## Torsten Henkel

Isotopen- und Elementuntersuchungen präsolarer Siliziumkarbid-Körner mit Flugzeit-Massenspektrometrie von Sekundärionen und Laser-ionisierten sekundären Neutralteilchen

## Planetologie

## Isotopen- und Elementuntersuchungen präsolarer Siliziumkarbid-Körner mit Flugzeit-Massenspektrometrie von Sekundärionen und Laser-ionisierten sekundären Neutralteilchen

Inaugural-Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften im Fachbereich Geowissenschaften der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster

> vorgelegt von Torsten Henkel aus Battenberg-Frohnhausen 2002

Dekan: Erster Gutachter: Zweiter Gutachter: Tag der mündlichen Prüfung: Tag der Promotion: Prof. Dr. Gerd Schulte HDoz. Dr. Thomas Stephan Prof. Dr. A. Benninghoven 28. August 2002 28. August 2002

# Inhaltsverzeichnis

In	halts	sverzeichnis	1
$\mathbf{E}^{\mathbf{i}}$	nleit	ung	3
1	Flu	gzeit-Massenspektrometrie	5
	1.1	Zerstäubungsprozess	6
	1.2	Flugzeit-Massenspektrometrie	7
	1.3	TOF-SIMS	8
	1.4	Laser-SNMS	10
	1.5	Bestimmung von Elementhäufigkeiten	12
	1.6	Isotopenverhältnisse	13
2	Isot	copenmessungen mit dem TOF-SIMS IV	15
	2.1	Bestimmung des Isotopenverhältnisses	15
	2.2	Nachweisgrenzen für TOF-SIMS-Isotopenmessungen	18
	2.3	Verwendete Standards und Messmethode	18
	2.4	Ergebnisse der einzelnen Elemente	19
	2.5	Diskussion	27
3	Ast	rophysikalischer Hintergrund	33
	3.1	Urknall	33
	3.2	Entstehung und Leben der Sterne	34
	3.3	Sternentwicklung	35
	3.4	Sternende	40
	3.5	Reststerne	44
	3.6	Galaktische Evolution	45
4	Prä	solare Körner	47
	4.1	Edelgase als Indikator	48
	4.2	Extraktion präsolarer Körner	49
	4.3	Bekannte präsolare Körner	49
	4.4	SiC-Körner	51
	4.5	SiC-X-Körner	53

	4.6	Kondensation in der Sternumgebung	54
5	Unt	tersuchung präsolaren Siliziumkarbids	<b>57</b>
	5.1	Messmethoden	57
	5.2	Abtragsrate für SiC	59
	5.3	SiC-X-Körner	62
	5.4	Tieschitz SiC-Körner	79
	5.5	Murchison SiC-Körner	89
6	Dis	kussion	101
	6.1	Vergleich der Elementverhältnisse	102
	6.2	C- und N-Isotopenverhältnisse	
	6.3	Si-Isotopenverhältnisse	
	6.4	Al-Isotopenverhältnisse	
	6.5	Ungewöhnliche Körner	115
7	Zus	sammenfassung und Ausblick	119
Li	terat	turverzeichnis	123

# Einleitung

Astronomisch ist das Innere der Sterne mit Ausnahme durch Neutrinos nicht zugänglich. Durch präsolare Körner, die man in primitiven Meteoriten findet, erschließt sich ein Weg, etwas über die nuklearen Vorgänge und den Aufbau der Sterne zu erfahren, der über die Information durch die Neutrinos weit hinausgeht. Diese präsolaren Körner kondensierten im abgestoßenen Material einer Supernova oder eines Riesensterns und wurden nicht bei der Bildung des Sonnensystems zerstört, sondern in primitiven Meteoriten inkorporiert. Durch Untersuchungen der präsolaren Körner stehen den theoretischen Modellen experimentelle Daten gegenüber, die eine Bestätigung oder Ablehnung der Theorien ermöglichen.

Die präsolaren Körner sind Träger von Isotopenanomalien – Abweichungen von den solaren Isotopenverhältnissen – von bis zu mehreren Größenordnungen, weswegen sie leicht von solarem Material unterschieden werden können. Diese Isotopenanomalien spiegeln die Zusammensetzung des Entstehungssterns oder eines Teils davon bei der Kondensation der Körner wider. Auf Grund unterschiedlicher Isotopenanomalien und einem Vergleich mit Sternmodellen lassen sich die präsolaren Körner bestimmten Sterntypen zuordnen, in deren Umgebung sie entstanden sein müssen. Einen Überblick über die Sternentwicklung und den sich daraus ergebenden Aufbau und die Zusammensetzung der Sterne findet sich in Kapitel 3.

Vor etwa 15 Jahren wurden die ersten präsolaren Körner aus primitiven Meteoriten extrahiert (Lewis et al., 1987). Es sind mehrere Typen präsolarer Körner bekannt, die intensiv mit DF-SIMS<sup>1</sup>, RIMS<sup>2</sup>, TEM<sup>3</sup> und EDX<sup>4</sup> untersucht wurden (Übersichtsartikel von Anders und Zinner, 1993; Zinner, 1998a; Hoppe und Zinner, 2000). Zu den bisher identifizierten präsolaren Körnern zählen Diamant, Graphit, Siliziumkarbid, Korund und einige weitere Körner. Ihre Größen reichen von wenigen Nanometern (Diamant) bis zu einigen Mikrometern (Graphit, Siliziumkarbid). In Kapitel 4 findet sich eine detaillierte Beschreibung der bekanntesten und häufigsten präsolaren Phasen, Diamant, Graphit und SiC.

Die Flugzeit-Sekundärionenmassenspektrometrie (TOF-SIMS) bietet ebenso

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>DF-SIMS = Doppelt fokussierende Sekundärionen-Massenspektrometrie, siehe Kapitel 1

 $<sup>^{2}</sup>$ RIMS = Resonante Ionisations Massenspektrometrie

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>TEM = Transmissionselektronenmikroskopie

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>EDX = Energiedispersive Röntgenspektrometrie

wie Laser-Sekundärneutralteilchenmassenspektrometrie (Laser-SNMS) den Vorteil einer hohen lateralen Auflösung von bis zu 0,2 µm bei einem sehr geringen Probenverbrauch von typischerweise wenigen Atomlagen. Außerdem sind Tiefenprofilierungen mit einer Auflösung von weniger als 1 nm möglich. Durch die hohe Ortsauflösung wird es möglich, verschiedene Bereiche innerhalb der Körner zu untersuchen. Ein weiterer Vorteil ist die Messung eines kompletten Spektrums der positiven oder negativen Sekundärionen, wodurch unter Berücksichtigung der Nachweisgrenze fast alle Elemente gleichzeitig detektiert werden können. Eine nähere Beschreibung der Massenspektrometrie von Sekundärionen oder sekundären Neutralteilchen ist in Kapitel 1 gegeben.

Für die Anwendung von TOF-SIMS und Laser-SNMS bei der Untersuchung präsolarer Körner wurden die Möglichkeiten für Isotopenmessungen mit TOF-SIMS genauer untersucht. Hierfür wurden acht so genannte MPI-DING-Standards (Jochum et al., 2000), die speziell als Element-Standards sehr homogen hergestellt wurden, und ein SiC-Standard vom National Institute of Standards and Technology (NIST), SRM 112b, untersucht. Die Ergebnisse zeigen, dass Isotopenmessungen mit TOF-SIMS bei einem Probenverbrauch von wenigen Atomlagen möglich sind. Die Fehler der TOF-SIMS-Isotopenmessungen sind zwar im Bereich von bis zu einigen zehn Promill und daher relativ groß, aber klein gegenüber den Isotopenanomalien, die man typischerweise bei präsolaren Körnern findet. Eine ausführliche Beschreibung der Messungen und Ergebnisse der Standardproben sowie eine Erläuterung der Möglichkeiten zur Isotopenmessung mit TOF-SIMS findet sich in Kapitel 2.

Mit dem TOF-SIMS IV der Firma ION-TOF wurden im Rahmen dieser Arbeit 13 verschiedene präsolare SiC-Körner untersucht. Drei dieser Körner sind so genannte SiC-X-Körner, die nach den gängigen Modellen in der Umgebung von Supernovae kondensiert sind. Die übrigen zehn SiC-Körner gehören zu den so genannten Mainstream-SiC- und SiC-B-Körnern, die vermutlich Kondensate von AGB-Sternen bzw. kohlenstoffreichen Sternen des J-Typs sind. Jeweils fünf dieser Körner sind aus den Meteoriten Tieschitz bzw. Murchison extrahiert worden. Zwei der SiC-X-Körner stammen aus Tieschitz und eins aus Murchison. Ausführliche Beschreibungen der Messungen und Ergebnisse folgen in Kapitel 5 und 6.

# Kapitel 1

# Flugzeit-Massenspektrometrie von Sekundärteilchen

Die Flugzeit-Sekundärionenmassenspektrometrie (**TOF-SIMS**) bietet den Vorteil hoher Ortsauflösung ( $\geq 0.2~\mu m$ ) bei gleichzeitiger Detektierung fast aller Elemente und einem sehr geringen Probenverbrauch von wenigen Atomlagen. Im Rahmen dieser Arbeit soll nun die Anwendbarkeit von TOF-SIMS bei der Messung präsolarer Körner untersucht werden. Weitere Messungen wurden mit Laser-Sekundärneutralteilchenmassenspektrometrie (**Laser-SNMS**) durchgeführt. Da Laser-SNMS auf dem gleichen Zerstäubungsprozess wie TOF-SIMS beruht, bietet es die gleiche hohe Ortsauflösung bei einem noch geringeren Probenverbrauch und der Möglichkeit, fast alle Elemente in einer einzigen Messung zu erfassen (Arlinghaus und Guo, 1997), während bei TOF-SIMS positive und negative Sekundärionen getrennt gemessen werden müssen.

Durch den Beschuss der Probenoberfläche mit Primärionen werden sekundäre Ionen ( $\leq 1\,\%$ ) und Neutralteilchen ( $\geq 99\,\%$ ) sowie Elektronen aus der Oberfläche der Probe ausgelöst. Die Sekundärionen ( $\mathbf{SI}$ ) können dann in einem elektrischen Feld beschleunigt und ihre Flugzeit in einem Flugrohr bestimmt werden (Niehuis et al., 1987; Niehuis, 1990). Aus der Flugzeit lässt sich das Masse-Ladungs-Verhältnis m/q der SI errechnen. Die ebenfalls freigesetzten Sekundärneutralteilchen lassen sich erst nach ihrer Ionisierung mit einem Laser oder durch Elektronenstoß detektieren. Durch Detektion der Sekundärelektronen können Sekundärelektronenbilder ähnlich wie bei einem Rasterelektronenmikroskop aufgenommen werden. In den folgenden Abschnitten wird der Zerstäubungsprozess sowie die beiden Nachweismethoden TOF-SIMS und Laser-SNMS ausführlich beschrieben und mit doppelt fokussierender SIMS verglichen sowie die Bestimmung von Elementhäufigkeiten und Isotopenverhältnissen beschrieben. Eine ausführliche Beschreibung der Anwendung von TOF-SIMS in der Kosmochemie findet sich in Stephan (2001).

## 1.1 Zerstäubungsprozess

Beim Beschuss einer Probenoberfläche mit Ionen mit einer kinetischen Energie von typischerweise bis zu 30 keV regen diese eine Stoßkaskade (Sigmund, 1969) an, die eine Eindringtiefe von einigen Nanometern erreicht. Die kinetische Energie verteilt sich hierbei auf die Umgebung des Auftreffpunkts. Beim Rückschwingen der Atome kann es zur Loslösung von Atomen oder Molekülen von der Oberfläche kommen, wenn die Energie ausreicht, um die Oberflächenbindungsenergie  $(E_{OE})$ zu überwinden. Die emittierten Sekundärteilchen haben dabei eine kinetische Energieverteilung mit einem Maximum bei  $E = 2E_{OE}$ . Die Winkelverteilung ist proportional zu  $cos(\vartheta)$  mit  $\vartheta$  als Winkel zwischen Oberflächennormale und Flugrichtung der Sekundärteilchen. Die Ausbeute an Sekundärteilchen ist dabei abhängig vom Auftreffwinkel und der Energie der Primärionen. Es gilt, dass der Materialabtrag pro Primärion proportional  $\cos^{-1}(\varphi)$  ist, für  $\varphi \ll 65^{\circ}$ .  $\varphi$  ist dabei der Winkel zwischen Oberflächennormale und Primärionenstrahl. Analysiert man unebene Proben, wie z.B. einzelne Körner, so spielen diese geometrischen Effekte eine große Rolle. Eine nähere Beschreibung findet sich in Rost et al. (1999) und Rost (2000), wo diese geometrischen Effekte für kugelförmige Objekte berechnet und experimentell bestätigt wurden. Da diese geometrischen Effekte in erster Näherung unabhängig vom Element sind, können sie kompensiert werden, indem man die Sekundärteilchenausbeuten relativ zu den Sekundärteilchenausbeuten eines Hauptelements der Probe betrachtet.

Man unterscheidet bei der Zerstäubung zwischen dynamischer und statischer SIMS. Dynamisch bedeutet, dass die Primärionen auf Stellen treffen, die schon zuvor beschossen wurden, während bei statischer SIMS die Oberfläche keinen Vorbeschuss hat. Der entscheidende Unterschied liegt in der SI-Ausbeute, die sich durch Vorbeschuss erhöht.

Die SI-Ausbeute ist stark von der chemischen Zusammensetzung der Probe abhängig. Enthält die Probe ein Element mit hoher Elektronegativität, wie O oder F, so erhöht dieses die Ausbeute an positiven Ionen, da die frei werdenden Elektronen schnell eingefangen werden. Umgekehrt ionisieren Elemente mit niedrigem erstem Ionisierungspotenzial sehr leicht und erhöhen durch ihre Anwesenheit die Ausbeute an negativen SI. Diese Abhängigkeit von der chemischen Zusammensetzung der Probe nennt man Matrixeffekt. Der Matrixeffekt erschwert eine quantitative Bestimmung der chemischen Zusammensetzung der Probe und erfordert Vergleichsmessungen mit Standards, die in ihrer Zusammensetzung der Probe ähneln. Der große Anteil an sekundären Neutralteilchen wird durch die Änderung der kleinen SI-Ionisierungsrate wenig beeinflusst. Eine Messung dieser neutralen Atome und Moleküle ist daher vom Matrixeffekt nur minimal gestört, was man sich bei SNMS zu Nutze macht.

## 1.2 Flugzeit-Massenspektrometrie

Die klassische Methode der SI-Trennung und anschließender -Detektion ist die Selektion des Masse-Ladungs-Verhältnisses m/q durch die Verwendung magnetischer und elektrischer Felder. Zur SI-Erzeugung wird hier ein Primärionendauerstrahl verwendet. Diese Methode hat den Vorteil hoher SI-Zählraten, wodurch Messungen mit wesentlich kleineren statistischen Fehler als bei TOF-SIMS möglich werden. Die Aufnahme eines vollständigen Massenspektrums ist durch Variation der magnetischen und elektrischen Felder möglich. Moderne Geräte ermöglichen durch die Verwendung mehrerer Detektoren den gleichzeitigen Nachweis von bis zu acht Massenintervallen. Man erhält aber kein vollständiges Massenspektrum von der selben Probenstelle, da sich die Probe während der Messung fortlaufend ändert. Weiterhin wird durch den hohen Probenverbrauch eine Messung aller Elemente bei sehr kleinen Proben von wenigen Mikrometern Größe unmöglich, da diese innerhalb der Messzeit vollständig zerstört wird.

Bei der Flugzeitmassenspektrometrie ist es möglich, fast alle Elemente bzw. Isotope gleichzeitig zu messen, da die SI verschiedener Masse m über ihre Flugzeiten getrennt werden. Bedingung für die Auftrennung ist, dass die zu unterscheidenden SI den gleichen Startzeitpunkt aufweisen. Dies kann man durch sehr kurze Primärionenpulse von wenigen Nanosekunden Länge erreichen. Ein einzelner Messzyklus besteht aus einem Primärionenschuss, der anschließenden Extraktion der SI, Separation in einem Flugrohr und Detektion. Bei heutigen Geräten sind bis zu 50 000 solcher Zyklen pro Sekunde möglich. Durch die kurzen Primärionenpulse, die oft weniger als 100 Primärionen enthalten, sind auch die SI-Zählraten sehr niedrig. Es wird typischerweise weniger als 1 SI pro Zyklus detektiert. Durch die hohe Wiederholrate und Messdauern von bis zu einigen Stunden erhält man dennoch ausreichende Intensitäten.

Beschleunigt man die SI mit der Energie  $E_{kin} = U \cdot q$ , so erhalten sie unterschiedliche Geschwindigkeiten

$$v = \sqrt{\frac{2E_{kin}}{m}}. (1.1)$$

Bei gleicher Flugstrecke s für alle SI bis zum Detektor unterscheiden sich die SI in ihrer Flugzeit

$$t_{SI} = \sqrt{\frac{ms^2}{2E_{kin}}}. (1.2)$$

Für die Flugzeitmessung der SI wird ein Multistopp- $TDC^1$  verwendet, mit dessen Hilfe ein Flugzeitspektrum aufgenommen wird. Dieses lässt sich nach Gleichung  $1.1~{\rm gem\"{a}B}$ 

$$m/q = \frac{2U}{s^2}t^2 \tag{1.3}$$

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>TDC = Time-to-Digital-Converter: Digitale Zeitmessung

in ein Massenspektrum umrechnen. Um eine Massenskala zu erhalten ist eine Identifizierung von mindestens zwei Element- oder Moleküllinien im Flugzeitspektrum nötig.

Ein technisches Problem bei der Flugzeitmessung ist die Totzeit des verwendeten Detektorsystems. Nach dem Auftreffen eines Sekundärions ist der Detektor für eine kurze Zeit "blind", d.h. er kann erst nach einer Rekonvaleszenz wieder ein SI detektieren. Mit einer Totzeitkorrektur (Stephan et al., 1994) kann man statistisch die Intensitäten für jeden Zeitkanal des Flugzeitspektrums korrigieren.

#### 1.3 TOF-SIMS

Das für die TOF-SIMS-Messungen verwendete Instrument ist ein TOF-SIMS-IV-Gerät der Firma ION-TOF. In den nächsten Abschnitten werden die Spezifikationen und Möglichkeiten dieses Gerät so weit beschrieben, wie es zum Verständnis dieser Arbeit nötig ist.

#### 1.3.1Aufbau des TOF-SIMS-IV-Gerätes

Das TOF-SIMS IV ist mit einer 25 kV-Ga-Primärionenguelle und einer 10 kV-Ar-Sputterquelle ausgestattet. Das Flugzeitrohr ist mit einem Reflektron ausgestattet, um die unterschiedlichen Startenergien der SI zu kompensieren (Mamyrin et al., 1973). Der SI-Detektor besteht aus einer Multi-Channel-Plate, einem Szintillator und einem Photomultiplier. Weiterhin steht eine Elektronenquelle für die Ladungskompensation und ein Sekundärelektronendetektor zu Verfügung.

Die Ga-Primärionenquelle besteht einer Ga-Flüssigmetall-Ionenquelle und einem zweilinsigem Aufbau zur Fokussierung des Ga-Primärionenstrahls. Die erreichbare Ortsauflösung beträgt 0,2 µm bei einem Dauerstrom von 1,5–2 nA. Für die bei der Flugzeitmassenspektrometrie nötige Pulsung des Primärionenstroms stehen mehrere rechten Winkel zur Ar-Sputter-Quelle .

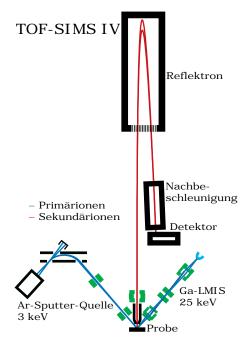


Abbildung 1.1: Prinzipieller Aufbau des TOF-SIMS-Gerätes, wobei der Übersichtlichkeit halber die Ga-Quelle seitlich gezeichnet ist. Tatsächlich steht sie aber in einem

Möglichkeiten zur Verfügung, wie sie im Abschnitt 1.3.2 beschrieben werden. Mittels zweier Elektrodenpaare können Felder von bis zu 500  $\mu$ m  $\times$  500  $\mu$ m 1.3. TOF-SIMS

abgerastert werden.

Der Analysator extrahiert die SI mit  $U_{Ext}=2$  kV und misst die Flugzeit mit einem Multistoppdetektor, dessen Totzeit 40 ns beträgt. Die Zeitauflösung des Multistoppdetektors hat einen Wert von 200 ps. Die hohe Massenauflösung des Analysators  $(m/\Delta m)_{An}$  beträgt für große Massen etwa 10 500. Für die Massenauflösung über den gesamten Massenbereich gilt (Jürgens et al., 1992; Jürgens, 1993)

$$\frac{m}{\Delta m} = \left( \left( \frac{\Delta m}{m} \right)_{An}^2 + C \cdot \frac{1}{m} \right)^{-1/2} \tag{1.4}$$

mit C als gerätespezifischem Parameter. Aufgrund dieser Beziehung erhält man für kleinere Massen niedrigere Massenauflösungen und erreicht z.B. für Silizium im weiter unten beschriebenen Burst-Modus noch Massenauflösungen von  $4\,000-4\,500$ . Ein weiterer Vorteil ist die hohe Transmission des Analysators von  $20-80\,\%$  der SI.

Die Ar-Sputterquelle wird mit einer niedrigen Beschleunigungsspannung von 3 kV betrieben. Die Ar-Sputterquelle wird genutzt, um die Probenoberfläche vor der Messung zu säubern und höhere SI-Intensitäten zu erreichen. Diese Steigerung der SI-Intensitäten ist vermutlich auf die Zerstörung der Kristallstruktur mit den niederenergetischen Ar-Ionen zurückzuführen. Der Matrixeffekt wird durch diesen Vorbeschuss gemindert. Die Ar-Atome werden mit einer Elektronen-Impakt-Quelle ionisiert, mit der Ströme von bis zu einigen Nanoampere möglich sind. Der typischerweise benutzte Ar-Primärionenstrom beim Parallelbetrieb mit der Ga-Primärionenquelle liegt bei 100 pA, für die Oberflächenreinigung bei 1 nA. Die Ortsauflösung der Ar-Sputterquelle beträgt etwa 30–40 µm. Das Rasterfeld der Sputterquelle wird größer als das der Analysequelle eingestellt, um Randeffekte zu verhindern.

Für nichtleitende Proben steht eine **Elektronenquelle** für die Ladungskompensation zur Verfügung. Probenaufladungen könnten sonst die Startenergien der SI ändern, wodurch es zu Flugzeitänderungen und damit Artefakten im Massenspektrum oder SI-Verlusten käme. Außerdem würde es sonst zu Ablenkungen des Primärionenstrahls kommen, so dass nicht mehr die interessierende Probenstelle sondern benachbarte Stellen beschossen werden.

## 1.3.2 Messmethoden

Es stehen drei verschiedene Modi der Analysequelle für die Pulsung des Primärionenstrahls zur Verfügung. Neben dem Standard-Modus gibt es noch einen so genannten Buncher-Modus und einen Burst-Modus. Sie unterscheiden sich in der erreichbaren Massenauflösung, Ortsauflösung oder SI-Intensität.

#### Standard-Modus

Beim Standard-Modus wird mittels Plattenkondensator und Lochblende der Strahl ausgeblendet, um kurze Primärionenpulse zu erzeugen. In diesem Modus sind Pulse von 5 ns Länge bei einer lateralen Auflösung von 0,2 µm möglich. Bei etwa 50 Primärionen/Zyklus erhält man ca. 0,25 SI/Zyklus.

#### **Buncher-Modus**

Um die Pulse zu verkürzen, kann man eine Nachbeschleunigung für die Primärionen zuschalten. Die Nachbeschleunigungsspannung wird eingeschaltet, wenn sich die Primärionen im Nachbeschleuniger befinden, so dass die zeitlich späteren Primärionen stärker beschleunigt werden und daher gleichzeitig mit den früheren die Probe treffen. Auf diese Weise sind Pulse von 0,6 ns möglich. Durch die höhere Raumladung und die chromatische Abberation der dahinter montierten Linse divergiert das Ionenpaket und wird breiter, so dass die Ortsauflösung etwa 5 µm beträgt. Die Primärionen- und SI-Intensitäten bleiben erhalten.

#### **Burst-Modus**

Im Burst-Modus werden die Primärionenpakete mit einem Plattenkondensatorpaar, das mit einer Sinusspannung von 40 MHz betrieben wird, nochmals "zerhackt". Die Pulslänge beträgt  $\approx 1,5$  ns unter Erhaltung der lateralen Auflösung von 0,2 µm. Der Nachteil liegt im Verlust von etwa 80 % der Primärionen und der daher entsprechend niedrigeren SI-Intensität.

## 1.4 Laser-SNMS

Der größte Teil ( $\geq$  99 %) der von der Probenoberfläche durch den Primärionenbeschuss ausgelösten Atome und Moleküle ist neutral und kann erst nach einer Nachionisierung detektiert werden. Durch die Nachionisierung des großen Anteils sekundärer Neutralteilchen sind größere Signal-Intensitäten bei geringerem Probenverbrauch möglich. Der Matrixeffekt ist sehr viel geringer, da eine Änderung der geringen SI-Intensität ( $\leq$  1 %) sich nur unwesentlich auf die Anzahl der sekundären Neutralteilchen auswirkt.

Die Nachionisierung kann man mit Elektronenstoß- oder Laser-Ionisation durchführen. Bei dem verwendeten Gerät des Physikalischen Instituts der Universität Münster (nähere Beschreibungen finden sich in Schnieders (1999) und Kollmer (2001)) wird ein Laser verwendet, der mit einer Wellenlänge von 247 nm oder 193 nm betrieben werden kann. Die Photonenenergien von 5,02 eV bzw. 6,42 eV genügen, um die meisten Elemente zu ionisieren. Einige Elemente mit höherem erstem Ionisierungspotenzial wie z.B. Silizium müssen durch Zwei-Photonen-

1.4. LASER-SNMS

Prozesse über virtuelle Zwischenzustände der Hüllelektronen ionisiert werden. Dies verringert die Ionisierungsrate erheblich.

Molekülbindungen lassen sich zumeist mit Photonen-Energien von weniger als 5 eV zerstören. Einige Moleküle wie z.B. CO oder  $C_2$  haben zu hohe Bindungsenergien, aber sehr niedrige Ionisierungsenergien, so dass sie ionisiert aber nicht zerstört werden.

Zur Unterdrückung der beim Primärionenbeschuss entstandenen SI wird ein Gegenfeld angelegt. Die Extraktionsspannung für die nachionisierten sekundären Neutralteilchen wird erst nach dem Laserschuss eingeschaltet. Daher ergibt sich die Massenauflösung nicht aus der Primärionen- oder Laserpulslänge, sondern aus der räumlichen Verteilung der ionisierten Sekundärteilchen. Der Fokus des Lasers beträgt etwa 200 µm und liegt 100–200 µm über der Probe, so dass die Ionen eine vom Ionisierungsort abhängige Startenergie erhalten. Hierdurch erhalten die nachionisierten sekundären Neutralteilchen große Startenergieunterschiede, die durch das Reflektron nicht mehr vollständig kompensiert werden können, was zu einer Verschlechterung der Massenauflösung gegenüber TOF-SIMS führt. Für Si wird eine Massenauflösung  $(m/\Delta m)$  von weniger als 2 000 – im Vergleich zu 4 500 bei TOF-SIMS – erreicht.

## 1.4.1 Nichtresonante Nachionisation

Bei der nichtresonanten Ionisation wird ein möglichst starker Laserstrahl dicht über der Probe fokussiert, um eine hohe Photonendichte, und damit Ionisierungsrate, zu erreichen. Da für die Ionisation der Atome deren erstes Ionisationspotenzial ausschlaggebend ist, kann man mit den Photonenenergien des verwendeten Lasers besonders gut Alkali- und Erdalkalielemente ionisieren. Schwierig bzw. unmöglich wird es bei den Halogenen und Edelgasen. Auch H, N, O, Si, P und S lassen sich aufgrund ihrer hohen ersten Ionisierungspotenziale nur durch Zwei-Photonen-Anregungen über virtuelle Zwischenzustände ionisieren, wodurch die Ionisierungsrate drastisch sinkt.

Man erhält aus dem Massenspektrum einen Uberblick über alle vorliegenden Elemente in der Probe mit Ausnahme der Edelgase und der verwendeten Primärionen. Problematisch ist die Ionisation des Restgases in der Probenkammer, wodurch es zu störenden Interferenzen auf den Massen 12, 24 und 28 durch C,  $\rm C_2$  und CO kommt, die eine Messung von  $\rm ^{12}C$ ,  $\rm ^{24}Mg$  und  $\rm ^{28}Si$  von der Probe erschweren bzw. unmöglich machen.

## 1.4.2 Resonante Nachionisation

Außer der direkten Ionisation mit hohen Photonenenergien ist auch eine resonante Ionisation über Zwischenzustände möglich, bei der die Atome elementspezifisch mit zwei oder drei Lasern mit aufeinander abgestimmter Wellenlänge ionisiert werden. Durch die resonante Ionisation wird eine sehr hohe Selektion

eines einzelnen Elements von bis zu 10<sup>9</sup> erreicht. Dies hat den Vorteil, dass man keine hohe Massenauflösung mehr braucht, um Hydride und Oxide oder isobare Interferenzen abzutrennen. Ebenso kann auf eine hohe Fokussierung des Lasers und damit hohe Photonendichte verzichtet werden, da die Zwischenzustände bei der resonanten Nachionisierung wesentlich stabiler und langlebiger sind als die virtuellen Zwischenzustände, die teilweise bei der nichtresonanten Nachionisierung ausgenutzt werden.

Weiterhin wird eine sehr hohe Nachweisrate erreicht, die genaue Isotopenmessungen bei geringem Probenverbrauch ermöglichen. Zusammen mit einer Messung mit nichtresonanter Nachionisierung lassen sich so die Elementzusammensetzung und Isotopenverhältnisse bei geringem Probenverbrauch sehr gut bestimmen.

## 1.5 Bestimmung von Elementhäufigkeiten

Die Bestimmung der Probenzusammensetzung aus den gemessenen SI-Intensitäten ist aufgrund des Matrixeffektes schwierig. Man benutzt Standards, deren Zusammensetzungen genau bekannt sind und den zu untersuchenden Proben ähnlich sein sollten, um die Empfindlichkeiten für die Elemente zu ermitteln. Die Empfindlichkeit E(X) für ein Element X wird normalerweise relativ zu einem Referenzelement – wie z.B. Silizium oder Eisen – angegeben, das in vielen Proben zu finden ist. Mit diesen relativen Empfindlichkeitsfaktoren lassen sich erst mal nur relative Elementhäufigkeiten – Elementverhältnisse – zu einem Referenzelement bestimmen. Für eine Bestimmung der absoluten Elementhäufigkeiten ist eine Erfassung aller Elemente in einer Probe nötig, was zumeist aber nicht möglich ist. Silizium als Referenzelement hat den Vorteil, sowohl negativ wie auch positiv zu ionisieren und so eine Kombination der negativ gemessenen Elementverhältnisse oder -häufigkeiten mit den positiv ermittelten zu ermöglichen.

Die Empfindlichkeit für ein Element X ergibt sich aus einer Messung der SI-Intensität N(X) eines Standards mit der Elementhäufigkeit C(X) zu:

$$E(X) = \left(\frac{N(X)}{N(Si)}\right)_{Standard} \cdot \left(\frac{C(Si)}{C(X)}\right)_{Standard}$$
(1.5)

Die relative Häufigkeit eines Elements  $C_{rel}(X)$  in einer untersuchten Probe lässt sich errechnen aus

$$C_{rel}(X) = \frac{C(X)}{C(Si)} = \left(\frac{N(X)}{N(Si)}\right)_{Probe} \cdot \frac{1}{E(X)}.$$
 (1.6)

Für das verwendete TOF-SIMS IV wurden die Empfindlichkeiten mit Glasstandards bestimmt, deren Zusammensetzung von Jochum et al. (2000) genau ermittelt wurden. Diese Standards sind bezüglich der lateralen Elementverteilungen – wie sich aus den TOF-SIMS-Messungen ergab – auf einer Skala von

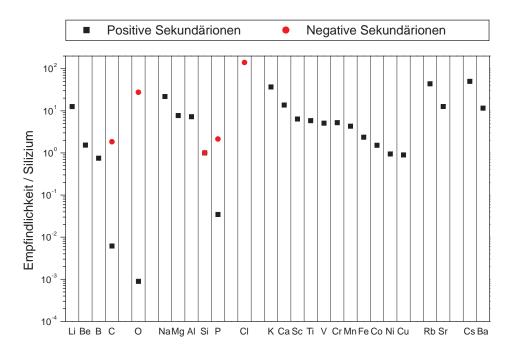


Abbildung 1.2: Die relativen, auf Silizium normierten Empfindlichkeiten für das TOF-SIMS IV in Münster am Institut für Planetologie (nach Stephan, 2001).

200 nm homogen. In Abbildung 1.2 sind die gemessenen Empfindlichkeiten dargestellt. Man kann für Elemente aus der gleichen Schale im Periodensystem bei steigender Atomzahl eine abnehmende Empfindlichkeit für positive SI sehen, die sich aus der zunehmenden Ionisierungsenergie ergibt. Eine genauere Beschreibung der Elementanalyse mit TOF-SIMS findet sich in Stephan (2001).

## 1.6 Isotopenverhältnisse

Da sich verschiedene Isotope eines Elements chemisch gleich verhalten, ist ihre Ionisation vom Matrixeffekt unabhängig. Die schwereren Isotope sind aufgrund der größeren Masse langsamer und verweilen daher etwas länger über der Probe, wodurch die Rekombinationswahrscheinlickeit steigt. Diese Massenfraktionierung muss korrigiert werden, wenn man exakte Isotopenverhältnisse bestimmen will. Für die Massenfraktionierung gilt nach Södervall et al. (1987)

$$\frac{R_{ij}}{R_{ij,0}} = \left(\frac{M_i}{M_j}\right)^{-\alpha},\tag{1.7}$$

wobei  $R_{ij}$  das gemessene,  $R_{ij,0}$  das wahre Isotopenverhältnis und  $M_{i,j}$  die Masse des jeweiligen Isotops i bzw. j ist. Der Parameter  $\alpha$  muss für jedes Element bei jeder Messung bestimmt werden. Für Isotopenverhältnis-Messungen mit DF-SIMS

wird diese Formel erfolgreich zur Korrektur verwandt, wie von Zinner (1989) beschrieben.

Besitzt ein Element nur zwei Isotope, so hat man nur ein Isotopenverhältnis, mit dem  $\alpha$  bestimmt werden kann. Man muss also mit der Messung von Standards einen Durchschnittswert für die Massenfraktionierung bestimmen und diesen dann für eine Korrektur der gemessenen Werte verwenden. Dies nennt man externe Korrektur.

Wenn ein Element mindestens drei Isotope besitzt, kann man eine **interne** Korrektur durchführen. Der Parameter  $\alpha$  wird aus einem ungestörten Isotopenverhältnis dieses Elements bestimmt und für die Korrektur der übrigen Isotopenverhältnisse verwendet. Ein Beispiel wäre die Korrektur des  $^{26}$ Mg/ $^{24}$ Mg-Verhältnisses mit einem Wert für  $\alpha$ , der aus dem  $^{25}$ Mg/ $^{24}$ Mg-Verhältnis bestimmt wurde. Da  $\alpha$  direkt aus der Messung ermittelt wurde, sind so genauere Bestimmungen der Isotopenverhältnisse möglich. Hierbei ist aber eine gute Argumentation für die Ungestörtheit des zur Bestimmung von  $\alpha$  verwendeten Isotopenverhältnisses nötig.

Bei präsolarer Materie, wie sie in dieser Arbeit untersucht wird, ist die Zusammensetzung völlig unbekannt, weswegen nur eine externe Korrektur in Frage kommt. Eine ausführliche Beschreibung, wie die Korrekturfaktoren ermittelt wurden und wie präzise mit einem TOF-SIMS-IV-Gerät Isotopenverhältnisse gemessen werden können, folgt im nächsten Kapitel.

# Kapitel 2

# Isotopenmessungen mit dem TOF-SIMS IV

Es wurden mehrere Glas- sowie ein Siliziumkarbid-Standard gemessen, um die Massenfraktionierung des Gerätes zu bestimmen und diese dann korrigieren zu können. In den folgenden Abschnitten werden die Methode der Isotopenmessungen mit dem TOF-SIMS IV, sowie die Ergebnisse für die einzelnen Elemente und die erreichbaren Genauigkeiten aufgezeigt.

## 2.1 Bestimmung des Isotopenverhältnisses

Der einfachste Weg, das gemessene Isotopenverhältnis zu ermitteln, ist das Verhältnis der SI-Intensitäten für die beiden Isotope zu bilden. Hierzu muss aber sicher gestellt sein, dass die Massenpeaks der Isotope keine Interferenzen mit anderen Elementen oder Molekülen haben. Am schwersten sind isobare Interferenzen abzutrennen. Dies sind Interferenzen durch Isotope gleicher Nominalmasse verschiedener Elemente. Hierfür sind Massenauflösungen von  $m/\Delta m \gg 10\,000$  nötig (Stephan, 2001). Einfacher sind die Hydride MH eines Elements M und ein Isotop mit einer um 1 größeren Nominalmasse "aufzulösen" – das heißt eine vollständige Abtrennung ist nicht zu erreichen, aber man kann die interferierenden Peaks unterscheiden und durch eine Peakentfaltung trennen. Eine Massenauflösung von  $m/\Delta m \leq 7\,000$  genügt, um Hydridinterferenzen bei Elementen bis zum Eisen mit typischen Massendifferenzen von etwa 7 mamu¹ zu erkennen.

