

^{53}Mn

IN EXTRATERRESTRISCHER
MATERIE

DIPLOMARBEIT

von

TOBIAS JOHANNES JAKOB BORIS CHRISTOPH SCHÄTZ

Fakultät für Physik der Technischen Universität München

Institut E12

Prof. Dr. H.-J. Körner

Version vom 10. April 1997

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Beschleunigermassenspektrometriemessungen am Radioisotop ^{53}Mn ($T_{1/2}=3,7\cdot 10^6\text{ a}$) mit einem gasgefüllten Magneten durchgeführt. Dazu wurden die $^{53}\text{Mn}^{13+}$ -Ionen am Münchner Tandemlaboratorium auf Energien von 3,38 MeV/Nukleon beschleunigt, magnetisch analysiert, mit Hilfe eines gasgefüllten Magneten räumlich von dem störenden stabilen Isobar ^{53}Cr getrennt und in einer Gasionisationskammer identifiziert.

Die Nachweisempfindlichkeit für das $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ Verhältnis wurde um zwei Größenordnungen gesteigert. Sie liegt nun bei $2\cdot 10^{-13}$. Damit wurden folgende Projekte ermöglicht:

Es wurden die ersten routinemäßigen ^{53}Mn -Messungen an Meteoritenproben durchgeführt. Neben 12 Einzelproben konnte erstmals mit der BMS das ^{53}Mn -Tiefenprofil eines Meteoriten vermessen werden.

Für den Eintrag an extraterrestrischem Staub konnte die Obergrenze von $4\cdot 10^{-13}$ in grönländischem Eis bestimmt werden. Der globale extraterrestrische Materieeintrag hat damit im beobachteten Zeitraum (1994 bis 1996) 3300 t/a nicht überschritten.

Erstmals wurde ^{53}Mn in der Tiefsee, und zwar in Mangankrusten, nachgewiesen. Das gemessene Verhältnis $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn} = 2\cdot 10^{-12}$ läßt sich derzeit durch keine andere Methode bestimmen. Damit kann im beobachteten Zeitraum von 10^6 a auf einen globalen extraterrestrischen Materieeintrag von 3700 t/a geschlossen werden.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	1
Einleitung	4
1 Extraterrestrische Materie	6
1.1 Quellen extraterrestrischer Materie und Teilchenstrahlung . . .	6
1.1.1 Die Oortsche Wolke	6
1.1.2 Der Kuiper-Gürtel	8
1.1.3 Der Asteroidengürtel	9
1.1.4 Mars und Erdmond	9
1.1.5 Der Sonnenwind	10
1.1.6 Die kosmische Strahlung	10
1.2 Eintrag extraterrestrischer Materie auf der Erde	11
1.2.1 Größenspektrum der extraterrestrischen Materie	12
1.2.2 Verteilung der extraterrestrischen Materie auf der Erd- oberfläche	16
1.3 Erzeugung kosmogener Radionuklide in extraterrestrischer Materie	18
1.3.1 Erzeugung von kosmogenen Radionukliden in Meteo- roiden	19
1.3.2 Erzeugung kosmogener Radionuklide im extraterrestri- schen Staub	21
1.4 Informationen aus der Analyse kosmogener Radionuklide . . .	22
1.4.1 Informationen aus der Analyse kosmogener Radionuk- lide in Meteoritenproben	23
1.4.2 Informationen aus der Analyse kosmogener Radionuk- lide in extraterrestrischen Staubproben	26
2 Nachweis von ^{53}Mn	28
2.1 Messung mit der Neutronenaktivierungsanalyse	28
2.2 Messung mit der Beschleunigermassenspektrometrie	29
2.2.1 Die BMS-Meßmethode	30
2.2.2 Der experimentelle Aufbau	30

2.2.3	Isobarentrennung durch Nacktstrippen	35
2.2.4	Isobarentrennung mit dem gasgefüllten Magneten-GAMS	35
2.2.5	Weitere Reduzierung des Isobaren-Untergrundes	38
3	Messung von ^{53}Mn in Meteoritenproben	48
3.1	^{53}Mn -Messungen an Einzelproben	48
3.2	^{53}Mn -Tiefenprofil eines Meteoritenschauers	51
4	Messung von ^{53}Mn in Staubproben	61
4.1	^{53}Mn in grönländischem Eis	62
4.2	^{53}Mn aus Tiefseemangankrusten	65
	Ausblick	73
	Anhang A	75
	^{53}Mn -Produktion durch Spallation der kosmischen Strahlung an der Lithosphäre	75
	Anhang B	77
	Isobaren-Unterdrückung	77
	Isobarenseparation aufgrund unterschiedlichen Sublimations- verhaltens	77
	Isobarenseparation aufgrund unterschiedlicher Quellenchemie .	78
	Anhang C	81
	Aufbau der Schmelzwasser-Filteranlage	81
	Verzeichnis der Abbildungen	82
	Verzeichnis der Tabellen	83
	Literaturverzeichnis	84
	Danksagung	89

Einleitung

Seit jeher hat extraterrestrische Materie, zumeist in Kometen- oder Meteoritenform, die Aufmerksamkeit der Menschen erregt. Die Beobachtung des Meteoritenfalls wird dabei als Glücks- oder als Zufall betrachtet, obwohl pro Jahr mehrere tausend Tonnen extraterrestrischer Materie auf unseren Planeten niedergehen. Dies liegt daran, daß auf die Erde vornehmlich Staub eingetragen wird, den man nicht direkt wahrnehmen kann. Ein ausgezeichnetes Hilfsmittel zur Untersuchung dieses extraterrestrischen Staubes stellen die Radionuklide dar, die in ihm durch die kosmische Strahlung erzeugt werden.

Bisherige Messungen von ^{10}Be -, ^{26}Al - bzw. ^{36}Cl -Konzentrationen in terrestrischen Archiven sind wegen des hohen terrestrischen Untergrundes für die Interpretation problematisch [1]. ^{53}Mn nimmt aus mehreren Gründen eine Sonderrolle unter den Radionukliden ein. Sowohl die lange Halbwertszeit (mit $T_{1/2} = 3,7 \cdot 10^6 \text{ a}$) als auch der zu vernachlässigende terrestrische Untergrund bieten die Voraussetzungen, um direkt aus den Meßdaten der Archive Grönlands oder der Tiefsee des Pazifik Rückschlüsse auf den extraterrestrischen Materieeintrag auf der Erde ziehen zu können. Bisher eingesetzte Meßtechniken waren aber nicht mit der erforderlichen Empfindlichkeit verfügbar.

Ein sehr interessanter Aspekt wird offensichtlich, wenn man die Aktivierung des extraterrestrischen Staubs mit der der Meteoroiden vergleicht. Die kleinen Partikel im Staub unterliegen fast ausschließlich der Wechselwirkung mit der niederenergetischeren solaren Komponente der kosmischen Strahlung, während für die Meteoroiden die hochenergetische galaktische Komponente dominant ist.

Durch die parallele Untersuchung der ^{53}Mn -Konzentrationen in diesen zwei Größenbereichen der extraterrestrischen Materie leistet man somit einen Beitrag zur Bestimmung des ganzheitlichen Spektrums der Höhenstrahlung, das so nicht einmal in Mondoberflächenproben zur Verfügung steht.

Eine weitere Steigerung der Informationsdichte kann man aus dem Vergleich der Meteoriten-Messungen mit den für sie durchgeführten Modellrechnungen erreichen. Die ^{53}Mn -Messungen mit der BMS an extraterrestrischer Materie

stellen die derzeit einzige Methode dar, die Modellrechnungen effizient zu überprüfen und Optimierungspotentiale aufzudecken.

Diese Arbeit gliedert sich in folgende Punkte:

In Kapitel 1 werden die Quellen extraterrestrischer Materie studiert, die für den Eintrag auf der Erde verantwortlich sein können. Es wird behandelt, wie die Radionuklide in diese extraterrestrische Materie gelangen und welche Informationen man bei Kenntnis ihrer Konzentrationen ableiten kann.

In Kapitel 2 werden unterschiedliche Methoden beschrieben, diese vorhandenen Informationen über Messungen abzufragen. Da der Informationsgehalt mit der Nachweisempfindlichkeit zunimmt, werden Versuche zu deren Steigerung vorgestellt und evaluiert.

Kapitel 3 behandelt die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Meteoritenproben anhand besonders aussagereicher ^{53}Mn -Messungen und stellt das erste BMS- ^{53}Mn -Tiefenprofil sowie seine Konsequenzen für die existierenden Modellrechnungen vor.

Kapitel 4 beschäftigt sich im Anschluß an die Routine- ^{53}Mn -Messungen an Meteoriten mit den in dieser Arbeit durchgeführten Analysen von extraterrestrischem Staub in verschiedenen Archiven an den Grenzen der neuen Nachweisempfindlichkeit. Es wird erstmals ^{53}Mn in Tiefseeablagerungen gemessen sowie dessen extraterrestrische Herkunft aufgezeigt.

Kapitel 1

Extraterrestrische Materie und Teilchenstrahlung

Bereits im Jahre 1798 wiesen die beiden Göttinger Studenten Brandes und Benzenberg nach, daß Sternschnuppen kleine Himmelskörper darstellen, die in der Atmosphäre verglühen [2]. Woher diese extraterrestrische Materie genau stammt, ist bis heute nicht eindeutig geklärt. Im folgenden Abschnitt soll der aktuelle Stand der Forschung dargestellt werden.

1.1 Quellen extraterrestrischer Materie und Teilchenstrahlung

Die Quellen extraterrestrischer Materie, die auf die Erde gelangt, befinden sich nahezu ausschließlich in unserem Sonnensystem [3, 2]. Dies wird in Abb. 1.1 differenzierter dargestellt.

1.1.1 Die Oortsche Wolke

Die Oortsche Wolke gilt als wahrscheinlicher Aufenthaltsort von 10^{12} Kometen mit einer Gesamtmasse von ca. 10 Erdmassen. Sie soll unser Sonnensystem kugelschalenförmig mit einem Radius von ca. 50 000 AE¹ durch das Milchstraßensystem begleiten [4].

Ihre Existenz wird aus der Flugbahn und der Geschwindigkeit der Kometen erschlossen, die unsere Sonne langperiodisch (d.h. Periode > 200 a) umlaufen. Diese Kometen können nicht interstellaren Ursprungs sein². Da sie aus isotroper Richtung einfallen und im Abstand von ca. 50 000 AE von der

¹AE: Eine AE entspricht dem mittleren Abstand zwischen Erde und Sonne, ca. $1,5 \cdot 10^8$ km.

²Sie würden dann nicht elliptische, sondern hyperbolische Bahnen beschreiben. Somit wären sie nicht gebunden und damit nicht periodisch.

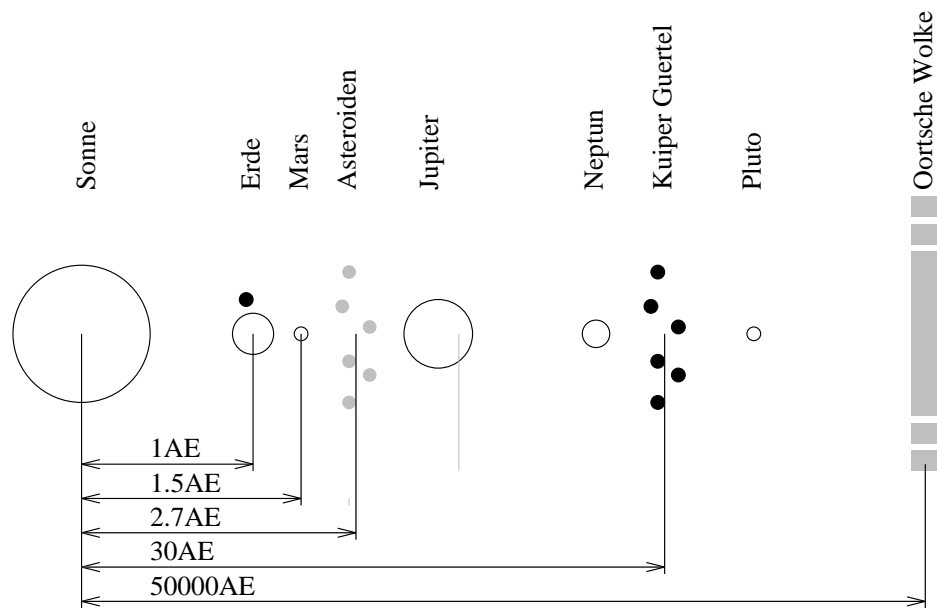


Abbildung 1.1: *Prinzipische Skizze des Sonnensystems unter ausschließlicher Berücksichtigung der für die Erde relevanten Quellen extraterrestrischer Materie.*

Sonne kaum mehr kinetische Energie besitzen, sollten sie aus der von Oort postulierten Wolke stammen, gehören also zu unserem Sonnensystem [2]. Oort zufolge stört die Schwerkraft vorbeiziehender Sterne – der gegenwärtig nächste, Proxima Centauri, ist nur gut 265 000 AE entfernt – die stabile Umlaufbahn einiger Objekte der Wolke derart, daß sie sich allmählich der Sonne nähern [4]. Dabei dampfen sie einen Teil ihres Materials ab, das aus meteoroidenartigen Staubteilchen (Urmaterie unseres Sonnensystems [3] mit vergleichbarer Zusammensetzung wie kohlige C1-Chondrite³ [2]) und Eis⁴ (H₂O, CH₄, NH₃, CO₂ [3]) besteht. Pro Periheldurchgang verliert ein Komet eine Schicht von ca. 1 m Dicke [6]. Ein Teil dieses Materials wird auf der Erde in Form von Staub eingetragen und stellt den Hauptbeitrag an extraterrestrischem Material [2, 7].

Eine elektronenmikroskopische Aufnahme extraterrestrischen Staubes aus der Stratosphäre ist in Abb. 1.2 dargestellt.

Kurzperiodische Kometen (d.h. Periode < 200 a) entstehen zu einem Teil aus vom Planeten Jupiter eingefangenen langperiodischen. Sie bewegen sich auf elliptischen Bahnen in der Ekliptik⁵ [4].

³Bis 1988 wurden nur fünf Meteorite dieser Klasse auf der Erde gefunden [3].

⁴Daher wird der Komet als schmutziger Schneeball bezeichnet [5].

⁵Ekliptik: Ebene der Erdbahn

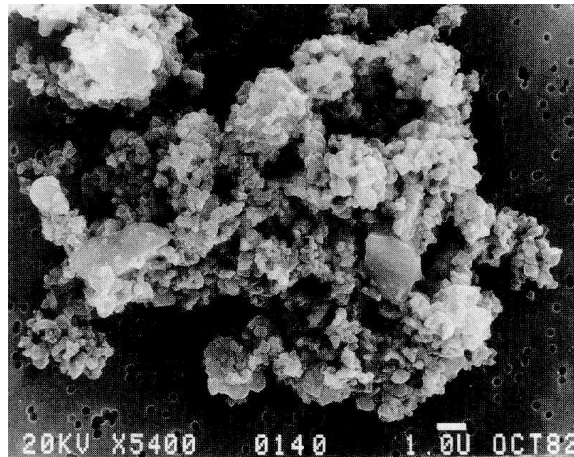


Abbildung 1.2: *Extraterrestrischer Staub, aufgenommen mit dem Raster-Elektronenmikroskop. Poröses Aggregat aus der Stratosphäre (20 km Höhe, mit U2-Flugzeug aufgefangen), Durchmesser ca. 20 μm [3]*

1.1.2 Der Kuiper-Gürtel

Eine weitere Quelle für kurzperiodische Kometen stellt der Kuiper-Gürtel [4] dar. Derzeit wird seine Masse auf ca. 1/10 der Erdmasse geschätzt. Er soll nur wenig gegen die Ekliptik geneigt sein und befindet sich außerhalb der Neptunbahn in einem Sonnenabstand von ca. 30AE. Durch die Lage der Quelle in der Ekliptik ließe sich die Lage der kurzperiodischen Kometen (vgl. Abschnitt 1.1.1) in der Ekliptik besser erklären.

1992 wurde das erste Objekt dieses 1951 von Kuiper geforderten Gürtels entdeckt. Bislang sind 32 Mitglieder des Kuiper Gürtels identifiziert worden. Sie befinden sich alle außerhalb der Neptunbahn [4].

Computersimulationen zufolge erodiert die Anziehung des Neptun die Innenkante des Gürtels und befördert Objekte aus dieser Zone ins Innere unseres Sonnensystems. Dort verdampfen sie als kurzperiodische Kometen [4], deren Material teilweise von der Erde eingefangen wird.

Aktuelle Untersuchungen legen nahe, daß die Oortsche Wolke erst aus dem Kuiper-Gürtel entstanden ist [8]. Demnach ist bei der Bildung unseres Sonnensystems der Kuiper-Gürtel, nicht aber die Oortsche Wolke entstanden. In einer Entfernung von 50 000 AE von unserer Sonne ist solch eine Materieansammlung von Beginn an nicht wahrscheinlich. Wegen der gravitativen Wechselwirkung mit dem Neptun wurden dann aus dem Gürtel Objekte isotrop herausgeschleudert. Ein Teil dieser Objekte sammelte sich in einem stabilen Orbit und bildete die Oortsche Wolke.

1.1.3 Der Asteroidengürtel

Der Asteroidengürtel besteht aus ca. 10^6 Planetoiden (oder Asteroiden) mit unregelmäßigen Formen⁶. Er liegt zwischen Mars- und Jupiterbahn, in einem Sonnenabstand von ca. 2,7 AE mit einer Gesamtmasse von ca. 1/1000 der Erdmasse [2].

Insbesondere durch den Einfluß des Jupitergravitationsfeldes kommt es zu Stößen von Asteroiden. Es werden neben Staub auch Trümmerstücke erzeugt, die ihre Bahn ändern und als **Meteoroid**⁷ bezeichnet werden. Einige gelangen dadurch auf Bahnen, die die der Erde kreuzen, und können von der Erde eingefangen werden. Nach den durch die Atmosphäre bedingten Veränderungen können sie als **Meteorite**⁸ auf der Erdoberfläche aufschlagen [3] (vgl. Abschnitt 1.2).

Der Materieeintrag auf der Erde wird zu maximal 30% von den beiden Gürteln geliefert, die zu einer Materialdichtezunahme (vor allem Staub vgl. Abschnitt 1.2) in der Ekliptik von ca. 10% führen [7].

Jedoch stammen nicht alle auf der Erde niedergehenden Meteorite aus dem Asteroidengürtel.

1.1.4 Mars und Erdmond

Durch Meteoroiden-Einschläge auf Planeten und Monden wird Oberflächenmaterial weggesprengt. Erreicht dieses Material eine Geschwindigkeit größer als die jeweilige Fluchtgeschwindigkeit, kann es seinen Mutterkörper verlassen und von der Erde eingefangen werden.

Mars Derzeit gibt es 11 bekannte SNC-Meteorite⁹. Sie stellen bislang die einzigen Bodenproben unseres Nachbarplaneten¹⁰ dar [6].

Mond Meteorite vom Mond¹¹ wurden erstmals 1981 in der Arktis gefunden [9, 10].

Computersimulationen haben ergeben, daß 80 bis 90% des Materials, das durch Einschläge auf dem Mond ins All gesprengt wird, in Sonnenumlaufbahn gerät. Je nachdem, mit welcher Wucht das Material aus der lunaren

⁶Dies erschließt man aus dem periodischen Lichtwechsel infolge der Eigenrotation [4].

⁷Meteoroid: Extraterrestrische Materie vor dem Durchflug der Erdatmosphäre

⁸Meteorit: Meteoroid nach dem Durchflug durch die Erdatmosphäre und dem Aufschlag auf der Erde. Bei vollständigem Verglühen wird von einigen Autoren von einem Meteor gesprochen [2].

⁹SNC-Meteorite: Benannt nach den drei Fundorten Shergotty in Indien, Nakhale in Ägypten und Cassigny in Frankreich

¹⁰Um vom Mars weggeschleudert werden zu können, muß ein Gesteinsstück durch einen Einschlag mindestens auf die Fluchtgeschwindigkeit von 5 km/s [3] beschleunigt werden.

¹¹Die Fluchtgeschwindigkeit von der Mondoberfläche beträgt 2,4 km/s [2].

Oberfläche gesprengt wurde, stürzen davon innerhalb von 10^6 a zwischen 25% und 50% wieder auf den Mond zurück oder gehen auf die Erde nieder. Die anderen Bruchstücke verteilen sich innerhalb von einigen Jahrmillionen im Inneren des Sonnensystems [2].

Wegen ihrer Seltenheit spielen diese Meteorite für den Materieeintrag auf der Erde kaum eine Rolle.

1.1.5 Der Sonnenwind

Plasma etwa solarer Zusammensetzung strömt im Bereich der Erdbahn mit ca. 470 km/s von der Sonne fort. Seine Dichte beträgt auf der Erdbahn etwa 10^7 Protonen und Elektronen pro m^3 [2].

Die Quelle dieses Plasmas ist die Chromosphäre¹² der Sonne. Die Teilchendichte in dieser Schicht nimmt nach außen stark ab, während die Temperatur in dieselbe Richtung zunimmt. Dies führt bei der Sonne zu einem Wegströmen des Plasmas [2]. Die Energie für diese Aufheizung wird von Schallwellen geliefert, die in der Konvektionszone¹³ ihren Ursprung in aufsteigenden Gasblasen haben.

Der Materieeintrag auf der Erde durch dieses Plasma ist zu vernachlässigen. Von Bedeutung ist dagegen, daß der Sonnenwind beim Ausströmen in den interplanetaren Raum magnetische Feldlinien mit sich nimmt. Dies führt zum interplanetarischen Magnetfeld der Größenordnung 10^{-8} T, welches die galaktische Komponente der kosmischen Strahlung zu modulieren vermag (vgl. Abschnitt 1.1.6).

1.1.6 Die kosmische Strahlung

Diese hochenergetische Teilchenstrahlung wurde 1912 von Hess bei einem Ballonflug durch die Zunahme der elektrischen Leitfähigkeit der Atmosphäre entdeckt [2]. Die kosmische Strahlung besteht primär aus einer galaktischen und einer solaren Komponente.

Die galaktische Komponente (GCR)

Die GCR¹⁴-Teilchen (im Mittel: 87% p, 12% α , 1% $Z>2$ [11]) dieser Komponente haben ein kontinuierliches Energiespektrum bis zu maximal gemessenen 10^{21} eV und dominieren das Spektrum der kosmischen Strahlung für Energien höher als ca. 200 MeV. Die Quellen dieser Teilchen sind wahrscheinlich Supernovaexplosionen.

¹²Chromosphäre: Die Schicht, die unmittelbar über der Photosphäre, die wir als Sonnenoberfläche sehen, liegt

¹³Konvektionszone: Die Schicht unterhalb der Photosphäre

¹⁴GCR: Galactic Cosmic Ray

Wie in der Abbildung 1.3 zu sehen ist, wird die galaktische Komponente der kosmischen Strahlung von der Sonnenaktivität moduliert.

Beim Eindringen in unser Sonnensystem trifft die galaktische Komponente auf das interplanetare Magnetfeld (siehe Abschnitt 1.1.5), das in seiner Stärke an die Sonnenaktivität gekoppelt ist. Große Sonnenaktivität (einhergehend mit großer Sonnenfleckenanzahl¹⁵) bedeutet ein starkes Magnetfeld. Dies wiederum bedeutet eine starke Abschirmung der von außen kommenden Teilchenstrahlung. Das heißt aber auch, daß im Fleckenmaximum weniger Teilchen in unser Sonnensystem eindringen und damit auch weniger Teilchen die Erde erreichen. Nach derselben Überlegung ist der galaktische Teilchenfluß im Fleckenminimum maximal (siehe Abb. 1.3). Ab Energien von ca. 10^{10} eV ist der Einfluß des interplanetaren Magnetfeldes zu vernachlässigen [12].

Daß die Richtungsverteilung isotrop ist, liegt am galaktischen Magnetfeld von $2 \cdot 10^{-10}$ T, das die Teilchen auf Zyklotronbahnen zwingt und somit stark verwirbelt [2].

Die solare Komponente (SCR)

Die SCR¹⁶ Teilchen (im Mittel: 98% p, 2% α , wenige% $Z > 2$ [11]) sind wesentlich niederenergetischer (siehe Abb. 1.3). Die Maximalenergien liegen bei einigen GeV. In Zeiten großer Sonnenaktivität kommt es in der Chromosphäre zu Gasexplosionen, den sogenannten Sonnenflares. Durch sie werden die Teilchen des Sonnenwindes auf höhere Energien beschleunigt [2].

Der Materieeintrag auf die Erde durch die kosmische Strahlung ist zu vernachlässigen. Ihre Bedeutung erlangt sie über die Wechselwirkung mit der extraterrestrischen Materie (vgl. Abschnitt 1.3).

1.2 Eintrag extraterrestrischer Materie auf der Erde

Von den in Abschnitt 1.1 geschilderten Quellen wird Material eingetragen, welches abhängig von der Teilchengröße unterschiedlich auf der Erde niedergeht. Beobachtet und gefunden werden weltweit jährlich ca. 20 Meteorite [3] mit einer Gesamtmasse von ca. 100 kg. Allerdings sind diese Funde weder repräsentativ für die Meteoritenfälle noch für den Fall extraterrestrischer Materie insgesamt.

¹⁵Die Periode des Sonnenfleckenzyklus beträgt 11 Jahre. Betrachtet man zusätzlich die Polarität des solaren Magnetfeldes, so beträgt die Dauer eines Aktivitätszyklus eigentlich 22 Jahre [12].

¹⁶SCR: Solar Cosmic Ray

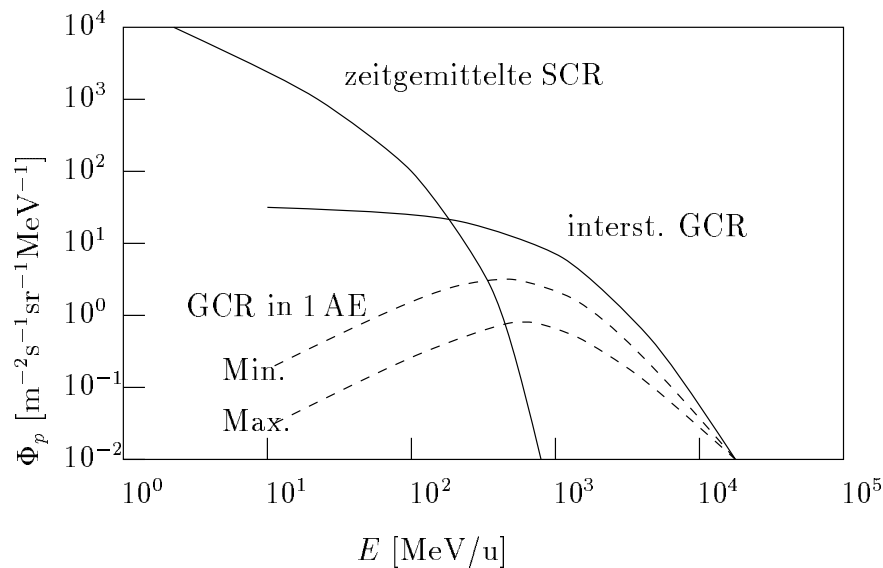


Abbildung 1.3: *Spektrum der solaren und galaktischen kosmischen Protonen auf der Bahn der Erde [11].*

Für eine weitere Suche nach der extraterrestrischen Materie ist die Größenverteilung der Partikel sowie deren Niedergang und Verteilung auf der Erdoberfläche von Bedeutung.

1.2.1 Größenspektrum der extraterrestrischen Materie

Einen Überblick über den gesamten Teilchenfluß in einer AE Entfernung von der Sonne gibt Abb. 1.6 [13].

Der extraterrestrische Materieeintrag läßt sich bezüglich des Teilchenradius R in drei Gruppen unterteilen (vgl. Abb. 1.6):

- Meteoriten ($R \geq 10\text{cm}$):
Wie in Abschnitt 1.1.3 beschrieben, treten Meteoroiden in unsere Erdatmosphäre ein. Dort werden sie durch die Luftreibung erhitzt. Ein Teil ihres Oberflächenmaterials verdampft dabei, da die Wärme nicht schnell genug nach innen geleitet werden kann [2]. Es ist aber genügend Meteoroidenmasse vorhanden, um noch in Form eines Meteoriten oder mehrerer Bruchstücke die Erdoberfläche zu erreichen (vgl. Abb. 1.4 a).
- Meteore ($100\ \mu\text{m} \leq R \leq 10\ \text{cm}$):
Kleine Meteore zerplatzen, bzw. verdampfen in ca. 100 km Höhe [2] in der Atmosphäre. Diese Materie der Meteore sowie die abgedampfte

Oberfläche der Meteoroiden gelangt in Form von Staubpartikeln, bzw. von Spherules [14] auf die Erdoberfläche (vgl. Abb. 1.2 und 1.4b).

- Kosmischer Staub ($R \leq 100 \mu\text{m}$):
Partikel dieser Größe werden schon in weit höheren Schichten unserer Atmosphäre abgebremst. Sie können durch die Erdanziehung (Schwerkraft $F_G \propto \text{Masse} \propto R^3$) nicht mehr zum Glühen gebracht werden, da der Luftwiderstand F_R mit dem Querschnitt $\propto R^2$ anwächst und damit hohe Geschwindigkeiten für diese Teilchen dieser Radien verhindert [2].

