



Radioaktive und radiogene Isotope:

Veränderung der Isotopenhäufigkeiten durch Kernzerfall

- spontaner Kernzerfall
- induzierte Kernprozesse (durch Auftreffen von Neutronen, Protonen und anderen Teilchen auf Atomkerne)

Kernzerfall: instabile Kerne wandeln sich in stabile Kerne um.

Dabei wird Strahlung emittiert („Radioaktivität“):

- α - Zerfall: Abgabe von Helium-Kernen
- β^- - Zerfall: Umwandlung eines Neutrons in ein Proton + Elektron; Abgabe des Elektrons
- β^+ - Zerfall: Umwandlung eines Protons in ein Neutron + Positron; Abgabe des Positrons (positiv geladenes Elektron)
- γ - Zerfall: Abgabe elektromagnetischer Strahlung
- Elektronen -Einfang: Elektron (meist aus der K-Schale – „K-Einfang“) wird in Kern gebracht, dort Reaktion mit Proton zu Neutron. Führt oft zu Tochterprodukten mit angeregten Zustand, die durch γ - Strahlung (z.B. ausgelöst durch Nachrutschen eines Elektrons aus L- in K-Schale) sich in stabile Endprodukte umwandeln. Können als γ - Strahlung Erzeuger genutzt werden.



Rutherford & Soddy: Gesetz des radioaktiven Zerfalls

$$\frac{dN}{dt} = \lambda \cdot N$$

λ – Zerfallskonstante (Wahrscheinlichkeit, mit der 1 Atom in bestimmter Zeit zerfällt)

N – Anzahl radioaktiver Atome

t – Zeit

$$N = N_0 e^{-\lambda t}$$

e – Integrationskonstante (2,718..)

Zerfallsrate hängt nur von Konzentration des Mutter-Isotops ab und wird immer geringer im Laufe der Zeit

Jedes Kernzerfallssystem hat seine eigene Zerfallskonstante = Maß für Geschwindigkeit des Kernzerfalls

$$t_{1/2} = \ln 2 / \lambda = 0.6931 / \lambda$$

Halbwertszeit: Zeit, nach der die Hälfte der anfänglichen Menge (N_0) zerfallen ist

Einführung in die Isotopengeochemie (M. Tichomirowa)

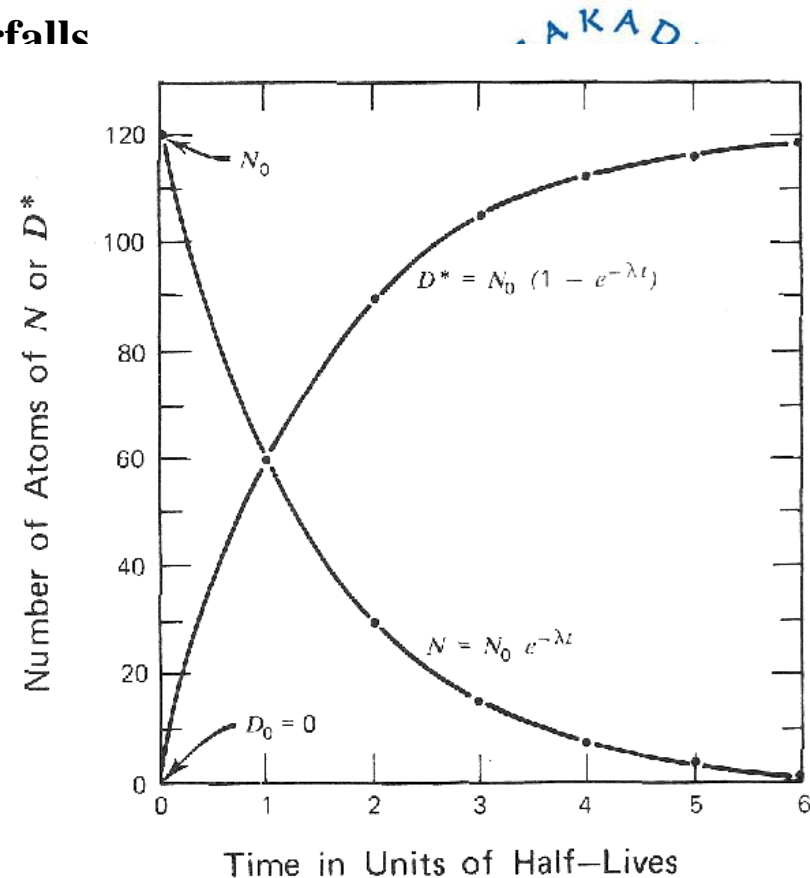


Figure 4.1 Decay of a hypothetical radio-nuclide (N) to a stable radiogenic daughter (D^*) as a function of time measured in units of half-lives. It can be seen that $N \rightarrow 0$ as $t \rightarrow \infty$, while $D^* \rightarrow N_0$ as $t \rightarrow \infty$.