Oxide MO, die oft als Zerstäubungsprodukte entstehen, sind im Massenbereich bis etwa 80 amu leichter aufzulösen als Hydride und sind daher unproblematisch. Kohlenwasserstoffe, die bei der Probenaufbereitung sehr leicht als Kontamination an der Oberfläche absorbiert werden, lassen sich mit Massenauflösungen von etwa 3 000 bis zu Massen von 180 amu vollständig abtrennen (Stephan, 2001) und interferieren daher nicht mit den interessierenden Elementpeaks.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>amu = Atomic Mass Unit: Atomare Masseneinheit

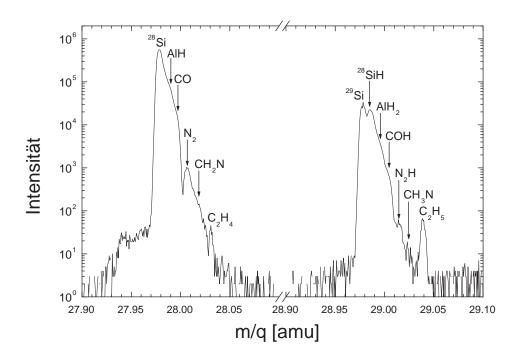


Abbildung 2.1: Beispiel eines Spektrums mit hoher Massenauflösung, das im Buncher-Modus am NIST-Standard SRM 112b aufgenommen wurde. Dargestellt sind die Massenbereiche um m=28 amu und 29 amu. In Abbildung 2.2 ist die zugehörige Peakentfaltung für das  $^{29}$ Si-Isotop dargestellt.

In Abbildung 2.1 ist beispielhaft ein Ausschnitt eines positiven SI-Spektrums dargestellt. Es sind die Massenbereiche um die Nominalmassen 28 und 29 amu mit den <sup>28</sup>Si- und <sup>29</sup>Si-Isotopen abgebildet. Das Spektrum wurde mit dem Buncher-Modus an dem Siliziumkarbid-Standard SRM 112b vom National Institute of Standards and Technology (NIST) aufgenommen. Wie man erkennen kann, reicht die Massenauflösung nicht aus, um eine vollständige Abtrennung der Siliziumisotope von den übrigen Peaks zu erhalten. Da die reinen Elementpeaks im Massenbereich bis etwa 80 amu die größte negative Differenz zur Nominalmasse aufweisen, ist zumindestens die linke Flanke der Peaks ungestört und kann für eine Peakentfaltung genutzt werden.

Für die **Peakentfaltung** wird der Peak des häufigsten Isotops (das Hauptisotop) eines Elements an den der Nebenisotope angepasst, indem er um die Massendifferenz der beiden Isotope verschoben und skaliert wird (Stephan, 2001), so dass die beiden Peaks übereinander liegen. Als Gütekriterium für die Entfaltung wird ein abgewandeltes  $\chi^2$ -Verfahren benutzt, bei dem die Anzahl der verwendeten Spektrumskanäle  $N_{Ch}$  zwischen der linken und rechten Fit-Grenze  $N_L$  und  $N_R$  berücksichtigt wird (T. Stephan, pers. Mitteilung). Die Formel für

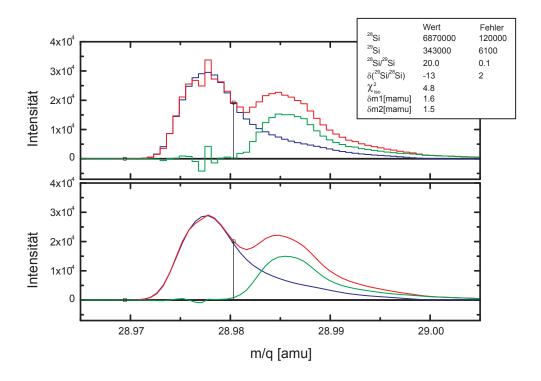


Abbildung 2.2: Die Peakentfaltung am Beispiel des <sup>29</sup>Si. Es handelt sich um das Spektrum aus Abbildung 2.1. Im oberen Bild sind die Originaldaten aufgetragen und im unteren eine Glättung der Daten mit gleitendem Durchschnitt. Eine genaue Erläuterung der Peakentfaltung ist im Text gegeben.

das verwendete  $\chi^2_{iso}$  lautet

$$\chi_{iso}^2 = \frac{1}{N_{Ch}^2} \sum_{i=N_L}^{N_R} \frac{(n_i - C_1 \cdot n_{0,i-C_2})^2}{n_i}.$$
 (2.1)

Die Kanal-Intensitäten des zu entfaltenden Peaks sind durch  $n_i$  und die des Hauptisotops durch  $n_{0,i-C_2}$  gegeben, wobei  $C_2$  die Verschiebung des Peaks darstellt. Durch Variation der Parameter  $C_1, C_2$  und eine Anpassung der Grenzen  $N_L, N_R$  wird  $\chi^2_{iso}$  minimiert, wobei auch die Übereinstimmung der Massen mit den Literaturwerten beachtet wird. Der Skalierungsfaktor  $C_1$  entspricht dem gemessenen Isotopenverhältnis.

Abbildung 2.2 zeigt beispielhaft eine Entfaltung für das in Abbildung 2.1 dargestellte Spektrum. Die rote Linie ist das Spektrum des Nebenisotops inklusive aller Interferenzen, die blaue Linie das an das Nebenisotop angepasste Spektrum des Hauptisotops und die grüne Linie ist die Differenz dieser beiden und somit die vorhandene Interferenz. Die schwarzen Markierungen (kleine Quadrate) geben die Begrenzungen für die Berechnungen wieder. Im Kasten sind die Daten für die Integrale der Massenpeaks zwischen den Fit-Grenzen, das Isotopenverhältnis, die

relative Abweichung vom solaren Standardwert in Promill, der Wert für  $\chi^2_{iso}$  und die Abweichungen von den Literaturwerten der jeweiligen Massen angegeben. Die relative Abweichung eines Isotopenverhältnisses vom einem Standardwert wird häufig als  $\delta$ -Wert in Promill angegeben, der sich wie folgt berechnet

$$\delta(I/J) = 1000 \cdot \left(\frac{(R_{i,j})_{Messung}}{(R_{i,j})_{Standard}} - 1\right). \tag{2.2}$$

 $R_{i,j}$ ist das Isotopenverhältnis für die Isotope<br/> I,Jeines Elements.

## 2.2 Nachweisgrenzen für TOF-SIMS-Isotopenmessungen

Die ermittelten Messwerte beruhen auf Zählungen der SI. Aus der gemessenen Intensität N eines Isotops ergibt sich in erster Näherung ein statistischer Fehler von  $\Delta N = \sqrt{N}$ . Um einen relativen Fehler kleiner als 10 ‰ zu erhalten, muss die SI-Intensität größer 10 000 sein. Bei einer Abtragsrate von etwa einem Sekundärteilchen pro Primärion und einer Ionisierungsrate von ungefähr 1 % ergibt sich mit einer Transmission von etwa 20–80 % eine notwendige Häufigkeit in der Größenordnung von  $10^7$  Atomen im gemessenen Probenvolumen. Da die Primärionenanzahl einer typischen TOF-SIMS-Messung im Burst-Modus bei etwa  $10^9$  bis  $10^{10}$  liegt, können also nur Elemente mit einer Häufigkeit von mehr als etwa 1 ‰ mit einer Genauigkeit von 10 ‰ nachgewiesen werden.

Bei der Messung von Isotopenverhältnissen muss man noch berücksichtigen, dass sich die SI-Intensitäten auf die verschiedenen Isotope aufteilt. Bei Isotopenverhältnissen von 1:100 bedeutet dies für das seltenere Isotop eine Verzehnfachung des Fehlers, so dass Isotopenverhältnisse nur noch mit einem relativen Fehler von etwa 100~%0 gemessen werden können. Eine Messung der Isotopenverhältnisse mit einem relativen statistischen Fehler von wenigen 10~%0 ist daher nur für die Hauptelemente möglich.

Durch Gesichtsfelder für die TOF-SIMS-Messungen von wenigen Mikrometern wird es möglich, die Primärionendichte auf Werte von etwa  $10^9$  PI/ $\mu$ m² zu bringen, so dass Isotopenmessungen mit Fehlern von einigen 10~% im Submikrometerbereich möglich werden. Dies erlaubt einen "isotopischen" Blick in präsolare Körner, die Größen von bis zu  $20~\mu$ m haben. Eine Genauigkeit von einigen 10~% ist dabei ausreichend, da die präsolaren Körner Isotopenanomalien von bis zu drei Größenordnungen (siehe Kapitel 4~für weitere Erläuterungen) haben.

## 2.3 Verwendete Standards und Messmethode

Für das TOF-SIMS IV wurden die Möglichkeiten der Isotopenmessungen und die Korrekturfaktoren mit Messungen an den MPI-DING-Standards (Jochum

et al., 2000) bestimmt, die auch für die Bestimmungen der Elementempfindlichkeiten (Stephan, 2001) genutzt wurden. Diese Standards bestehen aus silikatischen Gläsern, die aus Gesteinen durch Aufschmelzen und gründlichem Rühren zur Homogenisierung hergestellt wurden. Die Zusammensetzung der Standards ist in Tabelle 2.1 angegeben. Im Rahmen dieser Arbeit nicht ausgewertete Elemente sind der Übersichtlichkeit halber nicht aufgeführt.

Zur Kontrolle der ermittelten Massenfraktionierungen für die Verwendung bei Messungen von Siliziumkarbid wurde der SiC-Standard SRM 112b vom NIST gemessen. SRM 112b besteht aus etwa 50–100 µm großen Körnern mit einer Zusammensetzung laut beiliegendem Datenblatt von: Si 67,92 Gew.-%, C 29,43 Gew.-%, Mg 0,02 Gew.-%, Al 0,44 Gew.-%, Ca 0,04 Gew.-%, Ti 0,023 Gew.-% und Fe 0,13 Gew.-%. Eine Bestimmung der TOF-SIMS-Elementempfindlichkeiten für SiC konnte mit dem Standardmaterial nicht durchgeführt werden, da es nicht homogen ist. Alle Nebenelemente zeigen starke Anhäufungen in Bereichen von einigen Mikrometer Größe. Da die Bestimmung der Gesamtzusammensetzung des Standards an einer Gesamtmenge von 0,5 g erfolgte und bei TOF-SIMS-Messungen nur wenige Atomlagen verbraucht werden, ist eine Reproduktion der Ergebnisse nicht möglich.

Alle Messungen erfolgten mit Gesichtsfeldern von 50 µm  $\times$  50 µm im Buncher-Modus. Es wurden zwei Messungen durchgeführt, eine mit Parallelbetrieb der Ar-Sputterquelle und eine direkt anschließend an derselben Stelle ohne die Ar-Sputterquelle. Beide Spektren wurden mit der oben beschriebenen Peakentfaltung zur Ermittlung der Massenfraktionierung ausgewertet. Eine Bestimmung der Massenfraktionierung sowohl mit als auch ohne Parallelbetrieb der Ar-Sputterquelle ist nötig, da aufgrund von elektrischen Aufladungen während der Messung einer Probe – trotz Einsatz der Elektronenquelle – nicht bei allen Messungen die Ar-Sputterquelle zur Intensitätsteigerung bzw. Matrixeffektminimierung parallel zur Analysequelle genutzt werden kann.

## 2.4 Ergebnisse der einzelnen Elemente

In den folgenden Abschnitten sind die Ergebnisse der Isotopenmessungen an den Standards für jedes Element einzeln dargestellt. Es folgt zunächst für jedes Element eine Beschreibung, ob die Isotope positiv oder negativ, monoatomar oder als Molekül gemessen werden können. In Tabelle 2.2 findet sich eine Auflistung der Isotope der untersuchten Elemente mit Masse und Häufigkeit. Die Mittelwerte der gemessenen Massenfraktionierungen als  $\delta$ -Wert für die einzelnen Isotopenverhältnisse sowie die dazu gehörende Standardabweichung als Maß für die Reproduzierbarkeit und der Mittelwert des statistischen Fehlers sind in Tabelle 2.4 angegeben. In Tabelle 2.3 sind die Standards markiert, die zur Bildung des Mittelwerts für die einzelnen Elemente genutzt wurden. Nicht berücksichtigt wurden Standards, die das entsprechende Element nicht oder zu wenig von diesem

	BM90	G132	StHS	ML3B	G128	KL2	Tonale	Atho
Li	1,4	6,7	18,6	3,8	7,3	4,6	18,5	31,8
O (%)	46,5	44,818	48,396	46,4	45,275	$46,\!56$	47,1	48,93
Mg (%)	20,3	13,4	1,16	3,97	15,5	$4,\!35$	$2,\!25$	0,065
Si (%)	24,8	21	29,5	24	21,3	23,3	27,4	35,1
Cl	-	< 300	240	-	-	35	90	440
K	30,8	258	10700	3170	285	4010	15600	22200
Ca (%)	1,43	6,03	3,73	7,49	4,31	7,94	5,01	1,2
Ti (%)	0,024	0,18	$0,\!414$	$1,\!24$	-	1,54	$0,\!43$	0,141
$\operatorname{Cr}$	2000	2550	15	160	2100	285	19	5
Fe (%)	$5,\!21$	7,88	$3,\!37$	8,59	$7,\!55$	8,42	5,06	$2,\!54$
$\operatorname{Sr}$	0,792	17,9	498	312	32,8	358	288	93,9
Ba	$0,\!574$	0,851	307	80	1,08	122	387	544

Tabelle 2.1: Elementhäufigkeiten der MPI-DING-Standards in Gewichts-ppm oder in Gewichts-%. Angegeben sind nur die Elemente, für die auch Massenfraktionierungen bestimmt worden sind. Es fehlt Schwefel, da der Elementgehalt an Schwefel für die Standards nicht bestimmt worden ist.

enthielten oder bei denen durch Interferenzen eine Messung des Isotopenverhältnisses nicht möglich war.

#### Lithium

Lithium ionisiert sehr gut positiv und besitzt keine isobaren oder molekularen Interferenzen. Eine Bestimmung des Isotopenverhältnisses ist daher durch eine Auswertung der Peakintegrale möglich.

### Kohlenstoff

Kohlenstoff ionisiert sowohl positiv wie negativ. Eine Störung resultiert aus der Kontamination der Proben bei der Präparation im Labor. Auch bei nur kurzem Kontakt mit Luft bildet sich eine Kontaminationsschicht, die viele Kohlenwasserstoffe enthält. Um zuverlässig den Kohlenstoff der Probe zu messen, muss daher eine intensive Reinigung der Probenoberfläche mit der Ar-Sputterquelle durchgeführt werden.

In den verwendeten MPI-DING-Standards ist kein Kohlenstoff enthalten, so dass nur am SiC-Standard eine Bestimmung der Massenfraktionierung möglich war. Hierbei kommt eine Besonderheit des SiC zum Tragen. Der Kohlenstoff wird zum größten Teil in Form von  $C_2$  zerstäubt, das negativ ionisiert. Der Anteil des atomaren Kohlenstoffs ist zu gering. Man kann die Kohlenstoffisotopie aber am Verhältnis von  $^{12}C_2$  zu  $^{12}C^{13}C$  bestimmen. Hierbei ergibt sich aus kombinatorischen Überlegungen, dass das gemessene Isotopenverhältnis außer um die

Nuklid	Masse [amu]	Häufigkeit [%]	Nuklid	Masse [amu]	Häufigkeit [%]
<sup>6</sup> Li	6,0151	7,5	<sup>49</sup> Ti	48,9479	5,5
$^7\mathrm{Li}$	7,0160	92,5	$50\mathrm{Ti}$	49,9448	5,4
$^{12}\mathrm{C}$	12,0000	98,9	50V	49,9472	0,25
$^{13}\mathrm{C}$	13,0034	1,1	$^{51}\mathrm{V}$	50,9440	99,75
$^{14}\mathrm{N}$	14,0031	99,634	$^{50}\mathrm{Cr}$	49,9460	4,345
$^{15}\mathrm{N}$	15,0001	0,366	$^{52}\mathrm{Cr}$	51,9405	83,789
$^{16}\mathrm{O}$	15,9949	99,762	$^{53}\mathrm{Cr}$	52,9407	9,501
$^{17}\mathrm{O}$	16,9991	0,038	$^{54}\mathrm{Cr}$	53,9389	2,365
$^{18}\mathrm{O}$	17,9992	0,200	$^{54}$ Fe	53,9396	5,80
$^{24}{ m Mg}$	23,9850	78,99	<sup>56</sup> Fe	55,9349	91,72
$^{25}{ m Mg}$	24,9858	10,00	<sup>57</sup> Fe	56,9354	2,20
$^{26}{ m Mg}$	25,9826	11,01	$^{58}$ Fe	57,9333	0,28
$^{28}\mathrm{Si}$	27,9769	92,23	<sup>58</sup> Ni	57,9353	68,27
$^{29}\mathrm{Si}$	28,9765	4,67	<sup>60</sup> Ni	59,9308	26,10
$^{30}\mathrm{Si}$	29,9738	3,10	<sup>61</sup> Ni	60,9311	1,13
$^{32}\mathrm{S}$	31,9721	95,02	<sup>62</sup> Ni	61,9284	3,59
$^{33}S$	32,9715	0,75	<sup>64</sup> Ni	63,9280	0,91
$^{34}S$	33,9679	4,21	<sup>63</sup> Cu	62,9296	69,17
$^{36}S$	35,9671	0,02	<sup>65</sup> Cu	64,9278	30,83
$^{35}\mathrm{Cl}$	34,9689	75,77	$^{85}\mathrm{Rb}$	84,9118	72,165
$^{37}\mathrm{Cl}$	36,9659	24,23	$^{87}\mathrm{Rb}$	86,9092	27,835
$^{39}\mathrm{K}$	38,9637	93,2581	$^{84}\mathrm{Sr}$	83,9134	$0,\!56$
$^{40}\mathrm{K}$	39,9640	0,0117	$^{86}\mathrm{Sr}$	85,9093	9,86
$^{41}\mathrm{K}$	40,9618	6,7302	$^{87}\mathrm{Sr}$	86,9089	7,00
$^{40}\mathrm{Ca}$	39,9626	96,941	<sup>88</sup> Sr	87,9056	82,58
$^{42}\mathrm{Ca}$	41,9586	0,647	$^{130}$ Ba	129,9063	0,106
$^{43}\mathrm{Ca}$	42,9588	0,135	$^{132}\mathrm{Ba}$	131,9050	0,101
$^{44}\mathrm{Ca}$	43,9555	2,086	$^{134}$ Ba	133,9045	2,417
$^{46}\mathrm{Ca}$	45,9537	0,004	$^{135}\mathrm{Ba}$	134,9057	6,592
$^{48}\mathrm{Ca}$	47,9525	0,187	$^{136}$ Ba	135,9046	7,854
$^{46}\mathrm{Ti}$	45,9526	8,0	$^{137}\mathrm{Ba}$	136,9058	11,230
$^{47}\mathrm{Ti}$	46,9518	7,3	$^{138}$ Ba	137,9052	71,700
<sup>48</sup> Ti	47,9480	73,8			

Tabelle 2.2: Die Isotopenhäufigkeiten (Anders und Grevesse, 1989) und Nuklidmassen der untersuchten Elemente.

	BM90/21	GOR132	StHS	ML3B	GOR128	KL2	Tonale	Atho
Li			X				X	X
O	X	X		X	X	X	X	X
Mg	X	X	X	X	X	X	X	
$\operatorname{Si}$	X	X	X	X	X	X	X	X
$\mathbf{S}$		X	X	X	X	X	X	X
Cl		X		X	X	X	X	X
K		X	X	X	X	X	X	X
Ca	X	X	X	X	X	X	X	X
$\mathrm{Ti}$	X	X	X	X	X	X	X	X
$\operatorname{Cr}$	X	X		X	X	X		
Fe	X	X	X	X	X	X	X	X
$\operatorname{Sr}$			X	X		X	X	X
Ba			X				X	X

Tabelle 2.3: Da nicht jedes Element in jedem Standard ausreichend vorhanden war, wurden für die Berechnung der Werte in der Tabelle 2.4 nur die durch ein x gekennzeichneten Standards verwendet. Bei der negativen Messung des Standard StHS gab es trotz Verwendung der Elektronenquelle so starke Aufladungen, dass es zu Störungen der intensiven Peaks von Sauerstoff und Chlor kam, für die keine Isotopenverhältnisse bestimmt werden konnten. Für die Standards ML3B und GOR128 sind keine Chlorgehalte bestimmt, sie enthalten aber genügend Chlor, so dass die Cl-Isotopenverhältnisse bestimmt werden konnten.

Massenfraktionierung noch mit dem Faktor 2 korrigiert werden muss. Eine molekulare Interferenz besteht durch  $^{12}\mathrm{C}_2\mathrm{H},$  dessen Massenunterschied zum  $^{12}\mathrm{C}^{13}\mathrm{C}$ nur etwa 4 mamu beträgt, weswegen eine Peakentfaltung nötig ist. Durch den geringen Massenunterschied ist die Reproduzierbarkeit so schlecht, dass für weitere Messungen nur die im nächsten Abschnitt beschriebene Methode verwendet wurde.

Eine zweite Möglichkeit ergibt sich bei der Anwesenheit von Stickstoff in der Probe. Dieser wird als CN zerstäubt und ermöglicht damit eine Bestimmung des Kohlenstoff- und Stickstoffisotopenverhältnisses (siehe auch Abschnitt Stickstoff). Die Kohlenstoffisotopie lässt sich aus dem Verhältnis von  $^{12}\mathrm{C}^{14}\mathrm{N}$  zu  $^{13}\mathrm{C}^{14}\mathrm{N}$  bestimmen. Eine molekulare Interferenz ist hier  $^{12}\mathrm{C}^{15}\mathrm{N}$  mit einer Massendifferenz von etwa 6,5 mamu. Die erreichbare Massenauflösung von  $\approx 5\,000$  genügt nicht zur vollständigen Abtrennung des Peaks, so dass auch hier eine Peakentfaltung nötig ist. Da nur ein Standard, SRM 112b vom NIST, zur Verfügung stand, konnte die Reproduzierbarkeit nicht systematisch untersucht werden.

-	M	Mit Ar-Sputtern		Nach Ar-Sputtern		
	MF	Reprod.	Fehler	MF	Reprod.	Fehler
$\delta(^{6}\mathrm{Li}/^{7}\mathrm{Li})$	19	20	58	-2	37	54
$\delta(^{13}\mathrm{CN}/^{12}\mathrm{CN})^{\mathrm{s}}$	-35	19	-	-49	13	-
$\delta(\mathrm{C^{15}N/C^{14}N})^{\mathrm{s}}$	33	40	-	16	26	-
$\delta(^{18}O/^{16}O)^{n}$	-109	27	15	-69	32	11
$\delta(^{25}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$	1	11	2	3	8	2
$\delta(^{26}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$	-15	10	2	-17	13	2
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	-34	29	5	-43	53	3
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	-86	38	6	-84	52	3
$\delta(^{34}S/^{32}S)^{n}$	-	-	-	-83	117	108
$\delta(^{37}\mathrm{Cl}/^{35}\mathrm{Cl})^{\mathrm{n}}$	11	23	47	-45	25	18
$\delta(^{41}{\rm K}/^{39}{\rm K})$	-43	56	17	-53	44	5
$\delta(^{42}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	-11	16	11	-18	26	7
$\delta(^{43}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	-13	40	24	-57	32	17
$\delta(^{44}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	-52	58	8	-74	41	5
$\delta(^{46}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	48	92	26	85	137	21
$\delta(^{47}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	32	113	27	57	62	18
$\delta(^{49}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	-57	62	24	50	83	26
$\delta(^{50}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	-50	28	18	-45	36	12
$\delta(^{53}\mathrm{Cr}/^{52}\mathrm{Cr})$	-42	50	41	17	57	30
$\delta(^{54}\text{Fe}/^{56}\text{Fe})$	21	27	9	16	7	5
$\delta(^{57} \mathrm{Fe}/^{56} \mathrm{Fe})$	-8	31	19	1	29	10
$\delta(^{86}\mathrm{Sr}/^{88}\mathrm{Sr})$	186	194	67	124	50	40
$\delta(^{135} Ba/^{138} Ba)$	41	115	65	72	72	46
$\delta(^{136}Ba/^{138}Ba)$	35	44	58	-10	40	40
$\delta(^{137}\mathrm{Ba}/^{138}\mathrm{Ba})$	36	63	49	-59	101	39

Tabelle 2.4: Massenfraktionierung der gemessenen Elemente bei Messungen mit parallelem und nach Ar-Sputtern. Angegeben sind der Mittelwert der Abweichung vom solaren Wert in Promille, sowie die Standardabweichung dieser Werte als Maß für die Reproduzierbarkeit und der Mittelwert der statistischen Fehler der einzelnen Messungen. Es sind nur Werte für Isotopenverhältnisse aufgeführt, die ohne Interferenz gemessen werden konnten. Fehlende Werte sind im Text für das entsprechende Element erklärt. Die mit <sup>n</sup> markierten Isotopenverhältnisse sind mit negativen Messungen bestimmt und die mit <sup>s</sup> markierten sind mit negativen Messungen am SiC-Standard SRM 112b ermittelt worden.

## Stickstoff

Die Ionisierung von Stickstoff in atomarer Form ist zu gering, so dass eine Messung nur als CN möglich ist, das negativ ionisiert. Eine Bestimmung des Isotopenverhältnisses folgt aus einer Peakentfaltung von  $^{13}C^{14}N$  und  $^{12}C^{15}N$ , wobei hier durch  $^{13}C^{14}N$  eine molekulare Interferenz gegeben ist. Da in den MPI-DING-Standards kein Stickstoff bzw. Kohlenstoff vorhanden ist, konnte die Massenfraktionierung nur am SiC-Standard SRM 112b bestimmt werden.

## Sauerstoff

Sauerstoff ionisiert sehr gut negativ und nur in geringem Maße positiv, weswegen Isotopenmessungen nur im negativen Modus möglich sind. Da das Isotop  $^{17}{\rm O}$  sehr selten ist und mit dem OH-Molekül interferiert ( $\Delta m=3.6$  mamu), war keine Bestimmung des  $^{17}{\rm O}/^{16}{\rm O}$ -Verhältnisses möglich. Das  $^{18}{\rm O}/^{16}{\rm O}$ -Verhältnis lässt sich dagegen messen, wobei eine Massenauflösung von  $\approx 1800$  nötig ist, um die Peaks von H<sub>2</sub>O und  $^{18}{\rm O}$  aufzulösen.

## Magnesium

Interferenzen für das nur positiv ionisierende Magnesium ergeben sich durch die Hydride der leichteren Isotope, die sich nicht vollständig abtrennen lassen, wodurch eine Peakentfaltung nötig wird.

## Silizium

Silizium ionisiert positiv und in geringem Maße auch negativ, wobei die negativen SI-Intensitäten zu gering für eine Bestimmung der Isotopenverhältnisse sind. Eine Messung der Isotopenverhältnisse ist nur durch die Hydride des Al und Si gestört, die sich durch Peakentfaltung abtrennen lassen. Für eine vollständige Abtrennung reicht eine Massenauflösung von bis zu 8000, wie sie im Buncher-Modus möglich ist, nicht aus.

## Schwefel

Schwefel ionisiert nur negativ. Das <sup>36</sup>S-Isotop ist zu selten, um es mit ausreichender Intensität messen zu können und auch <sup>33</sup>S ist nur messbar, wenn Schwefel als Hauptelement in der Probe vorliegt. Im Normalfall bleibt daher nur das <sup>34</sup>S/<sup>32</sup>S-Verhältnis zu bestimmen. Eine Bestimmung der Massenfraktionierung beim Parallelbetrieb der Ar-Sputterquelle war aufgrund der wesentlich geringeren Empfindlichkeit nicht möglich. Die ermittelte Massenfraktionierung für Messungen ohne Parallelbetrieb der Ar-Sputterquelle wird daher auch bei Messungen mit Ar-Sputterquelle für eine Korrektur verwendet.

#### Chlor

Chlor lässt sich nur negativ ionisiert messen und ist nicht durch isobare oder molekulare Interferenzen gestört. Eine Peakentfaltung ist daher nicht erforderlich.

## Kalium

Kalium ionisiert sehr gut positiv, aber <sup>40</sup>K ist zu selten und bei Anwesenheit von Calzium sehr stark durch <sup>40</sup>Ca überlagert, so dass nur das <sup>39</sup>K/<sup>41</sup>K-Verhältnis bestimmbar ist. Hier ist aufgrund der molekularen Interferenz durch <sup>40</sup>CaH eine Peakentfaltung nötig.

## Calzium

Calzium ionisiert sehr gut positiv. Außer molekularen Interferenzen durch Hydride gibt es noch isobare Interferenzen durch <sup>40</sup>K, <sup>46</sup>Ti und <sup>48</sup>Ti. Die Interferenz durch <sup>40</sup>K ist aufgrund der Seltenheit desselben im Rahmen der Messfehler vernachlässigbar und <sup>46</sup>Ca ist so selten, dass es nicht gemessen werden kann. Die Interferenz des <sup>48</sup>Ca mit <sup>48</sup>Ti verhindert bei Anwesenheit von Titan in der Probe eine Messung des <sup>48</sup>Ca/<sup>40</sup>Ca-Verhältnisses. Somit bleiben bei den verwendeten Standards die Isotopenverhältnisse von <sup>42</sup>Ca, <sup>43</sup>Ca und <sup>44</sup>Ca zu <sup>40</sup>Ca zu bestimmen, die aufgrund von Hydrid-Interferenzen durch Peakentfaltungen bestimmt werden müssen.

## Titan

Titan lässt sich positiv ionisiert messen. Die isobare Interferenz durch <sup>46</sup>Ca ist zu gering, um berücksichtigt werden zu müssen, und die durch <sup>48</sup>Ca mit <sup>48</sup>Ti ist so gering, dass es im Rahmen der Fehler zu keiner nennenswerten Verschiebung der Werte für die Massenfraktionierung des Titan kommt, wie sich aus den Abbildungen 2.3 und 2.4 ersehen lässt. Bei höheren Ca-Gehalten bzw. niedrigeren Ti-Gehalten ist eine störende Interferenz aber nicht auszuschließen. Das <sup>50</sup>Ti/<sup>48</sup>Ti-Verhältnis lässt sich nur bei Abwesenheit von Chrom bestimmen, da es ansonsten zu einer nicht auflösbaren Interferenz durch <sup>50</sup>Cr kommt. Da molekulare Interferenzen durch die Titan-Hydride bestehen, müssen Peakentfaltungen durchgeführt werden.

## Vanadium

Vanadium ionisiert nur positiv. Für das Isotop <sup>50</sup>V besteht eine isobare Interferenz durch <sup>50</sup>Ti und <sup>50</sup>Cr, so dass eine Messung dieses seltenen Isotops in den verwendeten Standards unmöglich war. Nur bei Ti- und Cr-freien Proben ist eine Messung des Vanadiumisotopenverhältnisses möglich.

## Chrom

Chrom lässt sich nur positiv ionisiert messen. Durch isobare Interferenzen für die Isotope <sup>50</sup>Cr und <sup>54</sup>Cr durch die Nuklide <sup>50</sup>Ti und <sup>54</sup>Fe, die bei allen vorliegenden Standards bestand, war es nur möglich, das <sup>53</sup>Cr/<sup>52</sup>Cr-Verhältnis zu bestimmen. Bei Ti und Fe-freien Proben können auch die übrigen Isotopenverhältnisse gemessen werden. Eine Interferenz durch <sup>52</sup>CrH macht eine Peakentfaltung nötig.

## Eisen

Eisen ionisiert nur positiv. Isobare Interferenzen bestehen durch <sup>54</sup>Cr und <sup>58</sup>Ni. Da <sup>58</sup>Fe sehr selten ist, machen schon geringe Anteile an Nickel eine Messung des <sup>58</sup>Fe/<sup>56</sup>Fe-Verhältnisses unmöglich. Besser sind die Möglichkeiten zur Messung des <sup>54</sup>Fe/<sup>56</sup>Fe-Verhältnisses, da bei sehr geringen Chromanteilen das seltene <sup>54</sup>Cr-Isotop im Rahmen der erreichbaren Messfehler nicht mehr störend wirkt. Ebenfalls gut messbar ist das <sup>57</sup>Fe/<sup>56</sup>Fe-Verhältnis. Molekulare Interferenzen sind durch <sup>55</sup>MnH und <sup>56</sup>FeH gegeben, so dass eine Peakentfaltung nötig wird. Bei hohen Calzium- oder sehr hohen Siliziumgehalten können weitere molekulare Interferenzen durch <sup>28</sup>Si<sub>2</sub> und CaO entstehen, die sich aber mit einer relativ niedrigen Massenauflösung abtrennen lassen.

## Nickel

Nickel kann nur positiv ionisiert gemessenen werden. Bei Nickel bestehen isobare Interferenzen durch <sup>58</sup>Fe und <sup>64</sup>Zn. Außerdem gibt es noch molekulare Interferenzen durch <sup>59</sup>CoH und <sup>63</sup>CuH. Da das Hauptisotop <sup>58</sup>Ni durch <sup>58</sup>Fe gestört ist, ist es nur bei eisenfreien Proben möglich, die Nickelisotopie zu messen. Bei den vorliegenden Standards waren aufgrund der hohen Fe-Gehalte keine verlässlichen Messungen möglich.

## Kupfer

Kupfer ionisiert nur positiv. Es bestehen keine isobare Interferenzen, aber molekulare Interferenzen durch <sup>62</sup>NiH, <sup>64</sup>NiH und <sup>64</sup>ZnH, die eine zuverlässige Bestimmung der Massenfraktionierung für Kupfer verhinderten.

## Rubidium

Rubidium lässt sich nur positiv ionisiert messen. Für Rubidium besteht eine isobare Interferenz durch <sup>87</sup>Sr und molekulare Interferenzen durch <sup>69</sup>GaO, <sup>84</sup>SrH und <sup>86</sup>SrH. Eine Messung des Rb-Isotopenverhältnisses ist nur bei hohem Rb-und niedrigem Sr-Gehalt möglich. Die molekulare Interferenz durch <sup>69</sup>GaO lässt sich durch eine Peakentfaltung auflösen. Durch die relativ hohen Sr-Gehalte in

2.5. DISKUSSION 27

den verwendeten Standards kommt es zu einer scheinbaren "Anreicherung" des <sup>87</sup>Rb, so dass eine Bestimmung der Massenfraktionierung nicht möglich war.

## Strontium

Strontium muss positiv ionisiert gemessen werden. Bei Strontium besteht eine isobare Interferenz durch  $^{87}{\rm Rb}$  und molekulare Interferenzen durch Rb- und Sr-Hydride. Daher ist nur eine Messung des  $^{86}{\rm Sr}/^{88}{\rm Sr-Verhältnisses}$  möglich, wofür eine Peakentfaltung nötig ist.

## Barium

Barium ionisiert nur positiv und hat isobare Interferenzen durch  $^{136}\mathrm{Ce},\,^{138}\mathrm{Ce}$  und  $^{138}\mathrm{La},\,$ sowie molekulare Interferenzen durch Hydride der Elemente Barium, Lanthan und Cer sowie durch  $^{69}\mathrm{Ga}_2.$  Die Nuklide  $^{136}\mathrm{Ce},\,^{138}\mathrm{Ce}$  und  $^{138}\mathrm{La}$  haben allerdings ein sehr geringe Häufigkeit und die Ionisierungsrate ist wesentlich geringer als bei Barium, so dass sie bei den gemessenen Standards im Rahmen der Messfehler vernachlässigt werden können. Wegen der molekularen Interferenzen sind Peakentfaltungen nötig.

## 2.5 Diskussion

Da die verwendeten Standards keine Reinelemente sind, sondern in ihrer Zusammensetzung den typischerweise gemessenen Proben ähneln, konnten aufgrund der Interferenzen nicht für alle Elemente bzw. Isotopenverhältnisse die Massenfraktionierungen bestimmt werden. Zur Berechnung der Werte sind die in Tabelle 2.3 angegeben Standard-Messungen verwendet worden. In der Tabelle 2.4 sind die ermittelten Massenfraktionierungen aufgelistet. Der Mittelwert für die Massenfraktionierung ist unter "MF" angegeben, die Reproduzierbarkeit (unter "Reprod.") ist durch die Standardabweichung dieses Mittelwertes gegeben und unter "Fehler" findet sich der Mittelwert der statistischen Fehler der einzelnen Messungen. Für eine Korrektur der Massenfraktionierung muss der Massenfraktionierungswert MF vom gemessenen Isotopenverhältnis subtrahiert werden. Hierbei ist als Fehler dieser Korrektur der Wert für die Reproduzierbarkeit zu berücksichtigen.