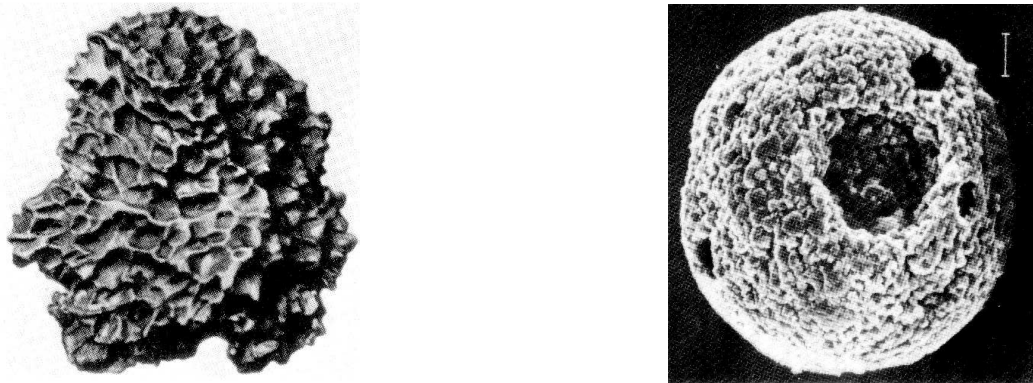


Abbildung 1.4: a; Brustseite eines Eisenmeteoriten, Höhe 44 cm, Masse 48 kg [3]. b; Raster-Elektronenmikroskopische Aufnahme von Tiefseekügelchen, Radius $30\mu\text{m}$, etwa gleicher Beschaffenheit wie die angeschmolzene Meteoritenoberflächen [3]

Die Literaturangaben für den integralen Materieeintrag auf der Erde sind stark unterschiedlich (von 10 000 t/a [3] über 14 000 t/a [2] bis 100 000 t/a [15, 1]). Diesem Umstand wird in Abbildung 1.6 durch die Linienbreite der Funktion Rechnung getragen. Daher soll kurz auf die aktuelle experimentelle Bestimmung des extraterrestrischen Materialflusses eingegangen werden.

Zur Ermittlung des Teilchenflusses wurden unterschiedlichste Meßmethoden verwendet. Meteorite können mit herkömmlicher Radartechnik direkt sichtbar gemacht werden. Die kleineren, in der Atmosphäre zerplatzenden bzw. verdampfenden Meteore ionisieren die Luft in einem zylindrischen Bereich. Dieser leitende Ionenzyylinder streut elektromagnetische Wellen wie ein Draht, und der Meteor wird dadurch indirekt auf dem Radarschirm sichtbar. Staubpartikel können bis zu einer gewissen Größe von Flugzeugen in der Stratosphäre (siehe Abb. 1.2) oder von Satelliten und Raumsonden direkt aufgesammelt und analysiert werden [3, 16]. Eine Möglichkeit der Bestimmung des Teilchenflusses von Partikeln des Radius $1\mu\text{m}$ und kleiner stellt die Vermessung von winzigen Einschlagskratern auf der Mondoberfläche, wie in Abb.

1.5 gezeigt, dar [2]. Der Anteil dieser Teilchen am Gesamtfluß ist im Rahmen dieser Arbeit von großer Bedeutung (vgl. Abschnitt 4).

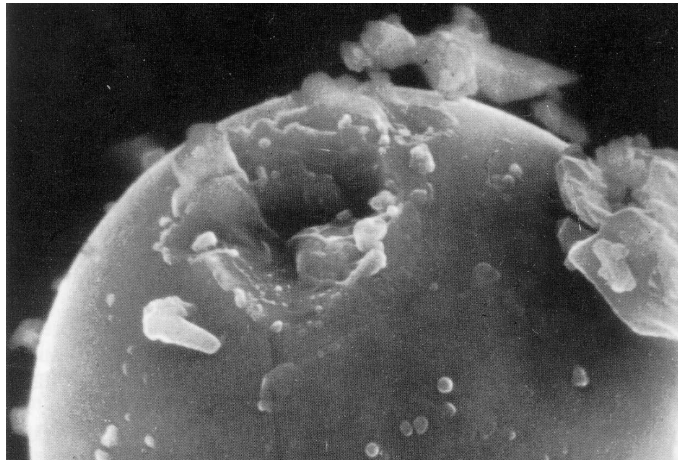


Abbildung 1.5: Bei Meteoroideneinschlägen auf der Mondoberfläche wird Material verflüssigt, das zu glasartigen Kügelchen erstarrt. Die Abbildung zeigt ein solches Kügelchen ($17\mu\text{m}$ Durchmesser), auf dem kosmischer Staub wiederum einen Mikrokrater erzeugt hat [2].

Mit seiner Berücksichtigung konnte aus der Funktion in Abbildung 1.6 errechnet werden, welche Partikelgröße den dominierenden Materieeintrag stellt. In Abbildung 1.7 ist ein Massenhistogramm von extraterrestrischen Teilchen eines definierten Durchmesserintervalls $\Delta(2R)$ um $d=2R$ dargestellt. Dabei muß berücksichtigt werden, daß die Teilchenflußdichte in Abbildung 1.6 kumulativ angegeben ist. Das Histogramm wurde mit dem folgenden Integral stufenweise berechnet:

$$\Delta M = \int_{m_1}^{m_2} m \left(\frac{d\Phi}{dm} \right) dm. \quad (1.1)$$

Dabei bestimmen m_1 und m_2 die untere, bzw. die obere Schranke eines Massenbalkens. Φ entspricht der kummulativen Flußdichte aus Abbildung 1.6. Aus dem so erhaltenen Verlauf werden folgende, für diese Arbeit wichtigen Ergebnisse abgeleitet:

- Der Masseneintrag der extraterrestrischen Materie mit einer Masse kleiner als 10^{-9}g ($2R$ kleiner $10\mu\text{m}$) leistet einen Beitrag deutlich kleiner als 1% des Gesamteintrages.
- Teilchen mit einer Masse größer als 10^{-3}g ($2R$ größer 1mm) haben einen Anteil von weniger als 10% des Gesamteintrages, wenn man für Teilchen mit einer Masse größer als 10g den Kurvenverlauf extrapoliert.

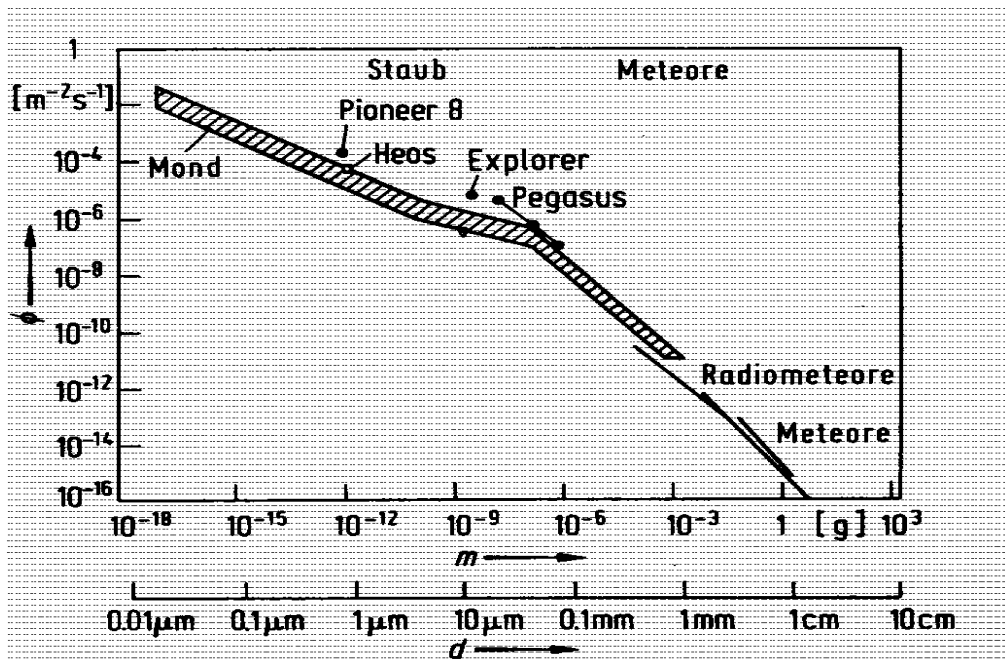


Abbildung 1.6: *Integrale-Teilchenflußdichte (Teilchen mit Durchmesser größer als $2R$) bei 1AE Entfernung von der Sonne in Abhängigkeit von der Masse m , bzw. dem Durchmesser $2R$ der Teilchen [13].*

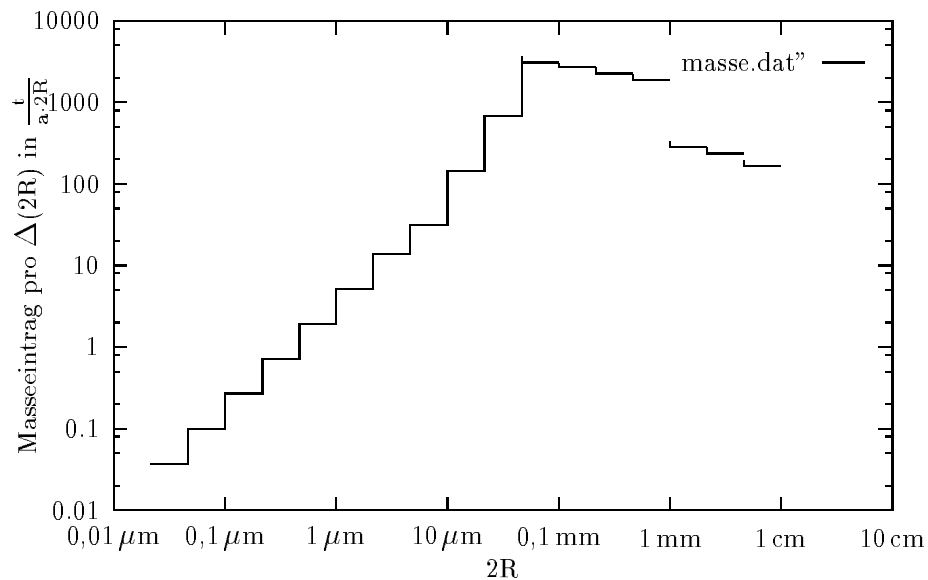


Abbildung 1.7: *Massenhistogramm bei 1AE Entfernung von der Sonne in Abhängigkeit von der Masse m , bzw. dem Durchmesser $2R$ der Teilchen (errechnet aus Abb. 1.6)*

- Teilchen mit einer Masse kleiner als 10^{-5} g (2R kleiner $200\ \mu\text{m}$) haben einen Anteil von 57% am Gesamteintrag. Das bedeutet, daß der Großteil der eingetragenen Materie unsere Atmosphäre in Form von extraterrestrischem Staub erreicht.
- Der mittlere globale Gesamte-Materieeintrag ergibt sich damit, aufgrund der Breite der Verteilung in Abbildung 1.6, zu ca. $14\,000 \pm 10\,000$ t/a.

1.2.2 Verteilung der extraterrestrischen Materie auf der Erdoberfläche

Wie in Abschnitt 1.2.1 abgeleitet, besteht der Hauptteil extraterrestrischer Materie aus Staub.

Da diese Partikel, die zum Großteil isotrop die Erde erreichen, freigesetztes Material von Kometen darstellen (vgl. Abschnitt 1.1.1), kann in erster Näherung von einem isotropen Staubeintrag bis zur Atmosphäre ausgegangen werden.

IRAS Messungen¹⁷ und numerische Simulationen [7] zeigen auf der Erdbahn eine um ca. 10% erhöhte Staubbichte in der Ekliptik. Sie wurde wahrscheinlich durch die in der Ekliptik gelegenen Quellen hervorgerufen (vgl. die Abschnitte 1.1.2 und 1.1.3). Im folgenden wird diese Anisotropie nicht berücksichtigt.

Kennt man nun die Größenverteilung der für den Materieeintrag relevanten Partikel, so muß abgeschätzt werden, ob die Fallzeit der Teilchen lange genug andauert, um ihre isotrope Verteilung z.B. durch atmosphärische Austauschprozesse breiten- oder längenkreisabhängig zu modulieren.

Um die Fallzeit abzuschätzen, wurde die Näherung von Stokes verwendet [17]. Es wird von einem Gleichgewicht zwischen Erdanziehungskraft und laminarer Luftreibung ausgegangen. Die Reibungskraft F_R berechnet sich nach [18]:

$$F_R = -6\pi\mu Rv \quad (1.2)$$

Dabei geht man von kugelförmigen Teilchen des Radius R aus, die sich mit der Geschwindigkeit v fortbewegen. Die dynamische Zähigkeit des Trägergases μ ist nur schwach temperatur- und damit höhenabhängig [19]. Für sie wurde ein konstanter Wert ($\mu=17,2\cdot 10^{-6}\ \mu\text{Pa s}$ [20]) angenommen.

Setzt man die Reibungskraft F_R nun gleich der Gewichtskraft der Teilchen,

$$F_R = F_G = -\frac{4\pi}{3}R^3\rho g = 6\pi\mu Rv \quad (1.3)$$

¹⁷IRAS: Infrared Astronomical Satellite

so kann man nach der Geschwindigkeit v auflösen und die Fallzeit t der Teilchen bestimmen. Dabei wurde von einer mittleren Dichte des Staubes ρ von $2,0 \text{ g/cm}^3$ (vgl. Abb. 1.6) ausgegangen, der in 100 km Höhe aus dem Stillstand startet.

Ergebnisse dieser Abschätzung sind in Abb. 1.8 dargestellt. Diese sind als Obergrenze der Flugzeit anzusehen, da die Teilchen nicht aus dem Stillstand starten, sondern bereits mit hoher Anfangsgeschwindigkeit in die Atmosphäre eindringen.

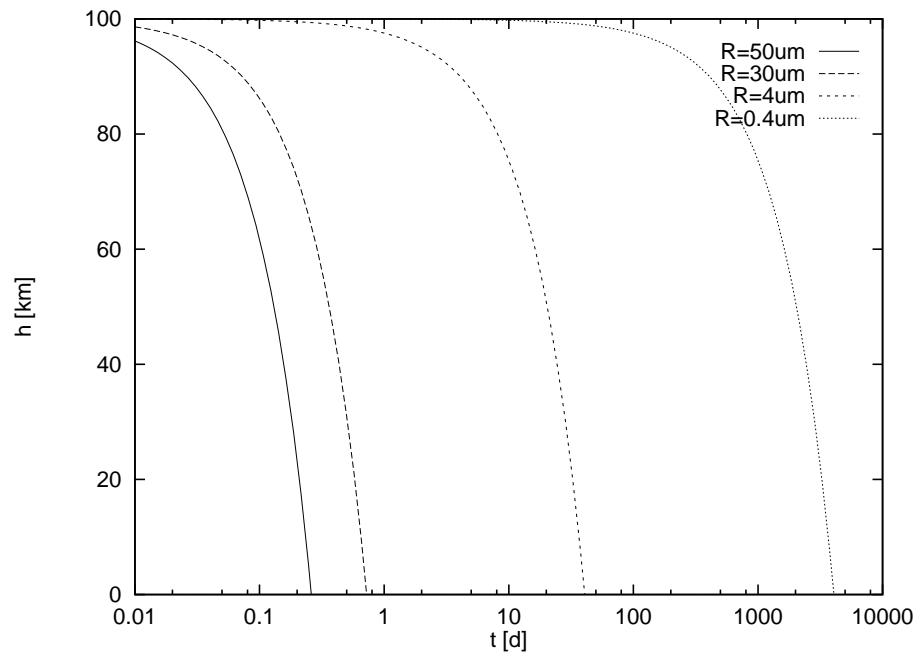


Abbildung 1.8: Fallzeit von kosmischem Staub verschiedener Größe ($0,4$, 4 , 30 und $50 \mu\text{m}$ Radius), ausgehend von einer Höhe von 100 km , berechnet nach Stokes.

Aus Abschnitt 1.2 ist ersichtlich, daß der Eintrag der extraterrestrischen Materie zu 95% über Teilchen mit einem Radius größer als $30 \mu\text{m}$ erfolgt. Daraus resultiert eine maximale Fallzeit von weniger als einem Tag (vgl. Abb. 1.8). Innerhalb dieses Zeitrahmens ist in der Atmosphäre eine Anlagerung an Aerosole, die das Teilchengrößenspektrum (vgl. Abb. 1.6) auf der Erdoberfläche verändern würde, nicht möglich [19]. Für Teilchen kleiner $1 \mu\text{m}$ wird diese Näherung zunehmend ungenauer¹⁸ und ist durch die von Stokes-Cunningham zu ersetzen [18].

Im weiteren wird daher davon ausgegangen, daß der Großteil extraterrestrischen Staubes und damit der Großteil des extraterrestrischen Materieeintra-

¹⁸Eine Bedingung für die Anwendbarkeit der Näherung von Stokes ist, daß der Teilchenradius sehr viel größer ist als die mittlere freie Weglänge der Luftmoleküle. Dies wird für Teilchen mit einem Radius kleiner als $1 \mu\text{m}$ nicht mehr ausreichend erfüllt.

ges in seiner ursprünglichen Teilchengröße die Erdoberfläche erreicht. Ebenso sind bei den Durchflugzeiten durch die Atmosphäre für die relevanten Teilchengrößen (vgl. Abb. 1.8) atmosphärische Transportprozesse zu vernachlässigen [18].

Da der extraterrestrische Staub die Atmosphäre in erster Näherung isotrop erreicht und die Erdatmosphäre diesen Fluß nicht mehr modulieren kann, gehen wir von einer isotropen Verteilung der extraterrestrischen Materie auf der Erdoberfläche aus.

1.3 Erzeugung kosmogener Radionuklide in extraterrestrischer Materie

Nachdem wir die Quellen extraterrestrischer Materie sowie ihren Eintrag näherungsweise beschrieben haben, wollen wir nun erläutern, wie die in der extraterrestrischen Materie auffindbaren kosmogenen Radionuklide entstehen, aus denen sich Informationen zur Geschichte der extraterrestrischen Materie und damit zu unserem Sonnensystem ableiten lassen.

Die solare und die galaktische Komponente der kosmischen Strahlung (vgl. Abschnitt 1.1.6) wechselwirken mit Planetenoberflächen, Meteoroiden und kosmischem Staub [11]. Dadurch produzieren sie eine Vielzahl verschiedener stabiler und instabiler Nuklide. Diese sogenannten kosmogenen Nuklide können entweder über ihren Zerfall (bei kurzlebigen Radionukliden) oder durch die Abweichung von der natürlichen Isotopenhäufigkeit nachgewiesen werden [3, 11].

Die Oberfläche unseres Planeten ist zwar auch von dieser Teilchenstrahlung betroffen, ist aber durch sein Magnetfeld und seine Atmosphäre abgeschirmt [2]. Lediglich ein Teil der hochenergetischen kosmischen Strahlung wechselwirkt direkt oder durch in der Atmosphäre erzeugte Sekundärteilchen indirekt mit der äußersten Schicht unserer Erdkruste. Die dadurch produzierten Nuklide werden, für den Fall des ^{53}Mn , in Abschnitt 4.2 abgeschätzt [21].

Wegen ihrer sehr unterschiedlichen Energien (vgl. Abb. 1.3) ist die Wechselwirkung von der galaktischen und der solaren Komponente der kosmischen Strahlung mit Materie stark von deren Größe abhängig. Es ist daher im Rahmen dieser Arbeit sinnvoll, die Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit Meteoroiden und extraterrestrischem Staub getrennt voneinander zu behandeln.

1.3.1 Erzeugung von kosmogenen Radionukliden in Meteoroiden

Die Produktionsraten der Radionuklide hängen von mehreren Größen ab. Zum einen von der Art und der Energie der Teilchen der kosmischen Strahlung und zum anderen natürlich von der chemischen Zusammensetzung des Meteoroiden und den jeweiligen Produktions- Wirkungsquerschnitten. Die Produktionsrate P_j eines bestimmten Nuklides j läßt sich damit wie folgt berechnen [22]:

$$P_j(R, d, M) = \sum_i N_i \sum_k \int_0^\infty \sigma_{jik}(E_k) \left(\frac{d\phi(E_K, R, d, M)_k}{dE_k} \right) dE_k. \quad (1.4)$$

Dabei ist R der Radius des Meteoroiden, d die Tiefe im Meteoroiden. N_i stellt die Anzahl der Targetatome i dar, die durch Teilchen k der Energie E_k der kosmischen Strahlung ein Nuklid j in einer Reaktion mit dem Wirkungsquerschnitt σ_{jik} produzieren. ϕ_k stellt die spektrale Flußdichte der primären und sekundären Teilchen k mit der Energie E_k der kosmischen Strahlung dar. M ist der Modulationsparameter, der beschreibt, wie die kosmische Strahlung durch die Sonnenaktivität beeinflusst wird (vgl. Abb. 1.3). Ausschlaggebend für die Produktion ist die kosmische Strahlung, auf die nun differenziert eingegangen wird.

Die solare Komponente der kosmischen Strahlung kann nur wenige Millimeter in den Meteoroiden eindringen, weil sie von der Meteoroidenoberfläche abgeschirmt wird [1, 23]. Da die Meteoroiden gerade ihre äußerste Schicht beim Durchflug durch die Atmosphäre abdampfen, gehen die dort erzeugten kosmogenen Nuklide dem Meteoriten verloren (vgl. Abb. 1.4 a). Mit wenigen Ausnahmen, in denen Meteorite in einer bestimmten Stellung stabil die Atmosphäre durchfliegen, wodurch ihre abgewandte Seite vor Abtrag geschützt wird [11], ist also die solare Komponente der kosmischen Strahlung für die auf der Erde gefundenen Meteorite zu vernachlässigen.

Die galaktische Komponente der kosmischen Strahlung besitzt ausreichend Energie, um tief ins Innere des Meteoroiden einzudringen. Die dort direkt produzierten Nuklide stellen aber nur einen kleinen Teil der gesamten Produktionsrate. Der Großteil der Produktionsrate wird von dem sich mit zunehmender Tiefe aufbauenden Sekundärteilchenfluß aus Protonen und Neutronen indirekt durch die GCR Komponente gestellt [24]. Dieser Sekundärteilchenfluß ist nun tiefen-, zugleich aber auch von der chemischen Zusammensetzung des Meteoroiden abhängig.

Die chemische Zusammensetzung beeinflusst die Produktionsrate in zweierlei Hinsicht [11]. Einerseits bestimmt sie die Häufigkeit der jeweiligen Targetelemente N_i aus Gleichung 1.4 und damit den Beitrag des einzelnen Produktionskanals. Andererseits bestimmt sie die spektrale Verteilung und die Vielfalt der Sekundärteilchen.

Der Einfluß der Meteoroidengröße läßt sich am anschaulichsten an einem Beispiel verdeutlichen:

Wenn man zwei Proben aus Meteoroiden identischer chemischer Zusammensetzung, aber stark unterschiedlicher Größe ($R_{gro\beta}$ und R_{klein}) isotrop bestrahlt, so entspricht die Bestrahlung in dem großen Meteoroiden in einem Abstand R_{klein} unterhalb der Oberfläche einer 2π -Geometrie. Die Strahlung von der anderen Seite wird durch den Meteoroiden selbst abgeschirmt. Die Probe in dem kleinen Meteoroiden dagegen wird in demselben Abstand R_{klein} unterhalb der Oberfläche, also im Zentrum, isotrop in 4π -Geometrie mit einem unterschiedlichen Sekundärteilchenfluß bestrahlt.

Da sich die genaue Kenntnis des in jedem Meteoroiden unterschiedlichen Sekundärteilchenflusses einer analytischen Berechnung aufgrund unbekannter Parameter, wie z.B. der Spallationswirkungsquerschnitte, meistens verschließt, werden Experimente und Monte-Carlo-Rechnungen angestellt [25, 22].

Die Erzeugung von Nukliden kann durch Simulationsexperimente nachgestellt werden. Massive¹⁹ sphärische Targets wurden mit Protonen, bzw. ^4He -Ionen unter vollständig kontrollierten Bedingungen bestrahlt, der Teilchenfluß in diesen künstlichen Meteoroiden mit Hilfe von Flußsonden experimentell bestimmt und mit Monte-Carlo-Rechnungen gut bestätigt (vgl. Abb. 3.4).

Einige wichtige langlebige kosmogene Radionuklide ($T_{1/2} \geq 4000 a$) sowie ihre Halbwertszeiten $T_{1/2}$ sind in Tabelle 1.1 aufgeführt.

Für die Produktion von ^{53}Mn in Meteoroiden seien die wichtigsten Targetnuklide und die entsprechenden Reaktionen genannt [22, 21]:

- $^{56}\text{Fe}(p,2p2n)^{53}\text{Mn}$ bzw.
 $^{56}\text{Fe}(p,\alpha)^{53}\text{Mn}$ zu 95 bis 93% des Protonenanteils.
- $^{58,60}\text{Ni}(p,xn\gamma p\alpha)^{53}\text{Mn}$ zu 5 bis 7% des Protonenanteils.
- $^{56}\text{Fe}(n,p3n)^{53}\text{Mn}$

¹⁹Man spricht hierbei vom Dicktargetwirkungsquerschnitt, der sich vom Dünntargetwirkungsquerschnitt durch die Berücksichtigung des Sekundärteilchenflusses unterscheidet.

Nuklid	$T_{1/2}$ [a]	Nuklid	$T_{1/2}$ [a]
^{14}C	$5 \cdot 10^3$	^{26}Al	$0,716 \cdot 10^6$
^{59}Ni	$75 \cdot 10^3$	^{10}Be	$1,51 \cdot 10^6$
^{41}Ca	$103 \cdot 10^3$	^{53}Mn	$3,7 \cdot 10^6$
^{81}Kr	$210 \cdot 10^3$	^{129}I	$15,7 \cdot 10^6$
^{36}Cl	$301 \cdot 10^3$	^{40}K	$1250 \cdot 10^6$

Tabelle 1.1: *Kosmogene Radionuklide mit Halbwertszeiten länger als 4000a [11]*

Andere Targetelemente stellen auch noch z.B. Chrom oder Kobalt dar.

Die Anzahl der in extraterrestrischem Material vorhandenen Radionuklide wird in Zerfälle pro Minute pro kg Targetmaterial, für ^{53}Mn also in dpm/kg Fe angegeben.

1.3.2 Erzeugung kosmogener Radionuklide im extraterrestrischen Staub

Die Produktionsraten P_j (vgl. Abschnitt 1.3.1) für den extraterrestrischen Staub ergeben sich prinzipiell aus ähnlichen Überlegungen wie für die Meteorite. Allerdings muß von veränderten Rahmenbedingungen ausgegangen werden.

Die niederenergetische solare Komponente der kosmischen Strahlung ist hier aufgrund der Größe der Staubpartikel bis zu einem Radius von mehreren Millimetern dominant [15, 1, 11].

Die hochenergetische galaktische Komponente der kosmischen Strahlung: Eine Abschätzung für den Beitrag der hochenergetischen galaktischen Komponente der kosmischen Strahlung können wir mit Hilfe der experimentellen Daten aus Proben erhalten, die ihre Oberfläche nicht eingebüßt haben.

Man kann das Tiefenprofil der ^{53}Mn -Konzentration der Mondbohrkerne aus der Apollo 15 Mission mit Hilfe der Neutronenaktivierungsanalyse (vgl. Abschnitt 2.1) bis zu einer Tiefe von ca. 1m bestimmen [26]. Vergleicht man diese Meßwerte mit den aus Monte-Carlo-Simulationen errechneten (vgl. Abschnitt 1.4), so sind sie in guter Übereinstimmung [22], d.h. der gesamte Teilchenfluß, inklusive des Sekundärteilchenanteils, kann in erster Näherung als bekannt angenommen werden. Man verwendet nun ausschließlich den

in diesen Monte-Carlo-Simulationen verwendeten primären GCR Protonenfluß²⁰[22]. Daraus ergibt sich die Produktionsrate für ^{53}Mn in den obersten Mikrometern der Mondoberfläche. Dies stellt eine Abschätzung der Produktionsrate der galaktischen Komponente in extraterrestrischem Staub dar, wenn man dessen abweichende chemische Zusammensetzung berücksichtigt.

Chemische Zusammensetzung der Proben: Die in der Mondoberfläche durch primäre GCR Protonen hervorgerufene relative ^{53}Mn -Aktivität beträgt bei einem mittleren Eisengehalt von 12% ca. 50dpm/kg Fe [22]. Von diesem Wert gehen wir nun auch für den Staub aus.

Nimmt man eine chemische Zusammensetzung des Staubes gleich der von C1-Chondriten an (vgl. Abschnitt 1.1.1), so erhält man einen mittleren Eisengehalt von 18,3% [3]. Da Fe zu mehr als 95% das Targetmaterial zur ^{53}Mn -Produktion durch Protonen in Meteoroiden stellt [22], kann man in erster Näherung von einer relativen Aktivität von ca. 80 dpm/kg Staub ausgehen.

Dieser Wert muß nun mit der durch die solare Komponente der kosmischen Strahlung erzeugten relativen ^{53}Mn -Aktivität verglichen werden. Diese erhält man aus Rechnungen von Lal et al. [27] zu 900 dpm/kg Staub bzw. von Tanaka et al. [15] zu 850 dpm/kg Staub.

Daraus ergibt sich, daß die durch die solare Komponente erzeugte ^{53}Mn -Aktivität im extraterrestrischen Staub die durch die galaktische Komponente erzeugte um mehr als eine Größenordnung übertrifft.

Für eine genauere Betrachtung wäre erforderlich, die Monte-Carlo-Simulationen aus Abschnitt 1.4.1 abgeändert²¹ auch für den extraterrestrischen Staub durchzuführen.

Aufgrund der hier dargestellten Radionuklidproduktion können aus Meteoriten- bzw. Staubbmessungen unterschiedliche Schlußfolgerungen gezogen werden, die nun diskutiert werden sollen.

1.4 Informationen aus der Analyse kosmogener Radionuklide

Aufgrund der unterschiedlichen Größe der analysierten Objekte und der damit verbundenen unterschiedlichen Wechselwirkung mit den Komponenten

²⁰Man eliminiert somit den im Mondmaterial dominanten Sekundärteilchenfluß aus der Umgebung.

²¹Faltung des solaren Protonenflusses mit den Dünntargetwirkungsquerschnitten (ohne Sekundärteilchenfluß)

der kosmischen Strahlung lassen sich durch die Messung der Radionuklidkonzentrationen unterschiedliche, sich ergänzende Informationen ableiten.

1.4.1 Informationen aus der Analyse kosmogener Radionuklide in Meteoritenproben

Durch die Messung der Radionuklidkonzentrationen in einem Meteoriten, bzw. in einem Meteoritenbruchstück, kann man die präatmosphärische Größe des Meteoriten²² rekonstruieren. Außerdem läßt sich die Lage innerhalb des Meteoroiden bestimmen sowie dessen Bestrahlungsgeschichte ermitteln. Zudem können Aussagen über die Intensität und das Spektrum der galaktischen Komponente der kosmischen Strahlung gemacht werden.