Willkürliche Grenze zwischen stabilen und instabilen Kernen:

- Stabile Isotope: $t_{1/2} > 10^{16}$ a
- Instabile (radioaktive) Isotope: $t_{1/2} < 10^{16}$ a

In der Natur – kontinuierlicher Übergang

Geochronologie nutzt i.d.R. Zerfallssysteme mit Halbwertszeiten von 10^9 bis 10^{11} a

Geochronologie – Berechnung der Zeit t

$$N = N_0 e^{-\lambda t}$$

$$N_0 = N + D$$

$$D = N (e^{\lambda t} - 1)$$

Einführung in die Isotopengeochemie

TABELLE 1: (wichtige) Methoden der Geochronologie

Isotopensystem	Zerfall	Zerfallsart ^a	Zerfallskonstante	Halbwertszeit
K-Ar [von Weizsäcker 1937, Aldrich & Nier 1948]	$^{40}\text{K} \rightarrow ^{40}\text{Ar}$	[ε]	$\lambda_\epsilon = 0.581 \times 10^{-10} \text{ a}^{-1}$	$T = 1.25 \times 10^9 \text{ a}$
Ar-Ar [Merrill & Turner 1966]	$^{40}\text{K} \rightarrow ^{40}\text{Ar}$			
Rb-Sr [Hahn & Welling 1938, Hahn et al. 1943]	$^{87}\text{Rb} \rightarrow ^{87}\text{Sr}$	[β ⁻]	$\lambda = 1.42 \times 10^{-11} \text{ a}^{-1}$	$T = 48.8 \times 10^9 \text{ a}$
Sm-Nd [Lugmair 1974]	$^{147}\text{Sm} \rightarrow ^{143}\text{Nd}$	[α]	$\lambda = 6.54 \times 10^{-12} \text{ a}^{-1}$	$T = 106 \times 10^9 \text{ a}$
La-Ce [Tanaka & Masuda 1982]	$^{138}\text{La} \rightarrow ^{138}\text{Ce}$	[β ⁻]	$\lambda_\beta = 2.58 \times 10^{-12} \text{ a}^{-1}$	$T = 97 \times 10^9 \text{ a}$
Lu-Hf [Herr et al. 1958, Patchett et al. 1980]	$^{176}\text{Lu} \rightarrow ^{176}\text{Hf}$	[β ⁻]	$\lambda = 1.96 \times 10^{-11} \text{ a}^{-1}$	$T = 35.3 \times 10^9 \text{ a}$
Re-Os [Herr et al. 1961, Luck & Allègre 1983]	$^{187}\text{Re} \rightarrow ^{187}\text{Os}$	[β ⁻]	$\lambda = 1.52 \times 10^{-11} \text{ a}^{-1}$	$T = 45.6 \times 10^9 \text{ a}$
K-Ca [Ahrens 1950, Marshall & DePaolo 1982]	$^{40}\text{K} \rightarrow ^{40}\text{Ca}$	[β ⁻]	$\lambda_\beta = 4.962 \times 10^{-10} \text{ a}^{-1}$	$T = 1.25 \times 10^9 \text{ a}$
U-Pb	$^{238}\text{U} \rightarrow ^{206}\text{Pb}$ $^{235}\text{U} \rightarrow ^{207}\text{Pb}$	[8α, 6β ⁻] [7α, 4β ⁻]	$\lambda_\alpha = 1.5512 \times 10^{-10} \text{ a}^{-1}$ $\lambda_\alpha = 9.848 \times 10^{-10} \text{ a}^{-1}$	$T = 4.468 \times 10^9 \text{ a}$ $T = 0.7038 \times 10^9 \text{ a}$
Th-Pb	$^{232}\text{Th} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$	[6α, 4β ⁻]	$\lambda_\alpha = 4.9475 \times 10^{-11} \text{ a}^{-1}$	$T = 14.01 \times 10^9 \text{ a}$
Pb-Pb	$^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$, $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$]			
	[Holmes 1946, Houtermans 1946]			
Spaltspuren- methode (Fission Tracks)	nutzt die Störungen aus, die in Kristallen durch die Spon- tanspaltung von ^{238}U erzeugt werden		$\lambda_f = 8.46 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$	
	[Price & Walker 1962]			
U-Ungleich- gewichtsmethoden	$^{230}\text{Th} - ^{238}\text{U}$		$\lambda_{230} = 9.217 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1}$	$T = 75.2 \times 10^3 \text{ a}$
	(anwendbar nur, wenn der Zerfall von U in Pb nicht im geschlossenen System erfolgt) [Picciotto & Wilgoin 1954]			
^{14}C [Libby 1946]	$^{14}\text{N} + ^1_0\text{n} \rightarrow ^{14}\text{C}$ $+ ^1_1\text{H}$		$\lambda = 1.209 \times 10^{-4} \text{ a}^{-1}$	$T = 5.73 \times 10^3 \text{ a}$
	andere kosmogene Radionuklide, produziert durch Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit Atmosphäre oder Erdoberfläche:			
^{10}Be			$\lambda = 0.462 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1}$	$T = 1.5 \times 10^6 \text{ a}$
^{26}Al			$\lambda = 0.968 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1}$	$T = 0.716 \times 10^6 \text{ a}$
^{36}Cl			$\lambda = 2.25 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1}$	$T = 0.308 \times 10^6 \text{ a}$
^{53}Mn			$\lambda = 0.187 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1}$	$T = 3.7 \times 10^6 \text{ a}$

a. α, β, ε = Zerfall durch α- oder β⁻-Strahlung bzw. Elektroneneinfang

- Konzentrationsbestimmung Mutterisotop
- Konzentrationsbestimmung Tochterisotop

Konzentrationsbestimmung durch „Isotopenverdünnung“
(Fehler $\leq 1\%$)

Notwendige Arbeitsschritte:

- chemischer Aufschluss
- Trennung der Elemente an Ionenaustauschersäulen
- massenspektrometrische Messung der Mutter- und Tochterisotope