Bei den ermittelten Massenfraktionierungen finden sich in 32 Fällen Abweichungen vom solaren Wert die kleiner als die Reproduzierbarkeit und damit nicht signifikant sind. In 11 Fällen sind die Abweichungen größer als die Reproduzierbarkeit aber immer noch kleiner als der doppelte Wert der Reproduzierbarkeit und in 6 Fällen ist die Massenfraktionierung größer als die doppelte Reproduzierbarkeit. Die größeren Abweichungen finden sich vor allem bei den Isotopenverhältnissen mit den größeren Massendifferenzen bzw. bei den Messungen nach Abschalten der Ar-Sputterquelle. Auch wenn die Abweichung vom solaren Wert

	SRM 112b		
	MF	Reprod.	
$\delta(^{25}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$	-20	17	
$\delta(^{26}{ m Mg}/^{24}{ m Mg})$	-36	17	
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	-19	7	
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	-68	31	
$\delta(^{42}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	-53	11	
$\delta(^{43}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	-12	40	
$\delta(^{44}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	-47	24	
$\delta(^{46}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	-68	72	
$\delta(^{47}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	-103	67	
$\delta(^{49}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	-23	116	
$\delta(^{50}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	116	148	
$\delta(^{54}\text{Fe}/^{56}\text{Fe})$	38	22	
$\delta(^{57}\mathrm{Fe}/^{56}\mathrm{Fe})$	-28	90	

Tabelle 2.5: Massenfraktionierungen beim SiC-Standard SRM 112b.

oft nicht signifikant ist, sollte eine Korrektur der Messwerte unter Berücksichtigung der Reproduzierbarkeit als Fehler erfolgen, um damit die systematische Messunsicherheit einzubeziehen.

Vergleicht man die Wert für die Massenfraktionierungen MF in Tabelle 2.4 für Messungen mit und nach Ar-Sputtern, so sieht man, dass nur bei Chlor ein signifikanter Unterschied von mehr als  $2\sigma$  auftritt. Alle anderen Werte liegen innerhalb der Reproduzierbarkeit  $(1\sigma)$  oder die  $1\sigma$ -Bereiche überlagern sich zumindestens noch. Bei den Elementempfindlichkeiten finden sich ebenfalls für Messungen mit Parallelbetrieb der Ar-Sputterquelle und für anschließende Messungen ohne Ar-Sputterquelle – mit Ausnahme für Sauerstoff – keine Unterschied (Stephan, 2001). Daraus folgt, dass durch einen Vorbeschuss mit der Ar-Sputterquelle die Oberfläche so weit zerstört werden kann, dass der Einsatz der Ar-Sputterquelle für die eigentliche Messung nicht zwingend nötig ist.

Die Massenfraktionierungen, die sich als Mittelwerte von zwei Vergleichsmessungen mit dem SiC-Standard SRM 112b ergaben, sind in der Tabelle 2.5 angegeben. Zwischen den Messungen mit und nach Ar-Sputtern war kein signifikanter Unterschied erkennbar, so dass nur ein Wert für die Massenfraktionierung (MF) mit der Standardabweichung als Maß für Reproduzierbarkeit (Reprod.) aufgelistet ist. Es besteht ebenfalls kein signifikanter Unterschied zu den Werten, die mit den Glasstandards ermittelt wurden, so dass für Isotopenmessungen präsolarer SiC-Körner die aufgeführten Massenfraktionierungen und Reproduzierbarkeitsfehler der Glasstandardmessungen genutzt werden können.

Zur Kontrolle der Massenfraktionierungformel (1.7) wurde der Parameter  $\alpha$  für die Mittelwerte der Massenfraktionierungen bei den Elementen ermittelt, bei denen mindestens zwei Isotopenverhältnisse bestimmt werden konnten. In den

2.5. DISKUSSION 29

Abbildungen 2.3 und 2.4 sind die Mittelwerte der Massenfraktionierungen (MF aus Tabelle 2.4) mit ihrer Standardabweichung (Reprod. aus Tabelle 2.4) als Fehler sowie in Rot die angepasste Massenfraktionierungsfunktion aufgetragen. Man sieht, dass die gemessenen Massenfraktionierungen nicht gegen ein solches Potenzgesetz sprechen. Die Fehler sind allerdings zu groß, um andere Kurvenverläufe auszuschließen. Es wäre z.B. ein linearer Verlauf denkbar. Es zeigt sich aber, dass es allgemein möglich ist, mit TOF-SIMS Isotopenmessungen durchzuführen. Für eine externe Korrektur der gemessenen Werte dient der ermittelte Mittelwert mit der angegebenen Standardabweichung als Fehler.

Bei den Elementen Mg, Si, Ca und Ti wurde versucht eine interne Korrektur durchzuführen. Hierfür wurde  $\alpha$  aus einem der Isotopenverhältnisse bestimmt und für die Korrektur der anderen verwendet. Es zeigte sich, dass die so korrigierten Isotopenverhältnisse genauso um den Standardwert streuen, wie die ursprünglichen Messwerte. Dies liegt daran, dass die Reproduzierbarkeit schlechter als der statistische Fehler der einzelnen Messung ist, das heißt, die Messwerte streuen stärker als der statistische Fehler vorgibt. Für die Korrektur der Massenfraktionierunge kann daher nur der Mittelwert der gemessenen Massenfraktionierungen mit der Standardabweichung als Fehler verwendet werden, um damit externe Korrekturen durchzuführen.

Für Untersuchungen terrestrischer oder solarer Proben, bei denen es auf Genauigkeiten von wenigen Promill oder sogar weniger als einem Promill ankommt, sind Isotopenmessungen mit TOF-SIMS ungeeignet. Die Messung präsolarer Materie mit Isotopenanomalien von bis zu 3 Dekaden ist aber möglich. Aufgrund der hohen lateralen Auflösung bis zu 0,2 µm sind Isotopenmessungen sogar im Submikrometerbereich möglich.

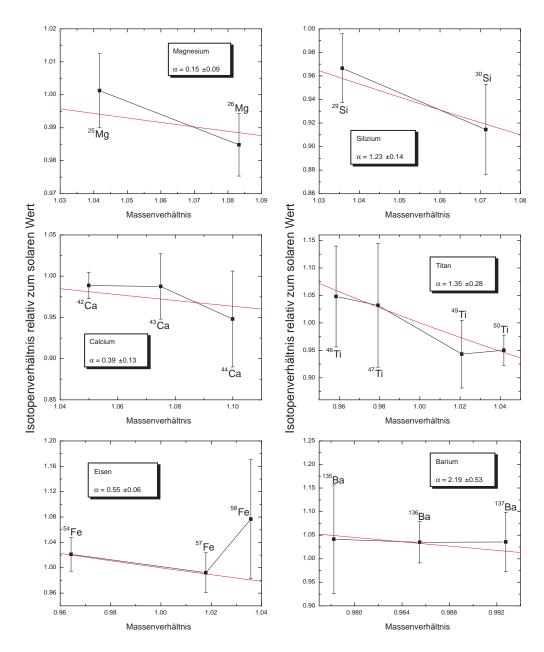


Abbildung 2.3: Aufgetragen sind die Mittelwerte der Isotopenverhältnisse relativ zum solaren Standardwert gegen das Massenverhältnis der Isotope. Es wurden nur Elemente mit mindestens drei Isotopen berücksichtigt. Die Messungen wurden mit Parallelbetrieb der Ar-Sputterquelle durchgeführt. Die Fehlerbalken entsprechen der Standardabweichung der einzelnen Messungen als Maß für die Reproduzierbarkeit. Die rote Linie ist eine Anpassung der Formel 1.7 für die Massenfraktionierung an die gemessenen Daten und führt daher zwangsläufig durch den Punkt (1,1). Beim Eisen ist deutlich die Interferenz durch <sup>58</sup>Ni zu sehen, weswegen dieser dritte Punkt nicht in den Anpassung eingeht.

2.5. DISKUSSION 31

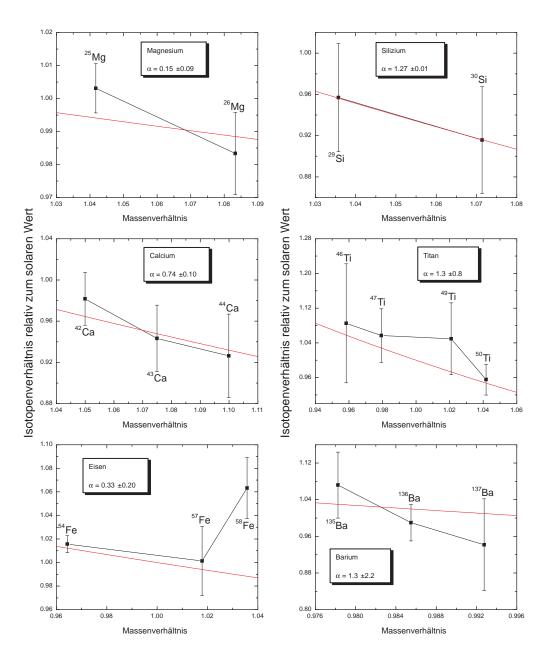


Abbildung 2.4: Diagramm wie in Abbildung 2.3 jedoch für die Messungen nach Abschalten der Ar-Sputterquelle.

# Kapitel 3

# Astrophysikalischer Hintergrund

Um einen Überblick über die in den Sternen ablaufenden Prozesse und die daraus resultierenden Zusammensetzungen der Sterne – die für die Entstehung und Zusammensetzung der präsolaren Körner wichtig sind – zu erhalten, werden in diesem Kapitel die Sternentwicklung und die Produktion der Elemente beschrieben. Dies beginnt bei der primordialen Synthese im Urknall und geht über die stellare Elementsynthese hin zur interstellaren Synthese und der galaktischen Evolution.

Als Literaturhinweise seien einige allgemeine Lehrbücher genannt. Eher populärwissenschaftlich ist das Buch von Oberhummer (1993), das einen guten Überblick über die Sternentwicklung liefert. Für einen tieferen Einblick in die Entstehung und Entwicklung einer Supernova sei das Werk von Montmerle und Prantzos (1991) empfohlen. Eine sehr genaue und ausführliche Beschreibung, insbesondere der kernphysikalischen Vorgänge, findet man bei Rolfs und Rodney (1988), aus dem die Daten für dieses Kapitel, soweit nicht anders angegeben, entnommen sind.

# 3.1 Urknall

Nach gängigen Modellen entstand unser Weltall vor ca. 15 Millionen Jahren in einem Urknall. Außer Raum und Zeit entstand auch die Materie. Etwa  $10^{-3}$  Sekunden nach dem Urknall bildeten sich die Hadronen und damit auch  $\mathrm{H^+}$ . Nach ca. 3 Minuten begann die primordiale Nukleosynthese bei Temperaturen von einigen Milliarden Kelvin. Es wurden die Nuklide  $^2\mathrm{H^+}$ ,  $^3\mathrm{He^+}$ ,  $^4\mathrm{He^+}$  und  $^7\mathrm{Li^+}$  erzeugt. Nach etwa 15 Minuten bestand das Universum zu 75 Gewichts-% aus H und 25 Gewichts-% He und einem kleinem Anteil Li. Etwa 500.000 Jahre später war das Universum so weit abgekühlt (T < 5000 K), dass sich Elektronen und Ionen zu Atomen verbanden. Dadurch wurde das Universum für die Photonen durchsichtig. Sie entkoppelten von der Materie und sind heute als 2,73 K-Hintergrundstrahlung messbar. Alles Deuterium( $^2\mathrm{H}$ ), das wir heute

im Weltall finden, stammt aus dieser Nukleosynthese, denn später ist es in den Sternen nur noch als Zwischenprodukt entstanden und durch weitere Fusion gleich wieder vernichtet worden.

# 3.2 Entstehung und Leben der Sterne

Aus der vom Urknall verbliebenen, inhomogenen Materiewolke bildeten sich durch lokale Gravitationskollapse Sterne und Galaxien. In den Sternen werden Helium und die schweren Elemente ab Kohlenstoff aufwärts gebildet, wie es in Burbidge et al. (1957) erstmals ausführlich beschrieben wurde. Da die Metallizität – der Anteil an Materie mit einem Atomgewicht A>4 – bei der Bildung der ersten Sterne nach etwa 1 Milliarden Jahre nahezu Null war, konnten in diesen Sternen der ersten Generation keine katalytischen Verbrennungsvorgänge stattfinden. Die Energiegewinnung geschah nur aus der direkten Fusion.

Bei der Kernfusion in Sternen kann man bis zur Bildung von <sup>56</sup>Fe Energie gewinnen. Für die Bildung schwererer Kerne muss Energie aufgewendet werden. Bis zu welcher Masse ein Stern Kerne verschmelzen kann, hängt von der kinetischen Energie der Kerne ab, denn sie müssen die elektrischen Abstoßungskräfte überwinden. Die kinetische Energie der Kerne wird wiederum durch die Temperatur des Sterns bestimmt und diese durch die Masse, denn beim Kollaps der ursprünglichen Gaswolke wird deren Gravitationsenergie in thermische Energie umgewandelt.

Die ursprüngliche Gaswolke kollabiert zu einem Stern, bis die Temperatur ausreicht, das H-Brennen – die Kernfusionsreaktion wird Brennen genannt – zu zünden. Der Brennvorgang liefert dann die thermische Energie, um den Gravitationskollaps zu stoppen und ein Gleichgewicht aufrecht zu halten. Ist der Brennvorrat aufgebraucht, kollabiert der Stern weiter und der nächste Brennstoff, nun He, beginnt zu brennen und hält den Stern wieder im Gleichgewicht. Dieser Vorgang wiederholt sich dann mit den weiteren Brenn-

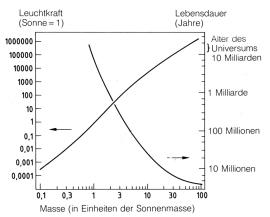


Abbildung 3.1: Die Lebensdauer in Abhängigkeit von der Masse des Sterns (aus Montmerle und Prantzos, 1991).

vorgängen, sofern die Masse des Sterns ausreicht, den nächsten Brennstoff zu zünden. Je größer ein Stern ist, desto schneller verbraucht er seinen Brennstoffvorrat, da durch die größere Masse eine höhere Temperatur und damit schnellere Reaktionsraten erreicht werden. In Abbildung 3.1 sieht man die Beziehung zwischen der Masse eines Sterns und seiner Lebensdauer bzw. Leuchtkraft. Für Sterne, die kleiner als 10 Sonnenmassen sind, gilt die Leuchtkraft  $L \propto M^4$  und

für größere Sterne wird diese Beziehung linear  $L \propto M$  (Montmerle und Prantzos, 1991). Umgekehrt ist die relative Lebensdauer  $\tau$  in Bezug auf unsere Sonne  $\tau \propto M^{-3}$  für Sterne kleiner 10 Sonnenmassen. Sehr massereiche Sterne werden nicht älter als einige 10 Millionen Jahre, während Sterne, die zehnmal kleiner als unsere Sonne sind, mit einer Lebenserwartung von  $\approx 1000$  Milliarden Jahren erst am Anfang ihres Lebens stehen.

Wenn ein Stern seinen Brennstoffvorrat aufgebraucht hat, "stirbt" er, wobei er je nach Größe kurz vor oder mit seinem "Tod" große Mengen seiner Materie ins All schleudert. Diese wird bei neuen Sternbildungen wieder inkorporiert und weiter prozessiert. In diesem Kreislauf erhöht sich die Metallizität der Sterne. Sie wuchs von nahezu Null in der ersten Sterngeneration im Laufe der galaktischen Evolution immer weiter an.

Die Entwicklung eines Sterns während seines Lebens hängt also hauptsächlich von seiner Masse und in geringem Umfang auch von seiner Metallizität ab. Der genaue Ablauf der Sternentwicklung und des Sternendes wird in den nächsten zwei Abschnitten beschrieben.

# 3.3 Sternentwicklung

#### 3.3.1 H-Brennen

Das erste Brennen eines Sternes erfolgt gemäß der pp-Kette. Hierbei reagieren 4 Protonen zu einem He-Kern, zwei Positronen und zwei Neutrinos mit einem Energiegewinn von 26,73 MeV. Dies geschieht bei Dichten von  $\varrho \approx 100~{\rm gcm^{-3}}$  und Temperaturen von 1 bis 100 Millionen Kelvin, je nach Größe des Sterns. Es ist der Prozess, der am meisten Energie liefert und am längsten dauert, da die Protonen die Coulomb-Barriere überwinden müssen. Die mittlere thermische Energie der Protonen genügt hierfür nicht, aber aufgrund der Maxwell-Boltzmann-Verteilung und des Tunneleffekts gelingt es einem sehr kleinen Anteil doch die Coulomb-Barriere zu überwinden. Die ablaufenden Reaktionen der pp-Kette sind

$$p + p \rightarrow {}^{2}H + e^{+} + \nu_{e} + \gamma, \Delta E = 1,44 \; MeV$$

$${}^{2}H + p \rightarrow {}^{3}He + \gamma, \Delta E = 5,49 \; MeV$$

$${}^{3}He + {}^{3}He \rightarrow {}^{4}He + 2p + \gamma, \Delta E = 12,86 \; MeV$$

Im Folgenden wird die übliche Kurzschreibweise für Kernreaktionen verwendet, bei der für die Reaktionsgleichung

$$A + B \rightarrow C + D$$

der Ausdruck

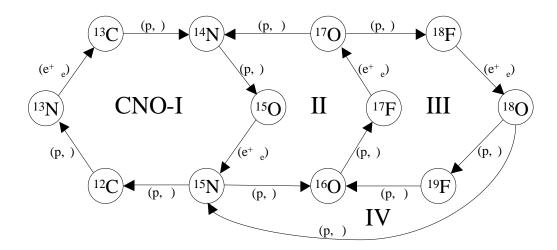


Abbildung 3.2: Der CNO-Zyklus mit seinen vier Unterzyklen (nach Rolfs und Rodney, 1988).

geschrieben wird. Die erste Gleichung der pp-Kette lautet dann

$$p(p, e^+\nu_e\gamma)^2H$$
.

Dieser, auch pp-I-Kette genannte, Prozess macht in unserer Sonne etwa 86% aus. Weitere 14% entfallen auf die pp-II-Kette

$$p(p, e^+\nu_e)^2H(p, \gamma)^3He(\alpha, \gamma)^7Be(e^-, \nu_e)^7Li(p, \alpha)^4He$$

die einen Nebenzweig enthält, der noch 0,02% des H-Brennens ausmacht:

$$^7\mathrm{Be}(p,\gamma)^8\mathrm{B}(e^+\nu_e)^8\mathrm{Be}^*(\alpha)^4\mathrm{He}$$

Effektiv werden also immer 4 Protonen zu einem He-Kern verbrannt.

Bei massereichen Sternen mit einer Metallizität größer als Null erzwingt der größere Gravitationsdruck eine höhere Temperatur, wodurch katalytische Verbrennungszyklen eine größere Rolle spielen als die pp-Kette. Der Energiegewinn ist aber gleich, da effektiv immer wieder 4 Protonen zu einem He-Kern verschmolzen werden. Der wichtigste dieser Zyklen ist der CNO-Zyklus (siehe Abbildung 3.2), der über Zwischenstufen bei den Elementen C, N und O durch Protonenanlagerung und Beta-Zerfälle vier Protonen in einen He-Kern verwandelt.

Einen Ausweg aus diesem Zyklus, der zu weiteren Zyklen bei sehr massereichen und daher sehr heißen Sternen führt, ist die Reaktion  $^{19}{\rm F}({\rm p},\gamma)^{20}{\rm Ne}$ . Von diesem bzw. schon vorhandenem  $^{20}{\rm Ne}$  ausgehend starten der NeNa-Zyklus und der MgAl-Zyklus, die für die in Abschnitt 4.5 beschriebenen präsolaren SiC-X-Körner wichtig sind. Die NeNa- und MgAl-Zyklen sind in Abbildung 3.3 dargestellt.

Da die Halbwertszeit des  $^{26}$ Al  $(t_{1/2} \approx 716\,000\,\mathrm{Jahren})$  nicht wesentlich größer ist als die Zeit für die  $^{26}$ Al $(\mathrm{p},\gamma)^{27}$ Si-Reaktion, reichert sich  $^{26}$ Al in der H-Brennschicht massereicher Sterne an. Nur bei diesem Brennvorgang bildet sich

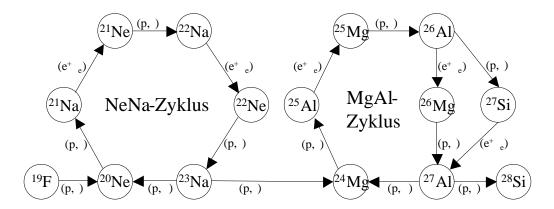


Abbildung 3.3: Der NeNa- und MgAl-Zyklus, wie er in sehr heißen, also auch sehr massereichen, Sternen während des H-Brennens abläuft (nach Rolfs und Rodney, 1988).

genügend  $^{26}$ Al, um die in den SiC-X-Körnern gemessenen initialen ( $^{26}$ Al/ $^{27}$ Al) $_0$ -Isotopenverhältnisse erklären zu können (siehe hierzu Abschnitt 4.5). Das initiale ( $^{26}$ Al/ $^{27}$ Al) $_0$ -Isotopenverhältnis ist das ursprüngliche Verhältnis bei der Kondensation der Materie. Durch Beta-Zerfälle des  $^{26}$ Al wird  $^{26}$ Mg gebildet, das man heute als Anreicherung im  $^{24}$ Mg/ $^{26}$ Mg-Verhältnis gegenüber dem solaren Wert messen kann.

### 3.3.2 He-Brennen

Nachdem der Wasserstoff im Zentrum – und nur dieser stand für die Fusionsreaktionen zur Verfügung, denn weiter außen ist es zu kalt – aufgebraucht ist, kommt es aufgrund des fehlenden thermischen Gegendrucks zu einer weiteren Verdichtung des Sterns. Die Temperaturen steigen, bis schließlich das Helium bei Dichten von  $\varrho \approx 10^2 - 10^5~{\rm gcm}^{-3}$  und Temperaturen¹ von  $T_9 \approx 0,1-0,2$  zu brennen beginnt. Problematisch ist die Instabilität des <sup>8</sup>Be, weswegen es zu einer Reaktion von drei He-Kernen zu einem Kohlenstoffkern kommen muss. Aufgrund des höheren Gravitationsdruckes und der höheren Temperaturen verbraucht der Stern seinen Brennstoffvorrat nun wesentlich schneller. Das He-Brennen dauert maximal einige Millionen Jahre. Durch die gestiegenen Temperaturen kommt es in einer Schale um den He-Kern zum Wasserstoffbrennen.

Außer dem Kohlenstoff wird auch Sauerstoff durch Helium-Anlagerung an <sup>12</sup>C produziert:

$$3\alpha(\gamma)^{12}$$
C bzw.  $^{12}$ C $(\alpha, \gamma)^{16}$ O

Nebenreaktionen wie

$$^{13}C(\alpha, n)^{16}O$$
 und  $^{22}Ne(\alpha, n)^{25}Mg$ 

 $<sup>^{1}</sup>T_{n}$  ist die Kurzschreibweise für Temperaturen von  $10^{n}$  Kelvin.

liefern die für den s-Prozess (siehe Abschnitt 3.4.1) wichtigen Neutronen. In massearmen Sternen spielt die Neutronenproduktion durch  $^{13}\mathrm{C}$  die größere Rolle (ausführlich in Abschnitt 3.4.1 dargestellt), während in schwereren Sternen ( $\geq 15\mathrm{M}_{\odot}$ ) durch die höheren Temperaturen die  $^{22}\mathrm{Ne}(\alpha,\mathrm{n})^{25}\mathrm{Mg}$ -Reaktion zum Hauptproduzenten für Neutronen wird (Meyer, 1994). Das erforderliche  $^{22}\mathrm{Ne}$  wird durch die Reaktion

$$^{14}{\rm N}(\alpha, \gamma)^{18}{\rm F}({\rm e}^{+}\nu)^{18}{\rm O}(\alpha, \gamma)^{22}{\rm Ne}$$

produziert. Diese schweren Sternen sind der wichtigste Produktionsort für s-Prozess-Nuklide mit  $A \leq 90$ .

Bei vielen Sternen endet mit dem He-Brennen die Entwicklung, da ihre Masse nicht groß genug ist, um durch weitere Verdichtung höhere Temperaturen zu erreichen und somit noch schwerere Elemente durch Fusion zu erzeugen. Diese Sterne enden als weiße Zwerge, nachdem sie ihre Hülle als planetaren Nebel abgestoßen haben. Bei Sternen in der Größe der Sonne und kleiner kommt es noch nicht einmal zum stabilen He-Brennen. Bei diesen Sternen verbrennt das He explosionsartig, wenn der Kern durch weitere Kontraktion eine genügend hohe Temperatur erreicht hat.

### 3.3.3 C-Brennen

Für Sterne, die größer als etwa 8 Sonnenmassen sind, geht die Entwicklung weiter. Nach dem Ende des He-Brennens kommt es aufgrund des fehlenden thermischen Druckes erneut zu einer Kontraktion, die die Temperatur auf  $T_9 \approx 0.5$  ansteigen lässt, so dass sie ausreicht, den Kohlenstoff bei Dichten von  $\varrho \geq 2 \times 10^5 \ {\rm gcm}^{-3}$  zu verbrennen. Die exotherme Reaktion

$$^{12}{\rm C}(^{12}{\rm C},\alpha)^{20}{\rm Ne}$$

erbringt einen Energiegewinn von etwa 4,6 MeV und die exotherme Reaktion

$$^{12}{\rm C}(^{12}{\rm C},{\rm p})^{23}{\rm Na}$$

einen Energiegewinn von ca. 2,2 MeV, während bei der endothermen Reaktion

$$^{12}C(^{12}C, n)^{23}Mg$$

etwa 2,6 MeV verbraucht werden. Durch den geringen Energiegewinn ist eine hohe Reaktionsrate notwendig, um das thermische Gleichgewicht aufrecht zu erhalten. Daher ist der Brennstoff schon nach einigen hundert Jahren aufgebraucht.

### 3.3.4 Ne-Brennen

Wieder muss der Stern kontrahieren, um den nächsten Brennstoffvorrat zu zünden. Wieder wird weniger Energie frei und der Vorrat ist noch schneller aufgebraucht. Diese Phase dauert ca. 1 Jahr. Bei Temperaturen von  $T_9 \approx 1$  und

Dichten von  $\varrho \approx 4 \times 10^6 \ \mathrm{gcm^{-3}}$  spaltet das Neon nun einen He-Kern ab oder nimmt einen auf. Beide Reaktionen

$$^{20}{\rm Ne}(\gamma,\alpha)^{16}{\rm O}$$
 und  $^{20}{\rm Ne}(\alpha,\gamma)^{24}{\rm Mg}$ 

laufen gleichzeitig ab.

#### 3.3.5 O-Brennen

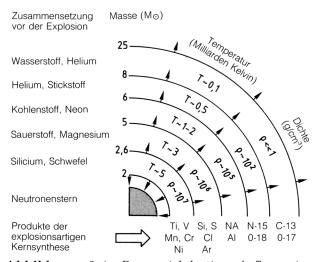
Nach einer weiteren Kontraktion wird bei Temperaturen von  $T_9 \approx 2$  und Dichten von  $\varrho \approx 1 \times 10^7 \ \mathrm{gcm^{-3}}$  der Sauerstoff unter der Bildung von Si und S verbrannt:

$$^{16}O(^{16}O, \alpha)^{28}Si$$
 oder  $^{16}O(^{16}O, \gamma)^{32}S.$ 

Dieser Brennstoff ist nach etwa 6 Monaten aufgebraucht.

#### 3.3.6 Si-Brennen

Der letzte Brennvorgang, mit dem sich noch Energie erzeugen lässt, ist das Si-Brennen. Die Fusionskette endet beim <sup>56</sup>Ni, das über <sup>56</sup>Co zu <sup>56</sup>Fe zerfällt, da ein Maximum an Bindungsenergie pro Nukleon erreicht ist. Eine weitere Fusion würde Energie verbrauchen. Das Si-Brennen dauert etwa 1 Tag bei  $T_9 \approx 4$  und  $\rho \approx 3 \times 10^7 \text{ gcm}^{-3}$ . Die hohe Coulomb-Barriere der <sup>28</sup>Si-Kerne verhindert eine direkt Fusion dieser Kerne. Das Si-Brennen ist ein Nebeneinander von Photodesintegration vorhandener Kerne und



**Abbildung 3.4:** Der zwiebelartige Aufbau eines Sterns kurz vor der Explosion als Supernova vom Typ II (aus Montmerle und Prantzos, 1991).

der Anlagerung von Protonen und He-Kernen hauptsächlich an noch vorhandenes  $^{28}$ Si, das einen der stabilsten Kern aufweist. Hierdurch werden die schwereren Kerne vor allem um Masse m=56 amu unter Energiegewinn erzeugt. Am Ende all dieser nuklearen Brennphasen besitzt der Stern einen zwiebelartigen Aufbau, wie in Abbildung 3.4 dargestellt.

## 3.4 Sternende

#### 3.4.1 Massearme Sterne

Bei den massearmen Sternen kommt es nach dem H-Brennen und der anschließenden Kontraktion zu einer Konkurrenz aus He-Brennen im Kern und H-Brennen in einer Schale um den Kern. Das Brennen verläuft instabil und teils explosionsartig. Durch Diffusion des H aus der äußeren Hülle in die He-Zone kommt es zu  $(p,\gamma)$ -Reaktionen und der Bildung von He. Nach einigen Tausend Jahren H-Brennen kommen wieder einige Zehn Jahre He-Brennen, wobei durch die Reaktion  $^{13}$ C $(\alpha, n)^{16}$ O genügend Neutronen für den s-Prozess erzeugt werden (Meyer, 1994). Beim s-Prozess – "s" steht für slow – ist die Neutroneneinfangrate kleiner als die Zerfallszeit für den Beta-Zerfall, wodurch Kerne entlang der Linie der stabilen Kerne gebildet werden (siehe Abbildung 3.7). Der s-Prozess in den massearmen Sternen bildet den größten Teil der s-Prozess-Nuklide mit 90 < A < 204 (Meyer, 1994).

Der Stern bläht sich durch den erhöhten Energiegewinn zuerst zu einem Roten Riesen auf, bei dem das H-Brennen in einer Schale um den He-Kern weiterläuft, und wird schließlich zu einem AGB-Stern², bei dem sowohl das H- als auch das He-Brennen in Schalen um den Kern aus C und O stattfinden. Durch Turbulenzen im Stern wird Material aus dem Inneren, wo neue, schwerere Nuklide erzeugt wurden, in den Hüllenbereich gebracht. Die Sonne wird in dieser Phase so groß, dass ihre äußeren Randbereiche die Erdbahn erreichen. Die Gravitationskräfte reichen bei den Roten Riesen und besonders den AGB-Sternen nicht mehr aus, um auch die äußere Hülle festzuhalten. Durch die vorhergehenden Verwirbelungen im Stern wird bei der Abstoßung der Hülle als sehr starke Sonnenwinde auch neu gebildetes Material in den Weltraum geschleudert. Nach Beendigung des He-Brennens bleibt dem Stern nicht mehr genug Masse, um weiter zu kontrahieren, so dass keine weitere Fusion stattfinden kann. Er endet als weißer Zwerg, der hauptsächlich aus Helium, Kohlenstoff und Sauerstoff besteht.

Die Materie des Sterns ist noch immer ionisiert und einer weiteren Kontraktion wirkt das entartete Elektronengas entgegen. Bei einem entartetem Elektronengas sind alle erlaubten Zustände von der niedrigsten Energie bis zu einer maximalen Energie besetzt. Weitere Elektronen, die diesem Gas beigefügt werden, müssen mindestens diese maximale Energie besitzen. Das entartete Elektronengas kann dem Gravitationsdruck sehr gut standhalten, solange die Masse des Sterns einen kritischen Wert nicht überschreitet. Dieser Grenzwert wird erreicht, wenn der Druck so groß wird, dass die Geschwindigkeiten der Elektronen sich der Lichtgeschwindigkeit nähern. Der Druck dieser relativistischen Elektronen ist geringer und genügt nicht mehr, um dem Gravitationsdruck stand zu halten. Die-

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>AGB: Asymptotic Giant Branch, eine Bezeichnung, die sich aus der Lage des Sterns im Hertzsprung-Russell-Diagramm ergibt. Bei diesem Diagramm wird die Leuchtkraft gegen den Spektraltyp der Sterne aufgetragen.

3.4. STERNENDE 41

se Grenze wurde nach ihrem Entdecker, dem indischen Physiker Chandrasekhar, benannt und liegt bei etwa 1,4 Sonnenmassen. Ist ein Stern schwerer, so zieht er sich immer weiter zu einem Neutronenstern zusammen.

## 3.4.2 Supernovae Typ II (Massereiche Sterne)

Bei einer Supernova vom Typ II handelt es sich um die Explosion eines einzelnen, massereichen Sterns. Nach Durchlaufen der in 3.3 beschriebenen Brennvorgänge besitzt der Stern einen zwiebelartigen Aufbau (Siehe Abbildung 3.4. Nachdem der Energievorrat aufgebraucht ist und der thermische Druck nicht mehr ausreicht, um dem Gravitationsdruck entgegenzustehen, kommt es unweigerlich zum Kollaps des Kerns (siehe Abbildung 3.5). Der innere Teil des Eisenkerns kollabiert etwas schneller als die äußere Kernschicht. Die Materie stürzt dabei mit Geschwindigkeiten von über 10 000 km/s zusammen, bis sie die Atomkerndichte von  $3 \times 10^{14}$  gcm<sup>-3</sup> erreicht. Bei dieser Dichte werden sogar die Neutrinos eingeschlossen, die sonst aufgrund ihres äußerst geringen Wechselwirkungsquerschnittes jedes Material nahezu ohne Wechselwirkung durchqueren.

Der Kollaps kommt bei Erreichen der Kerndichte abrupt zum Stillstand und es bildet sich eine Stoßwelle nach außen (siehe Abbildung 3.5). Die Stoßwelle muss die nachstürzenden Massen des äußeren Kerns durchqueren, wobei die kinetische Energie durch die thermische Desintegration des Materials aufgebraucht wird. Es bleiben nur noch Neutronen und Protonen zurück, wobei sich letztere durch Elektroneneinfang in Neutronen umwandeln. Die Stoßwelle verliert soviel Energie bei

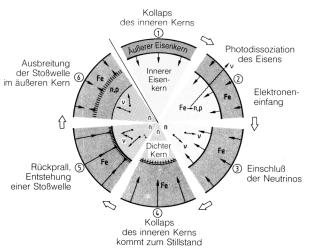


Abbildung 3.5: Der zeitliche Verlauf der Stoßwelle durch den Kern (aus Montmerle und Prantzos, 1991).

diesem Prozess, dass sie es bei Sternen größer 20 Sonnenmassen nicht schaffen würde, den Kern zu durchqueren. Sie würde zum Stillstand kommen, wenn nicht die nachströmenden Neutrinos trotz ihres kleinen Wechselwirkungsquerschnittes noch genügend Energie nachliefern würden. Die Energieabgabe der Neutrinos beträgt hierbei nur etwa 1% ihrer Gesamtenergie.

Nachdem die Stoßwelle den Kern durchlaufen hat, stößt sie die Hülle vom Kern ab und heizt sie bis auf einige Milliarden Kelvin auf. Hierdurch kommt es zu weiteren nuklearen Reaktionen in der Hülle. Die wichtigsten gebildeten Kerne sind in Abbildung 3.4 angegeben. Der sich aus dem Kern bildende Neutronenstern sorgt für einen Neutronenwind, der Neutroneneinfangreaktionen in der Hülle hervorruft. Aufgrund der hohen Neutronendichte liegen die Neutronen-

einfangzeiten deutlich unter den Betazerfallszeiten der sich bildenden Nuklide, so dass sich Nuklide mit maximaler Neutronenzahl bilden. Aus diesem r-Prozess genannten Vorgang – "r" steht für rapid – bilden sich durch Beta-Zerfälle die neutronenreichen, schweren Kerne.

Die Neutrinos tragen etwa 99 % der Explosionsenergie nach außen und nur 1% wird in Form mechanischer Energie zum Auswurf der Materie und nur 0,01 % in Form von Licht abgegeben. Daher ist eine Supernova vom Typ II auch dunkler als eine vom Typ I, obwohl sie aus einem größeren Stern hervorgeht. Charakteristische Lichtkurven sind in Abbildung 3.6 dargestellt.

Die Helligkeitsabfälle haben typische Halbwertszeiten von anfangs  $\approx 1$ Woche und später  $\approx 2$  Monaten. Dies resultiert aus dem Zerfall des <sup>56</sup>Ni zu <sup>56</sup>Co mit einer Halbwertszeit von 6,075 Tagen und aus dem Zerfall des <sup>56</sup>Co zu <sup>56</sup>Fe mit einer Halbwertszeit von 77,26 Tagen. Ersterer ist beim Typ II nicht beobachtbar, da die noch heiße Hülle einen Blick in das Innere verhindert, ähnlich wie bei unserer Sonne. Die Photonen aus dem Inneren werden im Plasma immer wieder absorbiert und emittiert. So geht die Information aus dem Inneren verloren, und wir sehen nur die Photonen einer äußeren Schicht mit einer Temperatur von ca. 5000 K. Bei dieser Temperatur können sich die Io- zos, 1991)).