Diese Informationen ergeben sich aus der parallelen Messung mehrerer Radionuklidkonzentrationen, der chemischen Zusammensetzung des Meteoriten sowie einigen Methoden mehr, auf die im Rahmen dieser Arbeit nicht näher eingegangen werden kann (Edelgaskonzentrationen, cosmic-ray-track Messungen,...). Die Schwierigkeiten bei der Bestimmung einer Information sollen am Beispiel der Bestrahlungsgeschichte eines Meteoroiden mit Hilfe von Abbildung 1.9 deutlich gemacht werden.

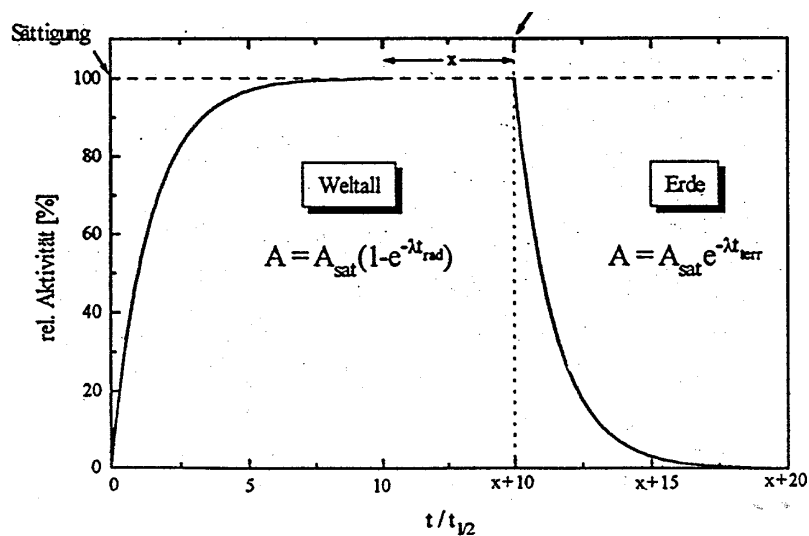


Abbildung 1.9: *Bestrahlungsgeschichte extraterrestrischer Materie: Radionuklidaktivität/Sättigungsaktivität aufgetragen gegen die Zeit/Halbwertszeit.*

Die Bestrahlung beginnt ($t/t_{1/2} = 0$) in der Regel mit dem Aufbrechen ei-

²²Die Meteoroidengröße

nes Asteroiden (vgl. Abschnitt 1.1.3), da der freigesetzte Meteoroid dann nicht mehr durch die äußere Schicht des Mutterkörpers von der kosmischen Strahlung abgeschirmt wird. Sie endet mit dem Eintritt in die schützende Erdatmosphäre ($t/t_{1/2} = x+10$). Für die robusteren Eisenmeteoride beträgt diese Bestrahlungszeit bis zu mehrere hundert Millionen Jahre, während sie für Steinmeteoride im Bereich einiger Millionen Jahre liegt [2]. Durch die Bestimmung der Abweichung von der Sättigungsaktivität $P_j(R, d, M)$ kann man das Bestrahlungsalter bestimmen. Wie in Abbildung 1.9 dargestellt, befinden sich die Radionuklide nach einer Bestrahlungsdauer, die ca. siebenmal ihrer Halbwertszeit entspricht, in Sättigung. Es werden also ebenso viele Radionuklide erzeugt wie durch Zerfall wieder verloren gehen. Ab dieser Zeit ist nur mehr eine Untergrenze für die Bestrahlungsdauer anzugeben, da längere Bestrahlung nicht mehr zu einer meßbaren Erhöhung der Aktivität führen kann. Der Verlauf der Aktivierung A_j ergibt sich mit der Produktionsrate aus Gleichung 1.4 zu

$$A_j(R, d, M, t) = P_j(R, d, M)(1 - e^{-\lambda_j t}). \quad (1.5)$$

Der Zerfall des Radionuklides auf der Erdoberfläche muß noch berücksichtigt werden. Möchte man das terrestrische Alter bestimmen, so nutzt man möglichst ein entsprechend der Zerfallsdauer gut meßbares Radionuklid (für kurze terrestrische Alter z.B. ^{54}Mn mit $T_{1/2} \approx 312\text{d}$).

Wie in Abschnitt 1.3.1 dargestellt, sind die Produktionsraten sowohl von der Meteoroidengröße als auch von der Meteoritenlage innerhalb des Meteoroiden abhängig. Die Messung lediglich einer Radionuklidkonzentration in einer Meteoritenprobe kann somit also z.B. einer langen oberflächennahen, bzw. einer kürzeren Bestrahlung in der Tiefe des Meteoroiden entsprechen. Um zu einer eindeutigen Aussage zu gelangen, nutzt man die Tatsache, daß die Produktionsraten unterschiedlicher Radionuklide typische, stark unterschiedliche Tiefenabhängigkeiten besitzen [11].

Es wurden tiefen- und größenabhängige Produktionsraten für alle Klassen von Stein-Meteoroiden für die Radionuklide ^{26}Al , ^{10}Be und ^{53}Mn berechnet [22]. Trägt man die errechneten Produktionsraten von zwei Radionukliden mit stark unterschiedlicher Tiefen- und Größenabhängigkeit gegeneinander auf, so erhält man z.B. die in Abb. 1.10 dargestellten Relationen. Hier wurde die Produktionsrate pro kg Targetelement von ^{26}Al gegen die von ^{10}Be bei bekannter chemischer Zusammensetzung des Meteoroiden aufgetragen.

Wie in Abb. 1.10 dargestellt, nehmen die Radionuklidkonzentrationen nach innen anfänglich monoton zu. Dies ändert sich erst ab Tiefen größer als 50 cm, wenn auch der Sekundärteilchenfluß wieder abnimmt.

Verglichen mit ^{26}Al ist ^{10}Be ein Produkt hoher Projektilenergie. Daher nimmt in größeren Meteoroiden ($R \geq 50\text{cm}$) die ^{10}Be -Produktionsrate mit zunehmender Tiefe stärker ab als die von ^{26}Al [11].

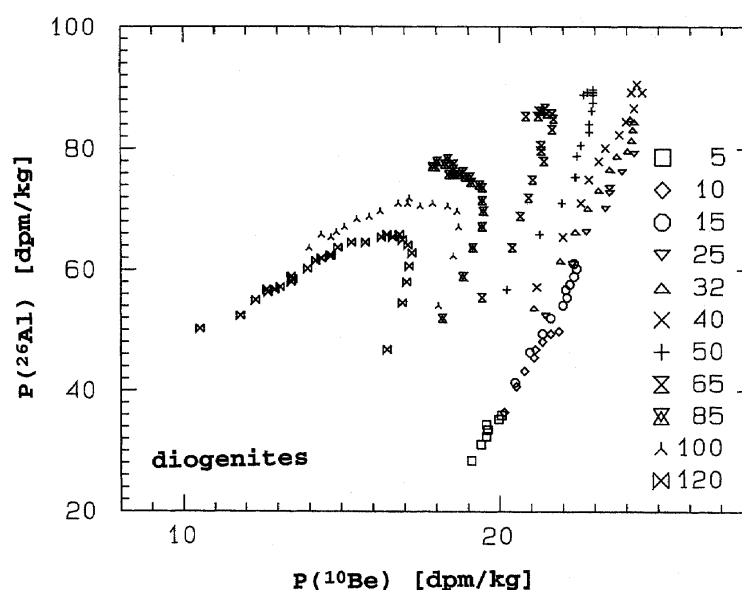


Abbildung 1.10: Produktionsraten pro kg Targetelement von ^{26}Al gegen die von ^{10}Be für die Klasse der Diogenites. Die Relationen wurden für unterschiedliche Meteoroidengrößen angegeben [11]

Für ein bestimmtes Bestrahlungsalter bei bekannter GCR Intensität²³, bzw. Modulation²⁴ und Änderung mit zunehmendem Sonnenabstand²⁵ lassen sich die Produktionsraten errechnen. Mißt man nun die relative Aktivität im Meteoriten und trägt diesen Wert ebenfalls in das Diagramm ein, so kann man aus seiner Lage auf einer der Relationen auf die präatmosphärische Größe schließen. Aus seiner Positionierung auf der Relation ergibt sich die präatmosphärische Tiefe der Probe (Punkt unten entspricht der Oberfläche, Punkt oben dem Mittelpunkt des Meteoroiden).

Kennt man dagegen bereits Parameter, z.B. durch die Entnahme einer Probe definierter Tiefe aus einem großen Meteoriten, so lassen sich Aussagen über das Spektrum und die Intensität der GCR-Komponente der kosmischen Strahlung machen.

Für ^{26}Al und ^{10}Be besteht bereits eine gute Möglichkeit, die Simulationen an BMS-Messungen zu testen und zu optimieren. Für ^{53}Mn dagegen existieren nur wenige Messungen, die zudem keinen Vergleich mit den Rechnungen erlauben, da die Rechnungen mit aus diesen Messungen abgeleitet wurden.

²³Die GCR-Intensität ergibt sich aus bisherigen Ergebnissen als konstant innerhalb der letzten 10^7 a [11].

²⁴Die Modulation ist aus Mondoberflächenproben auf 10^6 a näherungsweise bekannt [22].

²⁵Die GCR variiert mit dem Sonnenabstand um 10% bis zum Asteroidengürtel [22].

1.4.2 Informationen aus der Analyse kosmogener Radionuklide in extraterrestrischen Staubproben

Wie in Abschnitt 1.3.2 erläutert, ist die solare Komponente der kosmischen Strahlung in erster Näherung allein für die kosmogenen Radionuklide im extraterrestrischen Staub verantwortlich. Dieser ist allerdings, einmal auf die Erde eingetragen, von terrestrischem Staub kaum zu unterscheiden. Die in ihm gespeicherten Radionuklide können zu seiner Identifikation beitragen und wichtige Aussagen, z.B. über die Gesamtmasse, ermöglichen, wenn ihr Eintrag zu einem bekannten und maßgeblichen Teil extraterrestrischer Ursache ist. Diese Anforderungen sind die Hauptursachen, weshalb ^{53}Mn eine herausragende Rolle unter den Radionukliden zukommt.

Es sei nun dargestellt, welche Besonderheiten ^{53}Mn für Messungen an extraterrestrischem Staub von den anderen langlebigen kosmogenen Radionukliden abheben.

Zum einen, da es mit seiner Halbwertszeit von $3,7 \cdot 10^6$ a (vgl. Tabelle 1.1) das langlebigste Radionuklid darstellt, das quantitative Aussagen erlaubt. Wegen des sehr hohen anthropogenen Untergrunds von ^{129}I aus der Kernspaltung und seiner niedrigen Konzentration in der extraterrestrischen Materie (wegen der geringen Konzentration an Targetelementen) sind Schlußfolgerungen aus diesen Messungen äußerst problematisch [28]. Bei ^{40}K ist die Halbwertszeit bereits so lang, daß es innerhalb der für die Messung an extraterrestrischer Materie relevanten Zeiträume schon als stabil anzusehen ist (Bestrahlungszeitraum für Steinmeteoroiden bis ca. 10^7 a, für Eisenmeteoroiden mehrere 10^8 a möglich; vgl. Abschnitt 1.1.3). Zudem ist der Gehalt an primordialem ^{40}K mit 0,0117% so hoch, daß geringere extraterrestrische Konzentrationen überdeckt werden. Ähnliche Schwierigkeiten durch terrestrischen Untergrund treten für die Nuklide ^{10}Be , ^{26}Al und ^{36}Cl auf, die durch Spallationsreaktionen der kosmischen Strahlung aus ^{14}N oder z.B. ^{40}Ar in der Atmosphäre erzeugt werden [18].

Wegen seiner, im Vergleich zum Alter der Erde, kurzen Halbwertszeit ist kein primordiales ^{53}Mn in relevanter Menge zu erwarten. Es müßte also auf der Erde produziert worden sein.

Weil das einzige stabile Isotop ^{55}Mn neutronenreicher als ^{53}Mn ist, kann das Radionuklid nicht durch den Einfang thermischer Neutronen, z.B. in Reaktoren erbrütet werden.

^{53}Mn ist schwerer als die Hauptbestandteile unserer Atmosphäre (auch z.B. ^{40}Ar). Die Produktion von ^{53}Mn durch die kosmische Strahlung ist durch Spallationsreaktionen mit diesen Hauptbestandteilen nicht möglich

(nur durch die in der Atmosphäre lediglich im Promillbereich vertretenen schwereren Edelgase wird ein zu vernachlässigender Beitrag geliefert [29]).

Die Hauptquelle für terrestrisches ^{53}Mn liefert die kosmische Strahlung in Wechselwirkung mit der Lithosphäre²⁶ [19], bzw. mit dem darin befindlichen Eisen. Rechnungen hierzu [21] sind im Anhang A dargestellt. Nach diesen Rechnungen und unseren Messungen spielt der terrestrische Untergrund im Fall des ^{53}Mn , auch bei der um zwei Größenordnungen höheren Empfindlichkeit, noch keine Rolle.

Anders als für die meisten langlebigen Radionuklide kann man, wenn man ^{53}Mn auf der Erde nachweist, von einer extraterrestrischen Herkunft ausgehen. Somit lassen sich über die errechnete ^{53}Mn -Konzentration im Staub und das gemessene $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ Verhältnis auf der Erde direkt Aussagen zum extraterrestrischen Materieeintrag machen. Dabei eröffnen sich je nach Wahl des den extraterrestrischen Staub einlagernden Archivs unterschiedliche Zeitfenster.

Kennt man dagegen aus ergänzenden Experimenten den extraterrestrischen Materieeintrag in dem untersuchten Zeitfenster, so kann durch die ^{53}Mn -Messung am extraterrestrischen Staub ein Beitrag zur Bestimmung der Intensität und des Spektrums der solaren Komponente der kosmischen Strahlung geleistet werden.

In diesem Kapitel wurde ein kleiner Teil der Informationen, die man über die auf die Erde eingetragene extraterrestrische Materie und damit auch über unser Sonnensystem bereits besitzt, angesprochen sowie dargestellt, welche Möglichkeiten über die Messung von Radionuklidkonzentrationen eröffnet werden.

Dies setzt aber die Meßbarkeit der jeweiligen Radionuklidkonzentrationen voraus. Im folgenden Kapitel wird versucht, den aktuelle Stand der Forschung bei dem Nachweis von ^{53}Mn mit den erreichbaren Nachweisgrenzen darzustellen.

²⁶Lithosphäre: Oberste Schicht der Erdkruste

Kapitel 2

Nachweis von ^{53}Mn

Die Meßmethode der Beschleunigermassenspektrometrie (BMS) trifft bei dem Nachweis von ^{53}Mn auf die bereits etablierte Methode der Neutronenaktivierungsanalyse (NAA). Es gilt daher zu prüfen, ob und wie durch die BMS neue Maßstäbe gesetzt werden können.

^{53}Mn stellt nämlich ein äußerst günstiges Nuklid für die Neutronenaktivierungsanalyse dar. Es wird daher im folgenden kurz auf die Vor- und Nachteile der NAA eingegangen.

2.1 Messung mit der Neutronenaktivierungsanalyse

Die Vorteile der NAA sind verbunden mit den kernphysikalischen Eigenschaften des ^{53}Mn :

- Hoher Neutroneneinfangsquerschnitt
 $\sigma(^{53}\text{Mn}(n,\gamma)^{54}\text{Mn}) = 80 \text{ barn}$
- Zerfall von ^{54}Mn mit einer leicht detektierbaren γ -Linie (835 keV mit einer Emissionswahrscheinlichkeit von 100%)
- Gut handhabbare Halbwertszeit von ^{54}Mn mit $T_{1/2} = 312,2 \text{ d}$

Diese Vorteile werden allerdings durch folgende Punkte relativiert [30, 31]:

- Mit schnellen Neutronen ergeben sich untergrunderzeugende Reaktionen.
So z.B. $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$, bzw. $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$, wobei sich letztere chemisch prinzipiell¹ unterdrücken läßt. Somit wird ein Reaktor mit fast

¹Isotope sind für die Chemie nahezu ununterscheidbar. ^{55}Mn läßt sich also von ^{53}Mn nicht separieren.

ausschließlich thermischem Neutronenfluß notwendig, wie ihn z.B. der DIDO Reaktor der KFA Jülich bis zu seiner Schließung liefern konnte [24].

Das aus der ^{54}Mn -Aktivität berechnete Isotopenverhältnis $^{53}\text{Mn} / ^{55}\text{Mn}$, das allein durch die Untergrundsreaktion $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$ überdeckt wird, liegt in solch einem Reaktor bei ca. 10^{-11} [31]. Dies reicht zur Messung von Meteoriten ($^{53}\text{Mn} / ^{55}\text{Mn} \geq 10^{-8}$) aus. Ein Nachweis von ^{53}Mn in Tiefseesedimenten oder -krusten mit einem Verhältnis $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn} \approx 10^{-12}$ ist jedoch nicht möglich (vgl. Abschnitt 4).

- Ein nicht zu vernachlässigender Untergrund kann durch das Radionuklid ^{54}Mn entstehen, wenn es schon vor der Neutronenaktivierung in relevantem Maß auftritt.

Bei Meteoriten niedrigen terrestrischen Alters (weniger als fünf Jahre) ist die Aktivität des kosmogen erzeugten ^{54}Mn noch nicht abgeklungen und überdeckt das Signal, das von terrestrisch neutronenaktiviertem, kosmogenen ^{53}Mn erzeugt wird.

- Um eine ausreichende spezifische Aktivität zu erhalten, benötigt man bei der verfügbaren Reaktortechnik Bestrahlungszeiten in der Größenordnung der Halbwertszeit von ^{54}Mn [31].
- Die Strahlenschutzbestimmungen müssen bei der Probenaufarbeitung berücksichtigt werden.

Zusammenfassend gilt also:

Es besteht prinzipiell die Möglichkeit, ^{53}Mn -Konzentrationen in Meteoriten mit der NAA zu messen.

Der Nachweis von ^{53}Mn in Tiefseesedimenten bzw. -krusten ist mit heutiger Reaktortechnik nicht möglich.

2.2 Messung mit der Beschleunigermassenspektrometrie

Die Beschleunigermassenspektrometrie (BMS) ist eine höchst empfindliche Methode, niedrigste Konzentrationen von langlebigen Radionukliden zu bestimmen.

Bei der BMS werden die Nuklide isotopenselektiv über ihre Masse und ihre Kernladungszahl identifiziert. Im Gegensatz zur Sekundärionenmassenspektrometrie, bei der die nachgewiesenen Teilchen nur nach der Masse getrennt werden können, unterdrückt die BMS den molekularen und

atomaren Untergrund. Die dazu nötigen kinetischen Energien werden mit einem Tandem-van-de-Graaff-Beschleuniger erreicht. Die Tandembeschleuniger bieten mehrere Vorteile. Einerseits wird die Beschleunigungsspannung zweimal genutzt, wenn die eingeschossenen negativen Molekülionen in der Stripperfolie zerstört und das zu untersuchende Ion dann noch gestrippt, und damit wieder abgestoßen wird. Andererseits werden für das Tandem negative Ionen benötigt und von der Ionenquelle nur einfach negative (Molekülionen) erzeugt, wodurch die Extraktion von Teilchen mit gleichem Masse- zu Ladungsverhältnis schon stark unterdrückt wird. Aufgrund der hohen verwendeten Energien können kernphysikalische Meßmethoden zur Analyse der Kernladungszahl angewandt werden.

2.2.1 Die BMS-Meßmethode

Zu Beginn der Messung wird die gesamte Apparatur auf die optimale Durchlässigkeit (Transmission) eines stabilen Isotops, bei uns ^{55}Mn , eingestellt. Das stabile Isotop wird verwendet, um einen makroskopischen, in einem einfachen Faradaycup meßbaren Strom zu erhalten.

Mittels der für die ^{55}Mn -Ionen verwendeten Parameter wird das BMS-System dann bei gleicher magnetischer Steifigkeit in der Terminal-Spannung auf die rechnerisch richtigen Werte für die ^{53}Mn -Ionen umgestellt und der mikroskopische Strom in einem Detektor analysiert.

Bei einer Transmission von 100% könnte jedes erzeugte ^{53}Mn -Ion im Detektor nachgewiesen werden. Man würde eine absolute Information über das $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnis in der Meßprobe erhalten. Auf dem Weg zum Detektor geht aber ein Großteil an ^{53}Mn -Ionen verloren. Diesen durch die Transmission beschriebenen Anteil kann man durch die Messung einer Normprobe bekannter $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Konzentration bestimmen. Die Meßproben kann dann relativ zur Normprobe analysiert werden.

Zur Bestimmung des Meßuntergrundes im Detektor werden ^{53}Mn -freie Proben gemessen. Die durch sie erzeugten Signale, die im Detektor wie ^{53}Mn -Ionen erscheinen, werden von den aus den Meßproben erhaltenen Signalen abgezogen.

2.2.2 Der experimentelle Aufbau

Im folgenden wird speziell auf die für die BMS- Messung von ^{53}Mn wichtigen Apparaturen, wie die Hochstromionenquelle und das Detektorsystem, eingegangen. Für eine genauere Darstellung des experimentellen Aufbaus wird auf [32] verwiesen. Eine differenziertere Diskussion zur Hochstromionenquelle erfolgt später in diesem Kapitel sowie in Anhang B.

Die Hochstromionenquelle

Um Ionen oder Molekülonen nach dem Tandemprinzip beschleunigen zu können, müssen sie als negative² (Molekül-) Ionen aus der Quelle extrahiert werden.

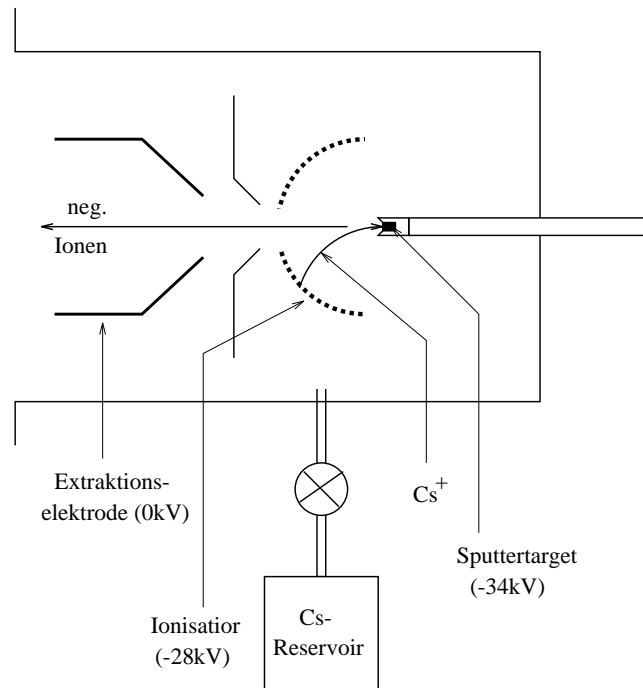


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau einer Hochstromionenquelle; Maßstab ca. 1:1

Bei einer Hochstromionenquelle (vgl. Abb. 2.1) [33] wird aus einem beheizten Cäsiumreservoir Cäsiumdampf in die Quelle geleitet. Dieser schlägt sich auf einem halbkugelförmig gewickelten Ionisator [33, 34, 35] aus Tantaldraht (und auch auf der gekühlten Probe) nieder. Der aus Wolfram gefertigte Innenleiter des Tantaldrahts wird durch einen Strom von knapp 10A auf ca. 1000° C geheizt. Da die Ionisationsenergie von Cäsium mit 3,89 eV [36] niedriger ist als die Elektronenaustrittsarbeit von Tantal mit 4,1 eV [37], kann Cäsium als positives Ion desorbieren und wird auf das gegenüber dem Ionisator auf -6 kV liegende Target hin beschleunigt. Ein auf 6 keV beschleunigtes Cs⁺-Ion gibt seine Energie an das Target ab, so daß mehrere Targetteilchen aus der Oberfläche herausgeschlagen werden. Ein Teil der zerstäubten Teilchen kann ein Elektron des Cäsiums, das sich auf der Targetoberfläche befindet, anlagern. Die Ausbeute an negativen Ionen wird aus deren Elek-

²Negative Ionen können nach einmaliger Beschleunigung gestrippt werden und damit Vorzeichen und Betrag ihrer Ladung ändern.

tronenaffinität³ bestimmt. Auf die Problematik der Auswahl von negativ geladenen Teilchen für die ^{53}Mn -Messung wird bei der Isobaren-Unterdrückung näher eingegangen.

Die für die ^{53}Mn -Messung erzeugten negativen Molekülonen (z.B. MnO^-) sehen nun die -6 kV Potentialdifferenz zwischen Target und Ionisator, werden also von der Targetoberfläche weg beschleunigt. Nach dem Ionisator unterliegen sie der Potentialdifferenz von -28 kV gegen Erde (0 kV der Extraktionselektrode) und werden dann in den Tandembeschleuniger gelenkt.

Die Strahlführung zwischen Quelle und Detektor

Der gesamte Aufbau ist in Abbildung 2.2 dargestellt.

Nach der Ionenquelle folgen ein Analysiermagnet und elektrostatische Linsen, die einen Strahl von einfach negativ geladenen Teilchen der Masse des zu analysierenden Radionuklides in den Tandembeschleuniger leiten. Ihr Ladungszustand und damit ihre Ausbeute unterscheiden sich nach Anzahl der gestrippten Elektronen (für Mn^{13+} ergibt sich bei 13,5 MV Terminalspeisung eine Strippausbeute von ca. 4%). Alle nun folgenden Strahlführungselemente und der 90° -Analysiermagnet sind auf die entsprechende magnetische Steifigkeit $B\rho = (2Em)^{1/2}/Q$ ($Q=qe$) des ausgewählten Ladungszustandes optimiert, so daß sie gleichzeitig als selektiver Massenfilter zu verstehen sind.

Zwei Isobare, wie z.B. das Radionuklid ^{53}Mn und das stabile Nuklid ^{53}Cr , unterscheiden sich in der Masse nicht ausreichend, um bei gleichem Ladungszustand zu einer unterscheidbaren magnetischen Steifigkeit zu führen. Das stabile Isobar kann daher mit Hilfe der bis jetzt geschilderten Apparatur nicht vom Radionuklid unterschieden werden. Die Separation ist erst in einem entsprechenden Detektor, z.B. einer Gasionisationskammer möglich.

Der Detektor

Als Detektoren werden keine Halbleiterzähler verwendet, da sie zu empfindlich gegen Strahlenschäden sind und keine einfache Dickenanpassung durchgeführt werden kann.

Eine Separation von Isobaren ist mit Gasionisationskammern mit Frischgitter möglich. Hierbei nutzt man aus, daß Ionen unterschiedlicher Kernladungszahl unterschiedlich stark mit dem Gas im Detektor (in unserer Anlage: 30 mbar Isobutan) wechselwirken und somit einen kernladungszahl-abhängigen Energieverlust erleiden, über den sie identifiziert werden können.

³Elektronenaffinität EA: Energie, die frei wird, wenn man ein Elektron an ein freies, neutrales Atom oder Molekül anlagert.

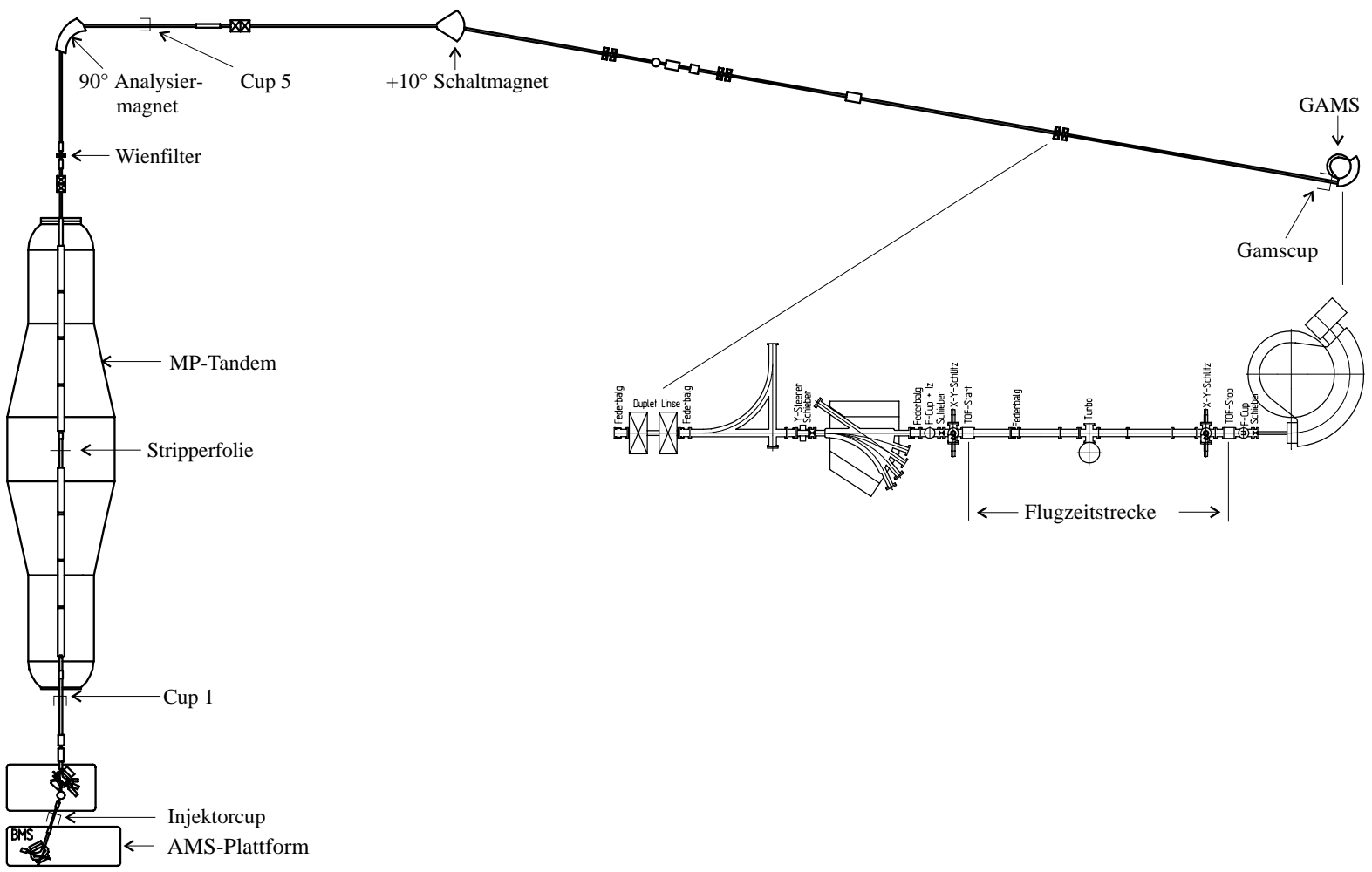


Abbildung 2.2: Experimenteller Aufbau

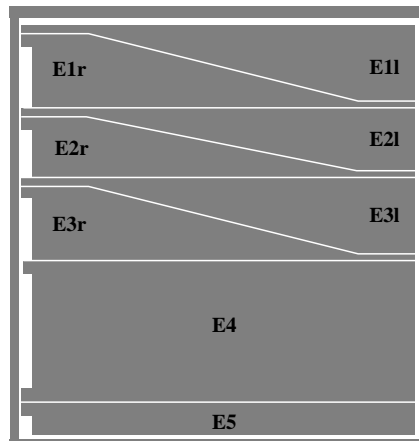


Abbildung 2.3: *Schematischer Aufbau der Gasionisationskammer und deren Anodenanordnung*

Die Anzahl der erzeugten freien Elektronen ist dabei ein Maß für den Energieverlust der Ionen. Diese Elektronen werden durch ein elektrisches Feld senkrecht zur Flugrichtung auf eine Anode hin beschleunigt. Unterteilt man die Anode an der Wand des Detektors in Streifen senkrecht zur Flugrichtung (vgl. Abb. 2.3), so erhält man eine Aussage über den differentiellen Energieverlust der Ionen. Unsere Ionisationskammer weist fünf solche Streifen auf, wobei der letzte als Veto benutzt wird. Erhält man von ihm noch ein Signal, so erhöht man den Gasdruck im Detektor so lange, bis dieses Signal verschwindet, das Ion also seine gesamte Energie im Detektor deponiert hat. Um die Isobaren zu unterdrücken, die durch Streuung, z.B. an der Detektorfolie, schräg eindringen und über ihren damit verlängerten Flugweg einen größeren Energieverlust vortäuschen (Cr-Ionen mit $Z=24$ können so Signale wie Mn-Ionen mit $Z=25$ erzeugen), wird der Einflugwinkel in der x-Ebene durch eine Aufteilung des ersten und dritten Anodenstreifens, in der y-Ebene durch den Zeitunterschied des Signals zwischen dem zweiten und vierten Anodenstreifen bestimmt.

