben und die Abhängigkeit der 5 anderen Größen von diesen 3 Winkeln untersucht. Die Bewältigung der dabei auftretenden sehr umfangreichen numerischen Rechnungen wurde durch die Anwendung eines IBM-Magnettrommelrechners Type 650 ermöglicht. Das benutzte Rechenverfahren wird skizziert.

Es zeigt sich, daß sowohl für gleichsinnige als auch für gegensinnige Ablenkung im elektrischen und magnetischen Feld Massenspektrometer mit vollständiger Doppelfokussierung zweiter Ordnung möglich sind, über die an Hand von Tabellen und Diagrammen ein Überblick gegeben wird. Besonders bei gleichsinniger Ablenkung in beiden Feldern ergeben sich Apparate mit vernünftigen Abmessungen. Vier solche Beispiele waren bereits in einer früheren Notiz (Z. Naturforschg. 12 a, 443 [1957]) veröffentlicht worden.

Mit der fortschreitenden Entwicklung massenspektroskopischer Methoden und der Verbreitung ihrer verschiedenen Anwendungen steigen ständig die Ansprüche an diese Instrumente sowohl hinsichtlich der Lichtstärke als auch in bezug auf das Auflösungsvermögen. Im Zuge dieser Entwicklung hat sich das Prinzip der Doppelfokussierung, das 1929 in einem Spezialfall von Bartky und Dempster 1 und dann nach der Entwicklung einer allgemeinen ionenoptischen Theorie der Doppelfokussierung erster Ordnung durch Mattauch und Herzog 2 von diesen und auch von anderen Forschern 3, 4, 5, 6 praktisch angewandt worden ist, durchgesetzt. Es handelt

sich dabei aber stets um Instrumente, bei denen Doppelfokussierung nur in erster Näherung erreicht wird. In diesen Instrumenten treten Bildfehler auf, von denen diejenigen, die vom Öffnungswinkel  $\alpha$  des Strahlenbündels und der relativen Geschwindigkeitsabweichung  $\beta = \Delta v/v_0$  der Ionen von einem Normalwert  $v_0$  quadratisch abhängen, am stärksten ins Gewicht fallen. Die Korrektur dieser Bildfehler stellt eine weitere wesentliche Verbesserungsmöglichkeit für Massenspektrographen und Massenspektrometer dar. In der vorliegenden Arbeit sollen die Möglichkeiten für die Konstruktion solcher Instrumente mit korrigierten Bildfehlern, die also voll-

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> W. Bartky u. A. J. Dempster, Phys. Rev. 33, 1019 [1929].

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> J. Mattauch u. R. Herzog, Z. Phys. 89, 786 [1934].

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> A. J. Dempster, Proc. Amer. Phil. Soc. **75**, 755 [1935].

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> K. T. Bainbridge u. E. B. Jordan, Phys. Rev. 50, 282 [1936].

a) C. Reuterswärd, Ark. Mat. Astr. Fys., K. Svenska Wet. Akad. 30 A, No. 7 [1943]; b) H. Ewald, Z. Naturforschg.
 1, 131 [1946]; c) N. B. Hannay, Rev. Sci. Instrum. 25, 644 [1954].

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup> Zusammenfassend. H. Ewald u. H. Hintenberger, "Methoden und Anwendungen der Massenspektroskopie", Verlag Chemie, Weinheim 1953.