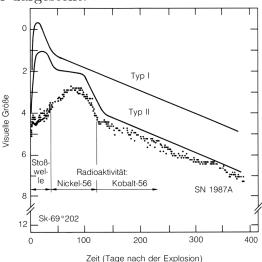


Abbildung 3.6: Die typischen Lichtkurven der Supernovae vom Typ I und II. Zum Vergleich ist die Lichtkurve der Supernova von 1987 eingezeichnet (aus Montmerle und Prantzos, 1991)).

nen und Elektronen des Plasmas wieder vereinigen, und die hierdurch entstehenden Atome absorbieren die Photonen nur noch, wenn diese eine für eine Anregung passende Energie haben. Da diese Schicht immer weiter expandiert, kann sie für einige Wochen den kleiner werdenden Energiefluss aus dem Inneren ausgleichen. Daher zeigt sich im Helligkeitsverlauf ein Plateau, weshalb diese Supernovae auch als Typ IIP bezeichnet werden.

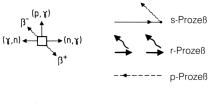
Sterne mit Massen um 100 Sonnenmassen und mehr bezeichnet man als Wolf-Rayet-Sterne. Sie verlieren schon während ihres normalen Lebens ihre äußere Wasserstoffhülle. Wenn sie schließlich als Supernova explodieren, so läuft diese Explosion analog der vom Typ IIP. Da aber keine Wasserstoffemissionslinien mehr zu sehen sind, tragen sie die aus historischen Gründen die Bezeichnung Ib.

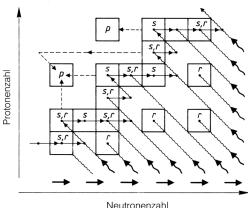
# 3.4.3 Supernovae Typ Ia (Binärsystem)

Die Supernovae vom Typ Ia unterscheiden sich von den übrigen beschriebenen Sternenden dadurch, dass es sich nicht um die lineare Entwicklung eines einzelnen 3.4. STERNENDE 43

Sterns, sondern eines Doppelsternsystems handelt. Der größere der beiden Sterne wird sich schneller entwickeln und sein Endstadium früher erreichen. Bei Sternen, die größer als etwa 8 Sonnenmassen sind, kann dies durchaus eine Supernova vom Typ II sein, wobei hierbei die Gefahr besteht, dass bei der Explosion das System zerstört wird. Handelt es sich um einen kleineren Stern, der als Weißer Zwerg endet, so kann er sich weiterentwickeln. Wenn der Begleiter des Weißen Zwerges sich zu einem Roten Riesen entwickelt, kann der Weiße Zwerg die Sonnenwinde (hauptsächlich H) des Roten Riesen an seiner Oberfläche ansammeln. Dabei kommt es aufgrund der geringen Größe zu einer starken Verdichtung und Aufheizung, wodurch der Wasserstoff explosionsartig zündet. Diese Explosion nennt man eine Nova. Der Vorgang des Wasserstoff-Ansammelns und einer anschließenden Nova kann sich mehrfach wiederholen.

Das Verbrennungsprodukt der Novae – Helium – sammelt sich nun auf dem weißen Zwerg an und bei Überschreiten der Chandrasekhar-Grenze kann das entartete Elektronengas dem Gravitationsdruck nicht mehr standhalten und es kommt zur Kontraktion. Hierdurch heizt sich der Stern soweit auf, dass es zum explosionsartigen Verbrennen der He-Schicht auf der Oberfläche des weißen Zwerges kommt. Da der Wasserstoff schon in den Novae-Explosionen verbrannt ist, sind bei dieser Supernova vom Typ Ia keine Wasserstoffemissionslinien zu sehen. Die am häufigsten produzierten Produkte dieser Verbrennung sind Kohlenstoff Abbildung 3.7: Der s-, r- und p-Prozess in und Sauerstoff. Der größte Teil der der Übersicht (aus Montmerle und Prantzos, Energie wird in Form mechanischer





1991).

Energie abgegeben, die benötigt wird, um die die Verbrennungsprodukte in den Raum zu schleudern. Die restliche Energie – ungefähr 1 % – wird in Form von Strahlung abgegeben. Auch der Weiße Zwerg im Kern wird bei der Explosion zerstört und es bleibt kein Reststern zurück.

Bei der Explosion wird die Materie auf einige Milliarden Kelvin aufgeheizt und durch Photodesintegration entstehen neutronenarme Nuklide im so genannten p-Prozess. Dieser Prozess wird auch  $\gamma$ -Prozess genannt, da die Reaktionen durch Photoneneinfang hervorgerufen wird. Eine andere Möglichkeit neutronenarme Kerne zu synthetisieren ist eine Protonenanlagerung, für die ebenfalls sehr hohe Temperaturen erreicht werden müssen, um die Coulomb-Barriere zu überwinden. Oft wird auch nur die Protonenanlagerungs-Reaktion als p-Prozess bezeichnet.

### 3.5 Reststerne

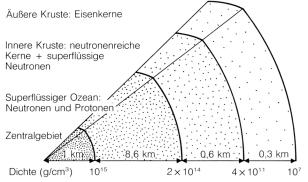
## 3.5.1 Weiße Zwerge

Weiße Zwerge sind die Reste von massearmen Sternen, die die Chandrasekhar-Grenze von ca. 1,4 Sonnenmassen nicht überschreiten. Sie sind kompakte Sterne von einigen Zehntausend Kilometern Durchmesser mit Temperaturen von bis zu 100 000 Kelvin auf ihrer Oberfläche. Durch die hohe Temperatur sendet der Stern sehr viele Photonen im UV-Bereich aus, wodurch die zuvor abgestoßene Hülle zum Leuchten angeregt wird. Dieses Phänomen ist als "Planetarer Nebel" bekannt. Der Name ist historisch begründet, da mit kleinen Teleskopen, wie sie früher benutzt wurden, die Nebel wie entfernte Planeten aussehen.

Dem Gravitationsdruck steht der Druck des entarteten Elektronengases entgegen. Bei der sehr langsamen Abkühlung können sich die Elektronen nicht mehr mit den ionisierten Kernen vereinigen, da dies eine Volumenvergrößerung mit sich bringen würde, für die der Stern keine Energie mehr aufbringen kann. So bleibt den Atomkernen nichts anderes übrig, als sich aufgrund ihrer elektrischen Abstoßung in regelmäßiger Form anzuordnen – ein riesiger Kristall entsteht. Der Stern endet, wenn er ausgekühlt ist, als Schwarzer Zwerg.

#### 3.5.2 Neutronensterne

Bei einer Restmasse größer der Chandrasekhar-Grenze endet der Stern als Neutronenstern, wie in Abbildung 3.8 dargestellt. Im Übergangsbereich vom <sup>56</sup>Fe ganz außen zur nächsten Schicht verschmelzen aufgrund des hohen Druckes die Protonen in den Atomkernen und die Elektronen, so dass neutronenreiche Kerne entstehen. Weiter innen verlieren die immer neutronenreicheren



**Abbildung 3.8:** Der Aufbau eines Neutronensterns (aus Montmerle und Prantzos, 1991).

Kerne einen Teil ihrer Neutronen, die sich dann frei zwischen den Kernen bewegen. Diese Neutronen müssten als freie Neutronen eigentlich sehr schnell  $(t_{1/2}\approx 11~\text{m})$  zerfallen. Da sie sich aber in einem entarteten Elektronengas befinden, bleiben für die beim Zerfall frei werdenden Elektronen nur energetisch zu hohe Zustände, so dass es nicht zu einem Zerfall kommt. Die Neutronen in einem Neutronen-Stern sind daher stabil. Weiter innen bei Dichten von  $2\times 10^{14}~\text{gcm}^{-3}$  lösen sich alle Kerne auf, es bleibt ein superflüssiger Ozean der zu 99% aus Neutronen und 1% aus Protonen besteht.

### 3.5.3 Schwarze Löcher

Schwarze Löcher entstehen, wenn die Restmasse des Sterns nach einer Supernova größer als 2–3 Sonnenmassen ist. Eine genaue Angabe der Grenzmasse ist nicht möglich, da das Verhalten von Materie bei derartigen Zuständen noch nicht genügend erforscht ist. Der bei der Supernovaexplosion entstehende Neutronenstern stürzt immer weiter in sich zusammen, da das entartete Neutronengas dem Gravitationsdruck nicht standhalten kann. Dieser Stern wird nun so dicht, dass sein Radius den Schwarzschild-Radius unterschreitet. Dieser Radius, der sich für jedes Objekt aus  $R = G \cdot 2 \cdot M/c^2$  (G Gravitationskonstante, M Masse) berechnen lässt, gibt die Grenze an, ab der die Fluchtgeschwindigkeit größer als die Lichtgeschwindigkeit c ist. Es ist also weder Licht noch Materie möglich, diesem Bereich zu entkommen. Schwarze Löcher lassen sich daher nur indirekt über ihre Massewirkung nachweisen.

## 3.6 Galaktische Evolution

In Abbildung 3.9 sind Häufigkeiten der Nuklide unserem Sonnensystem dargestellt. Unser Sonnensystem ist Mischung von Material aus verschieden Quellen. Neben primordialem Material sich Materie aus Supernovae, AGB-Sternen, Roten Riesen und Spallationsre-Produkten von aktionen hervorgerufen kosmische die Strahlung. welchen angedeutet durch Brennvorgang oder **Prozess** einzelnen Elemente entstanden sind. Die auffälligen Anhäufungen im Bereich "Neutroneneinfangs" lassen sich durch

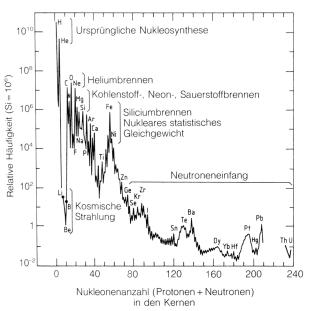


Abbildung 3.9: Die Häufigkeit der Nuklide in unserem Sonnensystem (aus Oberhummer, 1993).

besonders stabile Kerne erklären, deren Neutronen- oder Protonenzahl einer abgeschlossenen Kernschale entsprechen.

Durch die Bildung immer schwererer Kerne bei der Nukleosynthese steigt die Metallizität der Sterne, also der Anteil an Elementen schwerer als Helium. Da neue Sterne Material früherer Sterne inkorporieren, erhöht sich so die Anfangsmetallizität der Sterne, was Auswirkungen auf die katalytischen Zyklen hat, die nun bei der Produktion neuer Nuklide immer mehr ins Gewicht fallen. Auch bei

einigen Isotopenverhältnissen kann es zu Änderungen kommen. So bildete sich im Laufe der galaktischen Entwicklung immer mehr <sup>29</sup>Si und <sup>30</sup>Si im Verhältnis zum <sup>28</sup>Si, so dass die Si-Isotopenverhältnisse, <sup>28</sup>Si/<sup>29</sup>Si und <sup>28</sup>Si/<sup>30</sup>Si, kleiner wurden, je später sich der Stern gebildet hat (Timmes und Clayton, 1996).

# Kapitel 4

# Präsolare Körner

Im ausgestoßenen Material von sterbenden Sternen kondensieren nach etwa einem Jahr erste Staubkörner, wenn Temperaturen um 1500 K erreicht sind. Diese sich bildenden zirkumstellaren Körner gelangen durch das interstellare Medium zu anderen Sternsystemen. Bei der Bildung neuer Sternsysteme wird dieser Staub zusammen mit dem Gas inkorporiert. Wenn die Temperatur eines sich bildenden Sternsystems zumindest in einigen Bereichen niedrig genug bleibt, bleibt dieser Sternenstaub erhalten. In unserem Sonnensystem findet sich solcher Sternenstaub – präsolare Körner – in primitiven Meteoriten.

Bis in die frühen 60er Jahren des letzten Jahrhunderts glaubte man noch, bei der Entstehung des Sonnensystems sei alles Material gut durchmischt und erhitzt worden (Cameron, 1962), so dass sich keine Materie einzelner Sterne finden ließe. Durch Berechnungen von Burbidge et al. (1957) hatte man eine Vorstellung vom Ablauf der nuklearen Vorgänge in den Sternen, die sich mit der Messung stellarer Materie hätten überprüfen lassen. Erst später bei Edelgasmessungen von Meteoriten fanden sich Hinweise auf Isotopenanomalien bei den Edelgasen Xenon (Reynolds und Turner, 1964) und Neon (Black und Pepin, 1969), deren Abweichungen von den solaren Werten nicht mit physikalischen Vorgängen im Sonnensystem erklärt werden konnten. Es begann eine lange Suche nach den Trägern dieser Anomalien, die erst Ende der 80er Jahre Erfolg hatte (Lewis et al., 1987). Mittels komplexer chemischer und physikalischer Trennungen war es möglich geworden, die Träger der Edelgasisotopenanomalien – die präsolaren Körner – zu separieren und bei ausreichender Größe der Körner einzeln zu untersuchen.

Aufgrund der Vielfalt an präsolaren Körnern, die inzwischen entdeckt und untersucht wurden, werden nur die für diese Arbeit wichtigen Siliziumkarbide im Detail beschrieben. Einen Überblick über die wichtigsten bekannten präsolaren Körner gibt die Tabelle 4.1 und die folgenden Abschnitte. Für weitere Informationen sei auf die ausführlichen Übersichtsartikel von Anders und Zinner (1993); Zinner (1998a,b); Hoppe und Zinner (2000) verwiesen.

Name	Größe	Häufigkeit (ppm)	Edelgasmerkmale	Ursprung
Diamant	≈2 nm	≈1400	Xe-HL	SN
Siliziumkarbid	$0,3$ – $20~\mu m$	$\approx 20$	Xe-S, Ne-E(H)	AGB
Graphit	$120~\mu\mathrm{m}$	$\approx 10$	Ne-E(L)	AGB, N, SN
SiC X-Körner	$15~\mu\mathrm{m}$	$\approx 0.2$		SN
Korund	$0,5–5~\mu m$	≈0,01		AGB, RR
Siliziumnitrid	$\approx 1~\mu\mathrm{m}$	$\approx 0.002$		SN

Tabelle 4.1: Zusammenstellung der häufigsten präsolaren Phasen. SN: Supernovae, N: Novae AGB: AGB-Sterne, RR: Rote Riesen

# 4.1 Edelgase als Indikator

Bei der Suche nach den präsolaren Körnern benutzte man die zuvor erwähnten Edelgasisotopenanomalien als Indikator. Darunter waren Xenon mit Anreicherungen der leichten und schweren Isotope (Xe-HL), Neon mit starken Anreicherungen an <sup>22</sup>Ne (bei Ne-E(L) noch größer als bei Ne-E(H)) und Xenon mit einem Isotopenmuster des s-Prozesses (Xe-S), wie sie in Abbildung 4.1 dargestellt sind. Das Xe-HL wird durch den r- und p-Prozess in Supernovae produziert. Ne-E(L) stammt ebenfalls aus Supernovae und Xe-S und Ne-E(H) werden durch den s-Prozess in AGB-Sternen gebildet. Die Träger dieser Edelgasphasen müssen präsolaren Ursprungs sein und die Entstehung des Sonnensystems ohne Veränderungen überstanden haben. Man suchte lange mit verschiedenen physikalischen und chemischen Trennmethoden, bevor es gelang, diese Phasen zu separieren. Die ersten präsolaren Einzelkörner wurden von E. Anders und seinen Kollegen in Chicago separiert und charakterisiert (Lewis et al., 1987).

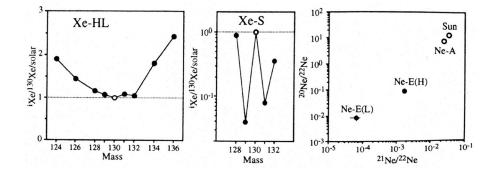


Abbildung 4.1: Edelgasisotopien präsolarer Phasen (Anders und Zinner, 1993).

# 4.2 Extraktion präsolarer Körner

Es hatte sich herausgestellt, dass präsolare Körner säureresistent sind und daher auf chemischem Wege extrahiert werden können. Typischerweise beginnt man mit der Auflösung der Silikate, die etwa 96% des Meteoriten ausmachen, durch Flusssäure oder Salzsäure bei gleichzeitigem Erhitzen. Danach werden organische Phasen und Schwefel mit KOH und  $K_2(CrO_4)_2$  oder  $Na_2(CrO_4)_2$  gelöst. Zur Separation von Diamanten und Graphitkörner wird eine Dichtetrennung in einer superschweren Flüssigkeit wie z.B.  $3(Na_2WO_4) - 9(WO_3) - H_2O$  mit Dichten bis zu  $\varrho = 3,5$  gcm<sup>-3</sup> durchgeführt. Schließlich werden organische Verbindungen und Oxide mittels Perchlorsäure oder Schwefelsäure abgetrennt und übrig bleiben SiC-Körner. Zum Abschluss werden eventuelle Glasrückstande vom Extraktionsprozess durch Flusssäure entfernt.

Eine genaue Beschreibung des Standard- oder Chicago-Trennvorgangs findet sich in Amari et al. (1994). Einen guten Überblick über heute gebräuchliche Trennverfahren, die teils für eine Extraktion von präsolaren Oxiden oder eine schonendere Behandlung optimiert wurden, gibt Besmehn (2001). Ein Problem dieser Trennvorgänge ist der Einsatz starker Säuren, der zu chemischen Veränderungen an den präsolaren Körnern führen kann, sowie der Verlust fast aller oxidischen Phasen. Da man im Weltall aber viele oxidische Phasen beobachtet (siehe z.B. Thielens et al., 1998; Wooden, 1997), vermutet man auch unter diesen noch präsolare Phasen. Aufgrund der geringeren Schmelztemperatur ist ein Überleben solcher Phasen bei der Bildung des Sonnensystems allerdings unwahrscheinlicher. Eine neuere Methode zur Extraktion stammt von Bernatowicz et al. (2001). Hierbei wird auf den Einsatz starker Säuren verzichtet und statt dessen werden Ultraschallbäder verwendet, um die präsolaren Körner möglichst in ihrem ursprünglichen Zustand zu erhalten.

# 4.3 Bekannte präsolare Körner

Als Ergänzung zur Tabelle 4.1 seien hier die wichtigsten Merkmale der verschieden Körner etwas detaillierter aufgeführt.

#### 4.3.1 Diamant

Die Diamanten (erstmals von Lewis et al., 1987, beschrieben) zeichnen sich neben der Xe-HL-Komponente durch eine Telluranomalie aus, die ebenfalls auf Supernovae als Entstehungsort hinweist (Richter et al., 1998). Durch die geringen Größen sind keine Einzelunterschungen von Diamantkörnern möglich, so dass es nicht sicher ist, ob wirklich alle Diamanten präsolar sind oder es sich um eine Mischung mit solaren Diamanten handelt. Eine Suche nach ausgestorbenem <sup>26</sup>Al und <sup>44</sup>Ti in Form von <sup>26</sup>Mg- oder <sup>44</sup>Ca-Überschüssen, um die präsolare Herkunft

zu verifizieren, war erfolglos (Besmehn, 2001).

## 4.3.2 Graphit

Präsolaren Graphit findet man in Form von Kugeln mit Größen bis zu 20 µm. Präsolarer Graphit wurde erstmals von Amari et al. (1990) beschrieben. Die Variationen im  $^{12}\mathrm{C}/^{13}\mathrm{C}$ -Verhältnis reichen von 2 bis 7 000 und werden zur Unterteilung in vier Untergruppen genutzt. Gruppe 1 hat ein  $^{12}\mathrm{C}/^{13}\mathrm{C}$ -Verhältnis zwischen 2 und 20, Gruppe 2 zwischen 20 und 80, Gruppe 3 zwischen 80 und 100 und Gruppe 4 zwischen 100 und 7 000. Isotopenanomalien beim  $^{16}\mathrm{O}/^{18}\mathrm{O}$  liegen unterhalb des solaren Wertes von 498,8 bei Werten bis zu 2,5 und sind mit Anreicherungen an  $^{15}\mathrm{N}$  korreliert. Initiale  $(^{26}\mathrm{Al}/^{27}\mathrm{Al})_0$ -Werte erreichen bis zu 0,15, was um Größenordnungen über dem kanonischen Anfangswert für das Sonnensystem von  $5\times 10^{-5}$  liegt (Lee et al., 1976, 1977). Für Silizium finden sich sowohl Anreicherungen als auch Verarmungen an  $^{29}\mathrm{Si}$  und  $^{30}\mathrm{Si}$  im Vergleich zum solaren Wert. Vor allem für die Gruppe 4 aber auch für Gruppe 1 kommen Supernovae vom Typ II oder Wolf-Rayet-Sterne als Ursprung in Frage. Die übrigen stammen von AGB-Sternen oder Novae.

#### 4.3.3 Siliziumkarbid

Siliziumkarbide (SiC) werden im Abschnitt 4.4 ausführlich beschrieben, da sie Gegenstand dieser Arbeit sind.

## 4.3.4 Sonstige präsolare Körner

Neben diesen kohlenstoffhaltigen präsolaren Körnern, die aufgrund ihrer Säureunlöslichkeit die Extraktionsprozesse besser überlebten und daher zuerst entdeckt wurden, gibt es noch eine Reihe weiterer präsolarer Körner aus Korund (Hutcheon et al., 1994; Nittler et al., 1994), Siliziumnitrid (Hoppe et al., 1994; Nittler et al., 1995), Spinell (Nittler et al., 1997), Hibonit (Choi et al., 1999) und vielleicht ein Titanoxid-Korn (Nittler und Alexander, 1999). Innerhalb von präsolaren Körnern finden sich noch Karbide von Ti, Zr und Mo (Bernatowicz et al., 1991, 1996, 1999).

Korund-Körner lassen sich anhand ihrer O-Isotopenverhältnisse und dem initialen  $^{26}$ Al/ $^{27}$ Al-Verhältnis in vier Gruppen einteilen, wobei sowohl Anreicherungen an  $^{17}$ O und  $^{18}$ O als auch Verarmungen vorkommen. Als Quellen kommen sauerstoffreiche Rote Riesen oder massearme AGB-Sterne in Frage (Nittler et al., 1997).

Siliziumnitrid-Körner zeichnen sich durch starke Anreicherungen von <sup>12</sup>C, <sup>15</sup>N und <sup>28</sup>Si aus. Außerdem lassen <sup>26</sup>Mg-Anreicherungen auf hohe initiale <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al-Verhältnisse schließen, wie sie ebenfalls in SiC-X-Körnern zu finden sind (siehe Abschnitt 4.5). Als Ursprungsorte werden daher Supernovae vermutet.

51

## 4.4 SiC-Körner

Ebenso wie die anderen kohlenstoffhaltigen präsolaren Phasen, Diamant und Graphit, haben auch die Siliziumkarbid-Körner die Entstehung des Sonnensystems unbeschadet überstanden. Aus der Tatsache, dass es diese Körner gibt, lässt sich schließen, dass sie niemals für einen Zeitraum von einigen Tausend Jahren auf über 900°C aufgeheizt wurden, da sie sonst zerstört worden wären (Mendybaev et al., 2002). Kurze Aufheizungen auf höhere Temperaturen, wie sie bei der Chondren-Entstehung oder der Bildung der CAIs¹ vorkommen, überstehen die SiC-Körner.

Die SiC-Körner zeichnen sich durch isotopische Anomalien in C, N, Mg, Si, Ca, Ti und einigen weiteren Elementen aus. Aufgrund ihrer Größe von einigen Mikrometern (Amari et al., 1994) und ihrer relativ großen Häufigkeit von einigen ppm (Huss und Lewis, 1995) sind sie sehr gut untersucht (Zinner et al., 1989, 1991; Ireland et al., 1991; Stone et al., 1991; Virag et al., 1992). Weitere Untersuchungen der Zr- Sr- und Mo-Isotopie wurden von Nicolussi et al. (1997, 1998a,b) durchgeführt.

Die SiC-Körner werden anhand ihrer C-, N- und Si-Isotopie in sechs Gruppen unterteilt. Die so genannten Mainstream-Körner repräsentieren die größte Gruppe mit etwa 90 % aller präsolaren SiC-Körner. Der Rest unterteilt sich in A-, B-, X-, Y-, und Z-Körner. In Abbildung 4.2 sieht man die Unterteilung anhand der C- und N-Isotopie.

## 4.4.1 Isotopische Merkmale

Die Mainstream-Körner weisen  $^{12}$ C/ $^{13}$ C-Verhältnisse zwischen 15 und 100 und zum größten Teil eine Anreicherung an  $^{15}$ N auf. Sie sind hoch in  $^{29}$ Si und  $^{30}$ Si und liegen in einem 3-Isotopenplot für Si wie in Abbildung 4.3 auf einer Geraden mit einer Steigung von 1,34, was nach gängigen Modellen die galaktische Evolution wiederspiegelt (Timmes und Clayton, 1996).

Die A- und B-Körner liegen bei niedrigeren  $^{12}$ C/ $^{13}$ C-Werten (A < 3,5; B < 15) mit gleichzeitig großen Variationen im  $^{14}$ N/ $^{15}$ N-Verhältnis. Als Herkunftsort wurden Sterne des J-Typs – kohlenstoffreiche Sterne, die große Mengen an  $^{13}$ C enthalten – vorgeschlagen (Hoppe et al., 1994), eine endgültige Klärung steht allerdings noch aus.

Die Y- und Z-Körner sind im Vergleich zu den Mainstream-Körnern an <sup>30</sup>Si angereichert. Das <sup>12</sup>C/<sup>13</sup>C-Verhältnis der Y-Körner liegt oberhalb von 100, während die Z-Körne im Bereich der Mainstream-Körner liegen. Sowohl Y- als auch Z-Körner sind an <sup>15</sup>N angereichert und stammen weitgehend aus massearmen AGB-Sternen mit niedriger Metallizität (Hoppe et al., 1997; Amari et al., 2001b).

 $<sup>^1{\</sup>rm CAI}{:}$  Ca- und Al-reiche Einschlüsse in primitiven Meteoriten, die ebenfalls Isotopenanomalien stellaren Ursprungs enthalten

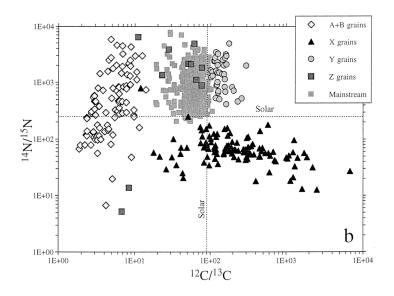


Abbildung 4.2: Die C- und N-Isotopie präsolarer SiC-Körner (aus Zinner, 1998b). Die A-Körner haben ein  $^{12}C/^{13}C$ -Verhältnis kleiner als 3,5 und die B-Körner liegen zwischen 3,5 und 15.

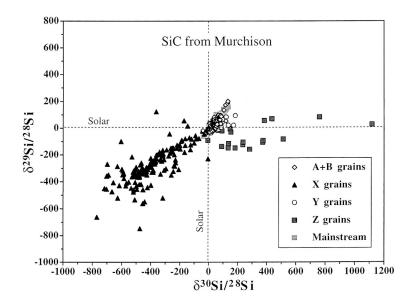


Abbildung 4.3: Die Si-Isotopie präsolarer SiC-Körner (aus Zinner, 1998b).

Ein paar SiC-Körner zeigen so große  $^{30}$ Si-Anreicherungen und niedrige  $^{12}$ C/ $^{13}$ C- sowie  $^{14}$ N/ $^{15}$ N-Verhältnisse, dass nur Novae als Ursprung in Frage kommen (Amari et al., 2001a).

## 4.5 SiC-X-Körner

Eine Besonderheit stellt der Typ X der SiC-Körner dar, denn diese Körner stammen höchstwahrscheinlich aus Supernovae, da nur dort die beobachteten hohen Anreicherungen an <sup>28</sup>Si, wie in Abbildung 4.3 zu sehen, produziert werden können. Die SiC-X-Körner weisen <sup>14</sup>N/<sup>15</sup>N-Verhältnisse unterhalb des solaren Wertes auf und haben Variationen im <sup>12</sup>C/<sup>13</sup>C-Verhältnis von 10 bis 10000. Eine Besonderheit dieser Körner sind ihre hohen <sup>26</sup>Mg-Anomalien, die aus dem Zerfall des <sup>26</sup>Al stammen, das noch als <sup>26</sup>Al eingebaut wird (siehe Abschnitt 3.3.1). Initiale (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub>-Werte liegen bei bis zu 0,6. Weitere Hinweise auf eine Supernova-Herkunft liefern Anreicherungen an <sup>44</sup>Ca aus dem Zerfall von <sup>44</sup>Ti und <sup>49</sup>V-Anreicherungen durch den Zerfall von <sup>49</sup>Ti.

## 4.5.1 Supernovae II Kondensate?

Um die SiC-X-Körner mit einem SN II-Szenario zu erklären, bedarf es einer Mischung verschiedener Schichten aus dem Endstadium (siehe auch Abbildung 3.4). Zum einen finden sich die <sup>29</sup>Si- und <sup>30</sup>Si-Verarmungen nur in den innersten Schichten, zum anderen wird <sup>26</sup>Al nur in der äußersten Brennschicht, der H-Brennschicht, ausreichend produziert (Abbildung 4.4). Als weitere Bedingung für die Kondensation als SiC muss die Häufigkeit von C größer als die von O sein, da der weniger häufigere Partner ansonsten komplett in Form von CO gebunden wird und nicht für die Kondensation zur Verfügung steht. Diese Bedingung ist nur in den äußersten beiden Brennschichten erfüllt. Für die Anreicherungen an <sup>15</sup>N bedarf es einer Beimischung aus weiter innen liegenden Schichten, denn in der H-Brennschicht wird <sup>15</sup>N beim Brennvorgang verbraucht.

Es muss also möglich sein, innere und äußere Schichten ohne eine Sauerstoffbeimischung aus den mittleren Schichten zu mischen. Simulationsrechnungen von Herant et al. (1994) und Burrows und Hayes (1995) zeigen, dass es in den ausgestoßenen Hüllen von SN II Turbulenzen gibt, die dies ermöglichen. Der Röntgensatellit Chandra hat Röntgen-Spektral-Aufnahmen des Supernova-Überrestes Cassiopeia A geliefert, die zeigen, wie Material aus den inneren Schichten aufgrund höherer Geschwindigkeit schon nach wenigen hundert Jahren durch die äußeren Schichten gedrungen ist (Irion, 2000).

## 4.5.2 Supernovae Ia Kondensate?

Ein Alternativvorschlag zur Supernova II-Herkunft der SiC-X-Körner stammt von Clayton et al. (1997), die eine Supernova vom Typ Ia als Entstehungsort vorschlagen. Dieses Modell hat den Vorteil, dass kein aufwendiges Mischen von weit voneinander entfernten Schichten nötig ist. Die Produktion der meisten, nötigen Nuklide findet in benachbarten Schichten während des Durchgangs der Druckwelle statt. Hierbei wird die abgestoßene Hülle auf einige Milliarden Kelvin aufgeheizt und eine explosionsartiges Brennen gezündet. Die vorhanden Kerne werden größtenteils in Protonen, Neutronen und He-Kerne gespalten, die sich dann wieder neu zusammenlagern oder an noch vorhanden Kerne anlagern. Bei Temperaturen von etwa 1,5 Milliarden Kelvin entstehen die meisten der für die SiC-X-Körner nötigen Nuklide in einer mittleren Schicht der abgestoßenen Hülle. Ein großes Problem ist aber die Erzeugung des richtigen <sup>12</sup>C/<sup>13</sup>C-Verhältnisses, denn es wird fast nur <sup>12</sup>C gebildet, so dass nur <sup>12</sup>C/<sup>13</sup>C-Verhältnisse größer 10 000 gebildet werden. Eine endgültige Bestätigung oder Widerlegung dieser Theorie anhand von Daten von präsolaren Körnern steht noch aus.

# 4.6 Kondensation in der Sternumgebung

Von Sharp und Wasserburg (1995) wurden Kondensationsrechnungen für Sternumgebungen unter der Annahme eines chemischen Gleichgewichts durchgeführt. Es zeigte sich, dass die Kondensationstemperatur für Graphit stark vom C/O-Verhältnis abhängig ist, während die Kondensationstemperaturen für TiC und SiC nur vom Druck abhängig sind. Da TiC-Körner als Kondensationskeime für präsolare Graphit- und SiC-Körner gefunden wurden, muss die Kondensationstemperaturen für TiC oberhalb der von Graphit und SiC liegen. Aufgrund dieser Bedingungen ergibt sich, dass das C/O-Verhältnis zwischen 1,04 und 1,2 und der Druck zwischen 0,02 und 4 Pa liegen muss.

Im Ejekta-Material einer Supernova befindet sich viel <sup>56</sup>Ni, das zu <sup>56</sup>Co und schließlich zu <sup>56</sup>Fe zerfällt. Hierbei werden viele Elektronen frei, die eine ausreichende Energie besitzen, um Molekülbindungen zerstören zu können. Dadurch wird immer wieder C und O freigesetzt und es bildet sich ein Gleichgewicht aus C und O auf der einen und CO auf der anderen Seite. Auf diese Art und Weise steht auch bei C/O < 1 freier C für die Kondensation zur Verfügung (Clayton et al., 1999). Unter diesen Bedingungen kann sowohl TiC als auch Graphit in der richtigen Reihenfolge kondensieren, so dass TiC-Körner in Graphit-Körnern enthalten sein können. Die Kondensation von SiC kann unter diesen Bedingungen aber nicht mehr erklärt werden (Ebel und Grossmann, 2001).

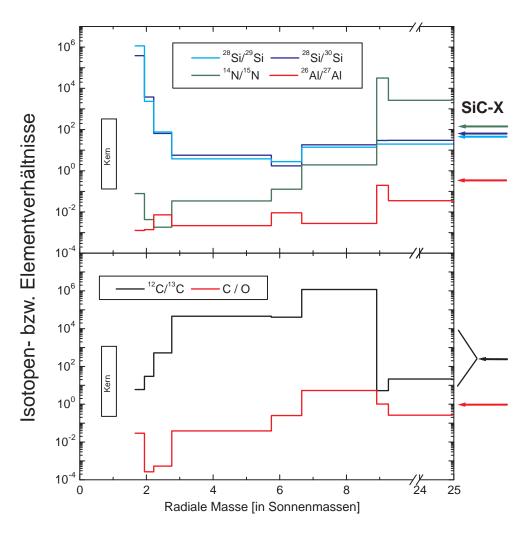


Abbildung 4.4: Die Isotopenverhältnisse für Silizium, Aluminium und Stickstoff sowie das C/O-Verhältnis und C-Isotopenverhältnis in den einzelnen Schichten einer Supernova vom Typ II kurz nach der Explosion (Werte aus Meyer et al., 1995). Am rechten Rand sind durch Pfeile die typischen Werte für SiC-X-Körner angegeben.

# Kapitel 5

# Untersuchung präsolaren Siliziumkarbids

Es standen für die Untersuchungen drei Probenträger mit SiC-Körnern zur Verfügung, zwei mit präsolaren Körnern aus dem H/L-Chondriten Tieschitz und einer mit Körnern aus dem CM-Chondriten Murchison. Auf jedem dieser Träger war jeweils ein SiC-X-Korn sowie etliche andere SiC-Körner. Die Proben waren von Instituten in Mainz und St. Louis aufbereitet worden. Dort wurden mit der "Ion Imaging"-Methode (siehe Nittler et al., 1993a,b) die SiC-X-Körner identifiziert. Bei der "Ion Imaging"-Methode für SiC-Körner werden SI-Verteilungen der beiden Isotope <sup>28</sup>Si und <sup>30</sup>Si aufgenommen und anschließend werden die Intensitäten für jeden Messpunkt dividiert. Man erhält eine laterale Verteilung des <sup>28</sup>Si/<sup>30</sup>Si-Isotopenverhältnisses, in der sich die SiC-X-Körner aufgrund ihrer hohen Si-Isotopenanomalien hervorheben. Für einige der SiC-Körner aus dem Murchison-Meteoriten standen Werte für die C-, N- und Si-Isotopenverhältnisse sowie die initialen <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al-Isotopenverhältnisse von DF-SIMS-Messungen zur Verfügung. Hierdurch wurde es möglich, einen direkten Vergleich der Messergebnisse vorzunehmen.

Es wurden die drei SiC-X-Körner und jeweils fünf andere SiC-Körner von Tieschitz und Murchison untersucht. In den folgenden Abschnitten sind die Ergebnisse der TOF-SIMS-Analysen der SiC-X-Körner, der Tieschitz SiC-Körner und der Murchison SiC-Körner beschrieben. Daran schließt sich eine zusammenfassende Diskussion der Ergebnisse an.

## 5.1 Messmethoden

Da die präsolaren SiC-Körner mit Größen von 1 bis 3,5 µm sehr klein sind und für eine Analyse ihrer isotopischen Zusammensetzung eine hohe Massenauflösung nötig ist, wurden die **TOF-SIMS-Messungen** fast ausschließlich im Burst-Modus durchgeführt, um die hohe Massenauflösung unter Erhaltung der

lateralen Auflösung zu erreichen. Die geringen Zählraten im Burst-Modus wurden durch Messdauern von bis zu 10 Stunden ausgeglichen.

Unter Anderem durch Temperaturschwankungen im Labor kann es zu Schwankungen in der Spannungsversorgung für die Ga-Primärionenquelle oder zu thermischen Ausdehnung des Gerätes sowie Instabilitäten bei der Ga-Emission kommen, was zu lateralen Verschiebungen der Probe relativ zur Ausrichtung der Ga-Primärionenquelle oder Ablenkungen des Primärionenstrahls führt. Durch solch eine Verschiebung kann die Probe aus dem Gesichtsfeld wandern, weswegen die Messbereiche einige Mikrometer größer als die Probe gewählt wurden. Typischerweise wurden Gesichtsfelder von  $10~\mu m \times 10~\mu m$  Größe, bei den größeren Körner sogar  $15~\mu m \times 15~\mu m$  gewählt. Es wurden bis zu  $500~{\rm Scans}$  für eine einzelne Messung durchgeführt, wobei ein Scan aus  $128~\times~128~{\rm Messpunkten}$  bei  $32~{\rm Primärionen-Schüssen}$  pro Messpunkt besteht.