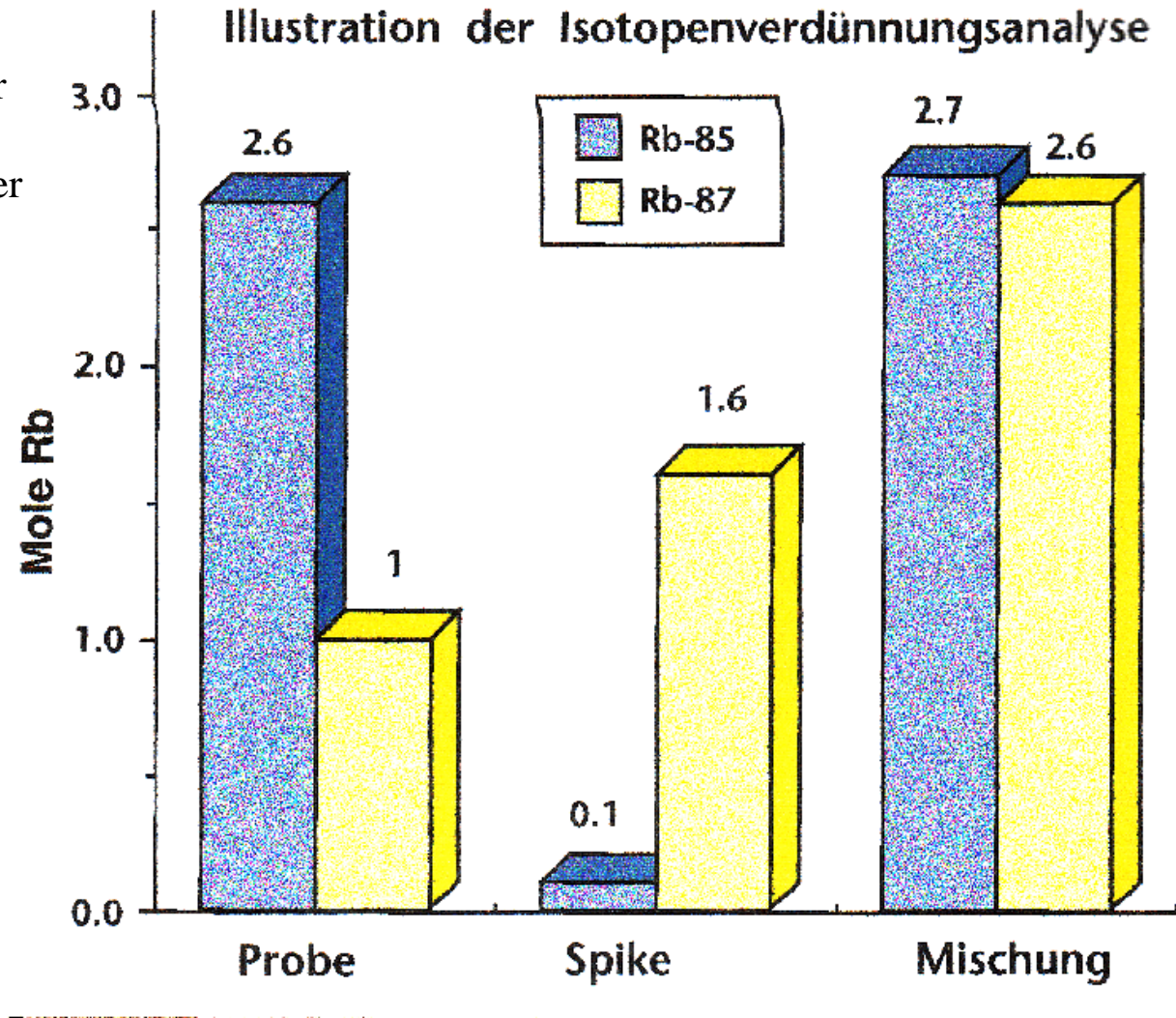
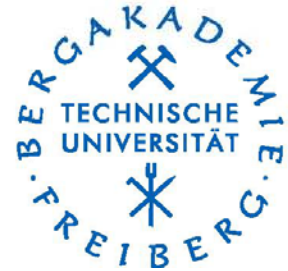
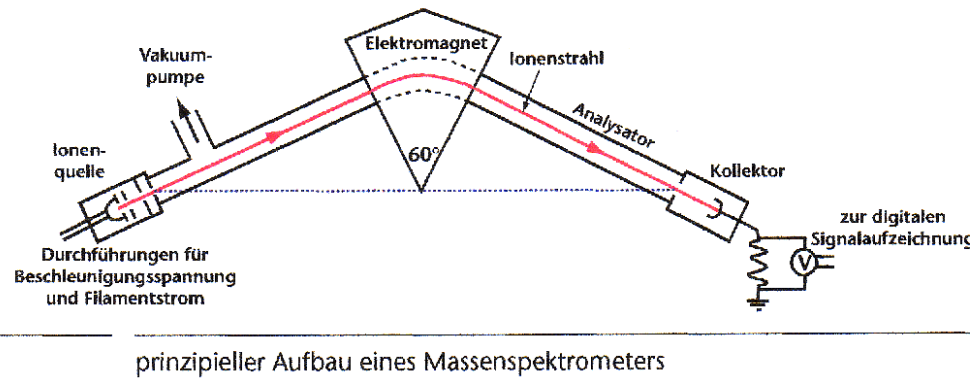