Die Isobarentrennung kann nun über die unterschiedlichen differentiellen Energieverluste erreicht werden.

Die maximal verarbeitbare Zählrate beläuft sich auf ca. 1 kHz. Aufgrund des um mehrere Größenordnungen überwiegenden Chromuntergrundes müßte der Strom aus der Quelle stark reduziert und damit die Meßzeit stark erhöht werden. Dies macht für die ^{53}Mn -Messung eine Isobarenseparation bereits vor dem Detektor notwendig. Die einzigen bisher eingesetzten BMS-Methoden sind das Nacktstrippen und der Einsatz eines gasgefüllten Magneten, auf die nun näher eingegangen wird.

2.2.3 Isobarentrennung durch Nacktstrippen

Mangan ($Z=25$) besitzt eine höhere Kernladungszahl als Chrom ($Z=24$). Strippt man (z.B. durch eine Kohlenstoffolie) die Isotope vollständig, so erhält man für ^{53}Mn den Ladungszustand 25^+ , während dem Chromisobar nur 24 Elektronen zum Ladungszustand 24^+ entfernt werden können. Damit läßt es sich durch einen nachfolgenden Ablenkmagneten vollkommen abtrennen [38, 39].

Um die Isotope effizient nacktstripfen zu können, benötigt man hohe kinetische Energien.

Die ^{53}Mn -Ionen müssen auf Energien von über 290 MeV beschleunigt werden, um eine Nacktstrippausbeute von $9 \cdot 10^{-4}$ zu erreichen. Mit Hilfe der Schwerionennachbeschleuniger (SchweIN) wurde dies 1987 am Garching Tandembeschleuniger realisiert [39] und auch eine Messung von ^{53}Mn an einer Meteoritenprobe vorgenommen. Die erreichte Empfindlichkeit betrug:

$$^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn} = 10^{-11}$$

Wegen der geringen Nacktstrippausbeuten werden die Zählraten klein. Dies führt zu langen Meßzeiten und damit auch zur Notwendigkeit, große Mengen Probenmaterials zur Verfügung zu haben. Eine Empfindlichkeit von $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}=10^{-11}$ ist für Meteoritenmessungen (mit einem Verhältnis⁴ $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn} \geq 10^{-10}$) wegen der absoluten Untergrundfreiheit ausreichend, wenn auch zeitaufwendig. Der Nachweis von extraterrestrischem Staub über ^{53}Mn ist in München nicht möglich. Hierfür muß eine andere Methode eingeführt werden.

2.2.4 Isobarentrennung mit dem gasgefüllten Magneten-GAMS⁵

Eine weitere Möglichkeit zur Trennung der Isobare ^{53}Mn und ^{53}Cr besteht in der Verwendung eines gasgefüllten Magneten. Dabei nutzt man wie bei den Gasionisationskammern die Tatsache, daß Ionen unterschiedlicher Kernladungszahl Z unterschiedlich stark mit den Gasatomen wechselwirken. Sie weisen daher im Magnetfeld unterschiedliche Trajektorien auf, wodurch eine räumliche Trennung der Isobare (siehe Abb. 2.4) erreicht wird. Die Isobare können damit nach dem Magneten in einem ortsempfindlichen Detektor getrennt nachgewiesen werden.

Es soll nun der Effekt, der zu dieser Trennung führt, beschrieben und die durch ihn erreichbare Trennung von ^{53}Mn und ^{53}Cr abgeschätzt werden.

Durchläuft ein Ion einen gasgefüllten Raum, so kommt es zu Stößen mit den Gasteilchen. Das Ion kann, abhängig von seiner Energie, seiner Kernladungszahl und den Gasteilchen, Elektronen aufnehmen bzw. abgeben und

⁴Nach der Zugabe von ^{55}Mn als Trägermaterial

⁵GAMS: Gasfilled Analyzing Magnet System

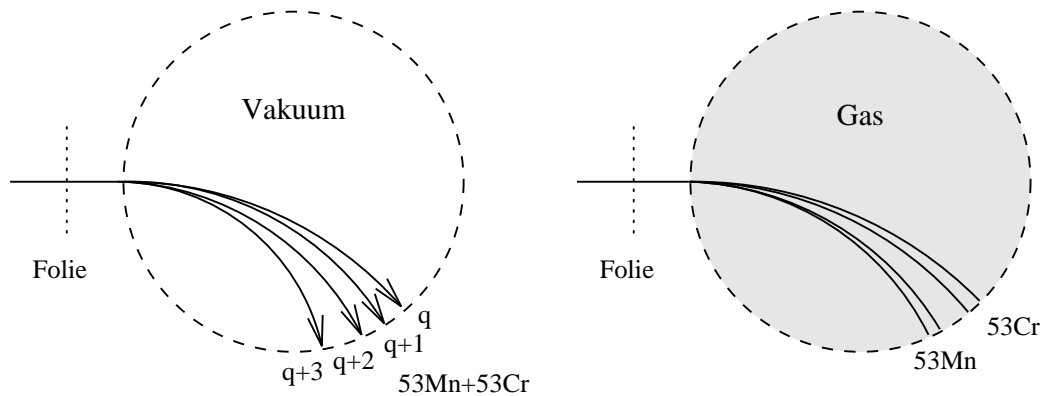


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der Trennung von Isobaren in einem gasgefüllten Magneten. Im Vakuum werden Teilchen gleicher Masse nur nach ihrem Ladungszustand getrennt. Im gasgefüllten Magneten wechselwirken die Isobare wegen ihrer unterschiedlichen Kernladungszahl verschieden stark mit dem Gas, erhalten einen unterschiedlichen mittleren Ladungszustand und werden dadurch räumlich getrennt.

wird dies so lange tun, bis es eine Gleichgewichtsladungsverteilung um einen mittleren Ladungszustand \bar{q} eingenommen hat, um den sein Ladungszustand dann fluktuiert [40].

Die Abhängigkeit des mittleren Ladungszustandes \bar{q} von der Geschwindigkeit v und der Kernladungszahl Z des Ions beschreibt die semiempirische Formel von R.O.Sayer [41] wie folgt:

$$\bar{q} = Z(1 - 1,08 \cdot \exp(-80,1 \cdot Z^{-0,506} \cdot (\frac{v}{c})^{0,996})) \quad (2.1)$$

Aus dem Gleichgewicht zwischen Lorentz- und Zentrifugalkraft ergibt sich damit eine magnetische Steifigkeit von:

$$B \cdot \bar{\rho} = \frac{m \cdot v}{\bar{q} \cdot e} \quad (2.2)$$

Bei einem homogenen Magnetfeld B läßt sich somit die relative mittlere Bahnradiusseparation der Isobare ^{53}Mn und ^{53}Cr (für 170 MeV) grob abschätzen:

$$\frac{\Delta \bar{\rho}}{\bar{\rho}} \approx \frac{\frac{1}{\bar{q}_{Cr}} - \frac{1}{\bar{q}_{Mn}}}{\frac{1}{\bar{q}_{Mn}}} \approx 2,95\% \quad (2.3)$$

Bei einem Ablenkradius des GAMS-Magneten in der Größenordnung von 90 cm und einem Ablenkwinkel von 135° entspricht dies einer örtlichen Trennung von $\text{ca. } 90\text{cm} \cdot 2,95\% \cdot \pi \frac{135}{180} \approx 4\text{ cm}$.

Diese Abschätzung ist nur gültig, wenn eine große Zahl von Umladungsstößen erfolgt ist. Dies wird durch die Gasart, den Gasdruck sowie die Länge der Trajektorie im Gas bestimmt. Für eine optimale Isobarensparation gilt es zwischen den folgenden Phänomenen abzuwägen.

- Durch viele Umladungen, also bei hohem Gasdruck, nimmt die Strahlbreite der Verteilung der mittleren Ladungszustände der einzelnen Ionen aufgrund besserer Statistik ab. Damit werden die Strahlbreiten der ^{53}Mn - und ^{53}Cr -Strahlen geringer, die räumliche Trennung also schärfer.
- Bei einem Stoß findet aber nicht nur eine Umladung, sondern auch eine Kleinwinkelstreuung statt, die zu einer größeren Breite führt. Sie kann durch eine Reduzierung des Gasdrucks verringert werden.

Es gilt also diese beiden gegensätzlichen Anforderungen an den Gasdruck miteinander zu vereinbaren. Außerdem muß bedacht werden, daß eine Druckerhöhung mit einer Erhöhung des Energieverlusts in dem GAMS einhergeht und damit die Auflösung im Detektor verschlechtert.

Der Stickstoff-Druck im GAMS wurde von uns für eine maximale ^{53}Cr von ^{53}Mn -Trennung auf ca. 7 mbar optimiert. Die ^{53}Mn -Ionen verlieren damit ca. 35% ihrer kinetischen Energie im GAMS.

Mit diesen Parametern ergeben sich mehrere Vorteile gegenüber der Verwendung derselben Gasionisationskammer ohne GAMS. Die wichtigsten für die ^{53}Mn -Messung sind:

- Mit Hilfe der örtlichen Separation kann das störende ^{53}Cr -Isobar größtenteils aus dem Detektor ausgeblendet werden. Wegen der so um mehrere Größenordnungen reduzierten Zählrate kann man hohe Ionenströme verwenden, die zu kurzen Meßzeiten führen.
- Neben den Energieverlustmessungen im Detektor ergeben sich für die Isobare weitere Unterscheidungsmerkmale, wie die Orts- und die Eintrittswinkelmessungen. Mit ihnen läßt sich der ^{53}Cr -Untergrund nochmals reduzieren.

Aufgrund der Optimierung des Gasdrucks im GAMS und einer stärkeren Ausblendung der ^{53}Cr -Ionen durch die Optimierung des GAMS-Magnetfeldes konnte der Isobaren-Untergrund im Detektor nochmals um eine Größenordnung gesenkt werden.

Trotz einer nun sehr effektiven ^{53}Cr -Unterdrückung um vier bis fünf Größenordnungen durch das GAMS gelangt Chromuntergrund in den Detektor. Eine hohe ^{53}Cr -Konzentration in den Proben ist nahezu unvermeidlich,

da das ^{53}Cr -Isotop stabil ist und daher in nahezu jeder Substanz in ppm Konzentration vorliegt. Bei den von uns zu messenden extraterrestrischen Staubproben handelt es sich aber um ^{53}Mn -Konzentrationen der Größenordnung 10^{-12} . Es gilt also den Isobaren-Untergrund zusätzlich zu minimieren, um den Nachweis von extraterrestrischen Staub zu ermöglichen, bzw. Meteoritenmessungen routinemäßig durchführen zu können.

2.2.5 Weitere Reduzierung des Isobaren-Untergrundes

Die Möglichkeiten zur Verbesserung der Nachweisempfindlichkeit werden untersucht, zum einen, indem die Proben chemisch aufgearbeitet werden und andere Quellenchemie (Einsatz anderer Molekülonen) getestet wird, zum anderen, indem der von außen in die Probe, bzw. in die Quelle eingetragene Chromuntergrund untersucht und gegebenenfalls verringert wird.

Isobarentrennung aufgrund der Sublimationstemperaturen

Die Trennung von Chrom und Mangan ist aufgrund sehr ähnlicher chemischer und physikalischer Eigenschaften äußerst problematisch.

Einleitung In Zusammenarbeit mit dem Targetlabor des Beschleunigerlaboratoriums wurde eine Methode entwickelt, den einzigen uns bekannten deutlichen Unterschied, nämlich im Sublimationsverhalten, für eine Trennung der Elemente zu verwenden. Die Sublimationstemperaturen sind bei gegebenem Druck für reine Elemente bekannt und sollten eine saubere Trennung von Mangan und Chrom erwarten lassen (Am Siedepunkt bei $T=1500\text{ K}$ unterscheidet sich der Dampfdruck um mehr als zwei Größenordnungen).

Die Literaturwerte sind auf unser reines Mangan-Probenmaterial gut anwendbar. Wie sich allerdings stark verdünntes Chrom in einer Manganumgebung verhält, gilt es experimentell zu bestimmen.

Ergebnisse Mit den ersten Versuchen nach diesem Verfahren konnte keine relevante Reduktion des Chromgehalts unserer BMS-Proben erreicht werden. Eine mögliche Erklärung ist, daß die Chromatome in Manganumgebung beim Vorgang der Mangan-Sublimation von ihren Mangannachbarn mitgerissen werden.

Nachdem das Verfahren nicht erfolgreich war, wird das experimentelle Vorgehen sowie eine differenziertere Analyse der Ergebnisse im Anhang B dargestellt.

Isobaren-Unterdrückung durch Ausnutzung der Ionenquellenchemie

Die Quelle selbst, bzw. die in ihr ablaufenden chemischen Vorgänge, können einen Beitrag zur Isobaren-Unterdrückung leisten, wenn nicht sogar die Lösung des Untergrundproblems darstellen.

Einleitung Für bestimmte Radionuklide sind sehr empfindliche und genaue Messungen möglich, da ihre Isobaren in der Quelle nicht als einfach negativ geladene Ionen gebildet werden. Z.B. ist es die negative Elektronenaffinität des Stickstoffs (der als stabiles Isobar des ^{14}C nicht von der Quelle geliefert wird), die die Radiokarbonaldatierung auch mit kleinen Beschleunigern ermöglicht.

Für die ^{53}Mn -Messung ist dieser Effekt aber sogar hinderlich, da in diesem Fall das Mangan die negative Elektronenaffinität besitzt, während Cr^- (EA=666 meV) gebildet wird. Man muß daher auf die Verwendung von Molekülonen ausweichen.

Bisher wurden MnO^- -Molekülonen zur Bildung eines aus der Quelle extrahierbaren Stromes verwendet. Der Isobarenstrom aus CrO^- -Molekülonen wird dabei lediglich um einen Faktor 3 unterdrückt [33]. Es gilt nun zu testen, ob die Verwendung von Hydrid-Molekülen, speziell MnH^- -Molekülonen, eine verstärkte Chrom-Unterdrückung gewährleisten kann.

Ergebnisse Für MnH^- konnte gegenüber CrH^- -Molekülonen keine Verbesserung der Isobaren-Unterdrückung festgestellt werden. Gleiches gilt für MnO^- gegenüber CrO^- -Molekülonen unter Wasserstoffatmosphäre.

Der für die Isobarenseparation erfolgreiche Versuch mit Mn_2O^- -Molekülonen scheiterte aufgrund zu niedriger Ströme aus der Ionenquelle.

Da sich die Hydridquelle zur Chrom-Unterdrückung bei einer ^{53}Mn -Messung als nicht geeignet erwies, wird für detailliertere Angaben auf den Anhang B verwiesen.

Optimierung der Probenhalter

Einleitung Um die Unterdrückung des ^{53}Cr -Untergrundes bis in den Bereich zu gewährleisten, der die angestrebte Empfindlichkeit der Messung von $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ nicht behindert, bzw. unmöglich macht, muß untersucht werden, wo die Hauptquelle des den Detektor erreichenden Chroms liegt. Dabei gilt es in einem ersten Schritt festzustellen, inwieweit sich noch ein Verbesserungspotential durch Veränderungen am Material der Quelle oder der Probenhalter erschließt. Aus ihnen kann bei der Messung Chrom freigesetzt werden. Es wird untersucht, inwieweit der gemessene Chromun-

tergrund überhaupt aus der Probe selbst stammt.

Experimentelles Vorgehen Der gesamte Meßaufbau wurde mit Hilfe einer Mangan(IV)oxid-Probe bei einer mit unseren sonstigen Messungen vergleichbaren Terminalspannung von 11,510 MV auf den Ladungszustand 11^+ optimiert und der errechnete Wert für das Radionuklid eingestellt.

Unter diesen ^{53}Mn -Meßbedingungen wurden verschiedene Probenhalter aus hochreinen Materialien durch die BMS mit Hilfe des GAMS analysiert und die Anzahl der ^{53}Cr -Ereignisse relativ zueinander verglichen. Das Verhältnis⁶ $^{53}\text{Cr}/^{55}\text{Mn}$ wurde bestimmt. Dies liefert als erste Näherung ein Maß für den durch den Probenhalter verursachten scheinbaren Chromgehalt der Probe.

Ergebnisse Da sich in den Probenhaltern keine nachweisbare Menge an ^{53}Mn befindet, sind Ereignisse im Detektor zu 100% Untergrunds-, nahezu ausschließlich ^{53}Cr -Ereignisse. Die Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 2.1 aufgeführt.

Probenhalter	$^{53}\text{Cr}/^{55}\text{Mn}$ [10^{-6}]	Probenhalter	$^{53}\text{Cr}/^{55}\text{Mn}$ [10^{-6}]	Probenhalter	$^{53}\text{Cr}/^{55}\text{Mn}$ [10^{-6}]
(Al)	(1,5)	Ag	3,1	Ta	6,8
Au	2,4	Cu- α	3,9	Ti	12,5
Ag mit Pb	3,0	Cu	5,7	Ni	15,0

Tabelle 2.1: Relativer ^{53}Cr -Untergrund aus Probenhaltern verschiedener Materialien, geordnet nach steigender ^{53}Cr -Konzentration

Das $^{53}\text{Cr}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnis gibt an, wieviele ^{53}Cr -Ereignisse aus dem jeweiligen Probenhalter in den Detektor gelangen, bezogen auf die Anzahl an ^{55}Mn Atomen, die aus einer Normprobe (Meteorit Dar Al Gani 13) in der gleichen Zeit unter denselben Bedingungen gelangen würden.

Als Probenhaltermaterial scheidet Aluminium trotz des niedrigsten ^{53}Cr -Anteils aus. Aluminium ist leichter als das zu messende ^{53}Mn und liefert daher einen makroskopischen molekularen Untergrund, der durch Streuungen in den Detektor gelangen kann. Auf die Bedeutung des Meßergebnisses des Al-Probenhalters wird später eingegangen.

Innerhalb unserer Meßungenauigkeit sind somit Au- und Ag-Probenhalter gleichwertig, weshalb wir uns für die günstigere Ag-Version entschieden, ohne den nicht effektiven Mehraufwand der Pb-Einlage zu betreiben.

⁶Die Anzahl der ^{55}Mn -Atome wird aus dem vorab gemessenen ^{55}Mn -Strom aus der Mangan(IV)oxid-Probe bei bekannter Meßzeit erschlossen.

Mit der Verwendung von Ag-Probenhaltern läßt sich der apparative Chromuntergrund gegenüber Cu-Probenhaltern um einen Faktor zwei reduzieren.

Dabei stellen diese Werte Obergrenzen der durch das Probenhaltermaterial in eine ^{53}Mn -Messung eingebrachten ^{53}Cr -Ionen dar. Da im Meßbetrieb nicht direkt auf das Probenhaltermaterial gesputtert wird, kann dieses nur zu einem geringen Anteil zum Untergrund beitragen.

Zusätzlich liefert das Ergebnis des Al-Probenhalters eine Obergrenze für den Beitrag der Ionenquelle selbst. Diese muß unter dem des Probenhaltermaterials Aluminium liegen.

Vergleicht man diese Ergebnisse mit den reinsten von uns gemessenen Meteoritenproben, so sieht man dort einen ^{53}Cr -gehalt von mehr als 20 ppm. Dies legt nahe, daß das detektierte Chrom tatsächlich aus der Probe stammt. Stammt es aus der Probe, so gilt es zu untersuchen, ob es aus dem ursprünglichen Probenmaterial stammt oder vielleicht erst nachträglich durch die chemische Aufbereitung (z.B. aufgrund von Verunreinigungen der Chemikalien) eingeschleppt worden ist.

Isotopenverdünnung mit ^{50}Cr

Einleitung Durch Zugabe isotonenangereicherten Chroms zum Probenmaterial läßt sich die natürliche Isotopenhäufigkeit beeinflussen (^{50}Cr :4,4%; ^{52}Cr :83,8%; ^{53}Cr :9,5%; ^{54}Cr :2,4% [42]).

Mengt man dem Probenmaterial in Lösung ^{50}Cr bei (um einen Faktor 100 mehr als ursprünglich Chrom in der Probe vorhanden war), so vermischt sich dieses chemisch ununterscheidbar mit dem Chrom der Probe. Trennt man das Chrom durch Ionenchromatographie (vgl. folgender Abschnitt) auf seine ursprüngliche Konzentration ab, so befinden sich wieder genauso viele Chromatome in der Probe wie zu Beginn, allerdings nicht mehr in der natürlicher Isotopenhäufigkeitsverteilung. Die ^{53}Cr -Atome haben jetzt nur mehr eine um den Faktor 100 reduzierte Anzahl, sie wurden isotopisch verdünnt.

Da der Chromgehalt in unseren Proben mit Hilfe der Kölner Ionenchromatographie [43] nicht unter eine Konzentration von ca. 200 ppm reduziert werden kann, gilt es zu testen,

- ob durch Zugabe von für die ^{53}Mn -Messung irrelevantem ^{50}Cr das störende ^{53}Cr -Isotop in den Proben verdünnt werden kann
- oder ob der Chromgehalt nicht aus der Probe stammt, sondern erst nach der chemischen Chromabtrennung durch Chemikalien eingeschleppt wird.

Experimentelles Vorgehen In dem Experiment wurde als Probenmaterial (ca. 200 mg) eines von uns bereits vermessenen Meteoriten verwendet [44]. Das Meteoritenmaterial enthält unbehandelt ca. 600 ppm Chrom und nur 15 ppm Mangan. Es wurden, um das Mangan extrahieren zu können, 4 mg ^{55}Mn als Träger zugegeben. Durch einen ersten Ionentauscherschritt erhält man zwar nur einen Teil dieser Manganmasse zurück, der Einfachheit der Erklärung halber wird dies aber zunächst vernachlässigt.

Bezieht man den Chromanteil auf den Mangananteil der Probe nach der Trägerzugabe, so erhält man ein Verhältnis Cr/Mn von ca. 30 000 ppm.

Diese 4 mg Mangan durchlaufen eine erste Ionentauscher-Säule und werden danach in zwei Aliquots von je 2 mg aufgeteilt. Das eine Aliquot, von nun an Aliquot 1 genannt, durchläuft eine zweite Ionentauscher-Säule, und das in ihm enthaltene Mangan wird extrahiert (vgl. nächsten Abschnitt).

Die zweiten 2 mg, von nun an Aliquot 2, erfahren die Zugabe von ca. 1 mg Isotopen-angereichertem- ^{50}Cr ⁷. Durch die in ihm enthaltenen 200 ppm ^{53}Cr wird der ^{53}Cr -Gehalt in Aliquot 2 nochmals erhöht. Danach wird das isotopisch verdünnte Aliquot 2 ebenfalls ein zweites Mal über eine Ionentauscher-Säule gegeben, das Mangan extrahiert und mit der BMS auf den Chromgehalt analysiert.

Ergebnisse Die Ergebnisse der Messungen sind in der Tabelle 2.2 dargestellt.

	Aliquot 2 (mit ^{50}Cr)	Aliquot 1 (ohne ^{50}Cr)
Cr-Konzentration (ppm)	5400	500
^{50}Cr -Konzentration (nat:4,4 %)	4400	30
^{52}Cr -Konzentration (nat:83,8 %)	1000	400
^{53}Cr -Konzentration (nat:9,5 %)	10	50

Tabelle 2.2: Chromkonzentration bezogen auf den Mangengehalt der Probe mit und ohne isotopisches Verdünnen.

Die Ergebnisse der Messungen an Aliquot 1 zeigen, daß die natürlichen Isotopenhäufigkeiten wiedergegeben werden. Der Gesamtchromgehalt (^{54}Cr wurde von uns nicht analysiert) ist mit 500 ppm um einen Faktor zwei höher als in unseren reinsten Meteoritenproben.

⁷Angereichertes- ^{50}Cr : ca. 98% ^{50}Cr , 2% ^{52}Cr , 200ppm ^{53}Cr [45]

Aus der Isotopenverteilung in Aliquot 1 läßt sich schließen, daß keine relevanten Isotopie-Effekte bei der chemischen Aufarbeitung auftreten.

Die Ergebnisse von Aliquot 2 zeigen, daß der Gesamtchromgehalt mit ca. 5400 ppm um eine Größenordnung über dem des Aliquot 1 liegt, gleichzeitig aber die ^{53}Cr -Konzentration um einen Faktor 5 kleiner ist als in Aliquot 1. Da der ^{53}Cr -Untergrund bis auf 10 ppm in Aliquot 2 gegenüber 50 ppm in Aliquot 1 reduziert werden konnte, wird ausgeschlossen, daß die Proben-Aufbereitung selbst durch Verschmutzungen in den Chemikalien erheblich zum Untergrund, hier zu den 500 ppm, beiträgt. Diese würde nämlich mit natürlicher Isotopenverteilung bemerkbar werden, also einen ebenso hohen ^{53}Cr -Untergrund in Aliquot 2 verursachen.

Wegen der um noch eine Größenordnung höheren Chrom-Konzentration in Aliquot 2 erscheint auf den ersten Blick ein nochmaliger Ionentauscher-Säulendurchlauf sinnvoll. Damit würde, bei der Reduzierung auf die gleiche Chrom-Konzentration wie in Aliquot 1, die ^{53}Cr -Konzentration nochmals um eine Größenordnung auf 1/50 des sonst erreichbaren Werts, also auf 1 ppm gesenkt werden. Dieses Ergebnis entspräche einer Gesamt-Chrom-Konzentration von ca. 10 ppm, würde man diese ^{53}Cr -Konzentration in natürlicher Isotopenhäufigkeit vorfinden. Die Chemie wäre somit als Quelle für den ^{53}Cr -Untergrund bis in den ppm-Bereich ausgeschlossen.

Leider ist es aber wegen der oben vernachlässigten Ausbeute des chemischen Verfahrens nicht möglich, nochmals einen Trenngang vorzunehmen, da sonst anfänglich noch mehr Trägermaterial zugesetzt werden müßte. Die ^{53}Cr -Reduktion um einen Faktor fünf bleibt also vorerst das maximal erreichbare Ergebnis, wenn nicht ausreichend Probenmaterial vorhanden ist. Allerdings ist dies, gemessen am zusätzlichen Aufwand, nur sinnvoll, wenn die ^{53}Mn -Konzentration der Probe so gering ist, daß eine Messung aufgrund des Isobarenuntergrundes mit der sonst verwendeten Chemie unmöglich geworden ist.

Die Zugabe von zusätzlichem Trägermaterial senkt das $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnis. Daher ist dies selbst bei einer Verbesserung der Chrom-Unterdrückung nicht für die Probenaufarbeitung sinnvoll.

Die Frage, ob die Chemikalien tatsächlich eine Chrom-Unterdrückung bis in den ppm-Bereich zulassen, kann jedoch durch einen nochmaligen Versuch mit mehr Trägermaterial und einem zusätzlichen Säulentrenngang beantwortet werden.

Da aufgrund der Verluste bei der Probenaufbereitung nur eine begrenzte Anzahl von chemischen Separationsschritten möglich ist, muß untersucht werden, inwieweit die Chemie auf unsere Zielsetzung der Mangan-Separation und Chrom-Unterdrückung optimiert und auf das vorliegende Probenmate-

rial angepaßt werden kann.

Isobaren-Unterdrückung durch chemische Verfahren

Je nach den speziellen Anforderungen werden die Proben, abhängig von ihrer chemischen Zusammensetzung, aufgearbeitet. Es muß z.B. unterschieden werden, ob sich im Ausgangsmaterial ausreichend Mangan befindet, um das nur in geringster Menge vorhandene ^{53}Mn chemisch handhaben zu können. Ist dem nicht so, so muß ^{55}Mn als Träger zugegeben werden. In den folgenden Abschnitten werden die bisher angewendeten Schritte zur Chromunterdrückung auf chemischem Wege dargestellt.

- Meteoriten-Proben:

Die Aufarbeitung der Meteoriten-Proben wurde von unseren Kölner Kooperationspartnern durchgeführt. Dabei wurden im wesentlichen Trennungsschritte für Elemente nach [44] und [43] angewendet. Verbesserungsmöglichkeiten hierzu wurden erarbeitet.