Bei allen Messungen wurden die "Rohdaten" ebenfalls aufgezeichnet. Die Rohdaten erlauben eine "Wiederholung" der Messungen am Computer, um Spektren, Tiefenprofile oder SI-Verteilungsbilder rekonstruieren und Teilbereiche genauer untersuchen zu können. Des Weiteren lief eine Darstellung der einzelnen Scans während der Messung mit, um die Verschiebungen der Probe beobachten und rechtzeitig korrigieren zu können. Mit Hilfe der Auswertesoftware ist es später möglich, die Verschiebungen der einzelnen Scans zu ermitteln und ein um die Verschiebung korrigiertes Bild zu berechnen. Bei allen Spektrumsrekonstruktionen aus den Rohdaten wurde eine entsprechende Verschiebungskorrektur berücksichtigt, um Spektren aus sehr kleinen Teilbereichen von etwa 1 µm Größe oder sogar kleiner auswerten zu können.

Die Laser-SNMS-Messungen wurden mit Gesichtsfeldern von 10  $\mu$ m  $\times$  10  $\mu$ m mit einem Raster von 64  $\times$  64 Messpunkten durchgeführt. Die Primärionenpulslänge betrug 1  $\mu$ s, um eine gesättigte Sekundärneutralteilchenwolke oberhalb der Probe zu erzeugen. Zur Nachionisierung wurden Laserpulse von 20 ns Dauer und einer Energie von 100 mJ bei einer Wellenlänge von 193 nm bzw. 248 nm verwendet. Die Primärionenschuss-Wiederholraten betrugen nur 15 Hz. Durch die höhere Ausbeute genügt eine Messdauer von 20 Scans – in etwa 90 Minuten – um ähnliche Intensitäten wie bei den TOF-SIMS-Messungen zu erhalten.

Aus technischen Gründer war bei den Laser-SNMS-Messungen keine Erfassung der Rohdaten möglich, so dass nach einer Spektrumsaufnahme des kompletten Gesichtsfeldes und der Auswahl der interessierenden Massenbereiche die Aufnahme der Sekundärneutralteilchenbilder in einer zweiten Messung durchgeführt wurde. Mit diesen Bildern kann der Bereich des präsolaren Korns festgelegt werden, um ein Spektrum nur von diesem Bereich aufzunehmen.

Bei dieser Vorgehensweise ist es nicht möglich, eine Korrektur der lateralen Probenverschiebung bei der Spektrenaufnahme durchzuführen. Da die Verschiebung einige Mikrometer betragen kann, ist es nicht möglich, ein Spektrum aus Teilbereichen eines präsolaren Korns aufzunehmen. Eine Bestimmung der Isotopen- und Elementverhältnisse kann nur anhand von Linienspektren vorgenommen werden, die aus den Verteilungsbildern rekonstruiert werden. Eine Abtrennung von Interferenzen mittels Peakentfaltung ist dabei nicht möglich.

Für alle Messungen wurde das initiale  $^{26}$ Al/ $^{27}$ Al-Isotopenverhältnis –  $(^{26}$ Al/ $^{27}$ Al) $_0$  – aus dem Überschuss an  $^{26}$ Mg gegenüber dem solaren Wert und dem gemessenem  $^{27}$ Al berechnet:

$$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0 = \frac{\left(N(^{26}\text{Mg}) - N(^{24}\text{Mg}) \cdot \frac{11,01}{78,99}\right) \cdot \frac{E(\text{Al})}{E(\text{Mg})}}{N(^{27}\text{Al})}$$
 (5.1)

N(<sup>24</sup>Mg), N(<sup>26</sup>Mg) und N(<sup>27</sup>Al) bezeichnen in der Formel die Zählraten des jeweiligen Nuklids. In die Berechnung gehen die Empfindlichkeitsfaktoren für Aluminium und Magnesium (E(Al) und E(Mg)) mit ein, so dass zu den statistischen Fehlern noch die Unsicherheit in der Bestimmung dieser Empfindlichkeitsfaktoren von einigen zehn Prozent eingeht (siehe hierzu Stephan, 2001). Die Korrektur für <sup>26</sup>Mg anhand des <sup>24</sup>Mg-Wertes wird auch als **solare Korrektur** bezeichnet, weil eine solare Häufigkeit für das Isotopenverhältnis des ursprünglichen Magnesiums angenommen wird. Dies scheint gerechtfertigt, da in keiner Probe die gemessenen Isotopenverhältnisse für <sup>24</sup>Mg/<sup>25</sup>Mg signifikant vom solaren Wert abweichen.

Das initiale  $^{26}$ Al/ $^{27}$ Al-Isotopenverhältnis wurde direkt aus den Intensitäten des Spektrums unter Annahme eines solaren  $^{25}$ Mg/ $^{24}$ Mg-Isotopenverhältnisses berechnet, während die Werte für  $\delta(^{25}$ Mg/ $^{24}$ Mg) durch Peakentfaltung ermittelt wurden. Dies erklärt, warum in einigen Fällen ein Wert für das initiale  $^{26}$ Al/ $^{27}$ Al-Isotopenverhältnis angegeben ist, obwohl das  $^{25}$ Mg/ $^{24}$ Mg-Isotopenverhältnis nicht ermittelt werden konnte. Hieraus resultieren auch unterschiedliche Fehler für die beiden Werte, wie sie bei einigen Körnern aufgrund der geringen Intensitäten auftreten.

Die  $^{12}\text{C}/^{13}\text{C}$ -Isotopenverhältnisse wurden aus den  $^{12}\text{C}^{14}\text{N}/^{13}\text{C}^{14}\text{N}$ -Verhältnissen bestimmt, da hierbei eine geringere Massenauflösung nötig ist, im Vergleich zur Nutzung des  $^{12}\text{C}_2/^{12}\text{C}^{13}\text{C}$ -Verhältnisses. Bei letzterem ist zudem die Störung durch  $^{12}\text{C}_2\text{H}$  wesentlich größer und lässt eine reproduzierbare Bestimmung des C-Isotopenverhältnisses nur für Werte kleiner als 50 zu.

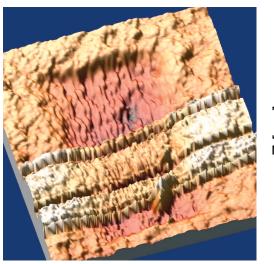
Die Elementverhältnisse wurden mit den Empfindlichkeitsfaktoren, die mit den MPI-DING-Standards bestimmt wurden, berechnet. In den Tabellen mit den Elementverhältnissen sind nur die statistischen Fehler der Werte angegeben, zu denen sich eine systematische Unsicherheit bei der Elementanalyse mit TOF-SIMS von einigen zehn Prozent addiert.

# 5.2 Abtragsrate für SiC

Durch den Beschuss mit Primärionen wird immer ein Teil der Oberfläche abgetragen. Um zu bestimmen, wie groß der Abtrag und damit die erreichte Tiefe ist, wurde ein 6  $\mu$ m  $\times$  10  $\mu$ m großes Sputterfeld in eine polierte SiC-Platte

geschossen und mit AFM-Messungen<sup>1</sup> die Tiefe dieses Feldes bestimmt.

Bei einer typischen TOF-SIMS-Messung werden 500 Scans mit einem Raster von  $128 \times 128$  Pixel und 32 Schuss pro Pixel durchgeführt. Bei einer Pulslänge von etwa 1,5 ns, einem Dauerstrom von 2,2 nA und einer Schusswiederholrate von  $10\,000$  Hz erhält man etwa  $5 \times 10^9$  Primärionen pro Messung. In einem ersten Versuch zeigte sich, dass die SiC-Platte trotz Polieren noch zu rau ist, so dass man den Abtrag durch die Primärionendosis einer typischen TOF-SIMS-Messung mit dem AFM nicht von der allgemeinen Rauigkeit unterscheiden kann. Daher wurden weitere Versuche mit höheren Primärionendosen durchgeführt. Wird der Abtrag zu hoch und damit das entstandene Loch zu groß, so kann dieses Loch nicht mehr mit der feinen Spitze eines AFM abgetastet werden. Eine 100-fache Primärionendosis erwies sich als optimal.



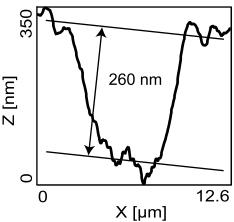


Abbildung 5.1: Links ist ein dreidimensionales AFM-Bild des Sputterfeldes zu sehen. Das Gesichtsfeld beträgt 12,6 µm × 13,6 µm. Die erhöhten Bereiche in der unteren Hälfte sind Artefakte durch Störungen (hohe Stellen auf der Probe oder Erschütterungen des Gerätes) während der AFM-Messung. Rechts ist ein gemitteltes Profil aus der oberen Hälfte des Sputterfeldes zu sehen. Aus diesem Profil ergab sich eine Abtrag von etwa 260 nm.

In Abbildung 5.1 ist eine dreidimensionale Abbildung des Sputterfeldes zu sehen. Die Dimension des Sputterfeldes beträgt etwa 6  $\mu$ m  $\times$  10  $\mu$ m. Aus dem in der oberen Hälfte des Sputterfeldes erstellten Profil wurde die Abtragsrate durch Messen der Höhe ermittelt. Es ergab sich eine Höhendifferenz für das 100-fache einer normalen Primärionendosis von etwa 260 nm. Für eine typische Primärionendosis, wie sie während der Messung der präsolaren Körner verwendet wurde, ergibt sich also ein Abtrag von etwa 2,6 nm.

 $<sup>^1\</sup>mathrm{AFM}=\mathrm{Atomic}$  Force Microscope: Mit einer atomaren Spitze wird über die Probenoberfläche mit einer lateralen Auflösung von weniger als einem Nanometer gerastert.

Zusammen mit der Größe des Felds lässt sich nun das abgetragene Volumen berechnen zu

$$V = 6 \ \mu \text{m} \cdot 10 \ \mu \text{m} \cdot 2.6 \ \text{nm} = 1.56 \cdot 10^{-13} \ \text{cm}^3$$
 (5.2)

Bei einer Dichte von  $\rho \approx 3,2~{\rm gcm^{-3}}$  ergibt sich eine Masse von  $m=5\cdot 10^{-13}~{\rm g}$ . Mit der Molmasse für SiC von 40 g/Mol und unter der Annahme, dass das Material nur atomar abgetragen wird, lässt sich nun der Abtrag  $\varepsilon$  berechnen zu

$$\varepsilon = \frac{5 \cdot 10^{-13} \text{ g}}{40 \text{ g/Mol}} = 1,25 \cdot 10^{-14} \text{ Mol(SiC)} = 1,5 \cdot 10^{10} \text{ Sekundärteilchen}$$
 (5.3)

Zusammen mit der Dosis von 5 × 109 Primärionen erhält man einen Abtrag pro Primärion  $\varepsilon_{PI}$  von

$$\varepsilon_{PI} = \frac{1.5 \cdot 10^{10}}{5 \cdot 10^9} = 3 \text{ Sekundärteilchen/Primärion}$$
 (5.4)

Man darf das Ergebnis sicher nicht zu genau nehmen, denn in der Bestimmung der Sputterfeldgröße, des Dauerstroms der Primärionenquelle und der Tiefenbestimmung für das Sputterfeld ist ein Fehler von jeweils einigen Prozent nicht zu vermeiden.

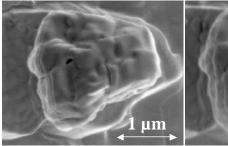
## 5.3 SiC-X-Körner

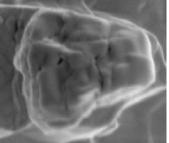
Insgesamt standen drei SiC-X-Körner zur Verfügung. Zwei stammen aus dem Meteoriten Tieschitz (Korn 177-1 und Korn 480-3) und eins aus dem Meteoriten Murchison (Korn KJG2-422). Man nimmt an, dass SiC-X-Körner im Auswurfmaterial von Supernovae des Typ II kondensieren, wobei eine Zuordnung zum Typ Ia nicht ganz ausgeschlossen werden kann (siehe Abschnitt 4.5.2).

Für das SiC-X-Korn KJG2-422 liegen Messwerte vor, die mit DF-SIMS aufgenommen wurden, so dass ein Vergleich mit den TOF-SIMS-Ergebnissen möglich wird. Dies dient auch der Kontrolle der eigenen Messwerte, denn alle Methoden sollten unabhängig voneinander das gleiche Ergebnis liefern. Die Ergebnisse von Untersuchungen weiterer SiC-Körner der Fraktion KJG2 aus dem Murchison-Meteoriten, die nicht zum Typ X gehören, sind in Abschnitt 5.5 dargestellt.

#### 5.3.1 Korn 177-1

Das SiC-X-Korn 177-1 aus dem H/L-Chondriten Tieschitz (Abbildung 5.2) hat eine Größe von etwa 2 µm. Es weist ein euhedrales Aussehen auf, obwohl das Korn zur Identifizierug als SiC-X-Korn mit der "Ion Imaging"-Methode gemessen wurde. Der Probenabtrag ist beim "Ion Imaging" mit Messzeiten im Bereich von einer halben Minute ursprünglichen Zustand zu





mit der "Ion Imaging"Methode gemessen wurde.

Der Probenabtrag ist beim "Ion Imaging" mit Messzeiten im Bereich Mehrode gemessen beim "Bereich mit der "Ion Imaging" mit Messzeiten im Bereich abtrag deutlich runder geworden.

Abbildung 5.2: Die linke REM-Aufnahme zeigt das Korn 177-1 nach der Ion-Imaging- und ersten TOF-SIMS-Messung in seinem fast ursprünglichen Zustand. Die rechte Aufnahme zeigt das Korn nach der TOF-SIMS- und Laser-SNMS- deutlich runder geworden.

von einer halben Minute also gering genug, um das Korn in seinem fast ursprünglichen Zustand zu bewahren.

Es wurden insgesamt drei TOF-SIMS-Messungen und eine Laser-SNMS-Messung an dem Korn vorgenommen. Die Umrechnung der Primärionendosis in einen Sputterabtrag wurde anhand der Werte aus Abschnitt 5.2 vorgenommen. Der Abtrag durch die Ar-Sputterquelle wurde mit einem SI pro Primärion abgeschätzt. Da der Ionenstrahl der Ar-Sputterquelle mit einem Durchmesser von etwa 50 µm zu groß ist, um eine definiertes Sputterfeld auf einer Probe zu erzeugen, war eine AFM-Messung zur Bestimmung der Abtragsrate nicht möglich.

In den SI-Verteilungsbilder in Abbildung 5.3 erkennt man für alle Bilder ein Maximum zumeist links der Mitte mit einem Intensitätsabfall in jede Richtung. Dies ist ein geometrischer Effekt, der durch die verschiedenen Einfallswinkel der Primärionen für die verschiedenen Messpunkte und die unterschiedlichen Akzep-

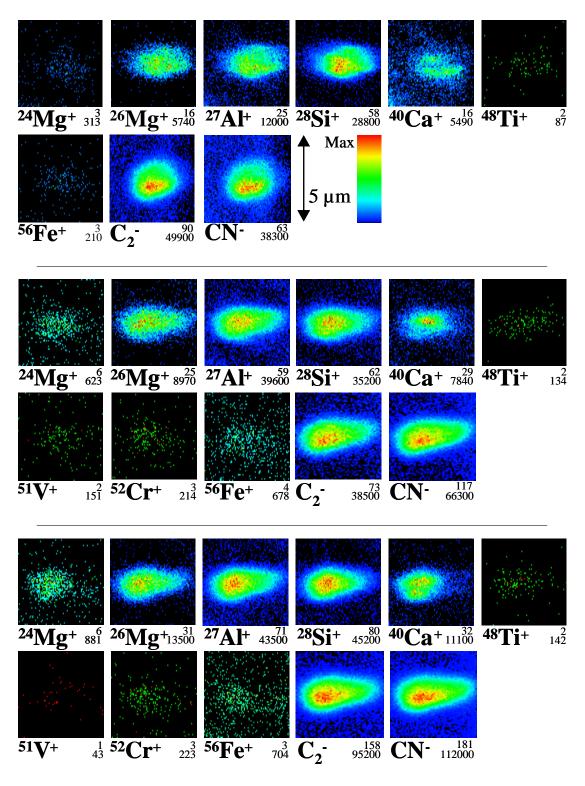


Abbildung 5.3: SI-Verteilungsbilder des SiC-X-Korns 177-1 von der – von oben – ersten, zweiten und dritten TOF-SIMS-Messung. Das Gesichtsfeld beträgt für alle Messungen 5 µm × 5 µm. Diese wie auch alle weiteren TOF-SIMS-Bilder sind mit der im oberen Abschnitt gezeigten Farbskala kodiert. Die höchste Intensität erhält dabei Rot zugeordnet und Schwarz bedeutet keine Intensität vorhanden. Die höchste Intensität für jedes Bild ist rechts unter dem Bild durch die obere Zahl angegeben. Die Gesamtintensität des Bildes ist die untere der beiden Zahlen rechts unter dem Bild.

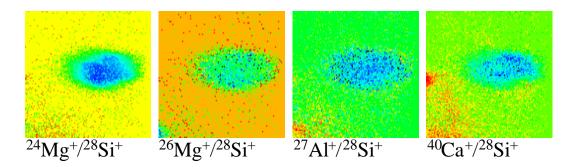


Abbildung 5.4: SI-Verteilungen relativ zu <sup>28</sup>Si. Es wurde die gleiche Farbskala wie in den übrigen Verteilungsbilder gewählt, Schwarz gibt die kleinsten Werte der Division und Rot die größten an.

tanzwinkel für die SI zu Stande kommt. Um die geometrischen Effekte in den SI-Verteilungsbildern zu eliminieren, kann man die einzelnen SI-Verteilungen durch die eines Hauptelements der Probe teilen (Rost et al., 1999). In Abbildung 5.4 ist dies für die SI von <sup>24</sup>Mg, <sup>26</sup>Mg, <sup>27</sup>Al und <sup>40</sup>Ca mit einer Division durch <sup>28</sup>Si gezeigt. Man sieht die homogene Verteilung dieser SI innerhalb des Korns.

Beim SiC-X-Korn 177-1 sind in den Verteilungsbildern in Abbildung 5.3 keine besonderen Heterogenitäten im Innern des Korns zu finden. Man kann an den SI-Bildern schon den Überschuss an  $^{26}{\rm Mg}$  erkennen. In Sonnensystem haben die Mg-Isotope  $^{24}{\rm Mg},~^{25}{\rm Mg}$  und  $^{26}{\rm Mg}$  Verhältnisse von etwa 8:1:1. In den Bildern sieht man, dass fast kein  $^{24}{\rm Mg}$  vorhanden ist, während  $^{26}{\rm Mg}$  sehr hohe Intensitäten aufweist. Ca weist in allen drei Messungen eine leicht heterogene Verteilung im Vergleich zu den übrigen Elementen auf. In der ersten Messung zeigen sich erhöhte Intensitäten bei  ${\rm C_2}$  und CN am unteren Rand des Korns. Dies lässt sich durch eine ungenügende Säuberung mit der Ar-Sputterquelle erklären. Die Schussrichtung der Ar-Quelle kommt bei der vorliegenden Orientierung der SI-Verteilungsbilder von oben und die Ga-Quelle schießt von rechts. Da bei der ersten Messung dieses Korns für die Säuberung die Probe nicht gedreht wurde, war der untere Teil durch das Korn selbst abgeschattet, so dass die Kohlenwasserstoff-kontaminationen nicht entfernt wurden. Durch den erhöhten Kohlenstoffanteil kommen die höheren Intensitäten für  ${\rm C_2}$  und CN zustande.

Da keine Bereiche des Korns unterschiedliche Zusammensetzungen in den SI-Verteilungsbildern aufweisen, wurden für die quantitative Auswertung Spektren des gesamten Korns unter Berücksichtigung der lateralen Verschiebung rekonstruiert. Die ermittelten Isotopenverhältnisse sind in der Tabelle 5.1 aufgelistet und die Elementverhältnisse in Tabelle 5.2.

Anhand der Si-Isotopie – Verarmungen an  $^{29}$ Si und  $^{30}$ Si von bis zu -690 ‰ – ist das Korn 177-1 eindeutig als SiC-X-Korn identifiziert. Die Werte für das  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis liegen für die verschieden Messungen zwischen 0,23 und 0,49, wie sie für SiC-X-Körner typisch sind. Das  $^{14}\text{N}/^{15}\text{N}$ -Isotopenverhältnis von

	SiC-X-Korn 177-1					
	1. Messung	Laser-SNMS	2. Messung	3. Messung		
$(^{12}CN/^{13}CN)$	$87 \pm 9$	_	$82 \pm 6$	$62 \pm 5$		
$(C^{14}N/C^{15}N)$	$35 \pm 3$	_	$29 \pm 2$	$31 \pm 2$		
$\delta(^{18}{\rm O}/^{16}{\rm O})$	$+150\pm120$	_	$+150\pm120$	_		
$\delta(^{25}{ m Mg}/^{24}{ m Mg})$	$+60 \pm 420$	_	$-60 \pm 220$	$-180\pm150$		
$\delta(^{26}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$	$+238000 \pm 20000$	_	$+134000 \pm 11000$	$+118000 \pm 6400$		
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$	$0,494 \pm 0,009$	_	$0,231 \pm 0,005$	$0,333 \pm 0,006$		
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-410 \pm 60$	$-210\pm20$	$-280 \pm 70$	$-470 \pm 60$		
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-560 \pm 60$	$-690 \pm 10$	$-560 \pm 60$	$-570 \pm 60$		
$\delta(^{34}S/^{32}S)$	$+410 \pm 510$	_	_	$+830 \pm 640$		
$\delta(^{37}\mathrm{Cl}/^{35}\mathrm{Cl})$	$+18 \pm 31$	_	_	$+84 \pm 49$		
$\delta(^{41}{\rm K}/^{39}{\rm K})$	$+210 \pm 100$	_	$+210 \pm 70$	_		
$\delta(^{42}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$-80 \pm 230$	_	$-20 \pm 250$	_		
$\delta(^{43}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	_	_	$+180 \pm 750$	_		
$\delta(^{44}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$-141\pm126$	_	$+310 \pm 160$	_		
$\delta(^{53}\mathrm{Cr}/^{52}\mathrm{Cr})$	$+1500\pm1100$		_	_		
$\delta$ ( $^{54}$ Fe/ $^{56}$ Fe)	$+440 \pm 650$					

Tabelle 5.1: Isotopenverhältnisse des SiC-X-Korn 177-1 der TOF-SIMS- und Laser-SNMS-Messungen.

	SiC-X-Korn 177-1					
	1. Messung	Laser-SNMS	2. Messung	3. Messung		
Li $[10^{-6}]$	$90 \pm 20$	_	$140 \pm 30$	$140 \pm 20$		
$Mg [10^{-3}]$	$0.94 \pm 0.08$		$1.8 \pm 0.2$	$2,4 \pm 0,1$		
Al $[10^{-3}]$	$47,8\pm0,5$	$43{,}7\pm0{,}1$	$133 \pm 2$	$96 \pm 1$		
Si	$\equiv 1$	$\equiv 1$	$\equiv 1$	$\equiv 1$		
$K [10^{-3}]$	$4,94 \pm 0,01$		$10,0\pm0,2$	$8,4 \pm 0,1$		
$Ca [10^{-3}]$	$8,8 \pm 0,2$		$13,2 \pm 0,3$	$17,7 \pm 0,3$		
$Sc [10^{-6}]$				$100 \pm 30$		
$Ti [10^{-3}]$	$0,\!17\pm0,\!05$	$0.33 \pm 0.04$	$0,\!70\pm0,\!12$	$0,50 \pm 0,09$		
$V [10^{-6}]$	$30 \pm 20$		$30 \pm 20$	$90 \pm 30$		
$Cr [10^{-6}]$	$370 \pm 60$	$7700\pm1000$	$160 \pm 80$	$730 \pm 80$		
Fe $[10^{-3}]$	$1,2 \pm 0,2$	$4,6 \pm 0,2$	< 2,4	$3,3 \pm 0,3$		
Cu $[10^{-6}]$	< 170	$270 \pm 60$	< 200	$1000\pm300$		

Tabelle 5.2: Elementverhältnisse relativ zu Si für das SiC-X-Korn 177-1 der TOF-SIMS- und Laser-SNMS-Messungen.

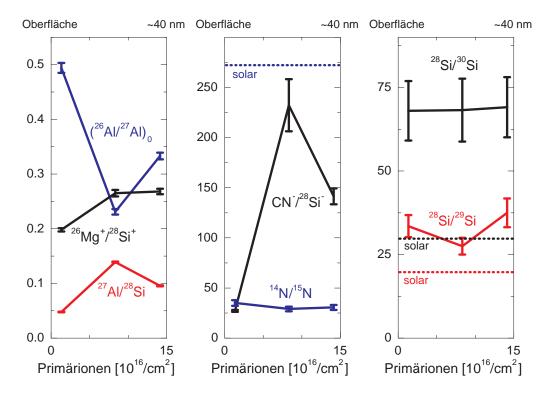


Abbildung 5.5: Tiefenprofile des SiC-X-Korns 177-1 für den Al-Gehalt, die  $^{26}Mg^+/^{28}Si^+$ -,  $^{26}CN^-/^{28}Si^+$ - und  $(^{26}Al/^{27}Al)_0$ -Verhältnisse sowie die N- und Si-Isotopenverhältnisse. Die  $CN^-$ -Sekundärionen repräsentieren die Verteilung des Stickstoffs, der zu gering in atomarer Form ionisiert und daher nur als  $CN^-$  zu messen ist.

etwa 30 liegt ebenso im für SiC-X-Körner normalen Bereich, zwischen etwa 10 und 200. Beim C-Isotopenverhältnis zeigt sich eine Änderung von einem im Rahmen des Fehlers solaren Wertes in der ersten Messung zu einem signifikant niedrigerem Wert von  $^{12}\mathrm{C}/^{13}\mathrm{C}=62\pm5$  in der dritten TOF-SIMS-Messung. Dies könnte durch eine Kontamination der äußeren Bereiche mit solaren Material erklärt werden.

Betrachtet man das durch die drei TOF-SIMS-Messungen und das Ar-Sputtern erzeugte Tiefenprofil in Abbildung 5.5, so sieht man deutliche Änderungen mit der erreichten Tiefe. Zum einen fällt das im linken Diagramm dargestellte ( $^{26}$ Al/ $^{27}$ Al)<sub>0</sub>-Isotopenverhältnis auf etwa die Hälfte des Oberflächenwertes ab. Diese Änderung wird hauptsächlich durch die Änderungen im Al-Gehalt bestimmt, während sich der  $^{26}$ Mg-Gehalt nur leicht von der ersten zur zweiten TOF-SIMS-Messung ändert. Zum Vergleich dazu bleibt das N-Isotopenverhältnis im mittleren Graph konstant, was bedeutet, dass der gesamte gemessene Stickstoff präsolaren Ursprungs ist. Daraus folgt, dass das zugehörige Aluminium ebenfalls präsolar sein muss. Im  $CN^-/^{28}Si^+$ -Tiefenprofil sieht man ein ähnliches Verhalten wie beim Al-Gehalt, was sich dadurch erklären lässt, dass Al und N in den präsolaren SiC-Körnern als AlN in fester Lösung mit dem SiC vorliegen. Im rechten

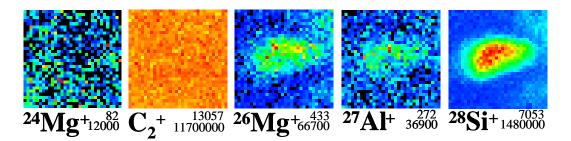


Abbildung 5.6: Verteilungsbilder sekundärer Neutralteilchen des SiC-X-Korns 177-1 mit einem Gesichtsfeld von  $5 \mu m \times 5 \mu m$ .

Teil sind die Si-Isotopenverhältnisse gegen die erreichte Tiefe aufgetragen, wobei man keine signifikanten Änderungen finden kann. Man sieht, dass alles gemessene Si präsolaren Ursprungs ist und keine Kontaminationen mit solarem Si auftreten.

#### Laser-SNMS-Messung

Um eine Kontrolle der mit TOF-SIMS ermittelten Ergebnisse und eventuell neue Erkenntnisse zu erhalten, wurde das Korn 177-1 mit nicht-resonanter Laser-SNMS untersucht. Die Messung wurde vor der zweiten TOF-SIMS-Messung durchgeführt. Die verwendete Wellenlänge des Lasers betrug bei dieser Messung 248 nm – entsprechend 5,02 eV. Die Verteilungsbilder der sekundären Neutralteilchen sind in Abbildung 5.6 dargestellt. Es sind wie auch in den TOF-SIMS-Verteilungsbildern keine Heterogenitäten innerhalb des Korns zu finden. Das Verteilungsbild für  $^{24}{\rm Mg}$  ist stark verrauscht, da die Massenlinie durch die des  ${\rm C}_2$ überlagert wird. Die Isotopen- und Elementverhältnisse wurden aus Linienspektren ermittelt, die aus den Verteilungsbildern unter Berücksichtigung des Untergrundes rekonstruiert wurden. Die ermittelten Werte sind mit den TOF-SIMS-Ergebnissen in den Tabellen 5.1 und 5.2 aufgeführt.

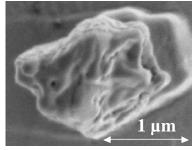
Das SNMS-Ergebnis für das  $^{30}$ Si/ $^{28}$ Si-Verhältnis stimmt gut mit dem TOF-SIMS-Wert überein, während es beim  $^{29}$ Si/ $^{28}$ Si-Verhältnis zu einer geringen systematischen Abweichung durch SiH kommt, das wegen der niedrigen Massenauflösung nicht vom  $^{29}$ Si abgetrennt werden kann. Mit dem TOF-SIMS-Wert für das  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis von  $0,494\pm0,009$  und dem Empfindlichkeitsfaktor für Al bei einer Wellenlänge von  $\lambda=248$  nm  $(S_{SN}(Al_{248})=0,4375)$  lässt sich der bisher nicht ermittelte Empfindlichkeitsfaktor für Mg  $(S_{SN}(Mg))$  berechnen. Eine Bestimmung des Mg-Empfindlichkeitsfaktor mit dem Hauptisotop  $^{24}$ Mg ist nicht möglich, da die sehr starke Interferenz durch  $C_2$  den  $^{24}$ Mg-Peak komplett überlagert. Aus den Intensitäten für die nachionisierten Sekundärteilchen  $^{26}$ Mg und  $^{27}$ Al ergibt sich  $^{26}$ Mg+ $^{/27}$ Al+ =  $2,596\pm0,027$  und

$$S_{SN}(Mg) = \frac{^{26}\text{Mg}^{+}/^{27}\text{Al}^{+} \cdot S_{SN}(Al_{248})}{(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_{0}} = 2,30 \pm 0,05$$
 (5.5)

Dieser Wert gilt unter der Annahme, dass alles  $^{26}\mathrm{Mg}$  radiogenen Ursprungs ist. Die Anreicherungen an <sup>26</sup>Mg von mehr als dem Hundertfachem gegenüber dem solaren Wert, wie sie in den TOF-SIMS-Messungen ermittelt wurden, rechtfertigen diese Annahme.  $S_{SN}(Mg)$  geht in die Berechnungen des  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis für das Korn 480-3 im Abschnitt 5.3.2 ein.

## 5.3.2 Korn 480-3

Das Korn 480-(Abbildung 3 5.7) stammt ebenfalls aus dem Meteoriten Tieschitz und ist etwa 1,5 µm groß. Es wurden wie bei dem SiC-X-Korn 177-1 drei TOF-SIMS-Messungen und eine Laser-SNMS-Messung durchgeführt. Abtrag durch Der



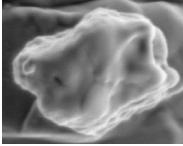


Abbildung 5.7: Die linke REM-Aufnahme zeigt das Korn 480-3 nach der Ion-Imaging- und ersten TOF-SIMS-Messung. Es sind noch Oberflächenstrukturen zu erkennen. Die rechte Aufnahme entstand nach allen TOF-SIMS- und Laser-SNMS-Messungen. Deutlich erkennt man den Materialabtrag.

diese Messungen ist in den Sekundärelektronenbildern in Abbildung 5.7 an den abgerundeten Ecken und Kanten gut zu sehen.

In der Abbildung 5.8 sind die SI-Verteilungen der TOF-SIMS-Messungen dargestellt. An den Verteilungsbildern für <sup>24</sup>Mg sieht man, dass dies in der ersten Messung fast gleichmäßig im Korn verteilt ist, während es in den nächsten Messungen eine Anhäufung am rechten Rand des Korns zeigt. Diese Anhäufung korreliert nicht mit der des Al am rechten, unteren Rand. Beim <sup>26</sup>Mg ist keine Anhäufung wie beim Al zu sehen, was zu einer Variation des (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub>-Verhältnisses führt. In den Ca-Verteilungsbildern ist ebenfalls eine heterogene Verteilung zu sehen, die aus zwei Anhäufungen jeweils am linken und rechten, unteren Rand des Korns besteht. Eine ähnliche Verteilung zeigt sich beim O.

Um sicher zu sein, dass es sich bei diesen heterogenen Verteilungen nicht um geometrische Effekte handelt, wurden noch weitere Messungen durchgeführt, bei denen die Probe um 90°, 180° und 270° gegen den Uhrzeigersinn gedreht wurde. Die SI-Verteilungen dieser Messung sind in Abbildung 5.9 dargestellt. Besonders deutlich sind die Heterogenitäten bei den Mg- und Ca-Verteilungen zu sehen. Beide zeigen Anhäufungen in sehr kleinen Bereichen des Korns, die entsprechend der Drehung der Probe wandern. Dabei kann es vorkommen, wie beim <sup>24</sup>Mg, dass eine deutliche Anhäufung aus einer früheren Messung nach der Drehung nicht mehr zu sehen ist, weil der entsprechende Bereich nun durch das Korn abgeschattet ist – die Ga-Quelle schießt aus einem Winkel von 45° gegen die horizontale Ebene. Da die Heterogenitäten bei den SI-Verteilungen der Nuklide <sup>24</sup>Mg, <sup>27</sup>Al und <sup>40</sup>Ca nun gedreht zu finden sind, kann es sich nicht um geometrische Effekte handeln, sondern es liegen heterogene Verteilungen im Korn vor.

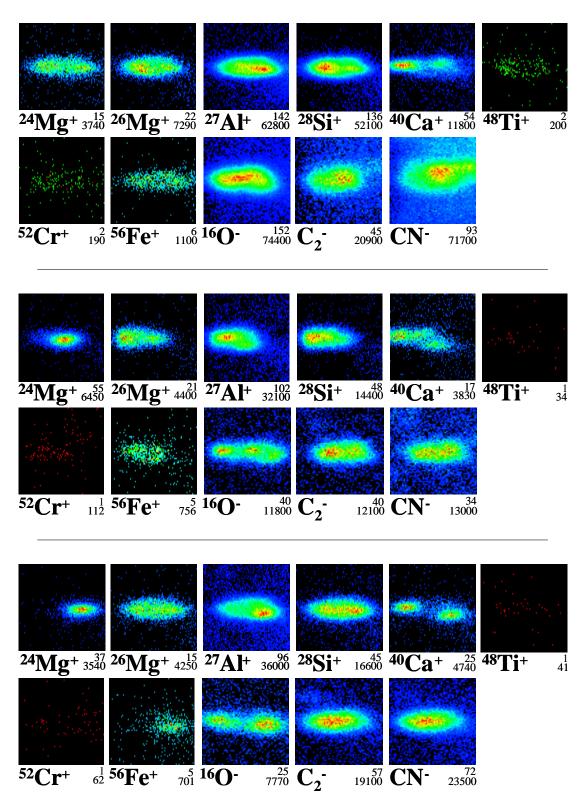


Abbildung 5.8: SI-Verteilungsbilder der – von oben – ersten, zweiten und dritten TOF-SIMS-Messung des SiC-X-Korns 480-3. Das Gesichtsfeld beträgt  $5~\mu m \times 5~\mu m$ .

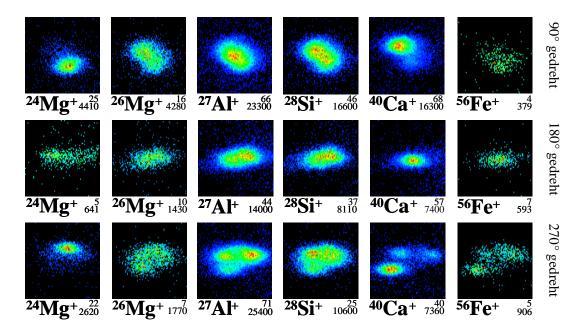
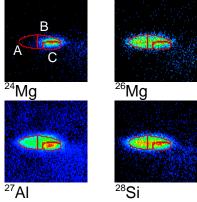


Abbildung 5.9: Sekundärionenverteilungsbilder des SiC-X-Korns 480-3 für die Messungen mit gedrehter Probe. Rechts der Bilder ist der Grad der Drehung gegen den Uhrzeigersinn angegeben. Das Gesichtsfeld beträgt ebenfalls 5  $\mu$ m × 5  $\mu$ m.