ABBILDUNG 10 Beispiel einer Isotopenverdünnungsanalyse

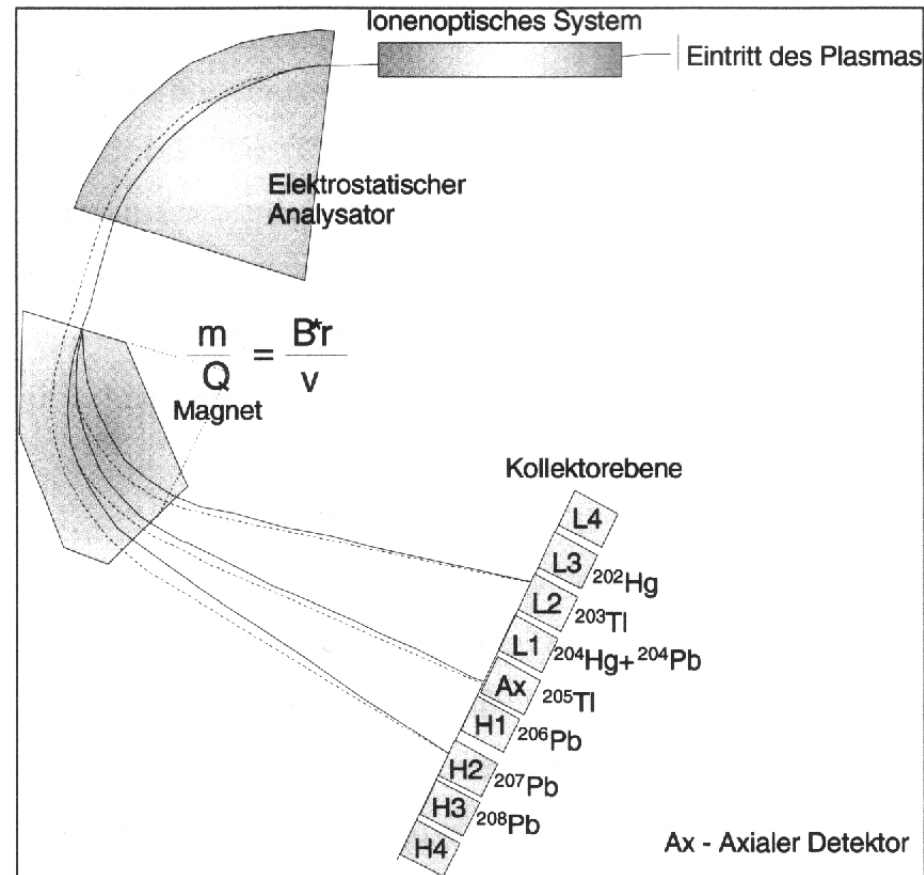
Massenspektrometer



TIMS – ThermoIonenMassenSpektrometer – Feststoff-MS



ICP-MS



Einführung in die Isotopengeochemie (I

Abb. 3.2.: Prinzipskizze des MC-MS (leicht verändert, nach VG Product Information)



Datierungssysteme

1. bei $t = 0$, kein Tochterisotop vorhanden ($D = 0$)
z.B. Datierungssystem:
Voraussetzung für erfolgreiche Datierung:
2. bei $t = 0$, Tochterisotop vorhanden ($D > 0$)
z.B. Datierungssystem:
Datierung mittels „Isochronen“
Voraussetzungen für erfolgreiche Datierung:
3. Datierung mit mehreren Zerfallsreihen
z.B. Datierungssystem:
Voraussetzungen für erfolgreiche Datierung:

Geschlossenes System: Konzept von Schließungstemperaturen



Tabelle 1 Schließtemperaturen (°C) von wichtigen gesteinsbildenden Mineralen für die Rb-Sr- und Ar-Ar-Datierungsmethode

Minerale	Rb-Sr-System	Ar-System
Hornblende	550-650 ^a	500-700 ^{c, f, h}
Muskowit	450-550 ^{b, c, k}	325-425 ^{c, d, k, l}
Biotit	250-350 ^{b, c, d, k}	280-375 ^{c, g, h, k}
K-Feldspat	625-800 ^e	150-200 ^{c, i}
Plagioklas	505-800 ^{e, j, k}	175 ^h

Abhängig von:

- Korngröße
- Abkühlungsgeschwindigkeit

= „trockenes“ System!

a - Brabander and Giletti (1995); b - Jäger et al. (1967); c - Burbank and Anderson (2001); d - Del Moro et al. (1982); e - Giletti (1991); f - Harrison (1981); g - Harrison et al. (1985); h - Berger and York (1981); i - Harrison and McDougall (1982); j - Baxter and DePaolo (2000); k - Baxter et al. (2002); l - Harrison et al. (2009).