Die in Köln durchgeführte Aufarbeitung der Steinmeteorite dient nicht ausschließlich der Mangan-Separation. Es müssen zur parallelen Gewinnung anderer Radionuklide (Be, Al, Cl, Ca, Ni) Kompromisse bei der Effizienz der Separation geschlossen werden. In Zusammenarbeit mit der Kölner Gruppe [44] und Münchner Geochemikern [46] wurde von uns das chemische Verfahren zur Aufarbeitung unserer extraterrestrischen Staubproben auf die Extraktion des Mangans bei gleichzeitiger Chromunterdrückung optimiert. Das von der Literatur abweichende Vorgehen soll hier kurz für die unterschiedlichen Proben geschildert werden.

- Filter-Proben:

Die von uns zur Separation von Staub aus Schmelzwasser verwendeten Filter (siehe Abschnitt 4.1) beinhalten neben einer undefinierten Menge anderer Nuklide auch ^{53}Mn . Das zur Verfügung stehende Filtermaterial reicht nicht aus, um eine RFA⁸ durchzuführen (Minimalmasse bei ca. 20 mg Probenmaterial [46]). Dafür konnte am Beschleunigerlaboratorium eine ERDA⁹-Messung durchgeführt werden. Eine Aussage über die Konzentration der Elemente in unseren Filterproben konnte bis in den Promillbereich gemacht werden.

Als für uns wichtig ergab sich der Cr- ebenso wie der Mn-Gehalt der Probe zu weniger als 10^{-3} . Eine ausreichende chemische Isobarenunterdrückung sollte damit mit unseren Methoden möglich sein. Auch die restlichen Bestandteile des Filtrats sind gegenüber der notwendigen

⁸RFA: RöntgenFluoreszenzAnalyse

⁹ERDA: Elastic Recoil Detection Analysis

^{55}Mn -Trägerzugabe zu vernachlässigen, so daß die chemischen Schritte ganz auf die Isobaren-Trennung konzentriert werden konnten.

Die von uns verwendeten Filter bestehen aus einer Mischung von Zelluloseazetat und Zellulosenitrat, so daß sie in Salpetersäure löslich sind. Nach den entsprechenden Vorversuchen zur Lösung der Filter und des Träger-Materials sowie der Ausbeute einzelner Schritte und der Überprüfung der Effizienz mit der RFA wurde die folgende Vorgehensweise gewählt:

- Auflösen des Filters mitsamt des Filtrats in 20 ml Flußsäure¹⁰, 10 ml 10n Salzsäure¹¹ und 5 ml Salpetersäure¹² auf der Heizplatte bei 50° C für ca. 10 h
- Zugabe von 5mg ^{55}Mn ¹³ als Träger. Ca. 5 h bis zur vollständigen Lösung des Trägers. Dann folgt Eindampfen auf der Heizplatte bis zur Trockne.
- Lösen des Materials in 5 ml 10n HCl mit Zugabe von 1 ml Wasserstoffperoxid¹⁴, um das nun noch teilweise in Lösung befindliche Mn(IV) in für den weiteren Verlauf notwendiges Mn(II) zu reduzieren sowie Abrauchen des H_2O_2 bei Zimmertemperatur
- Die Manganchloridlösung wird über eine mit Anionenaustauscherharz¹⁵ gefüllte Ionenchromatographiesäule (Länge 30 cm, Durchmesser 9 mm) gegeben. Die Chrom-Ionen laufen in 10n Lösung durch die Säule, während die Mangan-Ionen gebunden werden. Ab diesem Zeitpunkt werden nur noch Suprapur-Chemikalien verwendet und die Lösung kommt mit keinen Metallgegenständen mehr in Kontakt. Die Säule wird nochmals mit 30 ml 10 n HCl nachgespült. Dabei wird nun aber schon ca. 40% des Mangans mit dem Rest-Chrom mitgespült. Anschließend wird das Mangan mit 30 ml 7.1n HCl von der Säule gespült. (Der Säulendurchgang wird ein zweites Mal in 10n HCl wiederholt).
- Die Lösung wird auf ca. 5 ml eingengt und mit Natronlauge¹⁶ neutralisiert.
- Das in der Lösung befindliche Mangan wird dann durch einen Alkalisturz in ca. 10 ml NaOH und 1 ml H_2O_2 gefällt und nach einer

¹⁰Merck HF 48% pro analysi

¹¹Merck HCl 30% suprapur

¹²Merck HNO_3 65% pro analysi

¹³Mangan(IV)oxid: Johnson Matthey, 99,999%

¹⁴Merck H_2O_2 30% pro analysi

¹⁵Bio Rad Anion Exchange Resin AG 1X8, 100-200 mesh, chloride form

¹⁶Merck NaOH 30% suprapur

Stunde Reaktionszeit abzentrifugiert. Der Rückstand wird fünfmal mit destilliertem Wasser gespült und wiederum abzentrifugiert, um die Natriumchlorid-Rückstände auszuwaschen.

- Das Mangan(IV)oxid wird nun unter einer Quarzlampe getrocknet und die Ausbeute bestimmt. Durch das zweimalige Säulen-Spülen erhält man Ausbeuten von ca. 30%.

Das erhaltene Manganoxid wird in einen in diesem Kapitel beschriebenen hochreinen Silberprobenhalter gepreßt und mit der BMS mit Hilfe des GAMS analysiert. Die durch diese auf das Wesentliche konzentrierte Chemie ermöglichten Experimente werden ausführlich in Kapitel 4 diskutiert.

- Tiefsee-Proben:

Anders als in Steinmeteoritenproben ($[\text{Mn}] \approx 2000 \text{ ppm}$) ist der Mangangehalt in Tiefseeablagerungen meist im Prozentbereich und darüber. Im Falle unserer Tiefseemangankruste liegt der Mangangehalt bei knapp 20%. Die Zugabe von Trägermaterial erübrigt sich damit.

Allerdings befinden sich auch ca. 20% Eisenoxid in der Kruste, die zusätzlich separiert werden müssen. Hierfür wird vor der Ionenchromatographie eine 7.1n HCl-Lösung mit Diisopropylether¹⁷ in einem Scheidetrichter gegeben und minutenlang durchmengt. Der eisenhaltige Ether wird dann abgelassen und dieser Schritt mehrmals wiederholt. Die Lösung wird danach bis zur Trockne eingeeengt und der Rückstand wiederum in für die Ionenchromatographie notwendige 10n HCl aufgenommen. Die restlichen Schritte verlaufen wie für die Filter-Proben, da die sonstigen Bestandteile der Kruste mit dem Chrom durch die oben beschriebene Ionenchromatographiesäule laufen.

Die erfolgreichste Isobaren-Unterdrückung wird aber bei entsprechender Probenwahl von der Natur unterstützt (vgl. Kapitel 4). In dem Kapitel 4 werden auch die durch diese Chemie ermöglichten Messungen dargestellt und diskutiert.

Nachweis-Empfindlichkeit Anschließend an den Abschnitt, der die Chrom-Unterdrückung zum Gegenstand hat, soll das Resultat all dieser Maßnahmen zur Steigerung der Empfindlichkeit der ^{53}Mn -Messung evaluiert werden.

Durch die systematische Reduzierung des Chromgehalts in den Proben und deren Probenhaltern sowie eine Optimierung des GAMS-Gasdrucks und des

¹⁷Merck pro analysi

GAMS-Magnetfeldes wurde eine Erhöhung der Empfindlichkeit ¹⁸ von ca. $5 \cdot 10^{-11}$ auf ca. $2 \cdot 10^{-13}$ erreicht.

Nachweis-Effizienz Neben der Empfindlichkeit ist aber auch die zur Messung minimal benötigte Probenmenge von Bedeutung. Diese definiert sich aus der minimalen Anzahl von ^{53}Mn -Atomen, die in einer Probe benötigt werden, um ein Ereignis im Detektor zu erzeugen. Auch sie konnte durch eine Verbesserung der Probenaufbereitung gesteigert werden. So bringt z.B. die Reduzierung des Untergrundes eine Senkung der Zählrate im Detektor mit sich, die die Zählertotzeit verkleinert.

Diese minimale Anzahl von Mangan-Atomen soll nun abgeschätzt werden:

- Die Quelleneffizienz E beschreibt, wieviele Mangan-Atome in der Probe benötigt werden, um ein von uns verwendetes Molekül als negatives Ion aus der Quelle zu erhalten. Für MnO^- -Ionen aus Mangan(IV)oxid-Targetmaterial ergibt sich diese Effizienz zu 0,5% [33].
- Die Transmission T beschreibt, wie viele MnO^- -Ionen in den Tandem eingebracht werden müssen, um unter Berücksichtigung der Strippausbeuten und der Verluste entlang des Strahlenganges ein Mangan-Ion definierten Ladungszustandes bis zum GAMS zu bekommen. Bei den von uns verwendeten Mn^{13+} -Ionen erhalten wir ca. 2000 ppm.

Daraus läßt sich direkt die gesamte Effizienz berechnen. Ihr Kehrwert ergibt die benötigte Anzahl für ein nachzuweisendes ^{53}Mn -Ion. Setzt man nun 100 detektierbare Ereignisse für eine Messung als minimal voraus, so erhält man die Anzahl der benötigten ^{53}Mn -Ionen N_{53} zu

$$N_{53} = \frac{100}{E \cdot T} \approx 10^7 \quad (2.4)$$

Erst diese beiden Bedingungen, ausreichende Nachweis-Empfindlichkeit und Nachweis-Effizienz, ermöglichen die Durchführbarkeit der in den folgenden Kapiteln beschriebenen ^{53}Mn -Messungen.

¹⁸Nachweisgrenze mit zwei Möglichkeiten der Auslegung: Konzentration, bei der pro Stunde mindestens ein Ereignis registriert werden kann, oder Konzentration, ab der der Untergrund die Meßsignale überdeckt; beide wurden mit der angegebenen Grenze erreicht.

Kapitel 3

Messung von ^{53}Mn in Meteoritenproben

Für Meteorite mit langen, einfachen Bestrahlungsgeschichten sind die Messungen der Radionuklidkonzentrationen von ^{26}Al und ^{10}Be im Zusammenwirken mit anderen Methoden, wie z.B. der Bestimmung der Isotopenverhältnisse der Edelgaskonzentrationen, bereits sehr aussagekräftig.

Bei komplexen oder kurzen Bestrahlungszeiten, in denen noch keine Sättigung der Radionuklidkonzentrationen erreicht werden konnte, reichen diese Methoden allein allerdings nicht aus, um die Vielzahl der gerade in diesen Proben enthaltenen Informationen zu verstehen.

In der Tabelle 3.1 sind die 12 Einzelproben mit dem von uns ermittelten $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnis und dem jeweiligen Fehler aufgeführt. Alle in der Folge beschriebenen BMS-Analysen von Meteoritenproben wurden relativ zu einer Normprobe¹ gemessen, deren $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnis mit Hilfe der Neutronenaktivierungsanalyse zu $4,438 \pm 0,22 \cdot 10^{-9}$ bestimmt worden ist [44]. Als Beispiel einer der 12 Einzelmessungen an Meteoriten soll exemplarisch die des Meteoriten Acfer 287 diskutiert werden.

3.1 ^{53}Mn -Messungen an Einzelproben

Einleitung Bei kurzen Bestrahlungszeiten kann es schwierig sein, die gemessenen Daten überhaupt mit den Simulationsrechnungen in Einklang zu bringen. Der vor ca. 2900 a in Libyen niedergegangene Meteorit Acfer 287 ist ein typisches Beispiel solcher Komplikationen.

Seine gemessenen relativen ^{26}Al - und ^{10}Be -Aktivitäten liegen deutlich unter

¹Normprobe: Eisen-Meteorit Sikhote-Alin, 1947 in Sibirien niedergegangen [3]

Meteorit	$^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ (10^{-10})	^{53}Mn ($\frac{\text{dpm}}{\text{kgFe}}$)	Meteorit	$^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ (10^{-10})	^{53}Mn ($\frac{\text{dpm}}{\text{kgFe}}$)
Acfer 217	$16,7 \pm 3,2$	328 ± 63	Emery	$10,9 \pm 2,0$	371 ± 68
Acfer 287	$4,8 \pm 1,1$	82 ± 20	Dhurmsala	$9,8 \pm 2,1$	575 ± 137
Allende	$14,3 \pm 2,8$	531 ± 104	Illafegh 009	$7,4 \pm 2,1$	132 ± 37
Dar al Gani 13	$7,8 \pm 1,8$	264 ± 61	Murchison	$7,4 \pm 2,1$	166 ± 47
Dar al Gani 55	$2,7 \pm 1,0$	90 ± 33	Rincon	$6,8 \pm 1,8$	220 ± 60
Dar al Gani 84	$2,5 \pm 0,8$	148 ± 47	Duchesne	$113,0 \pm 17$	587 ± 90

Tabelle 3.1: Meteoriten-Einzelmessungen: Es wird jeder Meteorit mit seinem $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnis sowie der relativen ^{53}Mn -Aktivität und dem jeweiligen Fehler angegeben. Der Fehler ergibt sich aus 15% systematischem und dem statistischen Fehler der Einzelmessung.

den für diese Klasse² von Meteoriten üblichen. Trägt man die relativen Aktivitäten gegeneinander auf (vgl. Abbildung 1.10), so lassen sich diese Ergebnisse innerhalb ihrer Fehlergrenzen nur mit der Lage auf einer simulierten Relation vereinbaren, wenn man von einem ungewöhnlich kurzen Bestrahlungsalter ausgeht. Eine mit den Meßwerten vereinbare Simulationsrechnung für ein Bestrahlungsalter von $3 \cdot 10^6$ Jahren ist in Abbildung 3.1 oben gezeigt: Damit ergibt sich ein präatmosphärischer Radius zwischen 10 und 15 cm mit einer präatmosphärischen Tiefe von nur wenigen Zentimetern.

Dieser Meteorit wurde analysiert, da die ^{53}Mn -Konzentration nach $3 \cdot 10^6$ Jahren noch weniger als die Hälfte seiner Sättigungsaktivität beträgt und damit in einem Bereich liegt, der sehr empfindlich für das Bestrahlungsalter ist (vgl. Abb. 1.9).

Ergebnis Das Ergebnis der Messung zeigt ein $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnis von $4,8 \pm 1,1 \cdot 10^{-10}$.

Umgerechnet in die relative ^{53}Mn -Aktivität wird sie in Abbildung 3.1 unten gegen die präatmosphärische Tiefe aufgetragen.

Die sehr niedrige relative ^{53}Mn -Aktivität von 82 ± 20 dpm/kg Fe bestätigt die kurze Bestrahlungsdauer. Die Messung ist in sehr guter Übereinstimmung mit einem Meteoroidenradius zwischen 10 und 15 cm bei einer oberflächennahen präatmosphärischen Tiefe (vgl. Abb. 3.1 unten).

Zum einen zeigt diese Messung die Übereinstimmung der Monte-Carlo-Rechnungen für kleine Meteoroidenradien mit den experimentellen Ergebnissen. Eine Aussage über die tatsächlich richtige Beschreibung des Wertes läßt sich allerdings wegen der starken Änderung der relativen Aktivität in Oberflächennähe nicht treffen. Zum anderen ist, wenn man den Stromver-

²Der Acfer 287 Meteorit gehört zu den Steinmeteoriten (Enstatit Chondrit [30]).

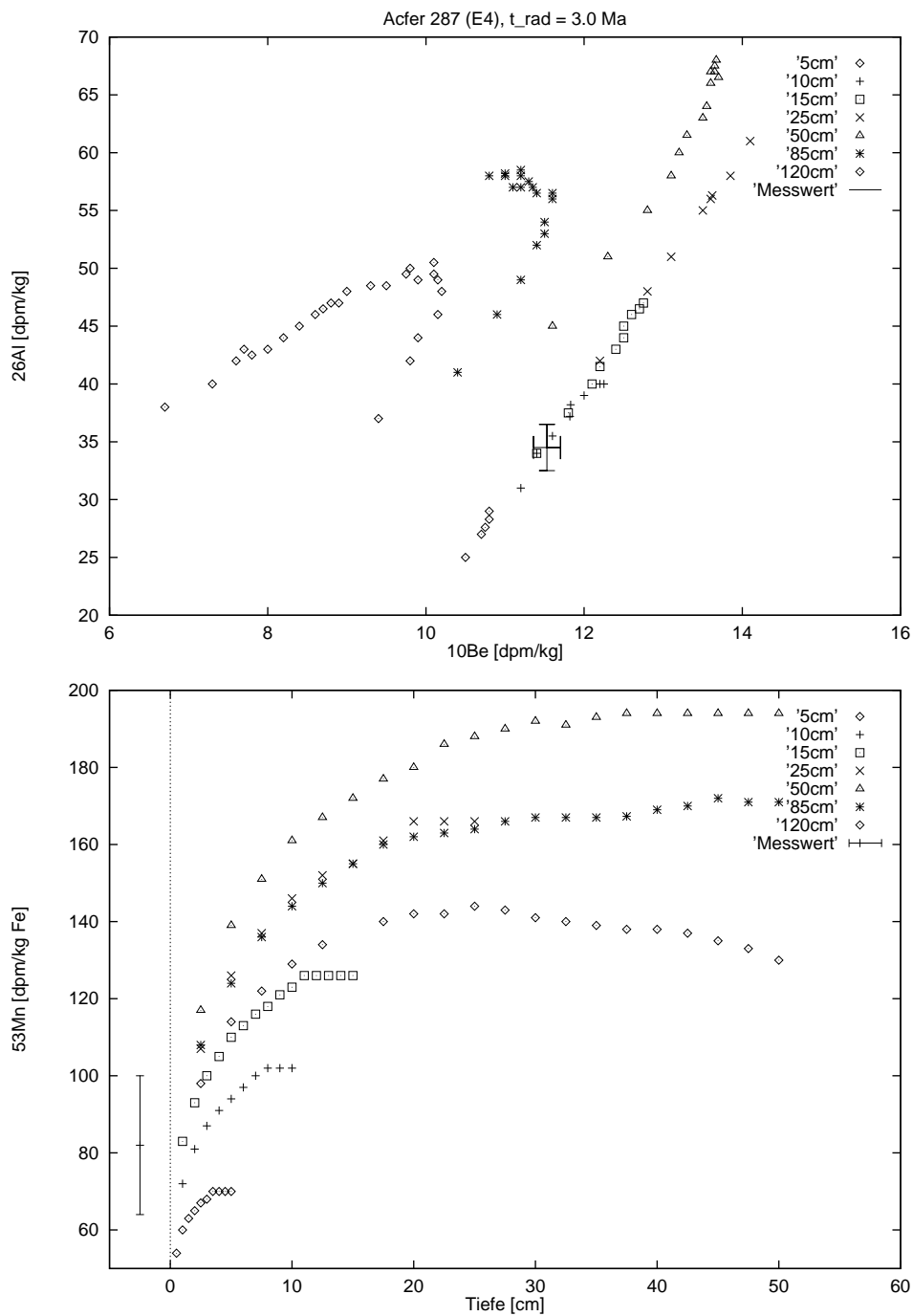


Abbildung 3.1: Monte-Carlo-Simulationsrechnungen für ein Bestrahlungsalter von $3 \cdot 10^6$ Jahren von Meteoroiden verschiedener Radien mit einer chemischen Zusammensetzung gleich der des Meteoriten Acfer 287. Oben: Eingezeichnet wurde die gemessene relative Aktivität für ^{26}Al und ^{10}Be . Unten: Eingezeichnet wurde die gemessene relative ^{53}Mn -Aktivität links neben das gerechnete Tiefenprofil der Meteoroiden [44]

brauch und den Zeitaufwand berücksichtigt, ersichtlich, daß die ^{53}Mn -BMS-Messung mit dem GAMS zum ersten Mal die Möglichkeit bietet, Meteoritenproben routinemäßig zu analysieren. Die Messung eines solchen aufgrund der kurzen Bestrahlungszeit niedrigen $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnisses³ von ca. $5 \cdot 10^{-10}$ kann nun bei typischen Ionenströmen von 50 nA in ca. 15 min durchgeführt werden.

3.2 ^{53}Mn -Tiefenprofil eines Meteoritenschauers

Könnten beliebig genaue Rechnungen und Messungen durchgeführt werden, so wären bereits drei BMS-Radionuklidmessungen für die Informationen zur Bestrahlungsdauer, präatmosphärischen Größe und Tiefe ausreichend. Überprüfen läßt sich die Genauigkeit der Rechnungen nur schwer innerhalb einer einzelnen Probe. Ob widersprüchliche Radionuklidmessungen zu Modifikationen in den Modellrechnungen führen müssen oder durch besondere Umstände von einzelnen Meteoroiden hervorgerufen worden sind (z.B. ein wiederholtes Aufbrechen des Meteoroiden im All und damit eine komplexe Bestrahlungsgeschichte), ist eine fundamentale Frage für die ^{53}Mn -Simulationen ebenso wie für die der anderen Radionuklide.

Um möglichst viele miteinander vergleichbare Werte zu erhalten, sind mehrere Messungen zu demselben Meteoroiden, wenn möglich ein Tiefenprofil, nötig.

Einleitung Am 14. August 1992 ging ein Meteoritenschauer in einem schwach besiedelten Gebiet ($1^{\circ}04'\text{N}$, $34^{\circ}10'\text{O}$) vor der Stadt Mbale in Uganda nieder [47]. Augenzeugen berichteten von einer bombenähnlichen Explosion, die zu einer Rauchspur und zu einer dichten Staubwolke führte. Ein Gebiet von ca. $3 \times 7 \text{ km}^2$ wurde von einem Steinhagel übersät, mehrere Gebäude und ein Mensch von einem Bruchstück getroffen [48]. Insgesamt wurden durch Einheimische und eine niederländische Expedition [47] 863 Bruchstücke sichergestellt. Mit einer Größe zwischen 0,1 g und 27 kg (vgl. Abbildung 3.2) besitzen die Fundstücke eine Gesamtmasse von ca. 150 kg.

Eine Vielzahl bereits vorgenommener Messungen ergeben für sich zumeist konsistente Bilder, widersprechen sich aber teilweise gegenseitig [44]. Die ^{53}Mn -Messung kann zur Aufklärung der Situation beitragen sowie die durch Monte-Carlo-Simulationen erhaltenen Werte für das ^{53}Mn -Tiefenprofil überprüfen.

³Verhältnis $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ in 200 mg Meteorit nach 2 mg Trägerzugabe

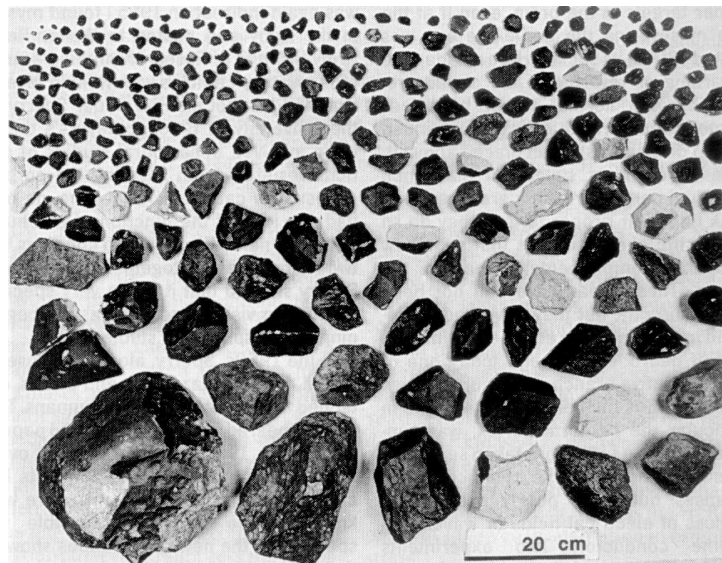


Abbildung 3.2: *Sammlung von Bruchstücken des Mbale Meteoriten. Die größte Masse (27,4kg) wird unten links, die kleinste (0,1g) oben links gezeigt [48].*

Experimentelles Vorgehen Von den 863 Bruchstücken wurden neun ausgewählt. Von ihnen wurden jeweils ca. 150 mg Proben zur BMS-Analyse herangezogen. Durch ^{26}Al -BMS-Messungen des PSI/ETH Zürich läßt sich auf eine Bestrahlungszeit von ca. $28 \cdot 10^6$ a eines Meteoroiden mit einem Radius zwischen 30 und 40 cm schließen. Sechs von diesen neun Proben sind bereits mit mehreren Methoden (z.B. zwei mit cosmic ray tracks⁴) auf ihre präatmosphärische Tiefe untersucht [44].

Die chemische Aufarbeitung der Proben erfolgte in Köln.

Die Proben wurden, um die Reproduzierbarkeit der Daten zu belegen, mehrmals in unterschiedlichen Meßzeiten analysiert.

Ergebnisse Die Mittelwerte der insgesamt 22 BMS-Einzelmessungen der $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ - Konzentrationen in den neun Proben sind in Tabelle 3.2 angegeben. Die Messungen wurden in zwei verschiedenen Strahlzeiten durchgeführt.

Die angegebenen Fehler enthalten für jede Einzelmessung 15% systematischen Fehler unserer BMS-Anlage sowie den statistischen Fehler der Messungen. Fehler in der chemischen Aufarbeitung sind nicht berücksichtigt. Bis auf

⁴Cosmic ray tracks: Mittels Ätzen können Rückstoßspuren der kosmischen Strahlung (vor allem der Teilchen mit $Z > 1$) in den Meteoriten sichtbar gemacht und gezählt werden. Ihre Dichte ist ein Maß für die gemittelte Abschirmtiefe bei bekannter Bestrahlungsgeschichte [49].

Meteorit	$^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ (10^{-10})	^{53}Mn ($\frac{\text{dpm}}{\text{kgFe}}$)	Meteorit	$^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ (10^{-10})	^{53}Mn ($\frac{\text{dpm}}{\text{kgFe}}$)
Mbale 20	$8,9 \pm 1,4$	447 ± 72	Mbale* 3	$5,4 \pm 1,3$	268 ± 46
Mbale 50	$10,0 \pm 1,6$	425 ± 68	Mbale* 13	$14,5 \pm 2,2$	718 ± 115
Mbale 248	$10,0 \pm 1,5$	577 ± 87	Mbale* 246	$9,3 \pm 1,4$	507 ± 77
Mbale 15	$9,3 \pm 1,5$	461 ± 74	/		
Mbale 268	$16,3 \pm 2,5$	667 ± 100	/		
Mbale 33	$6,9 \pm 1,1$	421 ± 67	/		

Tabelle 3.2: $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Konzentrationen in den neun Proben des Mbale Meteoriten. Die Proben nicht bestimmter präatmosphärischer Tiefe wurden mit * gekennzeichnet.

einen Meßwert liegen alle Einzel-Ergebnisse innerhalb dieser Ungenauigkeit und zeigen somit die gute Reproduzierbarkeit.

Rechnet man die Konzentrationen bei bekannter chemischer Zusammensetzung der Einzelbruchstücke auf das Verhältnis ^{53}Mn -Aktivität pro kg ursprünglich vorhandenes Eisen um (vgl. Abschnitt 1.3.1), so kann man diese Werte mit den Monte-Carlo-Simulationsergebnisse direkt vergleichen. Dies wurde für die sechs Proben bereits bekannter Tiefe, wie in Abbildung 3.3 gezeigt, durchgeführt.

Die Mittelwerte der Einzelmessungen sind mit ihren Fehlerbalken aufgeführt. Die gestrichelte Linie stellt eine Leitlinie für die Augen dar. Die drei Proben noch nicht bestimmter präatmosphärischer Tiefe wurden links neben dem Tiefenprofil eingezeichnet.

Damit liegt das erste ^{53}Mn -Tiefenprofil vor, das mit der BMS erstellt werden konnte.

Die in Abbildung 3.3 dargestellte Kurve ist mit den 1σ -Fehlerbalken der Messungen in Einklang zu bringen. Eine mögliche Interpretation dieses Kurvenverlaufes ist:

Ein Ansteigen der Kurve mit der Tiefe läßt sich mit dem Aufbau des Sekundärteilchenflusses erklären (vgl. Abb. 3.4).