Um die Heterogenität des Korns besser quantitativ untersuchen zu können, wurde es in drei Bereiche A, B und C eingeteilt. Diese Bereiche überdecken jeweils etwa ein Drittel des Korns. In Abbildung 5.10 sind die drei Bereiche zusammen mit den SI-Verteilungen von <sup>24</sup>Mg, <sup>26</sup>Mg, <sup>27</sup>Al und <sup>28</sup>Si der dritten TOF-SIMS-Messung dargestellt. Für jeden dieser Bereiche wurde ein Spektrum aus den Rohdaten der Messung unter Berücksichtigung der lateralen Verschiebungen der Probe rekonstruiert und ausgewertet. Alle ermittelten Isotopenverhältnisse sind in Tabelle 5.3 und die Ergebnisse für die Elementverhältnisse in Tabelle 5.4 aufgelistet. Im Folgenden werden die wichtigsten Ergebnisse beschrieben.



**Abbildung 5.10:** Die Unterteilung des SiC-X-Korns 480-3 in drei Bereiche, hier für die dritte TOF-SIMS-Messung.

Anhand der N-Isotopie – mit Ausnahme der zweiten TOF-SIMS-Messung gilt  $^{14}\mathrm{N}/^{15}\mathrm{N} \leq 100$  – und der Si-Isotopie – Verarmungen an  $^{29}\mathrm{Si}$  und  $^{30}\mathrm{Si}$  von bis zu -520 ‰ – ist das Korn 480-3 eindeutig als SiC-X-Korn identifizierbar. Auch das  $(^{26}\mathrm{Al}/^{27}\mathrm{Al})_0$ -Verhältnis mit Werten zwischen 0,033 und 0,174 ist typisch für SiC-X-Körner. Die Heterogenität des  $(^{26}\mathrm{Al}/^{27}\mathrm{Al})_0$ -Verhältnis (siehe hierzu Abbildung 5.11) ist besonders interessant, denn eine Heterogenität in der Verteilung eines Isotopenverhältnisses ist zuvor noch nicht beschrieben worden.

-	1. T(	OF-SIMS-Messu	ng
	Bereich A	Bereich B	Bereich C
$(^{12}CN/^{13}CN)$	> 150	$88 \pm 8$	
$(C^{14}N/C^{15}N)$	$82 \pm 11$	$98 \pm 11$	
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$	$0,170 \pm 0,004$	$0,096 \pm 0,002$	$0,074 \pm 0,004$
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-240 \pm 80$	$-290 \pm 80$	$-170 \pm 90$
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-410 \pm 60$	$-430 \pm 60$	$-330 \pm 90$
$\delta(^{34}S/^{32}S)$	$-150 \pm 180$	$+81 \pm 162$	
$\delta(^{37}\mathrm{Cl}/^{35}\mathrm{Cl})$	$+27 \pm 45$	$+53 \pm 35$	

	2. T	OF-SIMS-Messu	ng
	Bereich A	Bereich B	Bereich C
$(^{12}CN/^{13}CN)$	$68 \pm 16$	$77 \pm 14$	$83 \pm 27$
$(C^{14}N/C^{15}N)$	> 780	> 140	$102 \pm 44$
$\delta(^{25}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$		$+150 \pm 90$	$+69 \pm 51$
$\delta(^{26}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$	$+75800 \pm 6200$	$+5100 \pm 230$	$+450 \pm 60$
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$	$0,174 \pm 0,006$	$0,075 \pm 0,003$	$0,033 \pm 0,005$
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-320 \pm 80$	$-360 \pm 80$	$-330\pm120$
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-400 \pm 80$	$-500 \pm 70$	$-340 \pm 110$

	Laser-SNMS-Messung		
	Bereich Mg	Bereich Al	
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$	$0,125 \pm 0,012$	$0,042 \pm 0,007$	
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-55 \pm 64$	$85 \pm 63$	
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-720 \pm 40$	$-570 \pm 50$	

	3. TOF-SIMS-Messung			
	Bereich A	Bereich B	Bereich C	
$(^{12}CN/^{13}CN)$	$61 \pm 24$	> 500	> 140	
$(C^{14}N/C^{15}N)$	$98 \pm 11$	$74 \pm 10$	$59 \pm 7$	
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$	$0,\!171 \pm 0,\!005$	$0,098 \pm 0,004$	$0,055 \pm 0,003$	
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-140 \pm 100$	$-230 \pm 80$	$-180 \pm 90$	
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-400 \pm 70$	$-330 \pm 80$	$-520\pm80$	

 $\label{lem:control_simple_signal} \begin{tabular}{l} Tabelle~5.3:~Isotopen verh\"{a}ltnisse~des~SiC-X-Korns~480-3~aus~der~TOF-SIMS-~und~Laser-SNMS-Messungen. \end{tabular}$ 

	1. T	OF-SIMS-Me	ssung	2. T	OF-SIMS-Mess	sung
	Bereich A	Bereich B	Bereich C	Bereich A	Bereich B	Bereich C
Li $[10^{-6}]$	$460 \pm 50$	$580 \pm 60$	$580 \pm 110$	$1050\pm120$	$1460\pm150$	$1100 \pm 200$
$Mg [10^{-3}]$	$9.5 \pm 0.3$	$9,5 \pm 0,3$	$15{,}6\pm0{,}8$	$4,2 \pm 0,3$	$44 \pm 1$	$270 \pm 5$
Al $[10^{-3}]$	$97 \pm 1$	$168 \pm 2$	$224 \pm 3$	$193 \pm 3$	$309 \pm 5$	$370 \pm 6$
Si	$\equiv 1$	$\equiv 1$	$\equiv 1$	$\equiv 1$	$\equiv 1$	$\equiv 1$
$K [10^{-3}]$	$11{,}2\pm0{,}2$	$19,\!6\pm0,\!2$	$29,2\pm0,5$	$7{,}9\pm0{,}2$	$14,0 \pm 0,4$	$21{,}4\pm0{,}5$
$Ca [10^{-3}]$	$13{,}6\pm0{,}3$	$10,5 \pm 0,2$	$10,0\pm0,2$	$13{,}3\pm0{,}5$	$12,2\pm0,4$	$19,9 \pm 0,8$
$\operatorname{Sc}$						
$Ti [10^{-3}]$	$0,\!35\pm0,\!08$	$0,15 \pm 0,06$	$0,\!24\pm0,\!13$	$0,\!10\pm0,\!08$	$0,\!42\pm0,\!14$	$0.1 \pm 0.2$
$V [10^{-6}]$	$10 \pm 20$			$120 \pm 60$		
$Cr [10^{-6}]$	$380 \pm 70$	$170 \pm 50$	$200 \pm 110$	$600 \pm 200$	$1100\pm200$	$1600\pm400$
Fe $[10^{-3}]$	$6,4 \pm 0,4$	$6 \pm 2$	< 8	< 9,4	$20,6\pm1,3$	< 24
$Cu [10^{-6}]$	$3600\pm600$	$4600 \pm 700$	$7000 \pm 2000$		_	
		Laser-SNMS		3. T	OF-SIMS-Mess	sung
	Bereich			3. T Bereich A	OF-SIMS-Mess Bereich B	sung Bereich C
Li [10 <sup>-6</sup> ]						_
Li $[10^{-6}]$ Mg $[10^{-3}]$	Bereich — —	Mg	Bereich Al — —	$\begin{array}{c} \text{Bereich A} \\ < 80 \\ 1.4 \pm 0.2 \end{array}$	Bereich B	Bereich C
Li [10 <sup>-6</sup> ] Mg [10 <sup>-3</sup> ] Al [10 <sup>-3</sup> ]		Mg		Bereich A < 80	Bereich B $380 \pm 80$	$\frac{\text{Bereich C}}{780 \pm 130}$
Li [10 <sup>-6</sup> ] Mg [10 <sup>-3</sup> ] Al [10 <sup>-3</sup> ] Si	Bereich — —	Mg	Bereich Al — —	$\begin{array}{c} \text{Bereich A} \\ < 80 \\ 1.4 \pm 0.2 \end{array}$	Bereich B $380 \pm 80$ $54 \pm 1$	$\frac{\text{Bereich C}}{780 \pm 130}$ $83 \pm 2$
Li [10 <sup>-6</sup> ] Mg [10 <sup>-3</sup> ] Al [10 <sup>-3</sup> ] Si K [10 <sup>-3</sup> ]	Bereich — — 79 ± 7	Mg	Bereich Al — — — — 174 ± 12	Bereich A $< 80$ $1.4 \pm 0.2$ $192 \pm 2$	Bereich B $380 \pm 80$ $54 \pm 1$ $257 \pm 3$	Bereich C $780 \pm 130$ $83 \pm 2$ $371 \pm 3$ $\equiv 1$ $26,3 \pm 0,4$
Li $[10^{-6}]$ Mg $[10^{-3}]$ Al $[10^{-3}]$ Si K $[10^{-3}]$ Ca $[10^{-3}]$	Bereich — — 79 ± 7	Mg	Bereich Al — — — — 174 ± 12	Bereich A $< 80$ $1,4 \pm 0,2$ $192 \pm 2$ $\equiv 1$	Bereich B $380 \pm 80$ $54 \pm 1$ $257 \pm 3$ $\equiv 1$	Bereich C $780 \pm 130$ $83 \pm 2$ $371 \pm 3$ $\equiv 1$
Li $[10^{-6}]$ Mg $[10^{-3}]$ Al $[10^{-3}]$ Si K $[10^{-3}]$ Ca $[10^{-3}]$ Sc $[10^{-6}]$	Bereich — — 79 ± 7	Mg	Bereich Al — — — — 174 ± 12	Bereich A < 80 $1,4 \pm 0,2$ $192 \pm 2$ $\equiv 1$ $5,0 \pm 0,2$	Bereich B $380 \pm 80$ $54 \pm 1$ $257 \pm 3$ $\equiv 1$ $9,3 \pm 0,2$	Bereich C $780 \pm 130$ $83 \pm 2$ $371 \pm 3$ $\equiv 1$ $26,3 \pm 0,4$
Li $[10^{-6}]$ Mg $[10^{-3}]$ Al $[10^{-3}]$ Si K $[10^{-3}]$ Ca $[10^{-3}]$ Sc $[10^{-6}]$ Ti $[10^{-3}]$	Bereich — — 79 ± 7	Mg	Bereich Al — — — — 174 ± 12	Bereich A $< 80$ $1,4 \pm 0,2$ $192 \pm 2$ $\equiv 1$ $5,0 \pm 0,2$ $13,0 \pm 0,4$ $ 0,44 \pm 0,14$	Bereich B $380 \pm 80$ $54 \pm 1$ $257 \pm 3$ $\equiv 1$ $9,3 \pm 0,2$ $7,1 \pm 0,3$	Bereich C $780 \pm 130$ $83 \pm 2$ $371 \pm 3$ $\equiv 1$ $26,3 \pm 0,4$ $25,6 \pm 0,7$
Li $[10^{-6}]$ Mg $[10^{-3}]$ Al $[10^{-3}]$ Si K $[10^{-3}]$ Ca $[10^{-3}]$ Sc $[10^{-6}]$ Ti $[10^{-3}]$ V $[10^{-6}]$	Bereich $79 \pm 7$ $\equiv 1$ $8,7 \pm 2$	Mg ,	Bereich Al   174 ± 12 $\equiv$ 1    7,2 ± 1,9	Bereich A $< 80$ $1,4 \pm 0,2$ $192 \pm 2$ $\equiv 1$ $5,0 \pm 0,2$ $13,0 \pm 0,4$ $ 0,44 \pm 0,14$ $90 \pm 60$	Bereich B $380 \pm 80$ $54 \pm 1$ $257 \pm 3$ $\equiv 1$ $9.3 \pm 0.2$ $7.1 \pm 0.3$ $90 \pm 60$ $0.38 \pm 0.14$ $30 \pm 40$	Bereich C $780 \pm 130$ $83 \pm 2$ $371 \pm 3$ $\equiv 1$ $26,3 \pm 0,4$ $25,6 \pm 0,7$ $30 \pm 40$ $0,19 \pm 0,14$
Li $[10^{-6}]$ Mg $[10^{-3}]$ Al $[10^{-3}]$ Si K $[10^{-3}]$ Ca $[10^{-3}]$ Sc $[10^{-6}]$ Ti $[10^{-3}]$ V $[10^{-6}]$ Cr $[10^{-6}]$	Bereich	Mg ,3	Bereich Al   174 ± 12 $\equiv$ 1    7,2 ± 1,9   1700 ± 600	Bereich A $< 80$ $1,4 \pm 0,2$ $192 \pm 2$ $\equiv 1$ $5,0 \pm 0,2$ $13,0 \pm 0,4$ $ 0,44 \pm 0,14$ $90 \pm 60$ $360 \pm 120$	Bereich B $380 \pm 80$ $54 \pm 1$ $257 \pm 3$ $\equiv 1$ $9,3 \pm 0,2$ $7,1 \pm 0,3$ $90 \pm 60$ $0,38 \pm 0,14$ $30 \pm 40$ $160 \pm 80$	Bereich C $780 \pm 130$ $83 \pm 2$ $371 \pm 3$ $\equiv 1$ $26,3 \pm 0,4$ $25,6 \pm 0,7$ $30 \pm 40$ $0,19 \pm 0,14$ $-$ $460 \pm 160$
Li $[10^{-6}]$ Mg $[10^{-3}]$ Al $[10^{-3}]$ Si K $[10^{-3}]$ Ca $[10^{-3}]$ Sc $[10^{-6}]$ Ti $[10^{-3}]$ V $[10^{-6}]$	Bereich $79 \pm 7$ $\equiv 1$ $8,7 \pm 2$	Mg ,3 ,900	Bereich Al   174 ± 12 $\equiv$ 1    7,2 ± 1,9	Bereich A $< 80$ $1,4 \pm 0,2$ $192 \pm 2$ $\equiv 1$ $5,0 \pm 0,2$ $13,0 \pm 0,4$ $ 0,44 \pm 0,14$ $90 \pm 60$	Bereich B $380 \pm 80$ $54 \pm 1$ $257 \pm 3$ $\equiv 1$ $9.3 \pm 0.2$ $7.1 \pm 0.3$ $90 \pm 60$ $0.38 \pm 0.14$ $30 \pm 40$	Bereich C $780 \pm 130$ $83 \pm 2$ $371 \pm 3$ $\equiv 1$ $26,3 \pm 0,4$ $25,6 \pm 0,7$ $30 \pm 40$ $0,19 \pm 0,14$

Tabelle 5.4: Elementverhältnisse relativ zu Si für das SiC-X-Korn 480-3, die sich aus allen TOF-SIMS- und Laser-SNMS-Messungen ergeben.

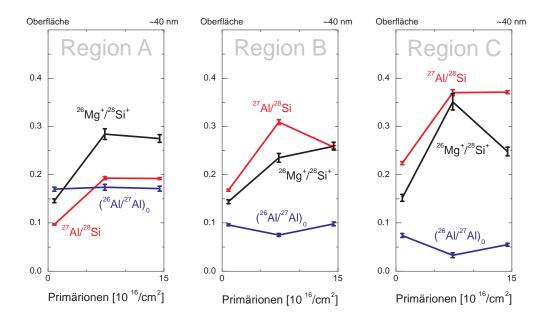


Abbildung 5.11: Für die drei Regionen A, B und C des SiC-X-Korns 480-3 sind die Tiefenprofile für das relative <sup>26</sup>Mg<sup>+</sup>-SI-Verhältnis zu Si, für den Al-Gehalt relativ zu Si und für das initiale <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al-Verhältnis dargestellt.

In Abbildung 5.11 sind die Tiefenprofile für den Al-Gehalt, das  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis sowie das  $^{26}\text{Mg}^+/^{28}\text{Si}^+$ -Verhältnis für die drei Bereiche A, B und C aufgetragen. Man sieht das sich der relative Al-Gehalt und das  $^{26}\text{Mg}^+/^{28}\text{Si}^+$ -Verhältnis ähnlich verhalten und von der ersten zur zweiten Messung stark ansteigen und zur dritten Messung sich nur gering ändern. Dabei ist das  $^{26}\text{Mg}^+/^{28}\text{Si}^+$ -Verhältnis für die verschiedenen Messung unterschiedlich, aber für die einzelnen Bereiche fast immer gleich. Der Al-Gehalt ist ändert sich dagegen nicht nur von Messung zu Messung, sondern steigt auch von Bereich A über B zu C an. Das resultierende  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis wird von Bereich A über B zu C geringer, ändert sich aber kaum von Messung zu Messung. Es liegt im Vergleich zum Korn 177-1 keine Heterogenität mit der erreichten Tiefe, sondern eine laterale Heterogenität vor.

### Laser-SNMS-Messung

Vom Korn 480-3 wurde wie auch beim Korn 177-1 eine nicht-resonante Laser-SNMS-Messung durchgeführt. Diese Messung erfolgte nach der zweiten TOF-SIMS-Messung mit einer Wellenlänge von 193 nm – entsprechend 6,42 eV. Die Verteilungsbilder für die sekundären Neutralteilchen finden sich in Abbildung 5.12. Man erkennt deutlich die schon in den TOF-SIMS-Messungen gefundenen Heterogenitäten in den Elementverteilungen. Al findet sich gehäuft im rechten, unteren Bereich des Korns, während <sup>26</sup>Mg vermehrt im oberen Bereich zu finden ist. Bei den TOF-SIMS-Messungen war diese heterogene Verteilung des <sup>26</sup>Mg nicht zu sehen. Auffällig ist die Anhäufung von Ca am oberen, linken Rand des

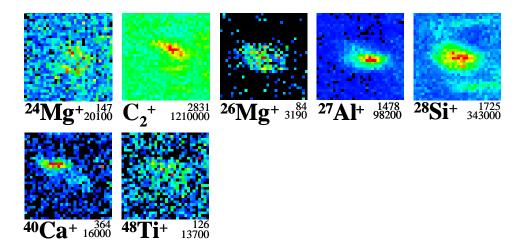


Abbildung 5.12: Verteilungsbilder sekundärer Neutralteilchen des SiC-X-Korns 480-3 mit einem Gesichtsfeld von  $5 \mu m \times 5 \mu m$ .

Korns wie bei den TOF-SIMS-Analysen. Das  $^{24}$ Mg-Verteilungsbild ist durch die Interferenz mit  $C_2$  zu verrauscht, um eine Aussage machen zu können. Zur Ermittlung der Isotopen- und Elementverhältnisse, die in den Tabellen 5.3 und 5.4 aufgelistet sind, wurde das Korn in zwei Bereiche unterteilt: den oberen Bereich A, der reich an  $^{26}$ Mg ist, und den unteren Bereich B, der Al-reich ist.

Für das  $^{30}$ Si/ $^{28}$ Si-Isotopenverhältnis ergeben sich δ-Werte von -720 ± 40 ‰ (Bereich A) bzw. -570 ± 50 ‰ (Bereich B), die im Bereich der Werte für die zuvor durchgeführte TOF-SIMS-Messung von -400 ± 80 ‰ (Bereich A), -500 ± 70 ‰ (Bereich B) bzw. -340 ± 110 ‰ (Bereich C) liegen. Für das  $^{29}$ Si-Isotopenverhältnis ergeben sich keine Übereinstimmungen, da eine systematische Störung durch SiH besteht, die nicht aufgelöst werden kann.

Mit dem Empfindlichkeitsfaktor für Mg für Laser-SNMS-Messungen aus Abschnitt 5.3.1 lässt sich bei diesem Korn nun das initiale (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub>-Verhältnis unter der Annahme berechnen, dass sich der Empfindlichkeitsfaktor für die verschiedenen benutzten Wellenlängen des Lasers nicht ändert. Eine Anderung der Empfindlichkeit ist nur für Al bekannt, während sie für alle anderen Elemente gleich bleibt. Eine Änderung würde sich nur bei Auftreten einer Resonanz in der Ionisierung ergeben, was sehr unwahrscheinlich ist. Bei der Berechnung muss die um ein Vielfaches größere Al-Empfindlichkeit von  $S_{SN}(Al_{193}) = 3{,}45$ bedacht werden, die durch die Nähe zu einer Resonanz für die Al-Ionisierung zustande kommt. Es ergibt sich ein (26Al/27Al)<sub>0</sub>-Verhältnis für den Bereich A von  $0.125 \pm 0.012$  und für den Bereich B von  $0.042 \pm 0.007$ . Diese Werte liegen zwischen den Werten der direkt vor der Laser-SNMS-Messung durchgeführten TOF-SIMS-Messung von  $0.174 \pm 0.006$  für den Bereich A,  $0.075 \pm 0.003$  für den Bereich B und  $0.033 \pm 0.005$  für den Bereich C. Da für die Laser-SNMS-Messung nur zwei Bereiche unterschieden werden konnten, sind die ermittelten Werte eine Mittelung der drei für die TOF-SIMS-Messung festgelegten Bereiche.

# 5.3.3 KJG2-422-X

Das Korn KJG2-422-X hat eine ursprüngliche Größe von etwa 3,3 µm. Durch die Messungen mit DF-SIMS war es bereits fast vollständig abgetragen. In dem linken Bild in Abbildung 5.13 sieht man den Zustand nach der ersten TOF-SIMS-Messung, wobei der Abtrag durch diese TOF-SIMS-Messung von wenigen Atomlagen vernachlässigbar gegen den Abtrag aus den vorangegangenen Messungen mit DF-SIMS

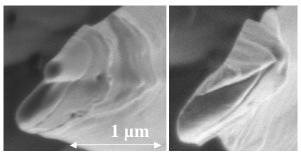


Abbildung 5.13: Die linke REM-Aufnahme ist nach der ersten TOF-SIMS-Messung vom Korn KJG2-422-X gemacht wurde. Die rechte nach dem Ar-Sputtern und einer weiteren TOF-SIMS-Messung. Es existieren keine Aufnahmen des ursprünglichen Zustandes.

ist. Die SI-Verteilungsbilder sind in Abbildung 5.14 dargestellt. Man sieht in der ersten Messung eine heterogene Verteilung des Al gegenüber dem Si. Die Verteilung des  $^{26}$ Mg korreliert scheinbar mit der des Si, während die übrigen Elemente – Ca, Fe, C und N – mit der Al-Verteilung korrelieren. In der zweiten Messung, die nach dem Abtrag von einigen Nanometern mit der Ar-Sputterquelle durchgeführt wurde, ist keine Heterogenität mehr festzustellen. Die Isotopenund Elementverhältnisse sind in den Tabellen 5.5 und 5.6 aufgeführt.

Das Korn ist anhand der N- und Si-Isotopie ( $^{14}$ N/ $^{15}$ N  $\approx 22$  sowie  $^{29}$ Si- und  $^{30}$ Si-Verarmungen bis zu 520 %0) leicht als SiC-X-Korn zu erkennen. Das initiale ( $^{26}$ Al/ $^{27}$ Al)<sub>0</sub>-Verhältnis beträgt etwa 0,24, wie es für SIC-X-Körner typisch ist.

Ein Vergleich mit den DF-SIMS-Ergebnissen (siehe hierzu Tabelle 5.5 und für alle Murchison-Körner Abschnitt 5.5.5) zeigt vor allem für die erste TOF-SIMS-Messung eine sehr gute Übereinstimmung bei den Si- und N-Isotopenverhältnissen. Für das C-Isotopenverhältnis lässt sich bei den TOF-SIMS-Messungen nur eine untere Grenze angeben, so dass kein Vergleich möglich ist. Für den absolu-

	SiC-X-Korn	KJG2-422-X	St. Louis-Werte
	1. Messung	2. Messung	DF-SIMS
$(^{12}CN/^{13}CN)$	> 140	$57 \pm 6$	1135
$({ m C}^{14}{ m N}/{ m C}^{15}{ m N})$	$19 \pm 3$	$25 \pm 3$	18,1
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$	$0,225 \pm 0,005$	$0,255 \pm 0,012$	0,2
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-370 \pm 60$	$-270\pm110$	-376
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-520\pm70$	$-470\pm80$	-585
$\delta(^{41}\mathrm{K}/^{39}\mathrm{K})$		$+120\pm90$	_

Tabelle 5.5: Isotopenverhältnisse des SiC-X-Korn KJG2-422-X aus zwei TOF-SIMS-Messungen. Die DF-SIMS-Messungen wurden in St. Louis durchgeführt (siehe Abschnitt 5.5).

 $C_{12400}^{37} C_{2}^{-1}$ 

16**O**-

14000 **CN**-

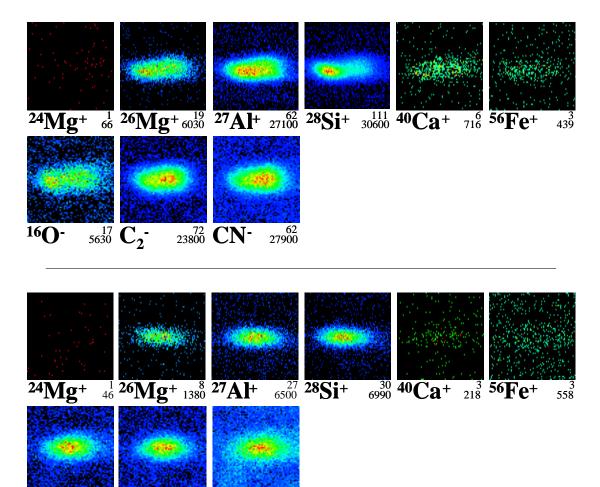


Abbildung 5.14: SI-Verteilungsbilder der ersten und zweiten Messung des SiC-X-Korns KJG2-422 mit einem Gesichtsfeld von  $5~\mu m \times 5~\mu m$ .

ten Al-Gehalt² ergibt sich aus den TOF-SIMS-Messungen mit etwa 8 Gew.-% ein fast doppelt so großer Wert wie aus der DF-SIMS-Messung (4,7 Gew.-% Al). Da auch in zwei weiteren Murchison SiC-Körnern ähnliche Abweichungen gefunden wurden, kann dies wahrscheinlich auf den verwendeten Al-Empfindlichkeitsfaktor zurückgeführt werden, der mit den Glasstandards ermittelt wurde. Die Abweichung von etwa 20 % beim  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis ist nicht signifikant, da hier die Unsicherheiten der Empfindlichkeitsfaktoren eine große Rolle spielen.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Der absolute Elementgehalt wurde unter der Annahme berechnet, dass ebenso viel C wie Si und N wie Al im Korn vorliegt. Die übrigen Elementgehalte sind so gering, dass sie nicht berücksichtigt wurden.

	SiC-X-Korn	KJG2-422-X
	1. Messung	2. Messung
Li $[10^{-6}]$	$350 \pm 50$	$3100 \pm 200$
$Mg [10^{-6}]$	$50 \pm 30$	$110 \pm 80$
Al $[10^{-3}]$	$80 \pm 1$	$97 \pm 3$
Si	$\equiv 1$	$\equiv 1$
$K [10^{-3}]$	$2,3 \pm 0,1$	$17.8 \pm 0.4$
$Ca [10^{-3}]$	$0,55 \pm 0,06$	$1,0 \pm 1,3$
$Sc [10^{-6}]$	$50 \pm 30$	$300 \pm 200$
$Ti [10^{-3}]$	$0.19 \pm 0.06$	$0.4 \pm 0.2$
$V [10^{-6}]$	$70 \pm 40$	$60 \pm 80$
$Cr [10^{-6}]$	$120 \pm 50$	$600 \pm 200$
Fe $[10^{-3}]$	$0.5 \pm 0.2$	< 6.1
$Cu [10^{-6}]$	< 800	< 800

Tabelle 5.6: Elementverhältnisse relativ zu Si für das SiC-X-Korn KJG2-422-X von zwei TOF-SIMS-Messungen.

#### 5.4 Tieschitz SiC-Körner

Um systematisch nach elementaren oder isotopischen Inhomogenitäten in SiC-Körnern zu suchen, wurden fünf weitere SiC-Körner, die mindestens 2 µm groß sind, auf einem der Tieschitz-Probenträger lokalisiert. Es wurden Sekundärelektronenbilder der SiC-Körner aufgenommen, sowie eine Identifizierung als SiC-Korn mit EDX mit einem fensterlosen Detektor durchgeführt. Diese Identifizierung war nötig, weil sich auf dem Träger auch viele Korund-Körner befanden. Diese präsolaren Körner wurden in Mainz am Max-Planck-Institut für Chemie präpariert (Strebel, 1998) und uns zur Verfügung gestellt. Da diese Körner zuvor nur mit der "Ion Imaging"-Methode gemessen wurden, um SiC-X-Körner zu finden, lagen sie noch in ihrem fast ursprünglichem Zustand vor.

#### 5.4.1 SiC 1

erwarten ist.

Das Korn SiC 1 hat eine Größe von etwa 2,5 µm. Man erkennt auf den Sekundärelektronenaufnahmen in Abbildung 5.15 eine isomorphe Form des Korns. In den SI-Verteilungen der TOF-SIMS-Messung

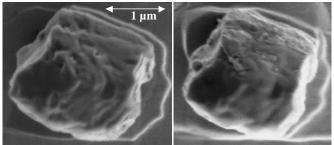


Abbildung 5.15: Die linke REM-Aufnahme zeigt das in Abbildung 5.16 sieht man Korn SiC 1 in seiner ursprünglichen Form. Die rechte Aufeine heterogene Verteilung nahme entstand nach der zweiten TOF-SIMS-Messung. des Al, das im oberen Bereich des Korns angehäuft ist. Die Al-Verteilung korreliert mit der CN-Verteilung, was aufgrund des Vorkommens als AlN zu

Eine weitere Korrelation findet sich zwischen Ca- und Al-Verteilung, wobei eine zweite Ca-Anhäufung am rechten Rand außerhalb des Korns zu finden ist. Dies ist wahrscheinlich auf eine Kontamination durch die Präparation zurückzuführen. Auffällig im Gegensatz zu den SiC-X-Körner ist die geringe Intensität im <sup>26</sup>Mg-Verteilungsbild. In der O-Verteilung ist ebenfalls eine heterogene Verteilung zu sehen, die eine Anhäufung am unteren rechten Rand zeigt.

Die Isotopen- und Elementverhältnisse sind in den Tabellen 5.7 und 5.8 aufgelistet. Aufgrund des C-Isotopenverhältnisses von  $^{12}\mathrm{C}/^{13}\mathrm{C} \approx 57$  und den Anreicherungen an <sup>29</sup>Si und <sup>30</sup>Si lässt sich das Korn SiC 1 den Mainstream-SiC-Körnern zuordnen. Der Wert von  $\delta(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg}) = -150 \pm 150 \%$  bzw. =  $-0 \pm 200 \%$ weist auf ein solares Isotopenverhältnis des <sup>26</sup>Mg und <sup>24</sup>Mg hin, weswegen auch das initiale (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)-Verhältnis gleich Null ist.

Zur Kontrolle wurde eine zweite TOF-SIMS-Messung durchgeführt, nachdem einige zehn Nanometer des Korns mit der Ar-Sputterquelle abgetragen wurden. Die SI-Verteilungen der zweiten Messung sind ebenfalls in Abbildung 5.16 dar-

	SiC	2 1
	1. Messung	2. Messung
$(^{12}CN/^{13}CN)$	$56 \pm 4$	$58 \pm 6$
$({ m C^{14}N/C^{15}N})$	> 310	> 210
$\delta(^{18}{\rm O}/^{16}{\rm O})$	$-170\pm110$	
$\delta(^{25}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$	$-170\pm200$	
$\delta(^{26}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$	$-150\pm150$	$0 \pm 200$
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0 (10^{-3})$	0	0
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+57 \pm 82$	$+46 \pm 74$
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+160 \pm 70$	$+99 \pm 73$
$\delta(^{34}\mathrm{S}/^{32}\mathrm{S})$	$+220\pm180$	
$\delta(^{37}\mathrm{Cl}/^{35}\mathrm{Cl})$	$+50 \pm 31$	$-4 \pm 65$
$\delta(^{41}{ m K}/^{39}{ m K})$	$+120\pm70$	$+160 \pm 210$
$\delta(^{44}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$+460 \pm 1430$	
$\delta(^{54}\mathrm{Fe}/^{56}\mathrm{Fe})$	$+150 \pm 350$	

Tabelle 5.7: Isotopenverhältnisse des SiC-Korn SiC 1 aus dem Meteoriten Tieschitz der beiden durchgeführten TOF-SIMS-Messungen.

	SiC	C 1
	1. Messung	2. Messung
Li $[10^{-6}]$	$170 \pm 20$	< 24
$Mg [10^{-3}]$	$2,0 \pm 0,1$	$2,3 \pm 0,2$
Al $[10^{-3}]$	$18,0 \pm 0,4$	$45,3 \pm 0,7$
Si	$\equiv 1$	$\equiv 1$
$K [10^{-3}]$	$4,97 \pm 0,07$	$1,06 \pm 0,05$
$Ca [10^{-3}]$	$2,2 \pm 0,1$	$2,4 \pm 0,1$
$Sc [10^{-6}]$		
$Ti [10^{-6}]$	$40 \pm 20$	
$V [10^{-6}]$	$15 \pm 10$	
$Cr[10^{-6}]$	$290 \pm 50$	$290 \pm 70$
Fe $[10^{-3}]$	$3,2 \pm 0,3$	< 1,1
$Cu [10^{-6}]$	< 1900	

Tabelle 5.8: Elementverhältnisse relativ zu Si für das SiC-Korn SiC 1 der beiden durchgeführten TOF-SIMS-Messungen.

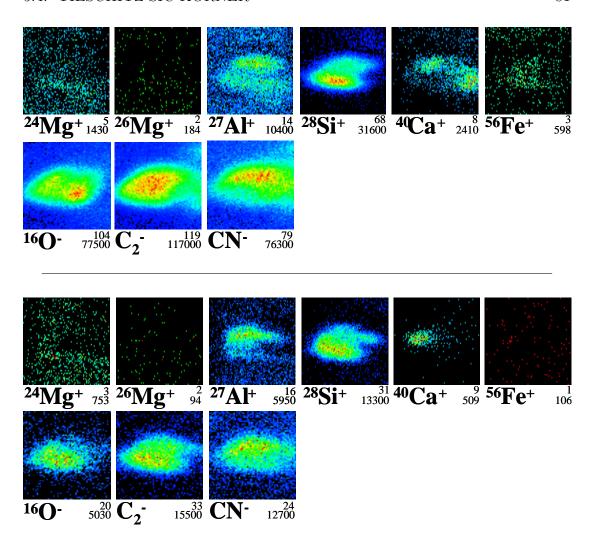


Abbildung 5.16: SI-Verteilungsbilder der ersten und zweiten TOF-SIMS-Messung des SiC-Korns SiC 1 mit einem Gesichtsfeld von 5  $\mu$ m × 5  $\mu$ m.

gestellt und die Isotopen- und Elementverhältnisse in den Tabellen 5.7 und 5.8 aufgeführt.

Die heterogene Verteilung des Al und die Korrelation mit der CN-Verteilung bestätigten sich hierbei. Auffällig ist die Anhäufung des Ca am linken Rand des Korns, wobei die in der ersten Messung gefundenen Anhäufungen am oberen und rechten Rand verschwunden sind. Die Isotopenverhältnisse stimmen im Rahmen der Fehler alle überein. Es ergab sich wieder ein solares  $^{26}$ Mg-Isotopenverhältnis und somit kein messbarer Überschuss, der durch initiales  $^{26}$ Al hervorgerufen wird. Bei den Elementverhältnissen ergeben sich Änderungen bei den Li-, Al und K-Gehalten. Der Al-Gehalt stieg auf das 2,5-fache des ersten Wertes, während der Li- und K-Gehalt auf weniger als ein Viertel sanken. Die übrigen Elementverhältnisse blieben unverändert.

# 5.4.2 SiC 2

Das Korn SiC 2 ist etwa 2,2 µm groß. Auf dem Sekundärelektronenbild in Abbildung 5.17 ist das isomorphe Aussehen des Korns zu erkennen. Die SI-Verteilungen der ersten Messung in Abbildung 5.18 zeigen ein homogenes Korn, bei dem lediglich die Ca-Verteilung eine Anhäufung am rechten Rand des Korns aufweist. Bei der zweiten Messung dieses Korns (ebenfalls Abbildung 5.18) bestätigten sich die gefundenen SI-Verteilungen. Die Ca-Verteilung zeigt nun aber eine Anhäufung am rechten, oberen Rand.

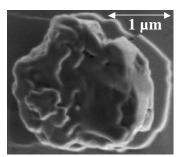


Abbildung 5.17: Das Sekundärelektronenbild des Korns SiC 2 wurde vor den TOF-SIMS-Messungen gemacht.

Die Isotopen- und Elementverhältnisse sind in den den TOF-SIMS-Messungen Tabellen 5.9 und 5.10 aufgelistet. Anhand des C- gemacht. Isotopenverhältnisses von  $^{12}\text{C}/^{13}\text{C} = 57 \pm 7$  bzw.  $48 \pm 9$  kann eine Zuordnung zu den SiC-A-, SiC-B- und SiC-Y-Körnern ausgeschlossen werden. Die Si-Isotopenverhältnisse mit  $\delta$ -Werten für  $^{29}\text{Si}$  und  $^{30}\text{Si}$  zwischen 36 und 130 % schließt eine Zuordnung zu den SiC-X- und SiC-Z-Körnern aus. Somit lässt sich das Korn als Mainstream-SiC-Korn einordnen.