Zeitlicher Abkühlungsverlauf

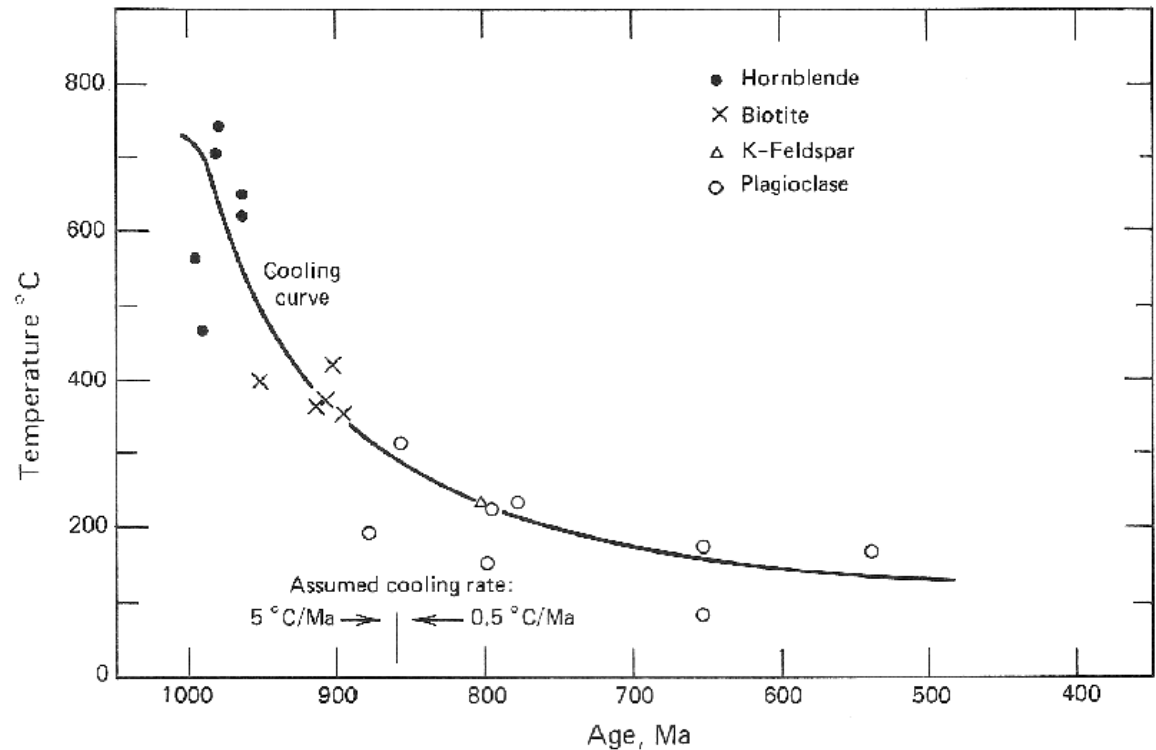


Figure 7.9 Cooling curve for the Haliburton Highlands, Grenville structural province, Ontario, derived by determining both a date and a closure temperature during step-heating of minerals for dating by the $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ method. The error bars have been omitted to avoid obscuring the cooling curve preferred by the authors. The results imply a high geothermal gradient of about $33^\circ\text{C}/\text{km}$ about 1000 Ma ago and cooling rates that decreased from about $20^\circ\text{C}/\text{Ma}$ at 975 Ma to about $2^\circ\text{C}/\text{Ma}$ at 925 Ma and to about $0.3^\circ\text{C}/\text{Ma}$ at 700 Ma. By combining the thermal history with estimates of lithostatic pressure 1000 Ma ago, one can estimate time-integrated uplift rates of about $37\text{ m}/\text{Ma}$ between 1000 and 550 Ma and about $8\text{ m}/\text{Ma}$ from 550 Ma to the present. (Berger and York, 1981.)



Datierung verschiedener geologischer Prozesse:

- magmatische Prozesse
- metamorphe Prozesse
- hydrothermale Prozesse
- sedimentäre Prozesse



K/Ar und Ar/Ar-Methode

Dualzerfall des ^{40}K :

→ ^{40}Ar (11%); K-Einfang, β^+ - Emission

→ ^{40}Ca (89%); β^- - Emission

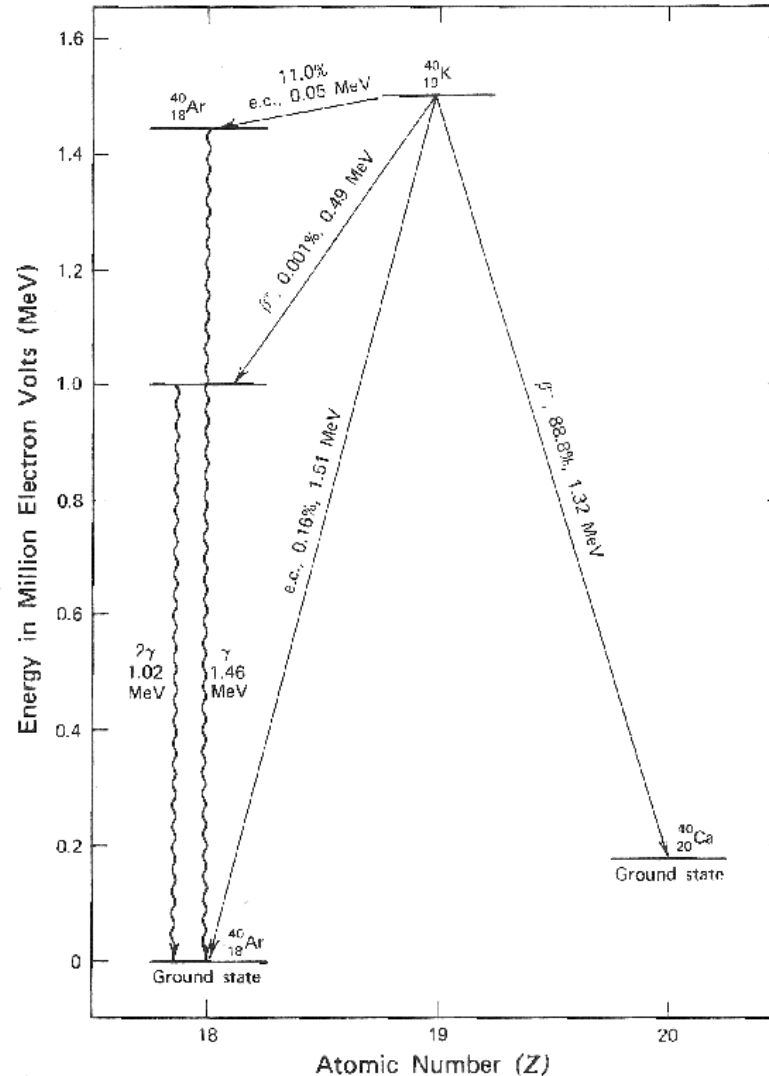
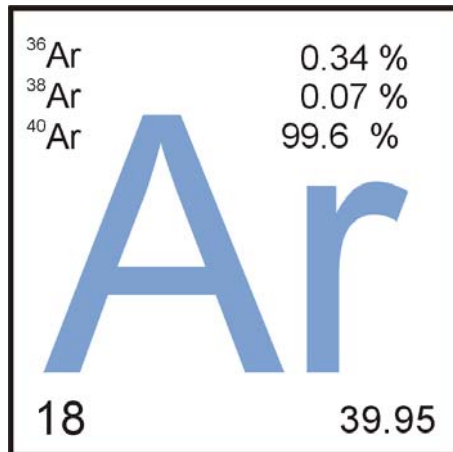
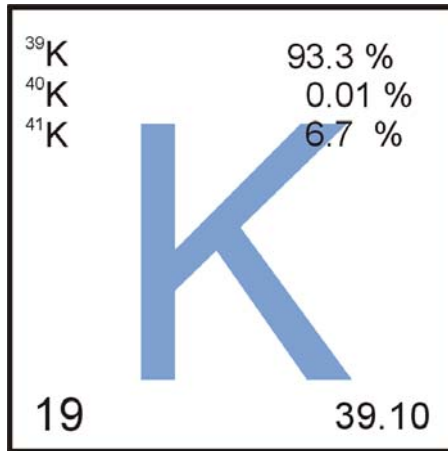