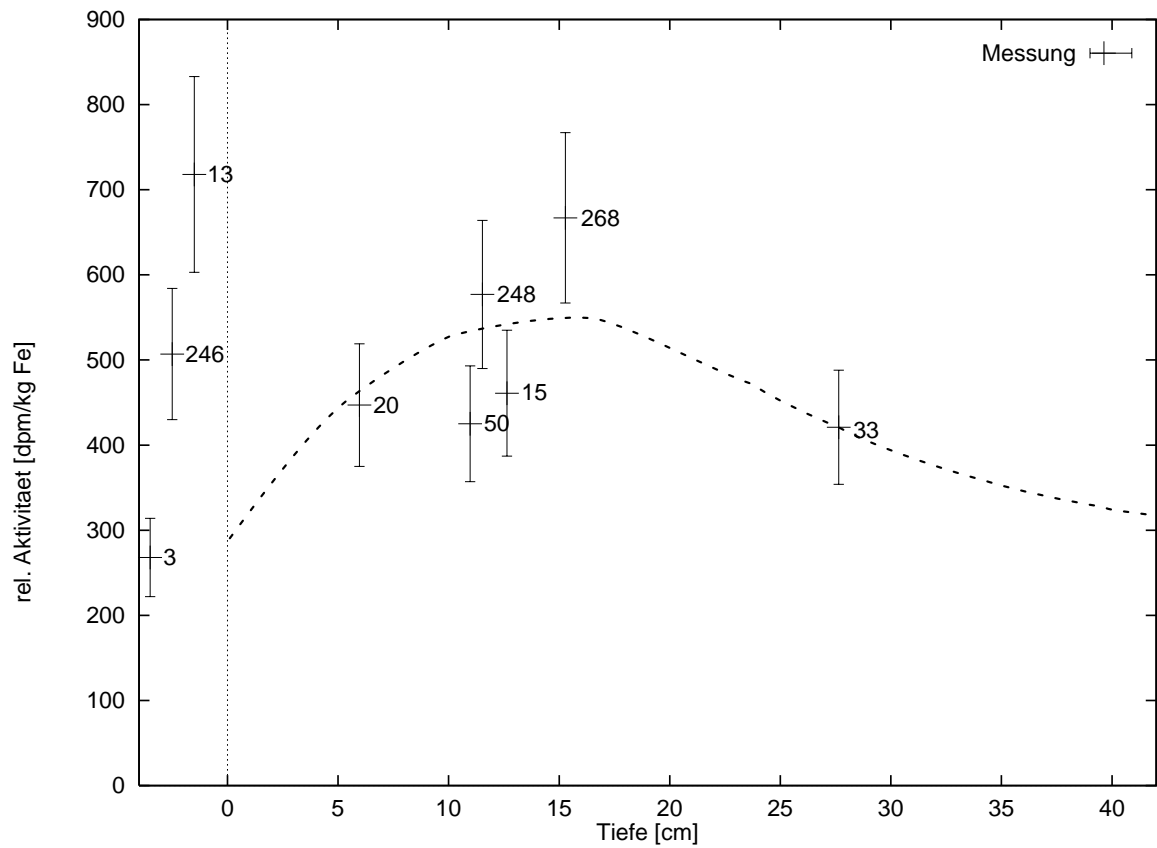
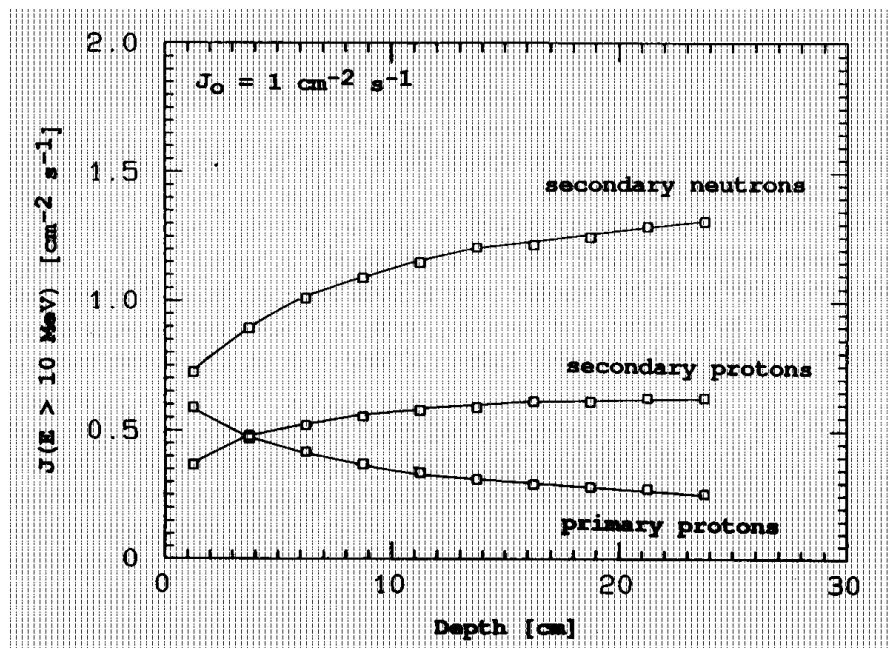


Abbildung 3.3: Tiefenprofil der sechs Mbale Meteoritenbruchstücke. Aufgetragen wurde die aus BMS-Messungen bestimmte relative ^{53}Mn -Aktivität gegen die präatmosphärische Tiefe. Die Mbale-Proben ohne bis jetzt erfolgte Tiefenbestimmung sind links neben dem Tiefenprofil aufgeführt.



Abbildungung 3.4: Protonen- und Neutronenflußdichte in einem künstlichen Steinmeteoroiden, erzeugt durch isotropen Protonenbeschuß mit 1,6 GeV, normiert auf eine primäre Protonenflußdichte von $1 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [11].

Die hochenergetische galaktische Komponente der kosmischen Strahlung kann wegen ihrer Abnahme mit der Tiefe nicht direkt dafür verantwortlich gemacht werden. Ein weiterer tiefenabhängiger Effekt ist notwendig, um die Abnahme der relativen ^{53}Mn -Aktivität in ca. 17 cm Tiefe zu erklären. Da zwischen 16 und 28 cm keine weiteren Meßpunkte existieren, stellt der gezeigte Verlauf bei 17 cm lediglich die signifikante Abnahme dar. Eine mögliche Erklärung hierfür könnte sein, daß der Sekundärteilchenfluß zwar in dieser Tiefe nahezu konstant bleibt (vgl. Abbildung 3.4), sein Energiespektrum sich aber mit zunehmender Wegstrecke durch das Medium zu höheren Energien hin verschiebt. Liegt das Maximum des Wirkungsquerschnittes bei niedriger Energie, so wäre die ^{53}Mn -Konzentration so lange mit zunehmender Tiefe ansteigend, bis die niederenergetischen sekundären Protonen weggedämpft sind. Diese Energieabnahme muß sich nicht zwangsläufig in Abbildung 3.4 widerspiegeln, da hier lediglich der Fluß für Teilchen oberhalb einer Schwellenenergie von 10 MeV aufgetragen ist; außerdem wurden diese Ergebnisse durch monoenergetischen Beschuß erhalten. Mit dem schnellen Verlust der niederenergetischen sekundären Protonen kann eine frühe Reduktion der Produktionsrate erklärt werden. Die Aktivität der Probe Mbale 33 würde dann vor allem von den sekundären Neutronen herrühren.

Der in dieser Arbeit gemessene ^{53}Mn -Aktivitätsverlauf stellt ein mit den Monte-Carlo-Simulationen nur schwer vereinbares Ergebnis dar (vgl. Abb. 3.5).

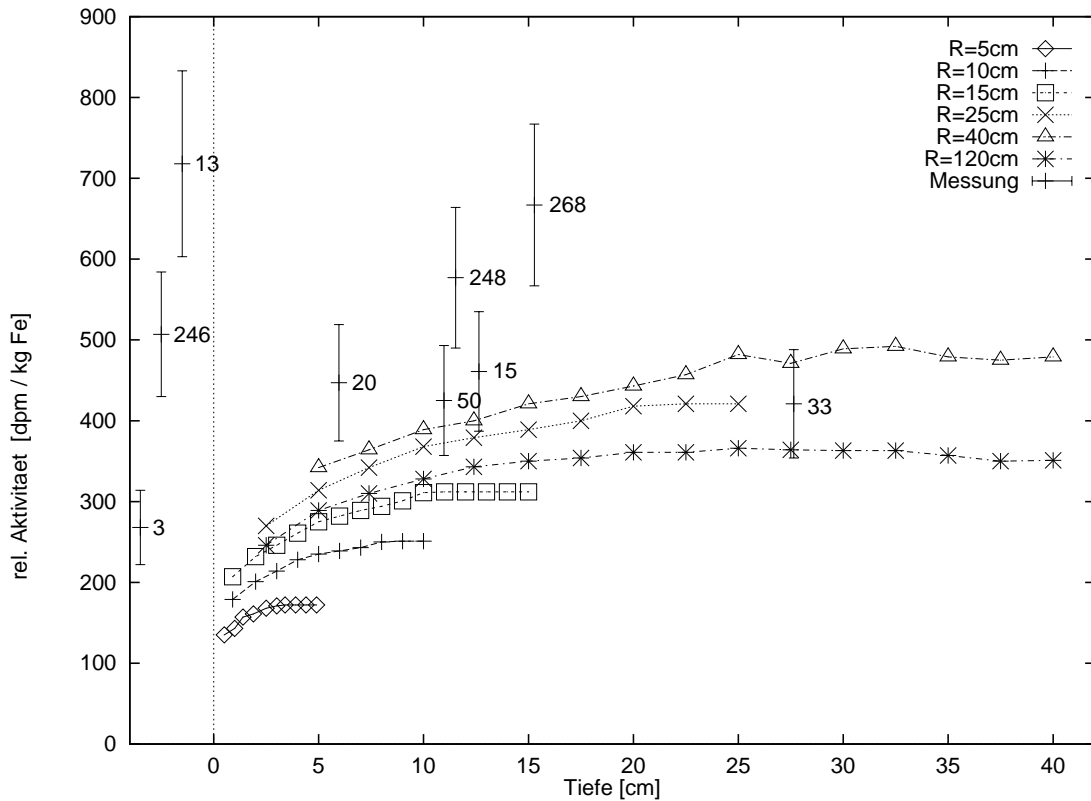


Abbildung 3.5: ^{53}Mn -Tiefenprofil nach Monte-Carlo-Simulationen für den Mbale Meteoroiden. Aufgetragen wurden die aus BMS-Messungen bestimmte relative ^{53}Mn -Aktivität sowie die gerechneten Werte für unterschiedliche Meteoroidenradien gegen die präatmosphärische Tiefe.

Die Abweichungen werden einzeln beschrieben:

- Mindestens zwei Werte, Mbale 248 und Mbale 268, können aufgrund einer um ca. 50% erhöhten Aktivität weder mit der Simulation für einen 40 cm Meteoroiden noch mit einer Simulation für ein beliebig großes Objekt dieser chemischen Zusammensetzung und dieses Bestrahlungsalters vereinbart werden. Es sollte nach den Simulationen gar nicht möglich sein, eine relative ^{53}Mn -Aktivität in diesen Meteoroiden von mehr als 500dpm/kg Fe zu erzeugen.

Eine noch höhere Aktivität wurde in Mbale13 gemessen. Dies unterstreicht die Aussage zur Messung des Mbale 268 und Mbale 248.

Damit ist in fünf Einzelmessungen eine Aktivität ermittelt worden, die deutlich über der rechnerisch möglichen Grenze liegt.

Im Bereich von 5 bis 15 cm Tiefe sind die gemessenen relativen Aktivitäten deutlich höher als die berechneten. Die gemessenen Werte liegen aber nicht lediglich um einen konstanten Faktor höher.

- Die relative Aktivität des Mbale 33 in ca. 28 cm Tiefe stimmt zwar, isoliert gesehen, mit den in diesem Bereich nahezu konstante Werte liefernden Modellrechnungen überein, ist aber relativ zu den gerade angesprochenen Messungen deutlich zu niedrig. Die Produktionsrate kann allerdings bei zunehmender Tiefe aufgrund von Abschirmeffekten wieder abnehmen. Dieser Effekt sollte aber bedeutend schwächer sein und erst bei Meteoritenradien über 65 cm auftreten [24] (vgl. Simulationen in Abbildung 3.5). Der Radius des Mbale Meteoroiden ist aber zusätzlich wegen der Streufeldgröße von 3.7 km^2 und des niedergegangenen Meteoritenanteils von weniger als 200 kg auf definitiv kleiner als 40 cm beschränkt [47].

Die Probe Mbale 3, für die keine Tiefeninformation verfügbar ist, weist eine noch geringere relative Aktivität auf. Verglichen mit den sonstigen Ergebnissen läßt dieser Wert zwei mögliche präatmosphärische Positionen zu: entweder an der Oberfläche des ursprünglichen Meteoroiden, in dem Bereich, in dem sich der Sekundärteilchenfluß noch nicht voll ausbilden konnte oder aber noch tiefer und besser abgeschirmt gelegen als die Probe Mbale 33.

Zum einen sind oberflächennahe Proben des Mbale kaum zu erwarten, da alle Bruchstücke mit einer Schmelzkruste überzogen sind, also einen Großteil ihres Oberflächenmaterials und damit auch die des ursprünglichen Mbale Meteoroiden beim Durchflug durch die Atmosphäre verloren haben. Zum anderen sind die ^{26}Al und ^{10}Be -Werte für diese Probe nochmals beide höher als für alle anderen Proben. Bei ^{26}Al und ^{10}Be spricht dies einheitlich dafür, dieser Probe die größte Tiefe zuzuordnen. Sie stammt also (vgl. Abb. 3.5) in Übereinstimmung mit der ^{53}Mn -Messung, aus einer Tiefe von mehr als 30 cm.

Die Proben Mabale 3 und Mabale 33 bestätigen das simulierte Tiefenprofil in einem Bereich, in dem die ^{53}Mn -Produktion durch sekundäre Neutronen dominiert wird.

- Die relativen ^{10}Be -Aktivitäten zeigen für die Proben Mbale 50, Mbale 248, Mbale 15 und Mbale 268 Abweichungen von dem errechneten monotonen Kurvenverlauf, die in Richtung und Betrag mit dem von

uns gemessenen Verlauf der ^{53}Mn -Aktivität übereinstimmen. Das legt für diese beiden Radionuklide eine andere Reihenfolge der Proben mit zunehmender Tiefe nahe. Durch die ^{26}Al -Daten wird dies aber nicht bestätigt.

Die relativen Radionuklid-Aktivitäten liefern kein konsistentes Bild der Probenabfolge.

Ein Teil dieser Widersprüche kann durch die Annahme einer stark von der Kugelform abweichenden Geometrie des Mbale Meteoroiden erklärt werden. Die Modellrechnungen gehen dagegen von näherungsweise kugelförmigen Meteoroiden aus.

- Mit einer nicht kugelsymmetrischen Form würde z.B. verständlich, warum die Informationen aus cosmic-ray-tracks Messungen einen falschen Eindruck der Tiefe einer Probe vermitteln. Die Ätzspuren geben zwar ein richtiges Bild des integralen Flusses der hochenergetischen primären ^4He -Kerne und damit ein gutes Bild des primären Flusses wieder. Allerdings müßten die Berechnungen für den für die Radionuklidproduktion viel entscheidenderen sekundären Protonen- und Neutronenfluß, dem die Proben ausgesetzt waren, stark von der Realität abweichen.

Wenn z.B. ein kleiner, aber stark elliptisch geformter Meteoroid bestrahlt wird, so würde eine Probe, die entlang der kleinen Halbachse positioniert wäre, einerseits vielen primären Teilchen der galaktischen Komponente der kosmischen Strahlung ausgesetzt sein und damit eine große Dichte an cosmic-ray-tracks aufweisen. Andererseits aber könnte er trotzdem einem starken sekundären Teilchenfluß entlang der großen Halbachse unterworfen sein. Damit wird verständlich, warum die einzelnen Radionuklide, die unterschiedlich von dem Sekundärteilchenfluß abhängen, für eine nicht berücksichtigte komplizierte Meteoroidengeometrie kein gemeinsames schlüssiges Bild liefern. Sie können dann sogar unterschiedliche Probenreihenfolgen vermuten lassen.

Die Annahme der asymmetrischen Form des Meteoroiden kann aber nicht allein für die Abweichungen der Rechnungen von den Meßergebnissen verantwortlich gemacht werden. Das Problem der um ca. 50% überhöhten ^{53}Mn -Aktivität für mehrere Proben bleibt bestehen.

- Da für diese Simulationen von einer Bestrahlungszeit des Mbale Meteoroiden von $28 \cdot 10^6$ a ausgegangen wurde, kann die relative Aktivität nicht durch einen Fehler dieser Größe hervorgerufen worden sein. Die Produktionsrate muß dann bereits im Gleichgewicht mit dem

natürlichen Zerfall gewesen sein, der Meteoroid sich somit rechnerisch in Sättigung befunden haben (vgl. Abb. 1.9). Eine tatsächlich längere Bestrahlungszeit von mehr als diesen $28 \cdot 10^6$ a kann also nicht zu einer höheren Aktivität führen.

- Durch die Zugabe einer geringer als angenommenen Menge ^{55}Mn als Trägermaterial kann ein erhöhtes $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnis vorgetäuscht werden, doch würde sich dies bei der genau kontrollierten Ausbeute bemerkbar machen.
- Ein Fehler in der Bestimmung des Eisengehalts der Proben hätte auf die relative Aktivität des ^{53}Mn pro kg Eisen einen doppelten Einfluß. Einerseits z.B. durch einen in Wirklichkeit höheren Eisengehalt der Proben. Durch die Annahme eines geringeren Eisengehalts erhöht man damit die relative ^{53}Mn -Aktivität (in dpm/kg Fe). Andererseits ergibt sich nochmals ein vergleichbarer Fehler durch die abweichende Berechnung des Sekundärteilchenflusses. Allerdings ist dieser Fehler, bei der Sorgfalt der Probenaufbereitung, nahezu auszuschließen.
- Die größte Unsicherheit liegt in den nicht experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitten der hier auftretenden Energiebereiche. Gegenwärtig gibt es lediglich Rechnungen zur Bestimmung des Produktionswirkungsquerschnitts von ^{53}Mn . Diese können aber durchaus um mehr als einen Faktor fünf falsch sein [50]. Eine Unterschätzung der Wirkungsquerschnitte bei der Produktion von ^{53}Mn mit sekundären Protonen um einen Faktor 1,5 verschiebt die Monte-Carlo-Simulationsergebnisse aber schon in den tatsächlich gemessenen Bereich.

Zusammenfassend lassen sich die Ergebnisse der ^{53}Mn -Messungen an Meteoriten-Proben in zwei Bereiche unterteilen:

- Im Falle des Meteoroiden Mbale kann gesagt werden, daß die verwirrenden relativen ^{26}Al - und ^{10}Be -Ergebnisse keine konsistente Deutung der jeweiligen Tiefenprofile erlauben. Nach den gegenüber Abweichungen von der Modellvorstellung sensiblen ^{53}Mn -Messungen läßt sich nun mit großer Wahrscheinlichkeit auf eine stark asymmetrische Form des Meteoroiden Mbale schließen.

Für die Proben Mbale3 und Mbale33 lassen die geringen relativen ^{53}Mn -Aktivitäten allein einen oberflächen- oder einen zentrumsnahen präatmosphärischen Bereich vermuten. Im Vergleich mit den hohen relativen ^{26}Al und ^{10}Be -Aktivitäten ergibt sich die Lage in mehr als 27cm Tiefe.

- Zu den Modellrechnungen müssen mehrere Aussagen gemacht werden.

Die Modellrechnungen für tiefe Proben liefern bereits mit den Meßwerten vereinbare Ergebnisse. Dies deutet auf eine gute Beschreibung der ^{53}Mn -Produktion durch sekundäre Teilchen, vor allem Neutronen, hin. Diese Schlußfolgerung sieht man auch in den ^{53}Mn -Einzelmessungen für tiefe Proben anderer Meteoriten bestätigt.

Die Übereinstimmung für oberflächennahe Proben ist, wie am Beispiel Acfer 287 demonstriert, gegeben (vgl. Abschnitt 3.1). Allerdings können Probleme in den Modellrechnungen hier nur schwer aufgedeckt werden, da durch den raschen Aufbau des Sekundärteilchenflusses auf mehr als 50% innerhalb des ersten Zentimeters (vgl. Abb. 3.4) die relative Aktivitätsänderung in diesem Bereich sehr groß ist.

Für komplexere Formen oder Bestrahlungsgeschichten sind die ^{26}Al - und ^{10}Be -Messungen, auch im Zusammenspiel mit anderen Messungen, nicht ausreichend, die ^{53}Mn -Messung dagegen ist, wie eben dargestellt, unabdingbar.

Für den Wirkungsbereich der sekundären Protonen dagegen ist die experimentelle Untersuchung der ^{53}Mn -Wirkungsquerschnitte nach diesen Messungen unerlässlich. Hierzu fehlte bisher eine brauchbare Meßmethode. Die wenigen existierenden Neutronenaktivierungsmessungen mußten in die bis jetzt vorliegende Modellvorstellung mit eingebracht werden und erlauben somit keine objektive Überprüfung der Monte-Carlo-Simulationen. Die von uns gemessenen Werte zu den Einzelmeteoriten sowie zum Mbale-Tiefenprofil führen im Vergleich mit den relativen ^{26}Al - und ^{10}Be -Aktivitäten bereits zu einer erheblichen Erweiterung der verfügbaren Datenbasis.

Die zur experimentellen Bestimmung der Produktionswirkungsquerschnitte notwendigen Bestrahlungen von Eisen mit Protonen wurden bereits durchgeführt [44]. Das daraus resultierende $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnis und damit die interessanten Wirkungsquerschnitte können nun von uns bestimmt werden.

Kapitel 4

Messung von ^{53}Mn in Staubproben

Die Hauptschwierigkeit, extraterrestrischen Staub zu identifizieren, liegt in der Unterscheidung vom terrestrischen Material, in dem er stark verdünnt vorliegt.

Es wurde bereits abgeschätzt, daß für BMS-Messungen eine minimale Anzahl von 10^7 ^{53}Mn -Atomen notwendig ist (vgl. Kapitel 2). Um die minimal notwendige Probenmenge abschätzen zu können, benötigt man einerseits Informationen zu dem terrestrischen Materialeintrag, der den extraterrestrischen Staubeintrag in das Archiv verdünnt, andererseits muß man den Anteil des ^{53}Mn am extraterrestrischen Staubfluß kennen. Zu dessen Berechnung verwenden wir die in Abschnitt 1.3.2 eingeführten Daten.

Mit ihnen läßt sich die Anzahl der pro Jahr und Quadratmeter auf die Erde niedergehenden ^{53}Mn -Atome bestimmen.

Die von Tanaka et al. [15] berechnete relative ^{53}Mn -Aktivität beträgt 850 dpm/kg Staub. Dies entspricht einer Gesamtzahl von $2,3 \cdot 10^{15}$ ^{53}Mn -Atomen pro kg Staub. Mit dem extraterrestrischen Materialeintrag von $14 \cdot 10^6$ kg/a ergibt sich eine Zahl von jährlich $3,2 \cdot 10^{22}$ ^{53}Mn -Atomen, die sich auf die Erdoberfläche von ca. $5,1 \cdot 10^{14}$ m² niederschlagen. Daraus folgt, bei in erster Näherung isotropem Einfall, eine mittlere extraterrestrische ^{53}Mn -Flußdichte von

$$6,3 \cdot 10^7 \text{ } ^{53}\text{Mn m}^{-2}\text{a}^{-1}.$$

Abhängig von der jeweiligen Akkretionsrate am Probenentnahmeort ergibt sich somit, mit der minimal notwendigen Anzahl an ^{53}Mn -Atomen, die benötigte Probenmasse. Die folgende Abschätzung soll für den Einzelfall klären, ob der Nachweis von extraterrestrischen ^{53}Mn -Atomen in grönländischem¹ Eis bzw. in Tiefseesedimenten möglich ist.

¹In antarktischem Eis konnte aufgrund einer um mehr als einen Faktor 6 niedrigeren

Mit der Messung von ^{53}Mn -Atomen in grönländischem Eis und Tiefseesedimenten könnten die gespeicherten Informationen über extraterrestrische Materie und die wiederum in ihr gespeicherten Informationen über die solare Komponente der kosmischen Strahlung der letzten 10^5 bzw. ca. $15 \cdot 10^6$ a zugänglich gemacht werden (vgl. Abschnitt 1.4.2).

4.1 ^{53}Mn in grönländischem Eis

Die Auswahl des Probenentnahmeortes, welcher geringen terrestrischen Untergrund und zugleich niedrige Niederschlagswerte aufweisen sollte, um den extraterrestrischen Staub möglichst wenig zu verdünnen, erfolgte nach unterschiedlichen Kriterien.

Grönland ist dabei aus mehrerlei Hinsicht interessant. Zunächst erfüllt es die oben genannten Kriterien aufgrund seiner geographischen Lage. Weiterhin existieren noch keine ^{53}Mn -Messungen in grönländischem Eis, da die Empfindlichkeit bisher verwendeter Meßmethoden nicht ausreichend, bzw. eine Realisierung der Probengewinnung zu aufwendig gewesen wäre. Der mit ausschlaggebende Gesichtspunkt ist allerdings, daß uns die Kollaboration mit dem Alfred-Wegener-Institut in Bremerhaven die Möglichkeit eröffnet, an grönländische Eisproben zu gelangen, deren Alter und Entstehungsbedingungen genauestens bekannt sind [51].

Einleitung Für einen erstmaligen Nachweis von extraterrestrischem ^{53}Mn wurde eine Apparatur zur Filterung des Trink- und Brauchwassers, das in der NGRIP² Station durch Eisschmelzen gewonnen wird, in Zusammenarbeit mit den Eis-Forschern in Bremerhaven geplant und in München gefertigt und getestet.

Die für die beschleunigermassenspektrometrische Messung von ^{53}Mn notwendige Anzahl von 10^7 ^{53}Mn -Atomen N_{53} (vgl. Gleichung 2.4) liefert bei einem im vorangegangenen Abschnitt abgeschätzten Fluß I von $6,3 \cdot 10^7$ $^{53}\text{Mn}/(\text{m}^2 \text{ a})$ und einer Niederschlagsrate³ E am Ort der Eisentnahme von 171 mm/a [52] ein Eisminimalvolumen von

$$V_{min} = \frac{N_{53} E}{I} = \frac{10^7 \cdot 0,171 \frac{\text{m}}{\text{a}}}{6,3 \cdot 10^7 \frac{1}{\text{m}^2 \text{ a}}} \approx 30 \text{ l.} \quad (4.1)$$

und damit günstigeren Niederschlagsrate der Nachweis bereits mit der NAA geführt werden [1].

²NGRIP: North Greenland Ice-Core Project

³WE: Wasseräquivalent

Die Messung der ^{53}Mn -Konzentration in antarktischem Eis mit der Neutronenaktivierungsanalyse [1] erforderte ein Eisminimalvolumen⁴ von 100 l bei einer Niederschlagsrate von 27 mm/a. Um entsprechende Messungen an Grönland-Eis durchführen zu können, benötigte man also mehr als 600 l Wasser⁵.

Experimentelles Vorgehen Die hier vermessenen Eisproben wurden Ende Juli 1996 - ca. 50 m gegen den Wind von der NGRIP Station - in Nord-Grönland (75° N, 40° W) gewonnen. Das für die Trink- und Brauchwasserversorgung benötigte Eis wird normalerweise in einiger Entfernung zur Station in einem optisch sauberen und eingezäunten Bereich auf Raupenfahrzeuge geladen und zu einem ca. 2 m³ fassenden Metalltank gebracht. Dort wird es durch die Abwärme eines Dieselgenerators geschmolzen und verläßt den Tank durch einen Ablauf (mit Grobfilter; Maschenweite ca. 5 mm) am Boden. Der Überdruck in der Wasserleitung liegt bei 4 bar. Die Apparatur zur Schmelzwasserfiltration (siehe Anhang C) wurde so konstruiert, daß die Wasserversorgung bei einer Verblockung des Filters, bzw. beim Filterwechsel, über einen Bypass aufrechterhalten bleiben kann. In der Leitung mit dem Filter befindet sich eine Wasseruhr zur Bestimmung des Wasserdurchsatzes, der bis zu 30 l pro Minute betragen kann und durch die eingesetzten Filter nicht reduziert werden darf. Es galt also einen Filterdurchmesser und eine Porenweite zu verwenden, die den Filter bei maximal halbtägigem Wechsel nicht zu stark verblocken lassen.

Zum Test der Filterspezifikationen (Angaben der Herstellerfirma zur Durchflußrate des unbenutzten Filters), bzw. zur Ermittlung der Verblockungsgeschwindigkeit, wurde im Beschleunigerlaboratorium ein Fallrohr mit 7 m Länge eingerichtet, um den Wasserdruck unseren Testfiltern kleineren Durchmessers anzupassen.

Aufgrund dieser Ergebnisse wurden für einen ersten Versuch in Abstimmung mit der Größenverteilung des extraterrestrischen Staubes, um den relevanten Anteil des extraterrestrischen Materials aus dem Eis zu erhalten, (vgl. Abschnitt 1.2.1) Filter mit einer Porenweite kleiner als 10 μm eingesetzt. Je nach Tag- oder Nachtbetrieb sollte ein Filter mit 8, bzw. 0,8 μm verwendet werden.

Obwohl die Apparatur erst 17 Tage vor der Winterpause der Station fertiggestellt werden konnte und nach Grönland gesendet werden mußte, wurde sie noch in Betrieb genommen. Da dies praktisch parallel zum Abbau der Station geschehen mußte, wurde Eis aus der direkten Umgebung der Station verwendet, das, wie sich herausstellte, von den Dieselabgasen und sonstigen Verunreinigungen durch die Station so in Mitleidenschaft gezogen war, daß

⁴Minimalvolumen für einen 20%igen 1σ Fehler bei der NAA

⁵Schwierigkeiten, die durch die großen Mengen aufzuarbeitenden Materials für die NAA entstehen, werden in die anschließende Diskussion eingebracht.

die Filter nach 200 l Trinkwasser-Durchsatz verblockten. Trotzdem konnten 315 l Wasser mit der Porenweite $8\ \mu\text{m}$ filtriert werden.

Die Filter wurden daraufhin zur chemischen Probenaufbereitung nach München geschickt. Die nach Abschnitt 2.2.5 aufgearbeitete Probe wurde am Garching Tandembeschleuniger mit dem GAMS (vgl. Abschnitt 2.2.4) analysiert.

Ergebnisse In der Probe wurde kein ^{53}Mn nachgewiesen. Dies entspricht einer Obergrenze mit einem Fehler von 1σ der möglichen $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Konzentration von

$$5,0 \cdot 10^{-13},$$

nach der Zugabe von $5\ \text{mg } ^{55}\text{Mn}$ als Träger.

Daraus folgt eine Anzahl von weniger als $9,0 \cdot 10^7$ ^{53}Mn -Atomen/ m^3 im grönländischen Oberflächeneis⁶.

Aufbauend auf diesem Ergebnis läßt sich nun die maximale globale Deposition von ^{53}Mn , und daraus resultierend die maximale Deposition von extraterrestrischem Staub in den Jahren 1993 bis 1996 abschätzen.