	SiC 2				
	1. Messung	2. Messung			
$(^{12}CN/^{13}CN)$	$57 \pm 7$	$48 \pm 9$			
$({ m C^{14}N/C^{15}N})$	$111\pm31$	> 220			
$\delta(^{25}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$		$+100\pm470$			
$\delta(^{26}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$		$+2700\pm1400$			
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0 [10^{-4}]$	0	$2 \pm 20$		SiC	C 2
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+36 \pm 51$	$+49 \pm 66$		1. Messung	2. Messung
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+37 \pm 57$	$+130 \pm 70$	Li $[10^{-6}]$	< 60	< 30
$\delta(^{34}S/^{32}S)$	$+90 \pm 280$	_	$Mg [10^{-3}]$	$0,46 \pm 0,04$	$0,30 \pm 0,05$
$\delta(^{37}\mathrm{Cl}/^{35}\mathrm{Cl})$	$+94 \pm 44$	$+20 \pm 100$	Al $[10^{-3}]$	$9,3 \pm 0,2$	$8,1 \pm 0,3$
$\delta(^{41}{\rm K}/^{39}{\rm K})$	$+237 \pm 94$	$+200\pm140$	Si	$\equiv 1$	$\equiv 1$
$\delta(^{42}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$+50 \pm 210$	_	$K [10^{-3}]$	$1,32 \pm 0,02$	$1{,}41\pm0{,}05$
$\delta(^{43}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$-1100\pm70$	_	$Ca [10^{-3}]$	$4,34 \pm 0,08$	$1,\!24\pm0,\!11$
$\delta(^{44}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$+310 \pm 140$	_	$\operatorname{Sc}$		_
$\delta(^{46}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$		$+110\pm190$	$Ti [10^{-3}]$	$2,2 \pm 0,1$	$7,5 \pm 0,4$
$\delta(^{47}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$		$-50 \pm 140$	$V [10^{-6}]$	$40 \pm 10$	$380 \pm 60$
$\delta(^{49}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$		$+600\pm190$	$Cr[10^{-6}]$	$790 \pm 50$	$80 \pm 30$
$\delta(^{50}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$		$+230\pm150$	Fe $[10^{-3}]$	$2,8 \pm 0,2$	$0,71\pm0,13$
$\delta(^{54} \text{Fe}/^{56} \text{Fe})$	$+10 \pm 220$		$\text{Cu} [10^{-6}]$	$360 \pm 100$	< 300

Tabelle 5.9: Isotopenverhältnisse des SiC-Korn SiC 2 der beiden durchgeführten TOF-SIMS-Messungen.

Tabelle 5.10: Elementverhältnisse relativ zu Si für das SiC-Korn SiC 2 der beiden TOF-SIMS-Messungen.

In der ersten Messung war kein Überschuss an <sup>26</sup>Mg und daher auch kein ursprüngliches <sup>26</sup>Al zu finden. In der zweiten Messung ergab sich ein Überschuss an

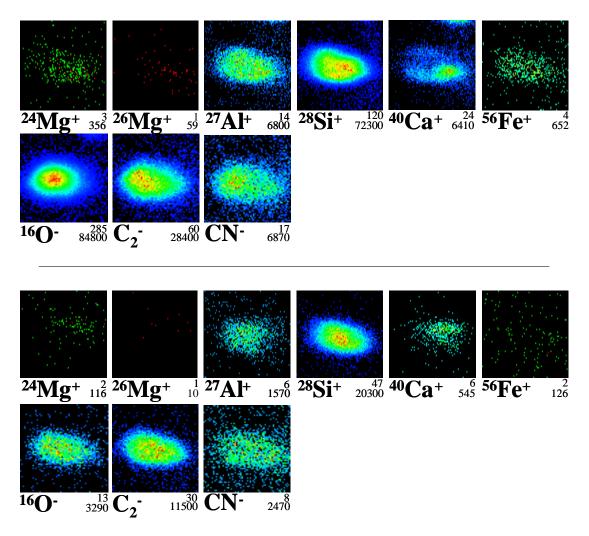
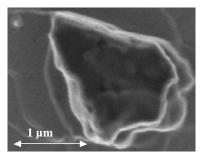


Abbildung 5.18: SI-Verteilungsbilder der ersten und zweiten zweiten Messung des SiC-Korns SiC 2. Das Gesichtsfeld beträgt 5  $\mu m \times 5 \mu m$ .

 $^{26}\mathrm{Mg}$  von ungefähr 2700  $\pm$  1400 ‰ und damit ein initiales ( $^{26}\mathrm{Al}/^{27}\mathrm{Al}$ )-Verhältnis von 0,0002  $\pm$  0,0020, das nicht signifikant von Null abweicht. Eine genauere Bestimmung ist aufgrund der geringen Intensitäten nicht möglich. Die Elementverhältnisse für Mg, Al und K bleiben gleich, während die Ti- und V-Gehalte stark ansteigen und die Ca-, Cr- und Fe-Gehalte abfallen.

# 5.4.3 SiC 3

Das Korn SiC 3 hat eine Größe von ungefähr 2 µm. In dem Sekundärelektronenbild in Abbildung 5.19 ist es als tafeliges, dreieckiges Korn zu erkennen und unterscheidet sich somit in seinem Äußeren deutlich von den übrigen gemessenen SiC-Körnern, die ein isomorphes Aussehen aufweisen. Die SI-Verteilungen der TOF-SIMS-Messung sind in Abbildung 5.20 dargestellt. Wie man erkennen kann, sind bis auf die Si-Verteilung alle Bilder sehr verrauscht, da sie wenig Intensität enthalten. Eine Heterogenität scheint nur bei der Ti-Verteilung gemacht. vorhanden zu sein, das am linken Rand konzentriert scheint.



**Abbildung 5.19:** Die REM-Aufnahme des Korns SiC 3 wurde vor den TOF-SIMS-Messungen gemacht.

Die Isotopen- und Elementverhältnisse sind in den Tabellen 5.11 und 5.12 aufgelistet. Das C-Isotopenverhältnis ist mit einem Wert von  $^{12}\mathrm{C}/^{13}\mathrm{C}\approx 8$  sehr niedrig, im Bereich der SiC-B-Körner. Die Si-Isotopie mit einer Anreicherung an  $^{29}\mathrm{Si}$  von etwa 180 ‰ und einem solarem  $^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si}$ -Verhältnis spricht nicht gegen diese Zuordnung. Auffällig ist das niedrige  $^{14}\mathrm{N}/^{15}\mathrm{N}$ -Verhältnis von etwa 62 ± 32. Dies könnte auf eine Nova als Ursprung dieses Korns hinweisen, denn nur dort finden sich gleichzeitig sowohl niedrige C- als auch N-Isotopenverhältnisse, wobei das  $^{14}\mathrm{N}/^{15}\mathrm{N}$ -Verhältnis noch zu hoch ist. Ein Blick auf die Elementverhältnisse zeigt niedrige Werte für alle Elemente.

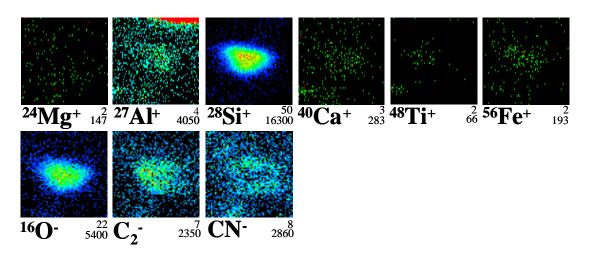


Abbildung 5.20: SI-Verteilungsbilder des SiC-Korns SiC 3 mit einem Gesichtsfeld von  $5 \mu m \times 5 \mu m$ .

	SiC 3
$(^{12}CN/^{13}CN)$	$8 \pm 4$
$({ m C}^{14}{ m N}/{ m C}^{15}{ m N})$	$62 \pm 32$
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$	0
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+180 \pm 70$
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+20 \pm 96$
$\delta(^{37}\mathrm{Cl}/^{35}\mathrm{Cl})$	$+100\pm120$
$\delta(^{41}{\rm K}/^{39}{\rm K})$	$+280\pm300$

Tabelle 5.11:	Isotopenverhältnisse	des
SiC-Korn SiC	3.	

	SiC 3
Li $[10^{-6}]$	< 10
$Mg [10^{-3}]$	$0,\!17\pm0,\!05$
Al $[10^{-3}]$	$3,0 \pm 0,2$
Si	$\equiv 1$
$K [10^{-3}]$	$0,42 \pm 0,03$
$Ca [10^{-3}]$	$0,25 \pm 0,04$
$Sc [10^{-6}]$	$200 \pm 50$
$Ti [10^{-3}]$	$0.39 \pm 0.08$
$V [10^{-6}]$	
$Cr[10^{-6}]$	$110 \pm 40$
Fe $[10^{-3}]$	< 0.15
Cu	_

Tabelle 5.12: Elementverhältnisse relativ zu Si für das SiC-Korn SiC 3.

# 5.4.4 SiC 4

Das Korn SiC 4 ist etwa 2,3 µm groß. In der Rasterelektronenmikroskopaufnahme in Abbildung 5.21 ist links des Korns noch ein zweites, sehr kleines Korn zu sehen. In den SI-Verteilungsbildern der TOF-SIMS-Messung ist in Abbildung 5.22 dieses kleine Korn nicht getrennt vom großen Korn zu sehen, sondern ist durch die Projektion durch die schräg schießende Ga-Quelle als Ausbuchtung am linken, oberen Rand zu erkennen. Man erkennt weiterhin eine heterogene Verteilung des Al mit zwei Anhäufungen rechts oben und rechts unten am Korn, die mit der CN- und Ca-Verteilung korrelie-

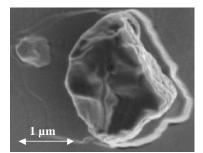


Abbildung 5.21: Diese REM-Aufnahme des Korn SiC 4 wurde bei der Suche nach SiC-Körnern vor den TOF-SIMS-Messungen aemacht

ren, aber mit dem kleineren Korn nicht in Verbindung gebracht werden können.

Die ermittelten Isotopen- und Elementverhältnisse sind in den Tabellen 5.13 und 5.14 aufgeführt. Man kann das Korn SiC 4 anhand der C- und Si-Isotopenverhältnisse – die im Rahmen der Fehler solar sind – nicht eindeutig als präsolares Korn identifizieren. Einzig der Überschuss an  $^{26}{\rm Mg}$  von 500  $\pm$  300 % weist auf einen präsolaren Ursprung hin. Es ergibt sich ein initiales ( $^{26}{\rm Al}/^{27}{\rm Al}$ )-Verhältnis von 0,002  $\pm$  0,002, das nicht signifikant von Null abweicht. Das Korn SiC 4 würde als präsolares Korn zu den Mainstream-SiC-Körnern gehören.

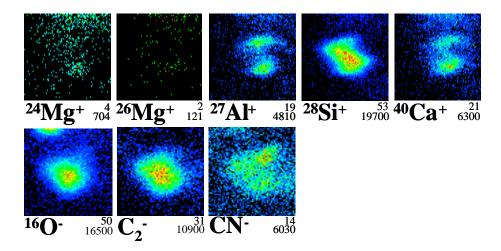


Abbildung 5.22: SI-Verteilungsbilder des SiC-Korns SiC 4. Das Gesichtsfeld beträgt 5  $\mu m \times$  5  $\mu m$ .

	SiC 4
$\frac{(^{12}CN/^{13}CN)}{}$	$80 \pm 20$
$(C^{14}N/C^{15}N)$	> 180
$\delta(^{18}{\rm O}/^{16}{\rm O})$	$+490 \pm 320$
$\delta(^{26}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$	$+510 \pm 300$
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$	$0,0021 \pm 0,0023$
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+30 \pm 71$
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+45 \pm 73$
$\delta(^{37}\mathrm{Cl}/^{35}\mathrm{Cl})$	$+43 \pm 39$
$\delta(^{41}{ m K}/^{39}{ m K})$	$-15\pm100$
$\delta(^{42}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$+300 \pm 270$
$\delta(^{44}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$+190\pm150$

Tabelle 5.13: Isoto	venverhältnisse des
SiC-Korn SiC 4.	

	SiC 4
Li $[10^{-6}]$	< 100
$Mg [10^{-3}]$	$1,33 \pm 0,11$
Al $[10^{-3}]$	$17,6 \pm 0,4$
Si	$\equiv 1$
$K [10^{-3}]$	$4,19 \pm 0,09$
$Ca [10^{-3}]$	$12,6 \pm 0,2$
$\operatorname{Sc}$	
$Ti [10^{-2}]$	$0,13 \pm 0,01$
V	
$Cr [10^{-6}]$	$850 \pm 110$
Fe $[10^{-3}]$	$1,1 \pm 0,2$
Cu	

Tabelle 5.14: Elementverhältnisse relativ zu Si für das SiC-Korn SiC 4.

# 5.4.5 SiC 5

Das Korn SiC 5 hat eine Größe von ungefähr 1,5 µm. Es zeigt im Sekundärelektronenbild in Abbildung 5.23 ein isomorphes Aussehen. Die SI-Verteilungen der beiden TOF-SIMS-Messungen in der Abbildung 5.24 zeigen eine heterogene Verteilung des Al, die in der zweiten Messung eine Korrelation mit der CN-Verteilung aufweist. Eine Korrelation mit der de.

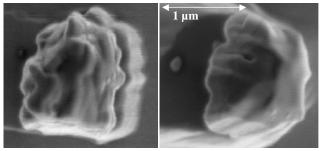


Abbildung 5.23: Die linke REM-Aufnahme des Korn SiC 5 wurde vor den TOF-SIMS-Messungen durchgeführt. Die rechte Aufnahme entstand nachdem mit der Ar-Sputterquelle ein Großteil des Korns abgetragen wurde

Ca-Verteilung ist nur in der zweiten Messung gegeben. Die Ti-Verteilung korreliert in beiden Messungen mit der Ca-Verteilung.

	SiC	C 5			
	1. Messung	2. Messung			
$(^{12}CN/^{13}CN)$	$62 \pm 8$	$59 \pm 5$			
$(C^{14}N/C^{15}N)$	> 150	> 380			
$\delta(^{18}{\rm O}/^{16}{\rm O})$	$+200\pm230$				
$\delta(^{25}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$	$+90 \pm 380$			Si	$\overline{\mathrm{C}}$
$\delta(^{26}\mathrm{Mg}/^{24}\mathrm{Mg})$	$+430 \pm 710$			1. Messung	
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0 (10^{-4})$	$17\pm7$	$14 \pm 5$	Li $[10^{-6}]$	< 60	
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+190 \pm 70$	$+64 \pm 67$	$Mg [10^{-3}]$	$0.81 \pm 0.09$	
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+64 \pm 70$	$+31 \pm 66$	Al $[10^{-3}]$	$56 \pm 1$	
$\delta(^{37}\text{Cl}/^{35}\text{Cl})$	$+50 \pm 53$		Si	$\equiv 1$	
$\delta(^{41}{\rm K}/^{39}{\rm K})$	$+220\pm150$		$K [10^{-3}]$	$2,03 \pm 0,06$	
$\delta(^{42}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$		$-50\pm210$	$Ca [10^{-3}]$	$11{,}1\pm0{,}2$	
$\delta(^{43}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$		$+20 \pm 820$	$Sc [10^{-6}]$		
$\delta(^{44}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$+290\pm180$	$+300 \pm 280$	$Ti [10^{-3}]$	$0.39 \pm 0.09$	
$\delta(^{46}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$		$+720\pm370$	$V [10^{-6}]$		
$\delta(^{47}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$		$+460 \pm 330$	$Cr [10^{-6}]$	$310 \pm 70$	
$\delta(^{49}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$		$+160\pm540$	Fe $[10^{-3}]$	< 0.3	
$\delta(^{50}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$		$+230\pm350$	$Cu [10^{-6}]$	< 400	
			_		

Tabelle 5.15: Isotopenverhältnisse des SiC-Korn SiC 5.

Tabelle 5.16: Elementverhältnisse relativ zu Si des SiC-Korn SiC 5.

Die zweite TOF-SIMS-Messung wurde durchgeführt, nachdem ungefähr die Hälfte des Korns mit der Ar-Sputterquelle abgetragen worden ist. Es ist eine deutliche Änderung in der Al-Verteilung zu sehen. Statt der Anhäufung, die in der ersten Messung am oberen Rand des Korns zu sehen war, ist nun eine Anhäufung am unteren Rand des Korns zu sehen. Die Verteilung des <sup>26</sup>Mg, die sehr intensitätsschwach ist, scheint mit der Verteilung des <sup>24</sup>Mg zu korrelieren, das zum größten Teil außerhalb des SiC-Korns zu finden ist und wahrscheinlich eine Kon-

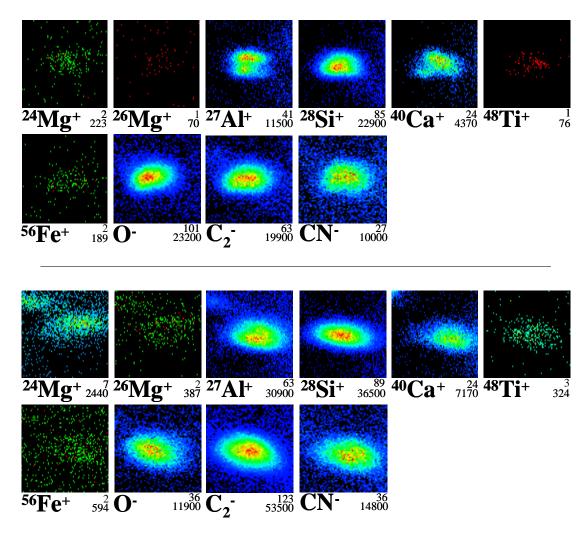


Abbildung 5.24: SI-Verteilungsbilder der ersten und zweiten TOF-SIMS-Messung des SiC-Korns SiC 5 mit Gesichtsfeldern von 5  $\mu$ m × 5  $\mu$ m.

### tamination ist.

Die ermittelten Isotopen- und Elementverhältnisse sind in den Tabellen 5.15 und 5.16 aufgelistet. Die C- und Si-Isotopenverhältnisse ( $^{12}\text{C}/^{13}\text{C} \approx 60$ , relative Abweichungen von den solaren Werten bei  $^{29}\text{Si}$  und  $^{30}\text{Si}$  zwischen 31 und 190 ‰) sprechen für eine Zuordnung zu den Mainstream-SiC-Körnern. Der geringe Überschuss an  $^{26}\text{Mg}$  ergibt ein initiales ( $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ )<sub>0</sub>-Verhältnis von 0,0017  $\pm$  0,0007, das durch die zweite Messung (0,0014  $\pm$  0,0005) bestätigt wird.

# 5.5 Murchison SiC-Körner

Die Murchison-SiC-Körner wurden vom "Laboratory for Space Sciences" der Washington University in St. Louis für TOF-SIMS-Untersuchungen zur Verfügung gestellt. Bei diesen präsolaren SiC-Körnern handelt es sich um eine größenseparierte Fraktion einer Extraktion präsolarer Körner aus dem CM-Chondriten Murchison mit der Bezeichnung KJG2. Die einzelnen Körner tragen daher die Bezeichnungen KJG2-xxx, wobei xxx eine drei- oder vierstellige Nummer ist. Einige der auf dem Probenträger vorhandenen präsolaren Körner wurden bereits in St. Louis mit DF-SIMS gemessen. Die DF-SIMS-Messwerte der im Rahmen dieser Arbeit ausgesuchten SiC-Körner sind in Tabelle 5.25 aufgeführt. Des Weiteren wurden Sekundärelektronenbilder der Körner KJG2-243, -333 und -415 durch S. Amari vor den ersten SIMS-Messungen aufgenommen, auf denen die ursprüngliche Form der Körner zu sehen ist.

Unter den rund Hundert SiC-Körnern befindet sich ein SiC-X-Korn. Neben den in Tabelle 5.25 aufgeführten Körnern wurde ein weiteres gemessen, das nur einige Mikrometer neben dem SiC-X-Korn KJG2-422 lag. Da dieses Korn nicht zuvor gemessen worden ist, fehlt es in der Tabelle 5.25 und hatte bisher keine Probenbezeichnung. Es wurde KJG2-422-SiC genannt und zur Unterscheidung erhielt das SiC-X-Korn noch die Bezeichnung KJG2-422-X.

## 5.5.1 KJG2-243

Dieses Korn ist mit eiursprünglichen Größe von etwa  $7 \times 3.5 \, \mu m \, das$ Größte der gemessenen Körner und weist eine längliche, gekrümmte Form auf (Abbildung 5.25). Durch verschiedene vorhergehende Messungen wurde etwa die Hälfte des Korns abgetragen, so dass das Korn vor der TOF-SIMS-Messung eine abgeflachte Form wie der in mittleren REM-Abbildung in Aufnahme 5.25 aufwies. Zwischen dem oberen und unteren Teil des Sputtern.

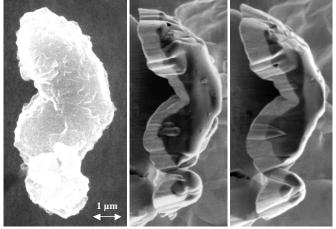


Abbildung 5.25: Sekundärelektronenbilder des SiC-Korns KJG2-243. Die linke Aufnahme zeigt das Korn in seinem ursprünglichen Aussehen. Die mittlere Aufnahme wurde nach der ersten TOF-SIMS-Messung angefertigt. Die rechte Aufnahme entstand nach einem intensiven Ar-Snuttern

Korns ist ein Spalt zu erkennen, den das Korn in seiner ursprünglichen Form nicht zeigte. Der Helligkeitsunterschied zwischen der oberen und unteren Hälfte lässt aber vermuten, dass es sich nicht unbedingt um ein einzelnes Korn handelt.

	KJG2-243-O		KJG2-	-243-U	
	1. Messung	2. Messung	1. Messung	2. Messung	
$(^{12}CN/^{13}CN)$	$10 \pm 4$	$11 \pm 4$	$24 \pm 4$	$30 \pm 4$	
$(C^{14}N/C^{15}N)$	> 550	> 740	> 540	> 1300	
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0 [10^{-4}]$	$146 \pm 5$	$209 \pm 6$	$15 \pm 2$	$15 \pm 2$	
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+73 \pm 60$	$-15\pm57$	$+130 \pm 73$	$+240\pm80$	
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+72 \pm 58$	$+58 \pm 54$	$+135\pm67$	$+75 \pm 63$	
$\delta(^{46}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$+70 \pm 140$	$+100\pm140$	$-270\pm210$	$0 \pm 170$	
$\delta(^{47}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$+40 \pm 69$	$+70 \pm 70$	$+720\pm260$	$+50 \pm 120$	
$\delta(^{49}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$+110\pm110$	$+190\pm100$	$+840 \pm 310$	$+790 \pm 210$	
$\delta(^{50}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$+29 \pm 49$	$-4 \pm 49$	$+60\pm250$	$+180\pm120$	

Tabelle 5.17: Isotopenverhältnisse der SiC-Körner KJG2-243-O und -243-U.

Es wurden zwei TOF-SIMS-Messungen an diesem Korn durchgeführt. Zwischen diesen beiden Messungen wurden mit der Ar-Sputterquelle einige Nanometer des Korns abgetragen. Die SI-Verteilungsbilder der beiden TOF-SIMS-Messungen sind in der Abbildung 5.26 dargestellt. Man erkennt deutlich hohe Al- und Ca- sowie CN-Intensitäten im unteren Teil des Korns, sowie hohe <sup>26</sup>Mg- und Si-Werte im oberen Teil. Weiterhin sieht man oben heterogene Verteilungen von <sup>26</sup>Mg, Sc, Ti und V. Besonders auffällig ist die SI-Verteilung des Fe, die in der ersten Messung homogen ist, in der zweiten aber eine starke Anhäufung am oberen Rand zeigt, die mit einer Anhäufung in der SI-Verteilung des <sup>60</sup>Ni korreliert.

Der obere und untere Teil des Korns wurden daraufhin getrennt ausgewertet, indem von beiden Regionen verschiebungskorrigierte Spektren aus den Rohdaten rekonstruiert wurden. Diese Spektren wurden hinsichtlich der Isotopenverhältnisse und der Elementzusammensetzung ausgewertet. Zur Unterscheidung wurden die obere Region in KJG2-243-O und die untere in KJG2-243-U benannt. Die Ergebnisse der Spektrenauswertung finden sich in den Tabellen 5.17 bzw. 5.18. Die wichtigsten Ergebnisse sind im Folgenden beschrieben.

Im Bereich KJG2-243-O ergaben sich hohe initiale (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub>-Werte von 0,0146 bzw. 0,0209 für die erste bzw. zweite Messung und ein niedriger Al-Gehalt gegenüber dem Bereich KJG2-243-U, bei dem die (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub>-Werte bei 0,0015 für beide Messungen liegen. Die C-Isotopenverhältnisse der beiden Bereiche weisen ebenfalls starke Unterschiede auf. Im oberen Bereich liegt das <sup>12</sup>C/<sup>13</sup>C-Verhältnis etwa bei 10 und im unteren Bereich ungefähr bei 27. Diese Unterschiede legen den Schluss nahe, dass es sich um zwei verschieden Körner handelt, die nur zufällig direkt nebeneinander lagen oder während der Extraktion in Kontakt kamen und aneinander haften blieben. In der ursprünglichen Sekundärelektronenaufnahme in Abbildung 5.25 ist nicht sicher zu erkennen, ob es sich um zwei Körner handelt, der sichtbar gewordene Spalt spricht aber dafür.

Bei dem oberen Korn KJG2-243-O handelt es sich um ein SiC-B-Korn, was

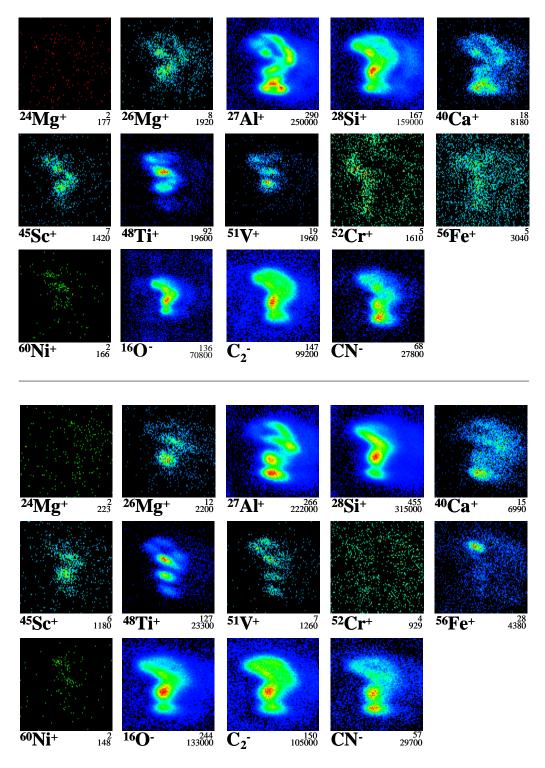


Abbildung 5.26: SI-Verteilungsbilder der ersten und zweiten Messung des SiC-Korns KJG2-243 mit einem Gesichtsfeld von 7  $\mu$ m × 7  $\mu$ m.

	KJG2-243-O		KJG2-243-U		
	1. Messung	2. Messung	1. Messung	2. Messung	
Li $[10^{-6}]$	$190 \pm 20$	$70 \pm 20$	$360 \pm 40$	$470 \pm 30$	
$Mg [10^{-6}]$	$24 \pm 8$	$5 \pm 2$	$60 \pm 20$	$22 \pm 11$	
Al $[10^{-3}]$	$110 \pm 1$	$41 \pm 1$	$401 \pm 2$	$166 \pm 1$	
Si	$\equiv 1$	$\equiv 1$	$\equiv 1$	$\equiv 1$	
$K [10^{-3}]$	$1,48 \pm 0,02$	$0,864 \pm 0,012$	$3,05 \pm 0,06$	$2,97\pm0,05$	
$Ca [10^{-3}]$	$1{,}77\pm0{,}04$	$0,\!41\pm0,\!02$	$7,3 \pm 0,2$	$2,62 \pm 0,08$	
$Sc [10^{-6}]$	$1940\pm70$	$470 \pm 30$	$640 \pm 70$	$290 \pm 40$	
$Ti [10^{-3}]$	$45,6 \pm 0,6$	$16,6 \pm 0,2$	$3,5 \pm 0,2$	$9,0 \pm 0,3$	
$V [10^{-6}]$	$3110\pm110$	$540 \pm 30$	$130 \pm 30$	$730 \pm 70$	
$Cr [10^{-6}]$	$610 \pm 40$	$65 \pm 10$	$570 \pm 70$	$200 \pm 40$	
Fe $[10^{-3}]$	$0,74 \pm 0,09$	$1,04 \pm 0,07$	< 0.63	< 0.59	
Cu $[10^{-6}]$	< 700	< 50	< 500		

Tabelle 5.18: Elementverhältnisse relativ zu Si für die SiC-Körner KJG2-243-O und -243-U.

durch das C-Isotopenverhältnis von  $^{12}\mathrm{C}/^{13}\mathrm{C}\approx 10$  mit einem N-Isotopenverhältnis von  $^{14}\mathrm{N}/^{15}\mathrm{N}>550$  eindeutig bestimmt ist. Das Korn KJG2-243-U lässt sich anhand seines C-Isotopenverhältnisses von  $^{12}\mathrm{C}/^{13}\mathrm{C}\approx 27$  den Mainstream-SiC-Körnern zuordnen. Auffällig beim Korn KJG2-243-U ist eine signifikante Anreicherung an  $^{49}\mathrm{Ti}$ , die wohl aus dem Beta-Zerfall von  $^{49}\mathrm{V}$  bzw.  $^{49}\mathrm{Cr}$  stammt. Dies ist äußerst ungewöhnlich, da man Anreicherungen an  $^{49}\mathrm{Ti}$  bisher nur in SiC-Körnern aus Supernovae also den SiC-X-Körnern fand. Das Mutternuklid  $^{49}\mathrm{V}$  bzw.  $^{49}\mathrm{Cr}$  kann nur im p-Prozess durch Protonenanlagerung oder Photodesintegration mit Neutronenabgabe produziert werden.

An diesen beiden Körnern zeigt sich der Vorteil der hohen Ortsauflösung von etwa  $0.3~\mu m$ , wodurch eine Unterscheidung und Einzeluntersuchung der direkt aneinander liegenden Körner möglich wurde. Bei DF-SIMS-Messungen mit Ortsauflösungen von  $1-5~\mu m$  ist eine Unterscheidung unmöglich, so dass nur eine Gesamtuntersuchung möglich ist, bei der man "gemittelte" Werte erhält.

## 5.5.2 KJG2-333

Durch die vorangegangenen DF-SIMS-Messungen ist beim Korn KJG2-333 mit einer ursprünglichen Größe von 2,7 µm viel Material abgetragen worden, dass nur noch – wie in Abbildung 5.27 zu sehen – zwei Bruchstücke vorliegen. Der entstandene Spalt ist auch in TOF-SIMS-Bildern (Absichtbar. bildung 5.28)

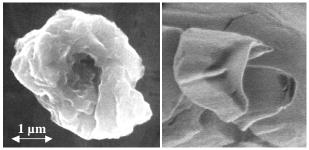


Abbildung 5.27: Die linke Aufnahme zeigt das ursprüngliche Korn (KJG2-333) mit einem Loch in der Ab- Mitte. Die rechte Aufnahme zeigt das Korn nach den Die DF-SIMS- und TOF-SIMS-Messungen.

Elementverteilungen innerhalb des Korns sind homogen. Es wurde ein verschiebungskorrigiertes Spektrum des gesamten Korns erstellt und ausgewertet. Die ermittelten Isotopen- und Elementverhältnisse sind in den Tabellen 5.19 und 5.20 angegeben.

Das C-Isotopenverhältnis von  $^{12}\mathrm{C}/^{13}\mathrm{C}=16\pm4$  schließt eine Zuordnung zu den SiC-A- und SiC-Y-Körnern aus. Die Si-Isotopenverhältnisse sprechen gegen eine Zuordnung zu den SiC-X-Körnern, so dass nur noch die SiC-B-, SiC-Z- und Mainstream-SiC-Körner bleiben, wobei die nicht signifikante Verarmung an  $^{29}\mathrm{Si}$  um 35 ‰ eine Zuordnung zu den SiC-Z-Körnern nahe legen würde. Aus den DF-SIMS-Messungen ergab sich ein Anreicherung an  $^{29}\mathrm{Si}$  von etwa 35 ‰, was eine Zuordnung zu den SiC-Z-Körnern ausschließt. Des Weiteren spricht das mit DF-SIMS gemessene C-Isotopenverhältnis von 10 für eine Zuordnung zu den SiC-B-Körnern.

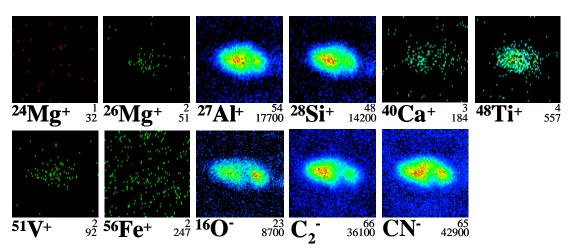


Abbildung 5.28: SI-Verteilungsbilder des SiC-Korns KJG2-333. Das Gesichtsfeld beträgt 5  $\mu m \times 5 \mu m$ .

Auffällig ist eine Anreicherung an <sup>49</sup>Ti um 1100 ‰, die signifikant vom solaren

	KJG2-333
$(^{12}CN/^{13}CN)$	$16 \pm 4$
$(C^{14}N/C^{15}N)$	> 500
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0 [10^{-4}]$	$27 \pm 5$
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$-35 \pm 90$
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+110 \pm 90$
$\delta(^{46}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$+350 \pm 250$
$\delta(^{47}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$-470 \pm 160$
$\delta(^{49}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$+1100\pm340$
$\delta(^{50}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$-180 \pm 200$

	KJG2-333
Li $[10^{-6}]$	$920 \pm 90$
$Mg [10^{-6}]$	$30 \pm 30$
Al $[10^{-3}]$	$152 \pm 2$
Si	$\equiv 1$
$K [10^{-3}]$	$1,39 \pm 0,07$
$Ca [10^{-3}]$	$0,63 \pm 0,07$
$Sc [10^{-6}]$	$230 \pm 70$
$Ti [10^{-3}]$	$8,9 \pm 0,5$
$V [10^{-6}]$	$820 \pm 140$
$Cr [10^{-6}]$	$180 \pm 70$
Fe $[10^{-3}]$	< 0.6
$Cu [10^{-6}]$	< 400

Tabelle 5.19: Isotopenverhältnisse des SiC-Korn KJG2-333.

Tabelle 5.20: Elementverhältnisse relativ zu Si für das SiC-Korn KJG2-333.

Wert abweicht. Eine solche Anreicherung, wie sie auch im Korn KJG2-243-U vorkommt, fand sich bisher sich ansonsten nur in den Supernovae-Körnern, SiC-X-Körner.

# 5.5.3 KJG2-415

In Abbildung 5.29 ist das
Korn KJG2-415 mit einer
Größe von 1,9 µm in seiner
ursprünglichen Form sowie
nach den SIMS-Messungen zu
sehen. Durch den starken Materialabtrag ist das Korn fast
vollständig zerstört. In den
SI-Verteilungen (Abbildung 5.29
KJG2-415 in seine
nahme zeigt das
rogenitäten. Die Al-Verteilung SIMS-Messungen.

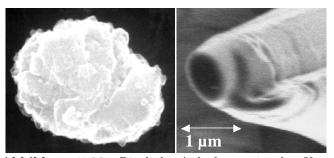


Abbildung 5.29: Die linke Aufnahme zeigt das Korn KJG2-415 in seiner ursprünglichen Form. Die rechte Aufnahme zeigt das Korn nach den DF-SIMS- und TOF-SIMS-Messungen.

ist deutlich breiter als die Silizium-Verteilung und weist auf der rechten Seite ein Maximum auf, während in der Silizium-Verteilung links ein Maximum zu erkennen ist. Es bestehen Korrelationen zwischen der Al-Verteilung und den Ca- und CN-Verteilungen. Die Elemente Sc, Ti und V korrelieren mit Si. Die Korrelation der Al- mit der CN-Verteilung lässt sich wieder mit dem Vorkommen des AlN in einer festen Lösung mit dem SiC erklären.

Die Isotopen- und Elementverhältnisse sind in den Tabellen 5.21 und 5.22 aufgeführt. Durch die C- und Si-Isotopenverhältnisse ( $^{12}\text{C}/^{13}\text{C} = 55 \pm 7$ ,  $\delta(^{29}\text{Si}/^{28}\text{Si}) = 53 \pm 62$  und  $\delta(^{30}\text{Si}/^{28}\text{Si}) = 17 \pm 62$ ) lässt sich eine Zuordnung

zu den SiC-A-, SiC-B und SiC-Y-Körnern bzw. den SiC-X und SiC-Z-Körner ausschließen. Es handelt sich also um ein Mainstream-SiC-Korn.

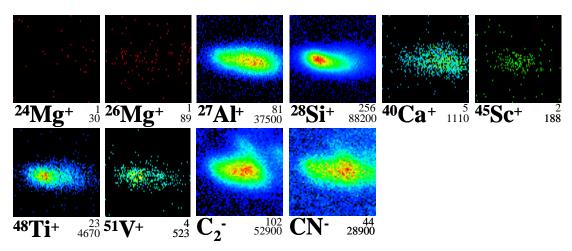


Abbildung 5.30: SI-Verteilungsbilder des SiC-Korns KJG2-415 mit einem Gesichtsfeld von 5  $\mu$ m × 5  $\mu$ m.