Figure 3.7 Decay scheme diagram for the branched decay of ^{40}K to ^{40}Ar by electron capture and by positron emission and to ^{40}Ca by emission of negative beta particles. A detailed explanation is given in the text. (After Dalrymple and Lanphere, 1969.)



$$\mathbf{D} = \mathbf{N} (e^{\lambda t} - 1)$$

$${}^{40}\text{Ar} + {}^{40}\text{Ca} = {}^{40}\text{K} (e^{\lambda t} - 1)$$

$$\lambda = \lambda_e + \lambda_\beta$$

$${}^{40}\text{Ar} = \lambda_e / \lambda \cdot {}^{40}\text{K} (e^{\lambda t} - 1)$$

$$t = 1/\lambda \ln [{}^{40}\text{Ar}/{}^{40}\text{K} \cdot (\lambda/\lambda_e) + 1]$$

$$\lambda_e : {}^{40}\text{K} \rightarrow {}^{40}\text{Ar} = 0.581 \times 10^{-10} \text{ a}^{-1}$$

$$\lambda_\beta : {}^{40}\text{K} \rightarrow {}^{40}\text{Ca} = 5.543 \times 10^{-10} \text{ a}^{-1}$$

$$\text{Ar}_i = 0$$

K-Bestimmung (Hauptelement): AAS, RFA, NAA, Flammenphotometrie....

Ar-Bestimmung: Isotopenverdünnung am MS

Atmosphäre enthält 0.89 % Ar: Ar ist an geologischen Proben adsorbiert

$${}^{40}\text{Ar}_{\text{gemessen}} = {}^{40}\text{Ar}^*_{\text{radiogen}} + {}^{40}\text{Ar}$$

$$({}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar})_{\text{Luft}} = 295.5$$

${}^{38}\text{Ar}$ = Tracer (Spike)

über ${}^{38}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$ wird Ar-Gehalt bestimmt

Vakuumapparatur mit Hochtemperaturofen oder Laser zur thermischen Freigabe von Ar; Reinigung von anderen Elementen (Fallen); Messung am Gas-MS





Notwendige Bedingungen für die Anwendung der K/Ar-Datierungsmethode

1. Korrektur Luft-Argon
2. Geschlossenes K- und Ar-System, d.h.:
 - $Ar_i = 0$
 - Kein **Argon-Verlust** (erfordert relativ schnelle Abkühlung des Gesteins)
 - Kein Überschuss-Argon („**Excess-Argon**“)
 - Keine K-Zufuhr
 - Keine K-Abfuhr

Ar – Edelgas, nicht in Kristallstruktur gebunden
Adsorbiert, in Defekten

Diffusionsverhalten des Ar ist abhängig von T

Schließungs-Temperatur: Temperatur, unter der keine Diffusion des Ar mehr möglich ist
Eignung der Minerale oder Gesteine für die K/Ar-Datierung hängt vom Diffusionsverhalten ab

K – vorrangig Datierung von K-Mineralen und Gesamtgesteinen

Glimmer

Feldspäte

Glaukonite

aber auch Hornblenden (Diffusionsverhalten des Ar)

Problem: Argon-Verlust



- partielle oder vollständige Schmelzprozesse (Kristallneubildung)
- erhöhte T und p (Regional- und Kontakt-Metamorphose);
auch ohne Anzeichen physikalischer und chemischer Veränderungen des Gesteins
- chemische Verwitterung, Fluideinwirkung (Veränderung von K-Gehalt möglich)
→ **frische Proben**
- Lösung von Mineralen und Neu-Ausfällung (z.B. Salze)
- mechanische Einwirkungen, Schock, Zermahlen der Proben (**keine Pulver-Proben!**)



Problem: Excess Argon

Extrem hohe $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ – Verhältnisse in Mantelgesteinen (bis zu 25000)

Hypothese: Gasentladungen der Mantelgesteine, insbesondere in der frühen Erdgeschichte

→ Abgabe von ^{36}Ar ;

→ dann Anreicherung von ^{40}Ar durch Zerfall

Excess-Argon ist häufig in:

- Xenolithen und Xenokrysten von Basalten
- Kimberliten
- Pegmatiten
- metamorphen Gesteinen mit hohem Ar-Partialdruck
- „jungen“ Mineralen mit geringem K-Gehalt (z.B. Beryll, Cordierit, Pyroxene, Turmalin)
- bei K-Abreicherung
- mit Fluid- und Schmelzeinschlüssen assoziiert

Problem: Excess Argon

Kelley (2002) erklärt Excess-Argon im wesentlichen mit verschiedenen Löslichkeiten von Ar in Mineralen, Schmelzen und Fluida