Der maximale mögliche ^{53}Mn -Fluß innerhalb des 1σ Fehlers ergibt sich mit den Rechnungen aus Abschnitt 4.1 bei maximal $9,0 \cdot 10^7$ ^{53}Mn -Atomen in 10^3 l Schmelzwasser bei einer Niederschlagsrate von $171\ \text{mm/a}$ zu

$$1,5 \cdot 10^7 \text{ } ^{53}\text{Mn}/\text{m}^2\text{a}.$$

Dies entspricht einer Obergrenze für den extraterrestrischen Materieeintrag von Partikeln größer als $4\ \mu\text{m}$ Radius im fraglichen Zeitraum von

0 bis 3300 t/a

(1σ -Fehler nach Poissonstatistik). Bei diesem Wert muß nochmals darauf hingewiesen werden, daß er trotz der nicht berücksichtigten Teilchen mit einem Radius kleiner als $4\ \mu\text{m}$ über 99% des gesamten Materialeintrages in die Atmosphäre beinhaltet (vgl. Abschnitt 1.2.1). Vorstellbar wäre zwar, daß der in Abbildung 1.7 dargestellte Massenfluß durch die Atmosphäre zu kleineren Teilchenradien hin verschoben würde. Beim Abdampfen von Oberflächenmaterial, bzw. vollständigen Verdampfen der Meteore (vgl. Abschnitt 1.2) könnten Teilchen mit deutlich geringeren Radien entstehen als die von uns abfiltrierbaren. Aufgrund der folgenden Argumentation gehen wir aber

⁶genauer: ^{53}Mn -Atome aus Partikeln größer als $4\ \mu\text{m}$ Radius

davon aus, auch diesen Atmosphärenprozeß für unsere Filter vernachlässigen zu können:

- Meteore und Meteoroiden zerplatzen normalerweise in großer Höhe, wie auch der Meteorit Mbale (vgl. Abb. 3.2). Dabei entstehen zwar ebenfalls Staubpartikel kleinerer Radien, diese müßten aber, einmal kleiner $100\ \mu\text{m}$, wieder ähnlich dem kosmischen Staub, relativ unbeschadet zu Boden gelangen (vgl. Abschnitt 1.2.1). Das Material, das vom Abdampfungsprozeß der Meteoroidenoberfläche herrührt und sich auf der Erde, z.B. in Form von den in Abbildung 1.4 b gezeigten Tiefseespherules niederschlägt, besitzt Radien in der Größenordnung $30\ \mu\text{m}$ und ist damit von uns berücksichtigt.

Natürlich kann man diese Verschiebung des Maximums des Größenspektrums der Teilchen in der Erdatmosphäre nicht ausschließen, wohl aber über den Einsatz von Filtern kleinerer Porenweite untersuchen (Nach Herstellerangaben sind Filter bis $0,025\ \mu\text{m}$ Porenweite ohne Aufwand erhältlich; die kleinere Durchflußrate wird sich aber in Grönland ab ca. $0,1\ \mu\text{m}$ nur mit einem erheblichen Mehraufwand realisieren lassen.).

Die Resultate dieser Messung werden erst im Vergleich mit den folgenden Ergebnissen diskutiert werden.

4.2 ^{53}Mn aus Tiefseemangankrusten

Ein anderes Zeitfenster öffnet sich, wenn man von den Staubablagerungen im Eis zu den Ablagerungen in der Tiefsee übergeht. Dies wird schon in der um bis zu acht Größenordnungen unterschiedlichen Wachstumsgeschwindigkeit deutlich. Somit werden durch den Wechsel der Archive für den extraterrestrischen Staub Betrachtungen der ^{53}Mn -Meßergebnisse unter neuen Blickwinkeln möglich.

Einleitung Tiefseesedimente beinhalten gegenüber grönländischem Eis durch ihre um fünf Größenordnungen niedrigere Sedimentationsrate⁷, bzw. für Tiefseekrusten um bis zu acht Größenordnungen niedrigere Präzipitationsraten⁸, sehr viel mehr extraterrestrischen Staub und damit auch kosmogene Radionuklide.

⁷Sedimentation: hier Wachstum durch die Ablagerung von niedersinkenden Teilchen

⁸Präzipitation: hier Wachstum durch Fällung und Anlagerung von Stoffen, die sich im Meerwasser in Lösung befinden

Trotzdem ist damit nicht automatisch eine Möglichkeit zur Messung des $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnisses gewährleistet, da in diesen Ablagerungen die stabile ^{55}Mn -Konzentration sehr viel höher ist als im Eis. Während in Tiefseeablagerungen zwischen 0,1 und über 20% des Materials als Manganoxid vorliegen, hat man im Eis nur eine Konzentration von ca. $5 \cdot 10^{-11} \text{ mg Mn/m}^3 \text{ WE}$ [1] zu erwarten. Dieser Sprung von bis zu zehn Größenordnungen in der Mangankonzentration führt in der Regel zu einer Aufhebung der Vorteile durch längere Sammelzeiten für den extraterrestrischen Staub.

Es wird nun abgeschätzt, ob diese Randbedingungen einen Nachweis von extraterrestrischem ^{53}Mn in der Tiefsee erlauben. Auf das benötigte und verwendete Probenmaterial selbst wird im nächsten Abschnitt näher eingegangen.

Der in Abschnitt 4 errechnete extraterrestrische ^{53}Mn -Fluß Φ liegt bei $6,3 \cdot 10^7 \text{ }^{53}\text{Mn/m}^2 \text{ a}$. Geht man von den minimalen bis jetzt entdeckten Wachstumsgeschwindigkeiten für Tiefseekrusten von $P = 1 \text{ mm}/10^6 \text{ a}$ aus, so erhält man damit die Anzahl der ^{53}Mn -Atome N_{53} im Krustenvolumen zu

$$N_{53} = \frac{\Phi}{P} = 6,3 \cdot 10^7 \frac{^{53}\text{Mn}}{\text{m}^2 \cdot \text{a}} \cdot \frac{1}{10^{-3} \text{ m}/10^6 \text{ a}} = 6,3 \cdot 10^{16} \frac{^{53}\text{Mn}}{\text{m}^3}. \quad (4.2)$$

Der Mangangehalt [Mn] der von uns betrachteten Kruste liegt bei 18,9% [53], die mittlere Dichte ρ der Kruste beträgt ca. 4000 kg/m^3 . In einem m^3 Krustenmaterial befinden sich damit ca.

$$N_{55} = \frac{\rho L [\text{Mn}]}{M_{55}} \approx 8,3 \cdot 10^{27} \frac{^{55}\text{Mn}}{\text{m}^3} \quad (4.3)$$

^{55}Mn -Atome. Dabei ist L die Loschmidtsche Zahl und M_{55} die molare Masse von ^{55}Mn . Daraus läßt sich nun direkt das $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ Verhältnis in der Kruste zu

$$^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn} \approx \frac{6,3 \cdot 10^{16}}{8,3 \cdot 10^{27}} \approx 7,6 \cdot 10^{-12} \quad (4.4)$$

bestimmen. Dieses Verhältnis müßte, nach der Steigerung der Empfindlichkeit auf $2 \cdot 10^{-13}$, wenn auch mit kleiner Zählrate, detektierbar sein.

Experimentelles Vorgehen Die Anforderungen, die man im Rahmen der oben geführten Abschätzung an das Probenmaterial und an den Probenentnahmeort stellen muß, sind äußerst selektiv.

- Erstens sind möglichst geringe Wachstumsgeschwindigkeiten bei möglichst niedrigem ^{55}Mn -Gehalt notwendig.
- Zweitens muß die Ablagerung aus Material der über ihr ruhenden Wassersäule wachsen (vgl. anschließende Diskussion).

- Drittens sollte für die geforderte Empfindlichkeit der Chromgehalt möglichst gering sein.

Man geht in erster Näherung davon aus, daß das extraterrestrische Material ohne erhebliche Modulationen durch den Pazifik in die Tiefseeablagerung gelangt [54]. Auf diese Problematik wird im Ausblick noch eingegangen werden.

- Die erste Anforderung könnte zwar von Tiefseesedimenten mit Sedimentationsraten von $1\text{mm}/10^3\text{a}$ erfüllt werden, wenn der natürliche Mangangehalt dafür um einen Faktor 1000 kleiner als in der Kruste wäre, scheitert aber daran, daß das beste verfügbare Sedimentmaterial (mit $3\text{mm}/10^3\text{a}$ und $[\text{Mn}]=0,5\%$ [55]) eine um mehr als einen Faktor 50 niedrigere Nachweisgrenze erfordert.
- Es ist daher sinnvoll, auf die selteneren Tiefseekrusten auszuweichen. Der Großteil der Tiefseemangankrusten ist aber hydrothermalen Ursprungs [56]. D.h., die Präzipitation erfolgt aus heißen Lösungen, die durch Brüche und tektonische Klüfte aus Konvektionszellen unter der ozeanischen Kruste nach oben dringen. Dies hat zur Folge, daß die Fällung der Stoffe aus dieser Lösung nur zur Anlagerung von Mangan aus dem Erdinneren führt [53], von oben Eingebrochenes also stark verdünnt. Daher muß man, will man den extraterrestrischen Staub möglichst unverdünnt erhalten, auf die Untergruppe der hydrogenetischen Tiefseemangankrusten zurückgreifen. Hier erfolgt die Präzipitation aus Fällungsprodukten des bodennahen Mischsols [53], also aus der über der Kruste befindlichen Wassersäule.

Damit erhält man unabhängig von der Art und Weise des Transportprozesses eine Einlagerung des extraterrestrischen Materials in die Kruste. Wenn es sich beim Absinken in Lösung begibt, gelangt es über die Präzipitation in die Kruste. Wenn es wiederum eine Stokes-Sedimentation (vgl. Abschnitt 1.2.2), nun aber im Wasser, durchläuft, bringt es sich nach einigen Jahrzehnten sedimentativ [54] in die Kruste ein.

- Betrachtet man den Wachstumsprozeß dieser Krusten, so stellt man fest, daß aufgrund bestimmter chemischer Randbedingungen (z.B. Temperatur, Druck,...) unterschiedliche Mineralphasen gebildet werden [57]. Manche der hydrogenetischen Mangankrusten weisen eine Kristallstruktur auf, die so angelegt ist, daß Chromatome aus Platzgründen nicht eingebaut werden können. Diese Vernadit-Phase ($\delta\text{-MnO}_2$) besteht aus Mn^{4+} -Ionen, die oktaedrisch mit Sauerstoffionen umgeben sind. Da sie als Oktaeder die hexagonal dichteste Kugelpackung bilden [53], wird der Einbau von den größeren bzw. wegen

einer verschiedenen Orbitalstruktur nicht passenden Chromionen stark unterdrückt.

Die Isobarensparation erfolgt hier nahezu von selbst durch den natürlichen Kristallisationsprozeß bis in den ppm Bereich.

In Zusammenarbeit mit dem Geologisch-Paläontologischen-Institut der Universität Kiel wurde eine Tiefseemangankruste gefunden, die all diese Spezifikationen erfüllt. Auf ihre Bergung wird nun kurz eingegangen.

Das deutsche Forschungsschiff Sonne führte 1989 die Expedition SO-65 im Pazifischen Ozean durch, auf der Tiefseeproben geborgen wurden, unter anderem im Bereich um Pitcairn (19° S , 148° W) [57]. Dazu wurden Kettensackdredgen hinter dem Schiff hergezogen und Stücke aus der den Pazifikboden dort bedeckenden Kruste herausgerissen [55]. Eines dieser Bruchstücke, DS111-1, stammt aus einer Tiefe von ca. 1300m und beinhaltet die vollen 39mm Krustendicke. An der Universität Kiel wurde es auf seine chemische Zusammensetzung untersucht [53]. Mit Hilfe der Kobalt-Konzentration⁹ wurde die minimale Präzipitationsrate von nur $1\text{mm}/10^6 \text{ a}$ bestimmt. Dabei war die Frage, welche Seite die Oberseite und welche die Unterseite¹⁰ darstellt, noch nicht geklärt [55].

Nach Vorversuchen zur chemischen Separation und zum terrestrischen ^{53}Mn -Untergrund¹¹ mit häufiger vorkommenden Mangankrusten und Sedimenten erhielten wir drei Proben der Kruste DS111-1 aus definierter Krustentiefe. Die Proben sind jeweils einer Schichtdicke von ein bis zwei Millimetern zuzuordnen. Zwei von diesen drei Proben (DS111o, o für oben; DS111u, u für eine Probe von der Unterseite) konnten im Rahmen dieser Arbeit wiederholt und in unterschiedlichen Strahlzeiten gemessen werden.

Ergebnisse In der Probe DS111u ließ sich kein ^{53}Mn nachweisen. Die untergrundfreie Messung liefert somit für die ca. $20 \cdot 10^6 \text{ a}$ alte Probe eine Obergrenze für das Verhältnis $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ von

$$4 \cdot 10^{-13}$$

für **DS111u** innerhalb des 1σ -Fehlers der Poissonstatistik.

Die Bedeutung dieser Messung ergibt sich für uns daraus, nun in der ursprünglich nicht mit Sicherheit bestimmten Krustenorientierung Klarheit

⁹Kobalt-Konzentration: Für hydrogenetische Mangankrusten ist die Kobalt-Konzentration invers proportional zur Präzipitationsrate [57].

¹⁰Unterseite: Aufgrund der geometrischen Form der Kruste sowie des unten angelagerten karbonatreichen Materials, das man als Substrat deutete, wurde eine Orientierung angenommen [55].

¹¹Oberflächenmaterial ebenfalls aus dem Pazifik: ca. 6° S , 90° W ; Wassertiefe 4000m mit 3 mm/ka Sedimentationsrate bei 2,3% Mangangehalt [55]

geschaffen zu haben, somit mit der Probe DS111o wirklich eine Oberflächenprobe zu besitzen.

In der Probe **DS111o** wurde ein Verhältnis $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ von

$$2_{-1}^{+1,6} \cdot 10^{-12}$$

(1σ -Fehler nach Poissonstatistik: $+1,6$ bzw. $-1 \cdot 10^{-12}$) gemessen. Für dieses Ergebnis wurden vier Ereignisse im Detektor nachgewiesen, die in allen Energie-, Winkel- und Ortsmessungen sehr gut mit denen für ^{53}Mn übereinstimmen. Die Zugehörigkeit dieser Ereignisse zu extraterrestrischen ^{53}Mn -Atomen muß überprüft werden. Dazu sind folgende Fragen zu stellen:

- Sind die nachgewiesenen Ereignisse ^{53}Mn -Atomen zuzuordnen?
- Wenn es sich tatsächlich um ^{53}Mn -Atome handelt, sind diese dann auch extraterrestrischer Herkunft?

Trotz der sehr effizienten chemischen und apparativen Chromunterdrückung können ^{53}Cr -Ionen im Detektor eine ^{53}Mn -Signatur hervorrufen. Man mißt also eine ^{53}Mn -freie Probe und erhält durch den Vergleich der Signale von den dennoch in den Detektor gelangenden Ionen mit der restriktiven ^{53}Mn -Signatur¹² die Nachweisrate für Untergrundereignisse (vgl. Abschnitt 2).

Für den Fall der Probe DS111o wurden diese Untergrundmessungen mit letztlich ca. sechsmal mehr Ereignissen im Detektor als bei den Messungen von DS111o durchgeführt. Kein einziges von ihnen erfüllte die geforderte ^{53}Mn -Signatur. Wären die vier Ereignisse in der Kruste DS111o durch ^{53}Cr -Ionen entstanden, so hätte man in den Untergrundmessungen ca. 24 Ereignisse nachweisen müssen. Der isobare Untergrund kann damit bei der Probe DS111o als Verursacher der Ereignisse ausgeschlossen werden.

Eine Möglichkeit, andere Elemente für das Ergebnis verantwortlich machen zu können, ist, von lediglich bei der Messung der Probe DS111o aufgetretenen Instabilitäten auszugehen. Die einzige denkbare Ursache wäre, daß es zu kleinen Ladungsüberschlägen in der Ionenquelle käme, die zu einem kurzzeitigen Zusammenbrechen der Extraktionsspannung und damit vorübergehend auch zum Einschub eines makroskopischen Stromes von $^{55}\text{MnO}^-$ in den Tandem führen. Wegen des makroskopischen Strahls können, trotz eigentlich unpassender magnetischer Steifigkeit, nicht alle ^{55}Mn -Atome separiert werden und erzeugen eine sehr große Anzahl von Ereignissen im Detektor, die dann unter Umständen nicht vollständig von ^{53}Mn -Ereignissen zu unterscheiden sind.

Da solche Überschläge durch ein sprunghaftes Ansteigen der Zählrate im Detektor signiert werden, kann der Zeitpunkt eines Ereignisses im Detektor mit denen der benachbarten Stromspitzen verglichen werden. Für keines der

¹²Die ^{53}Mn -Signatur: Alle charakteristischen Meßsignale im Detektor sind, innerhalb ihrer Fehlergrenzen, gleich denen der zu analysierenden ^{53}Mn -Ionen.

vier Ereignisse ergaben sich im Bereich von mehreren Minuten vor oder nach ihrem Nachweis solche Zählratenschwankungen. Zudem sollten solche Ereignisse dann gleichermaßen bei den Untergrundmessungen auftreten. Andere Elemente, wie z.B. ^{55}Mn , können somit als Untergrund ebenfalls ausgeschlossen werden.

- Die vier in der Probe DS111o nachgewiesenen Ereignisse sind also ^{53}Mn -Atomen zuzuordnen.

Es gilt nun zu prüfen, in wieweit diese ^{53}Mn -Atome anders als durch extraterrestrischen Eintrag in die Kruste, bzw. in den Detektor hätten gelangen können.

Eine Möglichkeit ist durch das Übersprechen der, im Vergleich zu unserer Probe DS111o, um drei Größenordnungen höher konzentrierten Normprobe gegeben. Nach jeder Kontrolle der ^{53}Mn -Signatur durch diese Normprobe wurde daher vor der Messung der Probe DS111o eine mehr als 30minütige Untergrundmessung durchgeführt, in der das Auftreten von Übersprechern um mehrere Größenordnungen wahrscheinlicher gewesen wäre. Übersprecher wurden nicht beobachtet. Die Herkunft der ^{53}Mn -Atome aus der Normprobe ist also auszuschließen.

Während in der Literatur bis jetzt die Relevanz des terrestrischen Untergrundes für ^{53}Mn vernachlässigt werden konnte [1, 31], zwingt die jetzt höhere Empfindlichkeit durch die BMS zu einer differenzierteren Betrachtung dieses Problems.

Ein Maß für den terrestrischen Untergrund an ^{53}Mn kann die BMS-Analyse einer Sedimentprobe aus den Vorversuchen liefern. In ihr wurde eine Obergrenze des $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnisses zu $3,3 \cdot 10^{-13}$ gemessen. Daraus allein läßt sich auf einen terrestrischen $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Untergrund kleiner als $3,3 \cdot 10^{-13}$ innerhalb eines 1σ -Fehlers schließen. Das in dem Sediment befindliche Mangan kann aber, wie bei den hydrothermalen Krusten, zu einem gewissen Anteil aus dem Erdinneren stammen und könnte damit den unter Umständen höheren terrestrischen Festlandsbeitrag verdünnen. Genau dies hatten wir für die Probe DS111o mit der Wahl der hydrogenetischen Krusten ausgeschlossen. Für die Sedimentprobe steht dies aber nicht mit Sicherheit fest.

Trotz dieser Untergrundsabschätzung durch die BMS-Sedimentanalyse könnte sich durch GCR aus dem Eisen in der Erdkruste produziertes ^{53}Mn also störend auswirken. Das über Erosion ins Meer gelangende ^{53}Mn und gleichzeitig sein Verhältnis zum stabilen Mangan müssen also abgeschätzt werden. Aus detaillierten Modellrechnungen zur Erzeugung von ^{53}Mn aus Eisen in der Erdkruste [21], in die sowohl die Produktion durch Spallation, schnelle Myonen sowie Myoneneinfang der primären und sekundären Teilchen der kosmischen Höhenstrahlung in Abhängigkeit von der Erdkrustentiefe eingehen, ergab sich im kritischen-Fall-Szenario bei einer Erosionsrate

von nur $5 \text{ m}/10^6 \text{ a}$ ein $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnis kleiner 10^{-13} . Für noch kleinere mittlere Erosionsraten an der Erdkruste steigt zwar das Verhältnis aufgrund längerer Bestrahlungszeit nochmals an, dafür wird aber gleichzeitig die absolute Anzahl an aberodierten ^{53}Mn -Atomen kleiner und gegenüber den extraterrestrischen ^{53}Mn -Atomen zu vernachlässigen. Genaueres zu dieser Abschätzung kann dem Anhang entnommen werden.

Der terrestrische Untergrund ist somit auch im für uns ungünstigsten Fall um mehr als eine ganze Größenordnung kleiner als das von uns gemessene Ergebnis in der Probe DS111o.

- Die Ereignisse sind also nicht nur eindeutig ^{53}Mn -Atomen, sondern auch einem extraterrestrischen Materieeintrag zuzuordnen.

Verwendet man die Abschätzung aus Gleichung 4.4, so errechnet sich aus dem gemessenen $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ Verhältnis ein extraterrestrischer Materieeintrag in $[\text{t/a}]$ von

$$\text{Massenfluß} = 3700_{-1800}^{+3200} \frac{\text{t}}{\text{a}}, \quad (4.5)$$

gemittelt über einen Zeitraum von ein bis zwei Millionen Jahren.

Da dieses Ergebnis einen anderen Zeitbereich beleuchtet, ist es auch mit der in der Grönlandeisprobe erhaltenen Obergrenze von 3300 t/a gut vereinbar. Die deutliche Abweichung von den $11\,000 \text{ t/a}$, die sich nach unserem Modell des isotropen Eintrags aus der Messung von Bibron et al. in der Antarktis ergibt, läßt viele Interpretationsmöglichkeiten zu.

- Da unterschiedliche Zeitfenster betrachtet werden, ergäbe eine zeitliche Fluktuation des extraterrestrischen Materieeintrages zwischen 1940 und 1995 um einen Faktor drei eine Übereinstimmung der Ergebnisse. Farley et al. [54] ziehen aufgrund ihrer Messungen (siehe Ausblick) die Schlußfolgerung, daß der extraterrestrische Staubeintrag in 10^5 a um einen Faktor drei variiert, können aber zu kurzperiodischeren Fluktuationen keine Aussage machen.
- Bei der Messung von Bibron et al. [1] muß allerdings auch darauf hingewiesen werden, daß die NAA, wie in Abschnitt 2.1 beschrieben, extrem sensibel für minimale Eisen- und Manganverunreinigung ist [1]. So mußten die Eisproben per Hand mit einem hochreinen Aluminiumspaten gewonnen werden, um die in Abschnitt 2.1 dargestellten untergrunderzeugenden Reaktionen (z.B. an Eisen) bei der Aktivierung nicht dominant werden zu lassen.

Das höhere Resultat von $11\,000 \text{ t/a}$ kann durch Verunreinigungen im Bereich von $\text{mg}/1000 \text{ l WE} \approx 10^{-9}$ und darunter erzeugt werden. Über

Winderosion kann auch in die Antarktis gelangender terrestrischer Staub lokal zu Eisen-Anreicherungen in dieser Größenordnung führen.

Bei der ^{53}Mn -Messung mit der BMS kann Untergrund die Fehlergrenzen vergrößern, bzw. den Nachweis unmöglich machen, das absolute Ergebnis der Messung ist dagegen von störenden Elementen unabhängig.

Da beide Meßmethoden die Anzahl an ^{53}Mn -Atomen bestimmen, benötigt man zur Abschätzung des Materieeintrages die Angabe, wieviel ^{53}Mn -Atome in einem kg Staub vorhanden sind. Die Unsicherheiten, die dadurch eingetragen werden, sollen angesprochen werden:

- Vergleichbar mit der Problematik bei den Monte-Carlo-Rechnungen zur Meteoroidenbestrahlung gibt es lediglich gerechnete Wirkungsquerschnitte, die auf einen Faktor fünf genaue absolute Aussagen problematisch erscheinen lassen.
- Die Modellrechnungen gingen noch von einer um den Faktor zwei zu kurzen Halbwertszeit aus [27]. Dies hat zur Folge, daß die Sättigungsaktivität zu niedrig angenommen wurde. Man müßte also eigentlich von daher höhere Signale erwarten. Dies korrigiert den Materieeintrag leicht zu geringeren Massen.
- Nimmt man Kometen als Mutterkörper des Staubes an, so kann man nicht von einer Dauerbestrahlung der Staubpartikel ausgehen, da sie erst in Sonnennähe freigesetzt werden und somit ursprünglich eher eine Meteoroiden-Bestrahlungsgeschichte aufweisen müßten. Auch dies würde zu einer niedrigeren Aktivität des Staubes, bzw. bei bekanntem $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ - Verhältnis, zu einem größeren Materieeintrag führen.

Die eben aufgeführten Punkte erklären aber lediglich eine absolute Änderung des Materialeintrages und nicht den Unterschied zwischen der Grönland- und der Antarktis-Messung. Dieser spricht für eine Fluktuation des Materialeintrages in den letzten 50 Jahren.

Die Probe DS111o stellt eine Probe von der Oberseite der Mangankruste DS111 dar. Das Ergebnis der Messung der Tiefseekruste DS111o beschreibt einen mittleren extraterrestrischen Materieeintrag von 3700 t/a über den Zeitraum von 10^6 Jahren.

Ausblick

Die Projekte, die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellt wurden, sind alle in einem Stadium, in dem weit mehr neue Fragen aufgeworfen werden als offene beantwortet werden können. Die in der Folge dargestellten Perspektiven stellen nur eine kleine Auswahl von Möglichkeiten dar, die sich bereits in Vorbereitung oder im Entwicklungsstadium befinden.

- Meteoriten-Forschung:
Die experimentelle Bestimmung der wichtigen Produktionswirkungsquerschnitte für ^{53}Mn ist schon insoweit vorbereitet, als Eisentargets mit Protonen verschiedener Energien bestrahlt wurden und nur noch chemisch zur Messung aufgearbeitet werden müssen. Vor dieser Arbeit waren diese Messungen nicht möglich.
- Projekte in Grönland:
In Grönland wird im Sommer 1997 unsere Apparatur zur Schmelzwasserfilterung im Normalbetrieb der Station arbeiten und damit sehr viel mehr an analysierbarem Material liefern. Dabei entspricht für uns eine Verdopplung des Probenmaterials bei gleicher Trägerzugabe einer Verdopplung der $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Konzentration. Die Analyse von extraterrestrischem ^{53}Mn in grönländischem Eis wird damit durchgeführt werden.

Es wird möglich sein, durch die Verwendung von Filtern mit verschiedener Porenweite den Einfluß der Partikelgröße näher zu untersuchen und damit unter anderem die Gültigkeit unserer Modellvorstellung des isotropen Eintrags und des vernachlässigbaren inneratmosphärischen Transports zu überprüfen.

Weitere mögliche Schritte sind die Untersuchungen von Eisbohrkernen, die in Bremerhaven auf ihre Kristallstruktur hin analysiert und dafür abgehobelt werden. Diese Eis-Proben bekannter Tiefe und daraus ableitbaren Alters werden von uns wiederum gefiltert werden und sollen Aufschluß über den extraterrestrischen Materialeintrag der letzten 10^5 Jahre ermöglichen. Der natürliche Zerfall des ^{53}Mn ist aufgrund seiner Halbwertszeit ($T_{1/2}=3,7\cdot 10^6\text{a}$) im Rahmen unserer Meßgenauigkeit (minimal 15%) innerhalb von 100 000a mit maximal 2% zu ver-

nachlässigen. D.h., wir können dann Aussagen über den extraterrestrischen Materialeintrag, bzw. dessen Maxima im Eis treffen.

- Tiefseemangankrusten:
 - Durch die Messung des Isotopenverhältnisses von $^3\text{He}/^4\text{He}$ wird es möglich, Aussagen über die Deposition von extraterrestrischem ^3He und ^4He bei bekanntem irdischen Isotopie-Verhältnis zu machen [54]. Da es sich um stabile Isotope handelt, die in erster Näherung unbehelligt von der kosmischen Strahlung bleiben, geben sie lediglich ein Maß für den extraterrestrischen Materieeintrag. Man kann dann den Materieeintrag von der solaren Komponente der kosmischen Strahlung entkoppeln. Es werden somit Messungen über die zeitliche Variation der SCR-Komponente der kosmischen Strahlung möglich.
 - Da der extraterrestrische Staub isotrop auf die Meeresoberfläche gelangt (vgl. Abschnitt 1.2), wurde in erster Näherung davon ausgegangen, daß er isotrop ins Sediment oder die Krusten eingelagert wird [55, 7]. Allerdings fehlen bis jetzt Möglichkeiten, die Transportprozesse und Transportzeiten im Ozean zu bestimmen. Hier kann man kosmogene Radionuklide allgemein, für den Mangantransport ^{53}Mn im speziellen als Tracer verwenden.

Anhang A

^{53}Mn -Produktion durch Spallation der kosmischen Strahlung an der Lithosphäre

Unabdingbar für die Identifizierung von extraterrestrischem Material über den Nachweis von ^{53}Mn ist die extraterrestrische Herkunft des letzteren. Daher muß die terrestrische Produktion bestimmt werden.

Die Hauptquelle für terrestrisches ^{53}Mn liefert die galaktische Komponente der kosmischen Strahlung bzw. die durch sie erzeugten Sekundärteilchen in Wechselwirkung mit der Lithosphäre¹³ [19]. Um diesen Beitrag quantifizieren zu können, benötigt man in erster Näherung die Spallationswirkungsquerschnitte zur Produktion von ^{53}Mn aus seinem wichtigsten Targetelement (Eisen), sowie dessen Häufigkeit in der Lithosphäre. Weiterhin erfordert es das Spektrum und die Intensität der kosmischen Strahlung sowie deren Sekundärteilchen und die Erosionsrate, mit der das mit ^{53}Mn angereicherte Lithosphärenmaterial in Umlauf gebracht wird. Rechnungen hierzu wurden durchgeführt [21], die im folgenden stark verkürzt dargestellt werden sollen. Der durchschnittliche Eisengehalt der Lithosphäre wird zu 5,05% angenommen. Dem gegenüber steht ein Mn-Gehalt von 0,09%. Die für die Produktion von ^{53}Mn benötigten Teilchen sind hauptsächlich Nukleonen und Myonen [58]. Die Wechselwirkung dieser Teilchen mit der Lithosphäre ist stark unterschiedlich, und daher sind die Teilchen in unterschiedlichen Tiefen relevant.

- **Oberflächenspallation durch sekundäre Nukleonen**
An die Erdoberfläche gelangen aufgrund ihrer deutlich geringeren Wechselwirkungsrate mit den Bestandteilen der Luft ca. um eine Größenordnung mehr Neutronen als Protonen. Diese führen zu Spallationsreaktionen an Eisen und erzeugen z.B. über die Reaktionen $^{54}\text{Fe}(n,pn)$ bzw. $^{56}\text{Fe}(n,p3n)^{53}\text{Mn}$. Dies bedeutet die Produktion von ca. $100 \text{ }^{53}\text{Mn}/\text{g}[\text{Fe}]$ a an der Erdoberfläche
- **Tiefenreaktionen durch μ^- -Einfang oder schnelle Myonen**
Ab ca. 2 m Tiefe dominieren die Myonen die Produktionsrate für ^{53}Mn .