Fluida wirken als infinitives Medium der Aufnahme von Ar, dadurch kommt es relativ selten zu Excess-Argon in Mineralen (inkompatibles Ar)

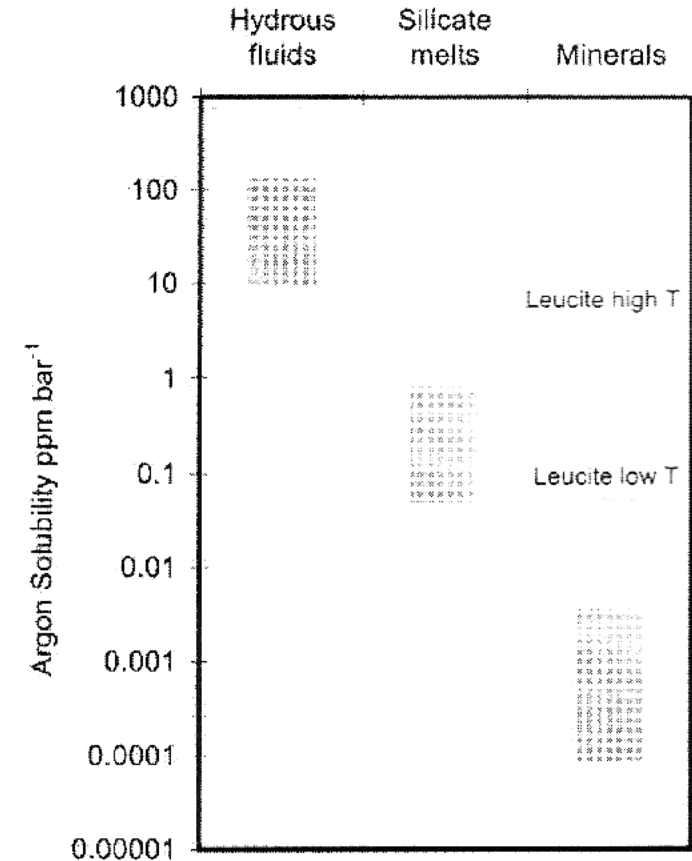


Fig. 4. Argon solubility ranges in hydrous fluid, melts and minerals. Hydrous fluid solubility shows the range including high temperature and high salinity data. Most melts fall in a relatively narrow range but SiO_2 has unusually high solubility for a melt of 1.8 ppm bar^{-1} . Minerals show a wide range of solubility, probably correlated with their ionic porosity, the mineral leucite has a high solubility as a result of its unusual structure. Values for leucite are shown separately from other minerals since both low and high temperature forms show very high argon solubility.

Kelley (2002)

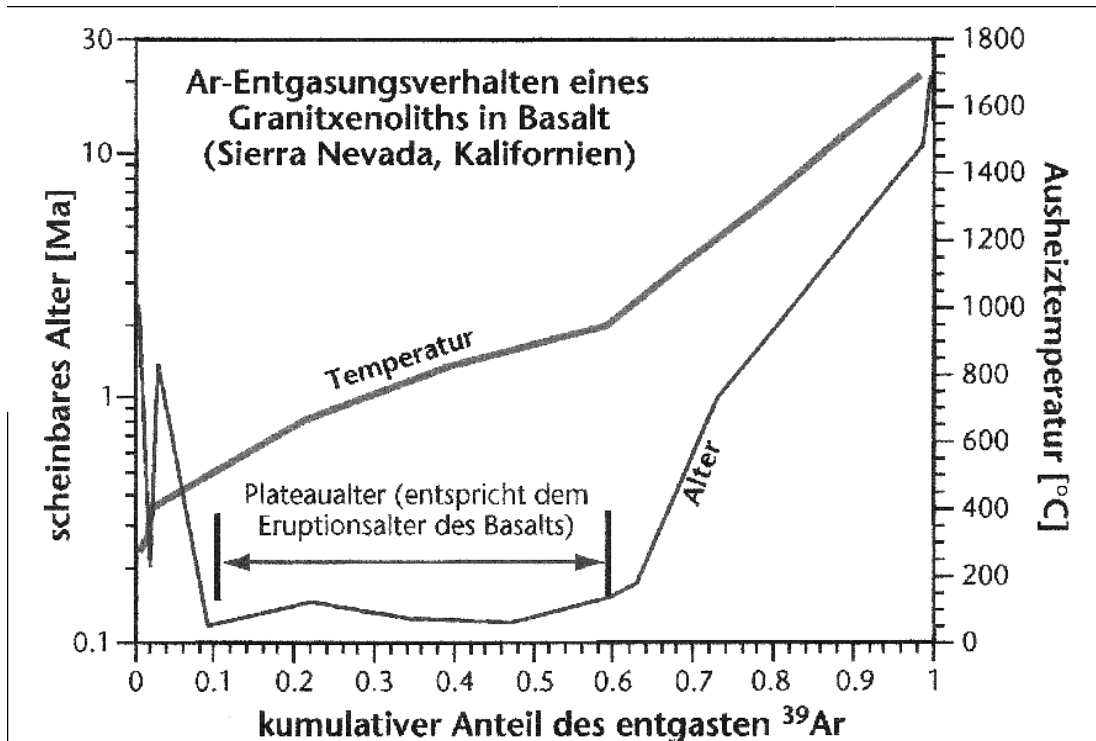
⁴⁰Ar/³⁹Ar-Methode



Probe wird im Kernreaktor mit beschleunigten Neutronen bestrahlt: $^{39}\text{K} + n \rightarrow ^{39}\text{Ar}$

Vorteile:

- Keine Extrabestimmung des K-Gehaltes notwendig, kann über ³⁹Ar bestimmt werden
- stufenweises Aufheizen der Probe möglich → schrittweise Ar-Freigabe
- Laser-Einsatz (für ganzes Korn bzw. Punktanalyse)



Aufdecken von Excess-Argon
bzw. Argon-Verlust möglich

Ar-Isochrone:
 Neigung entspricht Alter von 3700 Ma
 Schnittpunkt mit y-Achse $\neq 0$ (3.3),
 d.h. Excess Argon

Excess Argon durch Sonnenwind

Ar-Verlust im Niedrig-T-Bereich

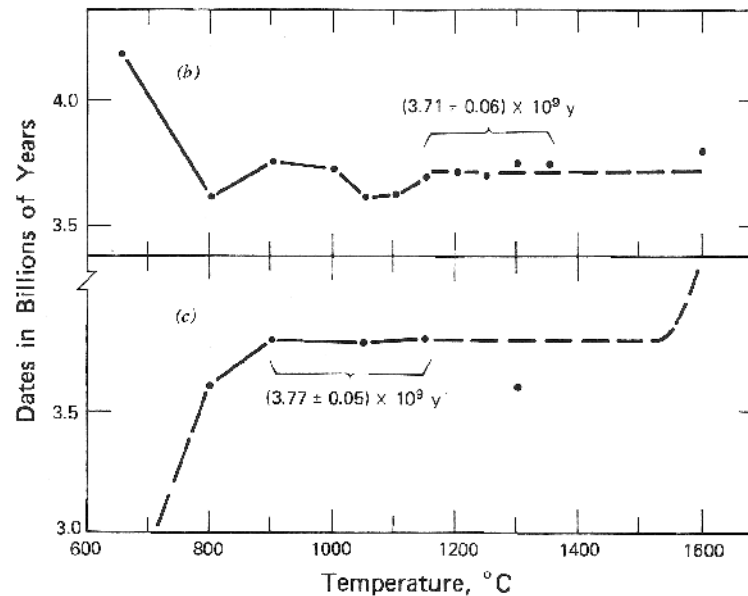
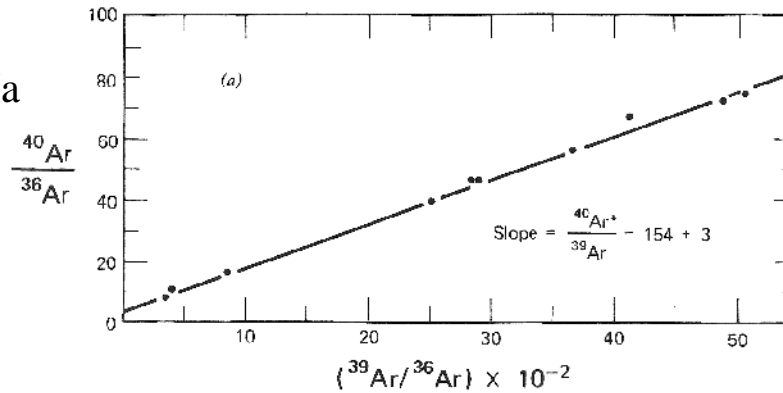


Figure 7.5 (a) Argon-isotope correlation-diagram for orange glass (74220, 39) from the Taurus-Littrow valley of the Moon (Apollo 17). The coordinates of the data points are isotope ratios of argon released by stepwise degassing of a neutron-irradiated sample weighing only 85 mg. The slope of the correlation line is the ratio $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ and has a value of 154 ± 3 that corresponds to an age of 3.70 billion years. (b) Age spectrum for gas fractions released at different temperatures from the same orange glass. The $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ ratios were corrected for excess ^{40}Ar due to ion implantation by the solar wind using the intercept value of the correlation line (part a) which is $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar} = 3.3 \pm 0.2$. The average plateau age is 3.71 ± 0.06 billion years calculated from the gas fractions released between 1150° and 1350°C . (c) Age spectrum of basalt (75083, 2.5) from the Taurus-Littrow valley. The release pattern is typical of mare basalts showing evidence of $^{40}\text{Ar}^*$ loss in the low-temperature fractions followed by a stable plateau. The age of this basalt is 3.77 ± 0.05 billion years. (Husain and Schaeffer, 1973.)

Anwendung der K/Ar und Ar/Ar-Datierung



➤ Datierung von Metamorphiten

Voraussetzung?

➤ Datierung von Sedimentgesteinen

- neu gebildete Minerale
(z.B. Glaukonite, Smektite)
- Altbestand (klastisches Material)

Gut geeignet zur Datierung:

Synsedimentäre vulkanische Gesteine

(z.B. Bentonite = Alterationsprodukte

Vulkanischer Aschen)

z.T. auch Glaukonite („Minimalalter“)

➤ Datierung von vulkanischen Gesteinen

Basalte (ohne Xenokrysten und Alterationen)

Glas

Sanidin



Mit K/Ar wurde:

- die erste Zeitskala orogener Perioden aufgestellt
- erste Unterteilung verschiedener Struktureinheiten



Die verwendeten Abbildungen sind aus:

- Faure G. (1986): „Principles of Isotope Geology“, J. Wiley & Sons (eds), New York, 589 pp.
- Stosch H.-G. (1999): „Einführung in die Isotopengeochemie“, Vorlesungsscript, 226 S.
im Internet zu finden: <http://agk-gaussberg.agk.uni-karlsruhe.de/ftp/Isotopengeochemie/Isotop25.pdf>
- Kelley S. (2002): Excess argon in K-Ar and Ar-Ar geochronology. Chem. Geol. 188, 1-22.