¹³Lithosphäre: Oberste Schicht der Erdkruste

Diese Reaktionen ergeben ein ^{53}Mn -Tiefenprofil, das von der Erosionsrate maßgeblich mitbestimmt wird. Ergebnisse der Rechnungen sind dazu in Tabelle .1 angegeben.

Erosionsrate (m/10 ⁶ a)	5	10	20	50	100	200
$^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ (10 ⁻¹³)	0,96	0,54	0,28	0,12	0,06	0,03

Tabelle .1: *Terrestrischer ^{53}Mn -Untergrund in Abhängigkeit von der Erosionsrate*

Aufgrund dieser Daten lassen sich folgende wichtige Aussagen machen.

- Bei kleiner Erosionsrate erreicht die Oberfläche die Sättigung der ^{53}Mn -Aktivität. Die $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Konzentration ist nun zwar in der Oberfläche der Lithosphäre maximal, es wird aber insgesamt nur wenig Material und damit auch wenig ^{53}Mn erodiert. Nach den oben angegebenen Daten beliefe sich im für uns schlimmsten Fall bei einer mittleren Erosionsrate von 5 m/10⁶ a die Flußdichte von ^{53}Mn auf ca. 5·10⁶/m² a. Dies ist aber um eine Größenordnung niedriger als die Flußdichte an ^{53}Mn aus extraterrestrischem Staub (vgl. Kapitel 4). Noch kleinere Erosionsraten lassen zwar das $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Verhältnis bis über unsere Nachweisempfindlichkeit hinaus ansteigen, der Eintrag z.B. ins Meer über Erosion beinhaltet dann aber immer weniger ^{53}Mn -Atome.
- Sind andererseits die Erosionsraten hoch (in den Alpen teilweise bei 200m/10⁶a [19]), so wird zwar, absolut gesehen, mehr ^{53}Mn eingetragen, dafür ist es aber stärker mit ^{55}Mn verdünnt.

Wie man bei der Annahme einer realistischen Erosionsrate von im Mittel 20m/10⁶ a erkennt, beläuft sich die erodierte $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ -Konzentration auf weniger als 3·10⁻¹⁴. Wenn wir also an geeigneten Orten auf der Erde mit der von uns erreichten Empfindlichkeit ^{53}Mn messen können, so ist dessen Herkunft als extraterrestrisch zu betrachten.

Man sieht allerdings auch, daß bei der Suche nach extraterrestrischem Staub Regionen mit hoher terrestrischer Sedimentationsrate zu meiden sind, da das extraterrestrische Material sonst stark verdünnt würde.

Anhang B

Isobaren-Unterdrückung

Isobarenseparation aufgrund unterschiedlichen Sublimationsverhaltens

Experimentelles Vorgehen Vorversuche zur Reduktion des vorliegenden Mangan(II)oxids zu metallischem Mangan wurden durchgeführt sowie ein den speziellen Anforderungen gerecht werdender BMS-Probenhalter gefertigt¹⁴.

Es wurden 110mg einer mit 200ppm Chrom verunreinigten Mangan(II)oxidprobe hergestellt, um bei bekanntem Chromausgangsgehalt die Effektivität der Methode mit der BMS zu testen.

Diese wurden zusammen mit 232mg Zirkon zu einer Tablette gepreßt und in ein Tantalröhrchen (Länge 60mm, Innendurchmesser 8mm) eingebracht, das bis auf ein kleines Loch (Durchmesser ca. 0,5mm) in der Hülle verschlossen wurde. Das Röhrchen wurde nun unter Wasserstoffatmosphäre (zwischen 6,5 und $2,6 \cdot 10^{-8}$ mbar) von 850 auf 1300°C in einem Ofen erhitzt und für 36 Stunden darin belassen. An einem Kühlfinger, bzw. in dem Ag-Probenhalter mit Platineinlage, die sich jeweils ca. 2mm oberhalb des Lochs in der Röhre befinden, wurde das metallische Mangan kondensiert. 20 Stunden nach Beginn des Versuches begann sich eine metallische Manganperle an dem Kühlfinger zu bilden. An der Platin-Innenseite des Probenhalters konnte innerhalb von 36 Stunden kein Mangan abgeschieden werden.

Ergebnisse Die nach dieser Methode gewonnene Ausbeute war mit 17% des ursprünglich eingebrachten Mangans sehr gering [45], da keine Abscheidung in den Probenhalter erfolgen konnte.

Die BMS Messung der Probe ergab eine Chromkonzentration von wiederum ca. 190 ± 30 ppm.

Wahrscheinlich handelt es sich bei den gemessenen Chromatomen um die ursprünglich eingebrachten. Sie verhalten sich in der Umgebung von Man-

¹⁴Ein Ag-Probenhalter mit hochreiner Platineinlage wurde verwendet, um die Ausbeute durch direktes Abscheiden in den Probenhalter zu ermöglichen.

gan nicht mehr wie in Chromumgebung, bzw. werden bei dem Manganverdampfungsprozeß mitgerissen, worauf sie sich ebenfalls an dem Kühlfinger abscheiden.

Es muß allerdings noch untersucht werden, ob die Chromatome nicht aus dem Zirkon bzw. aus dem Tantalröhrchen stammen. Dies sollte durch eine direkte MS-Messung der Materialien, bzw. durch die Wiederholung des Versuchs mit einer isotonenangereicherten Probe und anschließender BMS-Messung möglich sein.

Isobarenseparation aufgrund unterschiedlicher Quellenchemie

Die Isobaren-Separation läßt sich weniger aufgrund einer schlechteren Bildungswahrscheinlichkeit der CrH^- -Molekülionen in der Quelle erwarten als aus der additiven Wirkung der folgenden Effekte:

- Das MnH^- hat gegenüber dem MnO^- -Molekülion eine um ca. 25% reduzierte Masse. Damit stehen für das Mn-Ion an der Stripperfolie im Tandem-Beschleuniger ca. 25% mehr an Energie zur Verfügung. Dies äußert sich in höheren Strippausbeuten des von uns gewählten Ladungszustandes (vgl. Tabelle .2).

Mn^{Q+}	MnO^-	MnH^-
Mn^{9+}	28%	20%
Mn^{10+}	25%	28%
Mn^{11+}	14%	23%
Mn^{12+}	5%	12%
Mn^{13+}	1%	4%

Tabelle .2: Strippausbeute des Ladungszustandes Mn^Q für MnH^- gegenüber MnO^- -Molekülionen bei einer Terminalspannung von 13,5 MV

Die damit zu erreichende höhere Endenergie verbessert die Schärfe der Isobarenseparation im GAMS, da die Kleinwinkelstreuung umgekehrt proportional zur Energie der Ionen ist [32].

- Da die Molekülionen in der Stripperfolie zerstört werden müssen, fliegen die einzelnen Ionen nach ihrer Trennung in einer Coulombexplosion auseinander.

Bei der Verwendung von MnH^- anstelle von MnO^- -Molekülionen bleiben die Mn-Ionen nach der Coulombexplosion besser in Strahlrichtung und sollten eine höhere Transmission durch den Tandem-Beschleuniger aufweisen.

Die Möglichkeiten einer Verbesserung der Chrom-Unterdrückung durch die Verwendung anderer Molekülonen als MnO^- , speziell des MnH^- -Ions, wurden untersucht.

Experimentelles Vorgehen Es wurde eine Apparatur aufgebaut, die unter Ausnutzung der Infrastruktur der oben beschriebenen Hochstrom-Ionenquelle erlaubt, molekularen Wasserstoff durch das Probenmaterial hindurch in die Quelle strömen zu lassen. Dies wurde in Anlehnung an die Arbeit von Middleton et al. [33] realisiert.

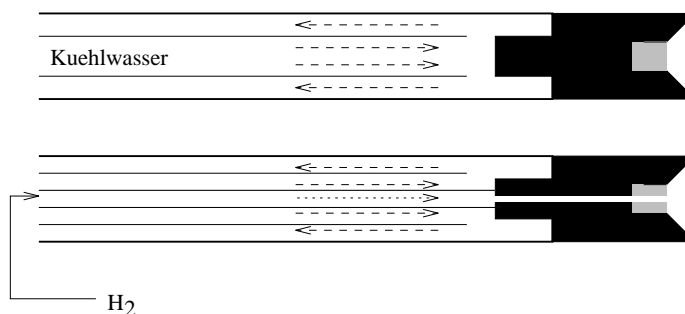


Abbildung .1: *Probenhalter, oben für die Mangan-Oxid-Quelle, unten für die Mangan-Hydrid-Quelle mit zusätzlicher Wasserstoffzufuhr.*

Die in Abbildung .1 oben gezeigte Anordnung entspricht dem Sputtertargethalter aus der Abbildung zur Hochstrom-Ionenquelle (vgl. Abb. 2.1). Der in der Abbildung unten dargestellte Probenhalter zeigt die zusätzliche Wasserstoffzufuhr, die in zwei verschiedenen Versionen betrieben wurde. Einerseits mit Probenmaterial, das mit Hilfe einer speziellen Vorrichtung mit einem Durchlauf für Wasserstoff versehen wurde, andererseits mit durch das Probenmaterial verstopfter Zufuhr. Die zur Verfügung stehenden Proben sind für die Mangan-Molekül-Ionen Mangan(II,III,IV)oxid, bzw. metallisches Mangan, sowie für die Chrom-Molekül-Ionen metallisches Chrom.

Die Vorversuche zur Ermittlung des optimalen Wasserstoffdrucks in der Quelle sowie zur Bestimmung der optimalen Oxidationsstufe des Manganoxids mit der Zielrichtung, einen maximalen MnO^- , bzw. MnH^- -Strom aus der Quelle zu erhalten, wurden vor der eigentlichen Meßzeit abgeschlossen, so daß dann mit dem am besten geeigneten Probenmaterial bei einem definierten Druck gearbeitet werden konnte. Die Molekül-Ionen wurden mit dem Tandem-Beschleuniger (ca. 9 MV, Ladungszustand 9^+) in den 90° -Magneten eingeschossen und als ^{55}Mn -Ionen aus den Manganproben, bzw. als ^{52}Cr -Ionen aus den Chromproben analysiert, die Änderung aufgrund der Verwendung von ^{52}Cr - anstelle von ^{53}Cr -Ionen berücksichtigt.

Ergebnisse Die Vorversuche ergaben eine Abhängigkeit des Ionenstroms für MnO^- , bzw. MnH^- von dem verwendeten Probenmaterial gleichermaßen um einen Faktor zwei. Es wurde daher das für beide Ionen optimale Mangan(IV)Oxid verwendet.

Der optimale Strom konnte bei einem Wasserstoffdruck von $(20 \pm 10) \cdot 10^{-6}$ mbar erreicht werden. Dabei variiert er innerhalb des Schwankungsbereichs $\pm 2 \cdot 10^{-6}$ mbar nur schwach mit Druckänderungen.

Weder für MnO^- - noch für MnH^- -Ionen ergaben sich unter Wasserstoffatmosphäre höhere Ströme als für die Chromäquivalente. Einzig erfolgversprechend erscheint ein komplexeres Molekülion, Mn_2H^- . Das Chromäquivalent würde bei der ^{53}Mn -Messung um drei Größenordnungen unterdrückt werden. Das liegt daran, daß die ^{53}Mn -Ionen aus Molekülionen mit einer Massenzahl von $A=109$ ($53+55+1$) stammen werden. Dies kann isobaren Untergrund lediglich von Molekülionen der Art ($^{54}\text{Cr} \ ^{54}\text{Cr}^1\text{H}$) bedeuten, die aufgrund der natürlichen Isotopenhäufigkeit von ^{54}Cr mit 2,4% um einen Faktor 1000 unterdrückt sein müßten. Allerdings ist für Mn_2H^- der absolut erreichbare Strom um einen Faktor 50 kleiner als für die einfacheren Molekülionen, wodurch die Meßzeiten stark verlängert würden. Eine Verwendung dieses Aufbaus für die Isobarenunterdrückung von ^{53}Cr -Ionen scheint somit nicht sinnvoll.

Anhang C

Aufbau der Schmelzwasser-Filteranlage

Auftrag war, einen Filter in ein bestehendes 3/4 Zoll Rohrsystem der NGRIP-Station einzufügen. Die Apparatur aus Edelstahl hat eine Masse von ca. 12 kg und ist als Prinzipskizze in Abbildung .2 dargestellt. Die verwendeten Filter sind MF-Membranfilter der Firma MILLIPORE mit einem Durchmesser von 293 mm und einer effektiven Filterfläche von 518 cm².

Als Orientierungshilfe sind in Tabelle .3 Fließraten für neue Filter unterschiedlicher Porenweite laut Herstellerangaben¹⁵ angegeben.

Porenweite [10 ⁻⁶ m]	8	3	0,8	0,3	0,025
Fließrate [dm ³ /min]	320	165	98	17	0,1

Tabelle .3: Fließraten für neue Filter unterschiedlicher Porenweite für Wasser bei 20° C und einem Differenzdruck von 0,7 bar

Abbildung .2: *Prinzipskizze der Schmelzwasser-Filteranlage* .

¹⁵MILLIPORE

Abbildungsverzeichnis

1.1	Prinzipskizze des Sonnensystems	7
1.2	Extraterrestrischer Staub, aufgenommen mit dem Raster-Elektronenmikroskop.	8
1.3	Spektrum der solaren und galaktischen kosmischen Protonen	12
1.4	Brustseite eines Eisenmeteoriten und Raster-elektronenmikroskopische Aufnahme von Tiefsee-Kügelchen	13
1.5	Einschlagskrater von kosmischen Staub auf der Monoberfläche	14
1.6	Integrale-Teilchenflußdichte auf der Erdbahn	15
1.7	Massenhistogramm bei 1AE Entfernung von der Sonne	15
1.8	Fallzeit von kosmischem Staub verschiedener Größe	17
1.9	Bestrahlungsgeschichte extraterrestrischer Materie.	23
1.10	Produktionsraten pro kg Targetmaterial von ^{26}Al aufgetragen gegen die von ^{10}Be für die Klasse der Diogenites	25
2.1	Schematischer Aufbau einer Hochstromionenquelle	31
2.2	Experimenteller Aufbau	33
2.3	Schematischer Aufbau der Gasionisationskammer	34
2.4	Schematische Darstellung der Trennung von Isobaren in einem gasgefüllten Magneten	36
3.1	Monte-Carlo-Simulationsrechnungen für den Meteoriten Acfer 287, sowie dessen ^{53}Mn -Meßwert im Tiefenprofil.	50
3.2	Sammlung von Bruchstücken des Mbale Meteoriten.	52
3.3	Tiefenprofil der sechs Mbale Meteoritenbruchstücke	54
3.4	Protonen- und Neutronenflußdichte in einem künstlichen Steinmeteoroiden	55
3.5	^{53}Mn -Tiefenprofil nach Monte-Carlo-Simulationen für den Mbale Meteoroiden	56
.1	Probenhalter für die Mangan-Oxid- bzw. für die Mangan-Hydrid-Quelle	79
.2	Schmelzwasser-Filteranlage	81

Tabellenverzeichnis

1.1	Kosmogene Radionuklide mit Halbwertszeiten länger als 4000 a	21
2.1	Relativer ^{53}Cr -Untergrund aus Probenaltern verschiedener Materialien	40
2.2	Chromgehalt mit und ohne isotopisches Verdünnen	42
3.1	Meteoriten-Einzelmessungen	49
3.2	$^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ Konzentrationen in den neun Proben des Mbale Meteoriten	53
.1	Terrestrischer ^{53}Mn -Untergrund in Abhängigkeit von der Erosionsrate	76
.2	Strippausbeute des Ladungszustandes Mn^Q für MnH^- - gegenüber MnO^- -Molekülonen	78
.3	Fließraten für neue Filter unterschiedlicher Porenweite	81

Literaturverzeichnis

- [1] R. Bibron, R. Chesselet, G. Crozaz, G. Leger, J. P. Mennessier, and E. Picciotto. Extra-Terrestrial ^{53}Mn in Antarctic Ice. *Earth and Planetary Science Letters*, 21:109, 1974.
- [2] A. Unsöld and B. Baschek. *Der neue Kosmos*. Springer-Verlag, 4th edition, 1991.
- [3] F. Heide. *Kleine Meteoritenkunde*. Springer-Verlag, 1988.
- [4] J.X. Luu und D.C. Jewitt. Der Kuiper-Gürtel. *Spektrum der Wissenschaft*, page 56, 7 1996.
- [5] A. Weigert. *Astronomie und Astrophysik*. VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim, 2. edition, 1989.
- [6] P. Janle. Vulkanismus im Planetensystem. *Sterne und Weltraum*, 35(6):452, 1996.
- [7] S. F. Dermott, S. Jayaraman, Y. L. Xu, B. A. S. Gustafson, and J. C. Liou. A circumsolar ring of asteroidal dust in resonant lock with the earth. *Nature*, page 719, 1994.
- [8] J. Kissel. MPI für Kernphysik Heidelberg, pers. Mitteilung.
- [9] T. Bürke. Zagami kam vom Mars. *Sterne und Weltraum*, 34:881, 1995.
- [10] S. Vogt, D. Fink, J. Klein, R. Middleton, B. Dockhorn, G. Korschinek, E. Nolte, and G.F. Herzog. Exposure history of the lunar meteorites: MAC88104, MAC88105, Y791197, and Y86032. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 55:3157, 1991.
- [11] R. Michel, M. Lüpke, U. Herpers, R. Rösel, M. Suter, B. Dittrich-Hannen, P. W. Kubik, D. Filges, and P. Cloth. Simulation and modeling of the interaction of galactic protons with stony meteoroids. *Planet. Space Sci.*, 43:557, 1994.

- [12] S.L. Baliunas und D. Sokoloff E. Nesme-Ribes. Magnetismus und die aktivitätszyklen von Sternen. *Spektrum der Wissenschaft*, page 48, 10 1996.
- [13] A. Heck. MPI für Kernphysik Heidelberg, pers. Mitteilung.
- [14] S. Parkin. Deep-sea spherules. *Nature*, page 266, 1977.
- [15] S. Tanaka, K. Sakamoto, and K. Komura. Aluminium 26 and Manganese 53 Produced by Solar-Flare Particles in Lunar Rock and Cosmic Dust. *J. Geophys. Res.*, 77:4281, 1972.
- [16] P. Janle. Stardust holt Kometenstaub zur Erde. *Sterne und Weltraum*, 35(2):90, 1996.
- [17] C. J. Junge. *Air chemistry and radioactivity*. Academic Press, New York, 1963.
- [18] H. Sachsenhauser. Atmosphärischer Transport von Radionukliden. Diplomarbeit, TU München, 1996.
- [19] E. Nolte. Technische Universität München E15, pers. Mitteilung.
- [20] H. Kuchling. *Taschenbuch der Physik*. Verlag Harri Deutsch, 1979.
- [21] B. Heisinger. Technische Universität München E15, pers. Mitteilung.
- [22] R. Michel, P. Dragovitsch, P. Cloth, G. Dagge, and D. Filges. On the production of cosmogenic nuclides in meteoroids by galactic protons. *Meteoritics*, 26:221, 1991.
- [23] N. Bandari, K. J. Mathew, M. N. Rao, U. Herpers, K. Bremer, S. Vogt, W. Wölfli, H. J. Hofmann, R. Michel, R. Bodemann, and H. J. Lange. Depth and size dependence of cosmogenic nuclide production rates in stony meteoroids. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 57:2361, 1992.
- [24] U. Herpers, S. Vogt, K. Bremer, H. J. Hofmann, M. Suter, R. Wieler, H. J. Lange, and R. Michel. Cosmogenic nuclides in differentiated Antarctic meteorites: measurements and model calculations. *Planet. Space Sci.*, 43:545, 1995.
- [25] R. Michel, F. Pfeiffer, S. Theis, F. Begemann, H. Weber, P. Siegner, R. Wieler, P. Cloth, P. Dragovitsch, D. Filges, and P. Englert. Production of stable and radioactive nuclides in thick stony target (R=15 and 25 cm) isotropically irradiated with 600 Mev protons and simulation of the production of cosmogenic nuclides in meteorites. *Nucl. Inst. and Meth.*, B42:76, 1989.

- [26] M. Imamura, R. C. Finkel, and N. Wahlen. Depth profile of ^{53}Mn in the lunar surface. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 20:107, 1973.
- [27] D. Lal, R. S. Rajan, and V. S. Venkatavaradan. Nuclear effects of solar and galactic cosmic ray particles in near-surface regions of meteorites. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 31:1859, 1967.
- [28] K. Nishiizumi, D. Elmore, J.R. Arnold, and H.E. Gove. Measurements of ^{129}I in meteorites and a lunar rock by tandem accelerator mass spectrometry. *Nature*, 305:611, 1983.
- [29] G. Korschinek. Technische Universität München E15, pers. Mitteilung.
- [30] S. Merchel, U. Herpers, P. W. Kubik, M. Suter, T. Faestermann, K. Knie, G. Korschinek, and C. Schmidt. Determination of the cosmogenic radionuclides Be10, Al26, Mn53 in meteorites via accelerator mass spectrometry. *4th international conference on nuclear and radiochemistry st. malo, france, 8-13 septembre*, 38(1):44, 1996. abstract.
- [31] J.R. Arnold. Decay counting in the age of AMS. *Nucl. Inst. and Meth.*, B29:424, 1987.
- [32] K. Knie. *Beschleunigermassenspektrometrie mit Isobarensparation in einem dezidierten gasgefüllten Magneten*. Dissertation, TU München, 1996.
- [33] R. Middleton. A versatile high intensity negative ion source. *Nucl. Inst. and Meth.*, A214:139–150, 1983.
- [34] A. Urban. *Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{41}Ca* . Diplomarbeit, TU München, 1986.
- [35] G. Korschinek, J. Sellmair, and A. Urban. A study of different ion sources for the use in the ^{205}Pb experiment. *Nucl. Inst. and Meth.*, A271:328, 1988.
- [36] R.C. Weast, editor. *Handbook of Chemistry and Physics*. The Chemical Rubber Co., 51st edition, 1970.
- [37] R. Müller and H.W. Wassmuth. Zur Diskriminierung isobarer Kernreaktionsprodukte mit Hilfe positiver und negativer Oberflächenionisation. *Nucl. Inst. and Meth.*, A127:225, 1975.
- [38] G.M. Raisbeck, F. Yiou, and C. Stephan. ^{26}Al measurement with a cyclotron. *J. Phys. (Paris)*, 40:L241, 1979.

- [39] G. Korschinek, H. Morinaga, E. Nolte, E. Preisenberger, U. Ratzinger, A. Urban, P. Dragovitsch, and S. Vogt. Accelerator mass spectrometry with completely stripped ^{41}Ca and ^{53}Mn ions at the Munich tandem accelerator. *Nucl. Inst. and Meth.*, B29:67, 1987.
- [40] H.-D. Betz. Charge states and charge-changing cross sections of fast heavy ions penetrating through gaseous and solid media. *Rev. Mod. Phys.*, 44:465–539, 1972.
- [41] R.O. Sayer. Semi-empirical formulas for heavy-ion stripping data. *Revue de Physique Appliquee*, page 1543, 1977.
- [42] Kernforschungszentrum Karlsruhe. Karlsruher Nuklidkarte, 1981.
- [43] S. Vogt. *Untersuchungen zur tiefenabhängigen Produktion langlebiger kosmogener Radionuklide in Meteoriten*. Dissertation, Universität zu Köln, 1988.
- [44] S. Merchel. Universität zu Köln, pers. Mitteilung, 1996.
- [45] H. J. Maier. Ludwigs Maximilians Universität münchen, pers. Mitteilung, 1996.
- [46] R. Beiderbeck. Institut für angewandte Mineralogie und Geochemie der TU München, pers. Mitteilung.
- [47] P. Jenniskens, H. Betlem, J. Betlem, E. Barifaijo, T. Schlüter, C. Hampton, M. Laubenstein, J. Kunz, and G. Heusser. The Mbale meteorite shower. *Meteoritics*, 29:246, 1994.
- [48] M. Lindsay. Mbale impact shower. *Nature*, page 185, 1994.
- [49] K. M. Suthar, C. J. Clement, S. V. S. Murty, and B. Bhandari. Cosmogenic effects in Mbale Chondrite. *Proc. Lun. Planet. Sci. Conf. XXVI*, 26:1379, 1995.
- [50] G. Korschinek. pers. Mitteilung, 1996.
- [51] M. Anklin et al. Climate instability during the last interglacial period recorded in the GRIP ice core. *Nature*, page 203, 1993.
- [52] J. Kipfstuhl. AWI Bremerhafen, pers. Mitteilung.
- [53] G. Jeschke. Charakterisierung und Vergleich hydrogenetischer und hydrothermalen Manganerzkrusten vom Pitcairn Hot-Spot (Zentraler Südpazifik) und den Gesellschaftsinseln anhand hochauflösender geochemischer Spurenanalytik. Diplomarbeit, Christian-Albrecht-Universität zu Kiel, 1991.

- [54] K. A. Farley and D. B. Patterson. A 100-kyr periodicity in the flux of extraterrestrial ^3He to the sea floor. *Nature*, page 600, 1995.
- [55] J. Scholten. Universität Kiel, pers. Mitteilung.
- [56] D. S. Cronan. Metallogenesis at oceanic spreading centers. *J. Geol.Soc.London*, 136:621, 1979.
- [57] D. Puteanus, G. P. Glasby, P. Stoffers, A. Mangini, and H. Kunzendorf. Distribution, internal structure and composition of manganese crusts from seamounts east of the Teahitia-Mehetia hotspot, Southwest Pacific. *Mar. Mining*, 8:245, 1989.
- [58] J.W. Cronin und T. K. Gaisser und S. P. Swordy. Kosmische Strahlung höchster Energie. *Spektrum der Wissenschaft*, page 44, 3 1997.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen meinen Dank aussprechen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Einige von Ihnen seien besonders erwähnt. Danke

- Herrn Prof. H.-J. Körner für die interessanten Gespräche, sein Engagement für die Ausbildung der Studenten und die Möglichkeit, mein Studium unbürokratisch individuell durchführen zu können.
- Herrn Dr. T. Faestermann für seine unzähligen halben Stunden in meiner Diplom-Prüfungszeit, seine Geduld bei bohrenden Fragen weit über den Betreuungsrahmen hinaus und die vielen interessanten Diskussionen.
- Herrn Dr. G. Korschinek für die ausgezeichnete Betreuung, das frische Interesse an allen Problemen und Diskussionen zur Physik und allgemein allen interessanten Fragestellungen sowie den panzerbrechenden Humor in allen Lebenslagen.
- Herrn Dr. K. Knie für die hervorragende, kollegial-kompetente Betreuung und die freundschaftliche Unterstützung sowie den entwaffnend trockenen Humor.
- Herrn Dr. J. Scholten für die sehr gute Zusammenarbeit in der Diskussion und Beratung sowie bei der Beschaffung der Sediment- und Krusten-Proben.
- Herrn Dr. J. Kipfstuhl und Herrn Dr. T. Thorsteinsson für die unkomplizierte Unterstützung bei der Planung unseres Grönlandprojekts sowie dem gesamten NGRIP-Team für die geleistete Hilfe unter extremsten Bedingungen.
- Herrn Dr. H.-J. Maier und Herrn H.-U. Friebel für die Unterstützung bei den zeitaufwendigen Versuchen zur Isobaren-Unterdrückung.
- Herrn Dr. W. Assmann für die interessanten und offenen Gespräche, vorallem aber natürlich für die Durchführung der ERDA-Messungen unserer extraterrestrischen Proben zur Optimierung der Chemie zur Isobaren-Unterdrückung.
- Herrn R. Beiderbeck für seine stets unverzügliche und freundliche Hilfe bei der Voranalyse unserer Sedimentproben mit der RFA und für sein Interesse an unserer Arbeit.

- Frau S. Merchel und Herrn Dr. U. Herpers für die Beschaffung und Aufarbeitung der Meteoritenproben, die Beratung zur Isobaren-Unterdrückung sowie die Unterstützung bei unseren Strahlzeiten.
- Herrn Prof. E. Nolte für die zahlreichen Diskussionen zum terrestrischen ^{53}Mn -Untergrund, dem atmosphärischen Transport und vorallem der Integration in seine Gruppe trotz verkehrten Stallgeruchs.
- Herrn B. Heisinger für die für uns wichtigen Diskussionen zum terrestrischen ^{53}Mn -Untergrund sowie die für uns durchgeführten Rechnungen.
- Herrn S. Massonet für die unermüdliche Hilfe in Rechnerfragen, gerade wenn es besonders eng wurde.
- Herrn Dr. J. Wieser und Herrn M. Salvermoser sowie der Lasergruppe um Herrn Dr. A. Ulrich für die vielen spannenden Diskussionen zur Physik und die freundliche Aufnahme in ihre Räumlichkeiten.
- Frau B. Russ für Tat und Rat bei organisatorischen Problemen sowie ihre Art, den Alltag für ihre Mitmenschen freundlicher zu gestalten.
- Herrn W. Carli, Herrn H. Welzenbach, Herrn S. Koschartz und dem ganzen Team der Operateure für die vielen Hilfen, Fädeln im Morgengrauen sowie die vielen Besprechungen.
- Herrn K. Schöffel, Herrn R. Lutter sowie der gesamten Rechnergruppe für die vielen Hilfen mit den feindseeligen Replays.
- Frau S. Sedlmair, Herrn F. Haftlmeier und seinem Team für die Unterstützung beim Bau der Hydridquelle und vielen wertvollen Ratschlägen und Arbeitseinheiten.
- Frau U. Heim und der gesamten E15-Gruppe für die gemeinsamen Diskussions- und Tee-Pausen, in denen mir mein Fremdkörperstatus als E12ler oft nicht zum Vorwurf gemacht wurde.
- Herrn R. Lang und Herrn M. Klöckner für die schnelle und unkomplizierte Hilfe beim Fertigen unserer Probenhalter.
- Frau A. Elhardt und Herrn G. Rugel für die Hilfe bei der Komma-Hatz.

Meiner Mutter für ihr Interesse an meiner Arbeit und die Unterstützung, die mir dieses Studium ermöglicht hat.