	KJG2-415
$\frac{(^{12}\text{CN}/^{13}\text{CN})}{}$	$55 \pm 7$
$(C^{14}N/C^{15}N)$	> 450
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0 [10^{-4}]$	$16 \pm 4$
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+53 \pm 62$
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+17 \pm 62$
$\delta(^{46}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$+100 \pm 150$
$\delta(^{47}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$-140 \pm 110$
$\delta(^{49}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$+170\pm120$
$\delta(^{50}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$+200\pm100$

Tabelle 5.21: Isotopenverhältnisse des SiC-Korn KJG2-415.

	KJG2-415
Li $[10^{-6}]$	$110 \pm 20$
$Mg [10^{-6}]$	$6 \pm 5$
Al $[10^{-3}]$	$31 \pm 1$
Si	$\equiv 1$
$K [10^{-3}]$	$0,33 \pm 0,01$
$Ca [10^{-3}]$	$0,19 \pm 0,02$
$Sc [10^{-6}]$	$230 \pm 30$
$Ti [10^{-3}]$	$11{,}7\pm0{,}3$
$V [10^{-6}]$	$1110\pm60$
$Cr [10^{-6}]$	$70 \pm 20$
Fe $[10^{-3}]$	< 0.2
Cu $[10^{-6}]$	< 60

Tabelle 5.22: Elementverhältnisse relativ zu Si für das SiC-Korn KJG2-415.

#### 5.5.4 KJG2-422-SiC

Das Korn KJG2-422-SiC lag nur wenige Mikrometer neben Korn KJG2-422-X und wurde aufgrund einer Verwechslung mit dem SiC-X-Korn KJG2-422 ebenfalls gemessen. Im linken Bild der Abbildung 5.31 sieht man, dass durch vorhergehende Messungen schon ein Teil des Korns abgetragen ist. Um was für Messungen es sich hierbei handelte, war leider nicht mehr zu ermitteln. Es liegen auf alle Fälle keine Daten von Messungen mit DF-SIMS von dem Korn vor, so dass kein Vergleich der Ergebnisse möglich ist. An den SI-Verteilungen in Abbildung 5.32 erkennt man, dass Al hauptsächlich in der Mitte des Korns zu finden ist, während Si mehr zum oberen Rand ein Maximum aufweist. Wie beim und der zweiten TOF-SIMS-Messung.

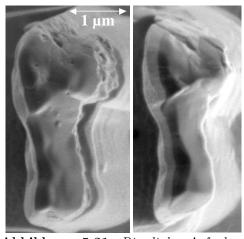


Abbildung 5.31: Die linke Aufnahme des Korn KJG2-422-SiC wurde nach der ersten TOF-SIMS-Messung gemacht. Die rechte Aufnahme zeigt das Korn nach intensivem Sputtern mit der Ar-Sputterquelle

2. Messung  $200 \pm 20$  $3 \pm 4$  $88 \pm 1$  $\equiv 1$  $1.08 \pm 0.02$  $0.58 \pm 0.03$  $290\pm30$  $10.7 \pm 0.2$  $560 \pm 40$  $70 \pm 20$ < 0.26 $2\,800 \pm 300$ 

Korn KJG2-415 findet man eine Korrelation des Al mit Ca und CN. Ti findet sich in einem sehr kleinem Bereich, dessen Ausdehnung möglicherweise durch die laterale Auflösung des Gerätes gegeben ist und tatsächlich wesentlich kleiner sein kann.

	KJG2-422-SiC			KJG2-4	22-SiC
	1. Messung	2. Messung		1. Messung	2. Me
$(^{12}CN/^{13}CN)$	$62 \pm 5$	$64 \pm 5$	 Li $[10^{-6}]$	< 15	200
$(C^{14}N/C^{15}N)$	> 1100	> 820	$Mg [10^{-6}]$	$18 \pm 4$	3 =
$(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0 [10^{-4}]$	$17 \pm 1$	$16 \pm 2$	Al $[10^{-3}]$	$64 \pm 1$	88 -
$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+89 \pm 54$	$+220 \pm 60$	Si	$\equiv 1$	≡
$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$	$+51 \pm 54$	$+92 \pm 58$	$K [10^{-3}]$	$0,124 \pm 0,004$	1,08
$\delta(^{42}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$+780 \pm 340$		$Ca [10^{-3}]$	$0,71\pm0,02$	0,58 =
$\delta(^{43}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$+10 \pm 660$		$Sc [10^{-6}]$	$260 \pm 40$	290
$\delta(^{44}\mathrm{Ca}/^{40}\mathrm{Ca})$	$+230\pm180$		$Ti [10^{-3}]$	$1,34 \pm 0,04$	10,7 =
$\delta(^{46}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$-130\pm170$	$+110\pm150$	$V [10^{-6}]$	$150 \pm 10$	560
$\delta(^{47}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$-150\pm110$	$+61 \pm 91$	$Cr [10^{-6}]$	$10 \pm 5$	70 :
$\delta(^{49}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$+120\pm150$	$+110\pm120$	Fe $[10^{-3}]$	$0,20 \pm 0,03$	< 0
$\delta(^{50}\mathrm{Ti}/^{48}\mathrm{Ti})$	$+80 \pm 120$	$+120 \pm 80$	 Cu $[10^{-6}]$	< 20	2 800

Tabelle 5.23: Isotopenverhältnisse des SiC-Korn KJG2-422-SiC.

Tabelle 5.24: Elementverhältnisse relativ zu Si des SiC-Korn KJG2-422-SiC.

Zur Verifizierung der Heterogenität wurde eine zweite Messung durchgeführt, nachdem mit der Ar-Sputterquelle, wie in Abbildung 5.31 zu sehen, ein Großteil des Korns abgetragen wurde. Die Ergebnisse der zweiten Messung zeigen die gleichen Heterogenitäten bzgl. Al, Ca und CN. Das Maximum der Ti-Verteilung liegt nun im rechten, unteren Teil des Korns.

Die Isotopenverhältnisse von C und Si ( $^{12}$ C/ $^{13}$ C  $\approx 63$ ,  $\delta(^{29}$ Si/ $^{28}$ Si) =  $89 \pm 54$  bzw.  $216 \pm 62$  und  $\delta(^{30}$ Si/ $^{28}$ Si) =  $51 \pm 54$  bzw.  $92 \pm 58$ ) legen eine Zuordnung zu den Mainstream-SiC-Körnern nahe. Des Weiteren sind die Gehalte an Li, K, Ti, V, Cr und Cu deutlich gestiegen. Auffälligkeiten bei den Isotopen- (Tabelle 5.23) und Elementverhältnissen (Tabelle 5.24) sind ansonsten nicht zu entdecken.

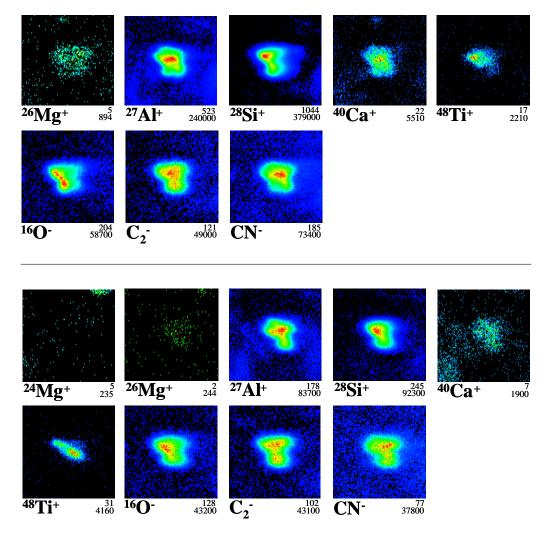


Abbildung 5.32: SI-Verteilungsbilder der ersten und zweiten TOF-SIMS-Messung des SiC-Korns KJG2-422-SiC. Das Gesichtsfeld beträgt für beide Messungen  $7 \mu m \times 7 \mu m$ .

# 5.5.5 Vergleich der TOF-SIMS- und DF-SIMS-Ergebnisse

In Tabelle 5.25 sind die mit DF-SIMS ermittelten Werte mit den Ergebnissen der TOF-SIMS-Messungen verglichen. Bei den Si-Isotopenverhältnissen sieht man im Rahmen der Fehler eine Übereinstimmung mit den TOF-SIMS-Ergebnissen. Auch die C-Isotopenverhältnisse stimmen gut überein. Für Korn KJG2-422-X ist nur eine untere Grenze für das C-Isotopenverhältnis zu ermitteln, da zu wenig <sup>13</sup>C in dem Korn vorhanden ist. Bei den N-Isotopenverhältnissen ist ein Vergleich nur für das SiC-X-Korn KJG2-422-X möglich, bei dem sich eine Übereinstimmung findet. Da mit TOF-SIMS Isotopenverhältnisse von Nebenelementen mit Verhältnissen größer 100 kaum gemessen werden können, ist eine Bestimmung der N-Isotopenverhältnisse für die übrigen Körner nicht möglich.

Größere Unterschiede finden sich bei den Werten für (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub> und dem Al-Gehalt. Für den Al-Gehalt scheint durch TOF-SIMS eine leichte Überschätzung zu entstehen, wie man an den Werten für die Körner KJG2-243, -333 und -422-X sehen kann, was eventuell auf die Verwendung von Empfindlichkeitsfaktoren, die an Glasstandards ermittelt wurden, zurückgeführt werden kann. Beim Korn KJG2-415 scheint Al zu fehlen, was wahrscheinlich auf den großen Materialabtrag durch die vorhergehenden Messungen zurückzuführen ist. Es ist nur noch der untere Randbereich des Korns vorhanden, in dem Al durch die Säurebehandlung während der Extraktion verloren gegangen sein könnte. Ein solcher Effekt wurde schon von Stephan et al. (1997) beschrieben. Als Folge des Al-Verlustes erhöht sich der Wert für das initiale  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis, da das  $^{26}\text{Mg}$  anscheinend nicht bzw. kaum beeinflusst wird (wie bei den Tiefenprofilen für die SiC-X-Körner, Abbildungen 5.5 und 5.11, zu sehen). Die initialen (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)-Verhältnisse der Körner KJG2-333 und -422-X stimmen mit den DF-SIMS-Werten gut überein, während bei den Körnern KJG2-243-O und KJG2-243-U kein Vergleich möglich ist. Der DF-SIMS-Wert für dieses Korn ist eine "Mittelung" der Werte für die beiden Körner KJG2-243-O und KJG2-243-U.

	$\delta(^{29}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$		$\delta(^{30}\mathrm{Si}/^{28}\mathrm{Si})$		
Korn	DF-SIMS	TOF-SIMS	DF-SIMS	TOF-SIMS	
KJG2-243-O	+ 46.0	$+73 \pm 60$	+ 25.0	$+72 \pm 58$	
KJG2-243-U	+46,9	$+130 \pm 73$	+35,9	$+135 \pm 67$	
KJG2-333	+35,3	$-35 \pm 90$	+4,6	$+110 \pm 90$	
KJG2-415	+70,4	$+53 \pm 62$	+61,4	$+17 \pm 62$	
KJG2-422-SiC		$+89 \pm 54$		$+51 \pm 54$	
KJG2-422-X	-376	$-369 \pm 64$	-585	$-517\pm70$	

	<sup>12</sup> C	$^{\rm C/^{13}C}$	$^{14}{ m N}/^{15}{ m N}$		
Korn	DF-SIMS	TOF-SIMS	DF-SIMS	TOF-SIMS	
KJG2-243-O	E 0	$10 \pm 4$	4612	> 550	
KJG2-243-U	5,8	$24 \pm 4$	4012	> 540	
KJG2-333	10,1	$16 \pm 4$	2955	> 500	
KJG2-415	48,2	$55 \pm 7$	1348	> 450	
KJG2-422-SiC		$62 \pm 5$		> 1100	
KJG2-422-X	1135	> 141	18,1	$19 \pm 3$	

	$(^{26}\text{Al}/^{27})$	$(Al)_0 [10^{-4}]$	Al/Si $[10^{-3}]$		
Korn	DF-SIMS	TOF-SIMS	DF-SIMS	TOF-SIMS	
KJG2-243-O	35	$146 \pm 5$	92	$110 \pm 1$	
KJG2-243-U	39	$15 \pm 2$	92	$401 \pm 2$	
KJG2-333	20	$27 \pm 5$	81	$152 \pm 2$	
KJG2-415	2	$16 \pm 4$	123	$31 \pm 1$	
KJG2-422-SiC		$17 \pm 1$		$64 \pm 1$	
KJG2-422-X	2000	$2250 \pm 50$	47	$80 \pm 1$	

Tabelle 5.25: Ein Vergleich der in St. Louis ermittelten Werte mit den TOF-SIMS-Ergebnissen. Für die Körner KJG2-243-O und 243-U existiert nur ein Vergleichswert, da mit der geringeren lateralen Auflösung bei DF-SIMS-Messungen nicht zwischen diesen beiden Körnern unterschieden werden konnte. Bei den Körner, an denen zwei TOF-SIMS-Messungen durchgeführt wurden, sind in diesem Vergleich die Ergebnisse der jeweils ersten Messung aufgeführt. Die Al-Gehalte, die mit DF-SIMS ermittelt wurden, sind zum besseren Vergleich in Elementverhältnisse relativ zu Silizium umgerechnet worden. Hierbei wurden nur die Hauptelemente der Körner – Si, C, Al und N – berücksichtigt.

# Kapitel 6

# Diskussion

Es wurden insgesamt 13 präsolare SiC-Körner untersucht mit Größen im Bereich von 1–3,5 µm. Mit einer Dichte von  $\rho=3,15~{\rm gcm^{-3}}$  ergeben sich für diese Körner Massen im Bereich von  $1\times 10^{-11}$  bis  $6\times 10^{-10}$  g. Die untersuchten Massen einer einzelnen Messung liegen bei nur etwa  $1\times 10^{-14}$  g. Der Materialverbrauch ist also verschwindend gering und fast das komplette Korn steht für weitere Messungen zur Verfügung.

Es wurden für alle untersuchten präsolaren SiC-Körner die relativen Häufigkeiten von Li, Mg, Al, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Fe und Cu zu Si unter Verwendung der Empfindlichkeitsfaktoren aus Stephan (2001) bestimmt. Die ermittelten Werte finden sich in tabellarischer Form in den Abschnitten zu den einzelnen Körnern. Im nächsten Abschnitt folgt ein Vergleich der Elementverhältnisse für alle Körner.

Für möglichst viele der gemessenen Elemente wurde weiterhin versucht, die Isotopenverhältnisse zu bestimmen. Bei einigen Elementen war dies aufgrund der zu geringen SI-Intensitäten aber nicht möglich. Es konnten für fast alle Körner die C-, N-, Si- und ( $^{26}$ Al/ $^{27}$ Al)-Isotopenverhältnisse bestimmt werden. Bei einigen Körner konnten zudem noch die Isotopenverhältnisse für K, Ca und Ti sowie in seltenen Fällen für S, Cl, Cr und Fe bestimmt werden. Tabellarische Auflistungen finden sich ebenfalls in den Textabschnitten zu den einzelnen Körner und ein Vergleich für alle Körner folgt in den Abschnitten 6.2 bis 6.4.

Durch die Bestimmung der C-, N- und Si-Isotopenverhältnisse war eine Zuordnung der präsolaren SiC-Körner zu den bekannten Gruppierungen möglich:

- Drei Körner 177-1, 480-3 und KJG2-422-X mit  $^{28}$ Si-Anreicherungen und niedrigen  $^{14}$ N/ $^{15}$ N-Verhältnissen sind demnach SiC-X-Körner, die nach gängigen Modellen von Supernovae stammen.
- Sieben Körner SiC 1, SiC 2, SiC 4, SiC 5, KJG2-243-U, KJG2-415 und KJG2-422-SiC mit <sup>12</sup>C/<sup>13</sup>C-Verhältnissen zwischen 15 und 100 gehören zu den Mainstream-SiC-Körnern, für die man AGB-Sterne als Ursprungssterne annimmt.

• Drei Körner – SiC 3, KJG2-243-O und KJG2-333 – mit <sup>12</sup>C/<sup>13</sup>C-Verhältnissen zwischen 3,5 und 15 gehören der Gruppe der SiC-B-Körner an, für die eine Entstehung in massearmen Sternen des J-Typs vorgeschlagen wurde.

Bei drei Körnern ist diese Zuordnung aufgrund weiterer gemessener Daten zumindestens fraglich. Hierauf wird im Abschnitt 6.5 dieser Zusammenfassung näher eingegangen.

Bei der Untersuchung fanden sich in sieben Körnern – 480-3, SiC 1, SiC 4, SiC 5, KJG2-243-O, KJG2-415 und KJG422-SiC – Heterogenitäten in der Al-Verteilung innerhalb der Körner. Al liegt in den SiC-Körnern in Form von AlN in "fester Lösung" mit einem Al-Gehalt relativ zu Si im Bereich von einigen Atom-Prozent vor. Bei einigen dieser Körner finden sich in weiteren Elementverteilungen (Mg, Ca, Sc, Ti, V, Fe) ebenfalls Heterogenitäten. Das (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub>-Isotopenverhältnis in den SiC-X-Körnern 177-1 und 480-3 weist gleichfalls heterogene Verteilungen auf, lateral bzw. tiefenabhängig.

# 6.1 Vergleich der Elementverhältnisse

In den Abbildungen 6.1 bis 6.9 sind Vergleiche der Elementverhältnisse aller gemessener präsolarer SiC-Körner für alle Messungen zu finden, die in den nächsten Absätzen im Einzelnen besprochen werden. Die Elementverhältnisse sind immer relativ zu Si angegeben. Für alle Darstellungen wurde das gleiche Farbschema verwendet. Die Tieschitz SiC-Körner sind rot dargestellt, das SiC-X-Korn 177-1 in Magenta und das SiC-X-Korn 480-3 in Orange. Die Murchison SiC-Körner sind blau abgebildet und das SiC-X-Korn KJG2-422-X in Cyan. Man kann damit leicht die Meteorite, aus denen die Körner stammen, unterscheiden: Die rötlichen Farben zeigen Körner aus Tieschitz und die bläulichen die Körner aus Murchison.

Man erkennt in Abbildung 6.1, dass die relativen Elementverhältnisse in den präsolaren SiC-Körnern für alle Elemente um 2–3 Dekaden variieren. Für Mg findet man sogar eine Variation von 5 Größenordnungen. Nach den Hauptelementen Si und C ist Al das zweithäufigste Element, was sich durch das Vorkommen als AlN erklären lässt. Auffällig sind die hohen relativen Häufigkeiten von Mg, K und Ca und die niedrigen von Sc, Ti und V der Tieschitz-Körner im Vergleich zu den Murchison-Körner, bei denen dies umgekehrt ist, niedrige relative Häufigkeiten von Mg, K und Ca sowie hohe von Sc, Ti und V.

Für alle Elementverhältnisse wurden – getrennt für die beiden Meteorite, aus denen die Körner extrahiert wurden – die Korrelationskoeffizienten bestimmt. Für die Tieschitz-Körner sind diese in Tabelle 6.1 und für die Murchison-Körner in Tabelle 6.2 aufgeführt.

Bei den Tieschitz-Körner zeichnet sich ein Trend zwischen den Elementverhältnissen für Li, Mg, K und Ca sowie Al ab, wobei die Korrelationskoeffizienten zwischen 0,49 und 0,81 liegen. Eine eindeutigere Korrelation besteht zwi-

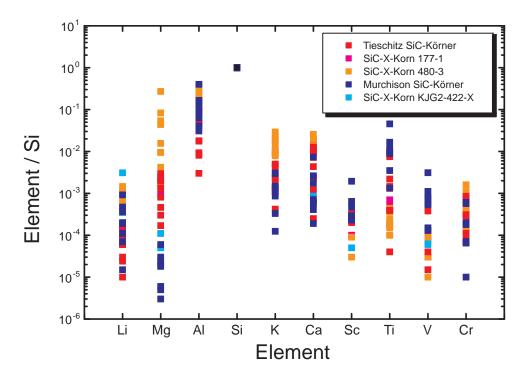


Abbildung 6.1: Aufgetragen sind die relativen Elementverhältnisse zu Si für alle TOF-SIMS-Messungen.

	Li	Mg	Al	K	Ca	$\operatorname{Sc}$	Ti	V
Li	1	0,32	0,66	0,44	0,27	0,10	0,55	0,02
Mg	$0,\!57$	1	$0,\!48$	$0,\!27$	$0,\!24$	0,03	$0,\!51$	0,05
Al	0,81	0,69	1	0,63	$0,\!50$	0,15	0,48	$0,\!59$
K	0,67	$0,\!52$	0,79	1	0,40	0,13	$0,\!59$	$0,\!26$
Ca	$0,\!52$	0,49	0,71	0,63	1	0,18	0,30	0,11
$\operatorname{Sc}$	-0.74	-0,72	-0,69	-0,77	-0,55	1	0,80	0,80
Ti	-0.32	-0.18	-0.38	-0.36	-0,42	0,90	1	0,68
V	-0,13	-0,23	-0,25	-0,51	-0,32	0,89	0,82	1

Tabelle 6.1: Korrelationskoeffizienten und deren Quadrate für die Elementverhältnisse der Tieschitz-Körner. Unterhalb der Diagonalen sind die Korrelationskoeffizienten und oberhalb deren Quadrate angegeben, die ein Maß dafür sind, in wie weit die Varianz des einen Elements mit der des anderen erklärt werden kann.

	Li	Mg	Al	K	Ca	Sc	Ti	V
Li	1	0,73	0,00	0,94	0,00	0,02	0,09	0,07
Mg	0,85	1	$0,\!12$	0,78	0,09	0,00	0,14	0,11
Al	0,03	$0,\!35$	1	0,00	0,92	0,02	0,02	0,02
K	0,97	0,88	0,06	1	0,00	0,01	0,08	0,08
Ca	-0.05	$0,\!30$	0,96	0,04	1	0,06	0,00	0,01
$\operatorname{Sc}$	-0,16	-0,07	$0,\!15$	-0,10	$0,\!24$	1	0,81	0,93
Ti	-0,31	-0,38	-0,15	-0,29	-0,07	0,90	1	0,75
V	-0,26	-0.34	-0.15	-0,28	-0,09	0,96	0,87	1

Tabelle 6.2: Korrelationskoeffizienten und deren Quadrate für die Elementverhältnisse der Murchison-Körner.

schen den Elementverhältnissen für Sc, Ti und V, die Korrelationskoeffizienten zwischen 0,82 und 0,90 aufweisen. Diese beiden Gruppen sind nicht miteinander korreliert, sondern ein schwache Antikorrelation deutet sich an.

Für die Murchison-Körner lassen sich drei Gruppen unterscheiden. Zum einen besteht eine starke Korrelation zwischen den Elementverhältnissen von Li, Mg und K mit Werten zwischen 0,85 und 0,97 und zum anderen zwischen Al und Ca mit einem Wert von 0,96. Die dritte Gruppe wird wieder von den Elementen Sc, Ti und V gebildet, die Korrelationskoeffizienten zwischen 0,87 und 0,96 aufweisen.

In Abbildung 6.2 ist der Li-Gehalt gegen den Al-Gehalt aufgetragen. Man erkennt einen schwachen Trend steigender Li-Gehalte mit steigenden Al-Gehalten, wobei sich die Tieschitz SiC-Körner mit niedrigeren Li- und Al-Gehalten von den übrigen Körnern etwas abheben.

In Abbildung 6.3 ist der Mg- gegen den Al-Gehalt aufgetragen. Man kann sehr deutlich die Murchison-Körner von den Tieschitz-Körnern unterscheiden. Die Tieschitz-Körner besitzen eine größere Variation im Al-Gehalt von 0,3 bis 40 % mit einem um zwei Größenordnungen höheren Mg/Ti-Verhältnis. Der Al-Gehalt der Murchison-Körner variiert zwischen 3 und 40 %.

Ein ähnliches Verhalten findet sich beim Auftrag des K-Gehaltes gegen den Al-Gehalt in Abbildung 6.4. Man kann mit Ausnahme des SiC-X-Korns KJG2-422-X die Murchison Körner fast wieder von den Tieschitz Körnern trennen. Die Tieschitz-Körner zeigen ein höheres K/Al-Verhältnis, wobei der Unterschied etwa eine Größenordnung beträgt.

Beim Ca/Al-Verhältnis zeigt sich wieder das gleiche Ergebnis wie beim Mg/Al-Verhältnis. Die Tieschitz-Körner haben ein etwa zwei Größenordnungen höheres Ca/Al-Verhältnis als die Murchison-Körner, wie aus Abbildung 6.5 zu sehen ist. Die Körner der beiden Meteorite sind wieder sehr gut voneinander getrennt.

In Abbildung 6.6 ist der Cr-Gehalt gegen den Al-Gehalt aufgetragen. Es lässt sich kein eindeutiger Trend feststellen, da der Cr-Gehalt unabhängig vom Al-Gehalt für alle Körner variiert.

Bei der Auftragung des Ti- gegen den Al-Gehalt in Abbildung 6.7 ergibt sich kein eindeutiger Trend, aber die verschiedene Gruppen von präsolaren SiC-Körnern lassen sich unterscheiden. Die SiC-X-Körner liegen im rechten unteren Bereich mit niedrigen Ti/Al-Verhältnissen bei gleichzeitig hohen Al-Gehalten. Die Tieschitz-SiC-Körner weisen niedrige Al- und mittlere Ti-Gehalte auf und liege daher im linken Bereich der Abbildung. Die Murchison-SiC-Körner haben sowohl hohe Ti- als auch Al-Gehalte und liegen daher im rechten, oberen Bereich.

Für den Ti-Gehalt finden sich – getrennt für die beiden Ursprungsmeteoriten – Korrelationen mit dem Sc- und V-Gehalt (Abbildungen 6.8 und 6.9). In beiden Abbildungen heben sich die Murchison-SiC-Körner dadurch hervor, dass sie die höchsten Sc-, Ti- und V-Gehalte aufweisen.

### Zusammenfassung

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sich die präsolaren Körner bezüglich der Li-, Mg-, Al-, K- und Ca-Elementverhältnisse nach ihrem Herkunftsmeteoriten unterscheiden und nicht nach ihrer Stern-Abstammung – Supernovae, AGB-Sterne etc. In den Körnern liegt stellares AlN als feste Lösung vor, das durch die Säure-Extraktion gelöst werden kann (Stephan et al., 1997). Auf der angelösten Oberfläche könnte sich meteoritisches Material wieder anlagern. Dies würde die Trends bei den Elementen Li, Mg, K und Ca erklären, deren relative Häufigkeiten mit denen des Al steigen. Für die Tieschitz-Körner sind diese Anlagerungen an meteoritischem Mg und Ca deutlich höher, was auf etwas unterschiedliche Vorgänge, bei denen dies geschieht, schließen lässt. Dies spricht dafür, dass es bei der Säureextraktion passiert und nicht schon während der Entstehung unseres Sonnensystems oder davor. Die Säureextraktionen waren für die Tieschitz- und Murchison-Körner unterschiedlich, da man versuchte bei den Tieschitz-Körnern etwas vorsichtiger vorzugehen, um auch oxidische, präsolare Phasen zu finden. Durch den vorsichtigeren Einsatz von Säuren war die Säuberung der präsolaren Tieschitz-Körner nicht so effektiv wie bei den Murchison-Körnern, so dass die Beimischungen an Meteoritenmaterial höher ausfielen, wie man an den relativen Mg- und Ca-Häufigkeiten sehen kann.

Für die Elemente Sc, Ti und V ist keine Korrelation mit Al zu finden sowie keine Unterscheidung bezüglich der Herkunftsmeteoriten möglich. Die SiC-X-Körner, die aus Supernovae stammen, grenzen sich von den übrigen SiC-Körnern ab. Diese Elemente liegen also nicht im AlN sondern in einer eigenen Phase oder dem SiC selbst vor. Da SiC eine sehr dichte Packung bildet, in der kein Platz für Fremdatome ist, muss es sich um eine eigene Phase handeln, in der Sc, Ti ud V vorliegen. Hierfür sprechen auch die SI-Verteilungen für Ti, die bei einigen Körnern – SiC 3, KJG2-243-O, -243-U und -422-SiC – Subbereiche aufweist, in denen das Ti vorliegt. Es könnte sich hierbei um kleine TiC-Körner innerhalb der SiC-Körner handeln, denn solche TiC-Körner sind schon als Kondensationskeime in SiC- und Graphit-Körnern gefunden worden (Bernatowicz et al., 1991).

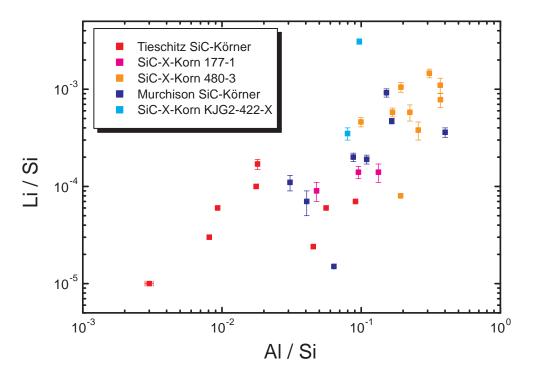


Abbildung 6.2: Aufgetragen ist der Li- gegen den Al-Gehalt, bei denen ein schwacher Trend zu sehen ist.

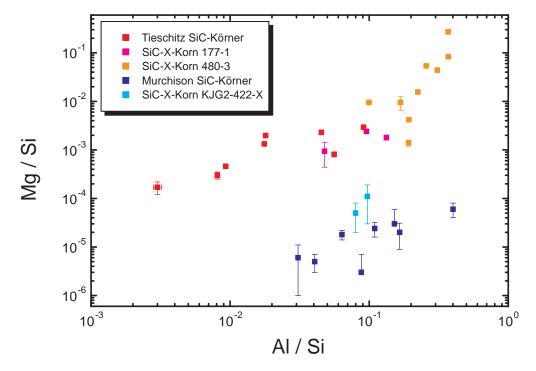


Abbildung 6.3: Bei der Auftragung des Mg- gegen den Al-Gehalt ist für beide Ursprungsmeteorite jeweils eine Korrelation zu sehen. Man kann die Tieschitz-Körner mit hohen Mg/Al-Verhältnissen sehr gut von den Murchison-Körnern mit niedrigen Mg/Al-Verhältnissen unterscheiden.

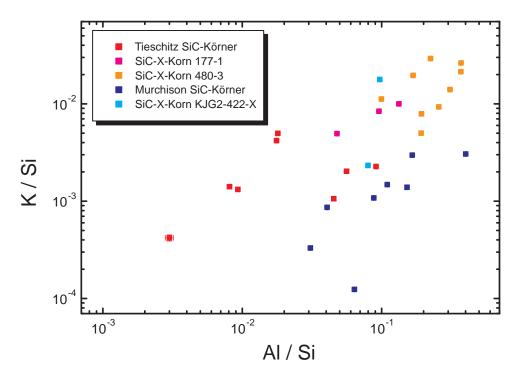


Abbildung 6.4: Aufgetragen ist der K- gegen den Al-Gehalt, wobei sich für die Tieschitz-Körner eine Korrelation zwischen diesen ergibt.

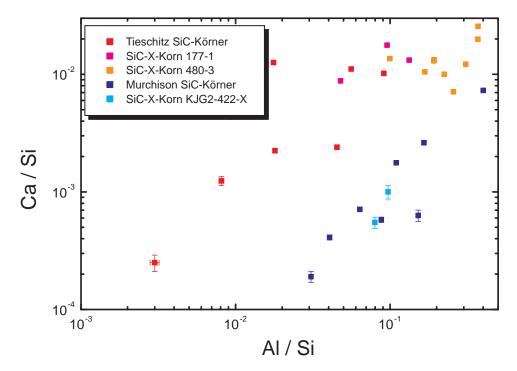


Abbildung 6.5: Aufgetragen ist der Ca- gegen den Al-Gehalt, bei denen eine deutliche Korrelation vor allem für die Murchison-Körner zu sehen ist. Außerdem lassen sich die Murchison- und Tieschitz-Körner gut von einander unterscheiden.

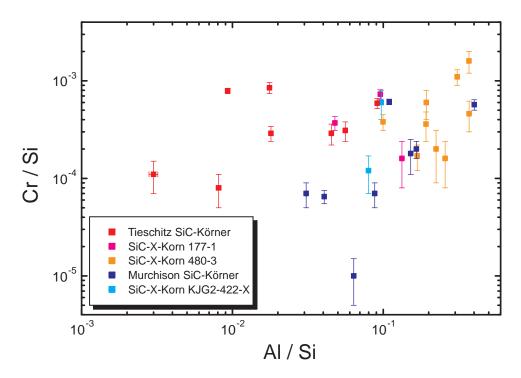


Abbildung 6.6: Für Cr ist keine Korrelation mit Al auszumachen.

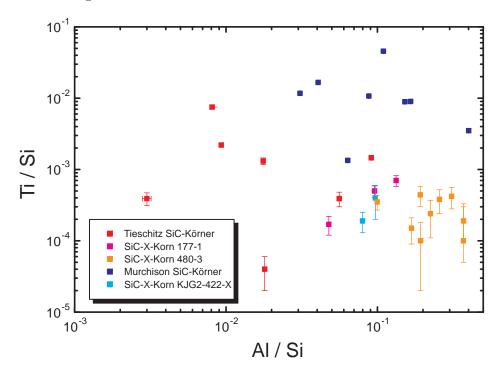


Abbildung 6.7: Bei der Auftragung des Ti- gegen den Al-Gehalt ist keine Korrelation zu sehen. Man kann aber drei Gruppen unterscheiden: Die SiC-X-Körner mit niedrige Ti/Al-Verhältnissen, die Tieschitz-Körner mit hohen Ti/Al-Verhältnissen und niedrigen Gehalten dieser beiden Elemente sowie die Murchison-Körner mit dem gleichen Ti/Al-Verhältnissen wie die Tieschitz-Körner, aber höhere Gehalten dieser beiden Elemente.

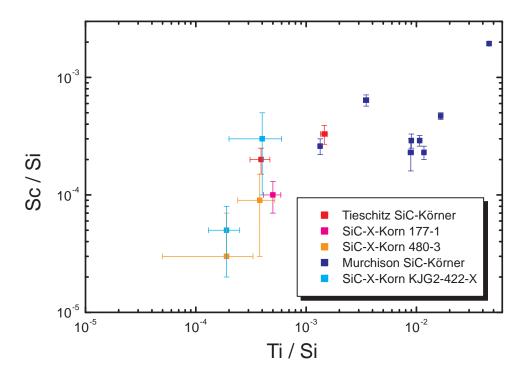


Abbildung 6.8: Zwischen dem Ti- und Sc-Gehalt ergibt sich jeweils für die Tieschitz- und Murchison-Körner eine Korrelation.

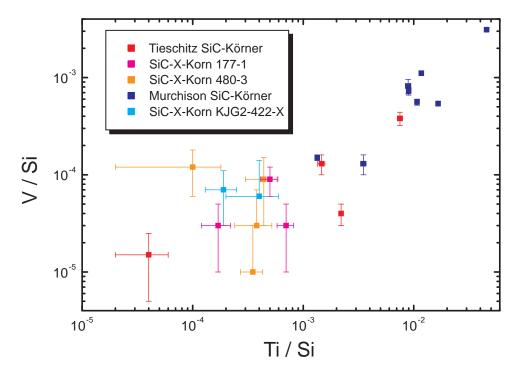


Abbildung 6.9: Der V-Gehalt korreliert ebenfalls mit dem Ti-Gehalt.

### 6.2 C- und N-Isotopenverhältnisse

Die C- und N-Isotopenverhältnisse, die bestimmt werden konnten und in Abbildung 6.10 dargestellt sind, liegen in den schon aus früheren Veröffentlichungen bekannten Bereichen (siehe z.B. Zinner, 1998a). Es konnten sowohl für C als auch für N nur Isotopenverhältnisse kleiner als  $\approx 150$  bestimmt werden, da das seltenere Isotop bei größeren Isotopenverhältnissen zu wenig Intensität in den gemessenen Spektren aufweist und eine Peakentfaltung nicht mehr möglich ist. Bei den SiC-X-Körnern konnten fast nur die N-Isotopenverhältnisse bestimmt werden und diese weisen die typischen, niedrigen  $^{14}$ N/ $^{15}$ N-Werte auf. Bei den präsolaren SiC-Körnern, die keine SiC-X-Körner sind, konnten die C-Isotopenverhältnisse gut bestimmt werden, aber mit einer Ausnahme keine N-Isotopenverhältnisse. Die ermittelten Werte liegen in den für diese präsolaren SiC-Körner typischen Bereichen (vergleiche Abbildung 4.2).

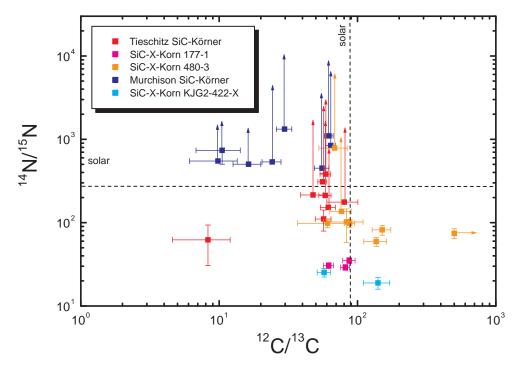


Abbildung 6.10: Aufgetragen ist das <sup>14</sup>N/<sup>15</sup>N-Verhältnis gegen das <sup>12</sup>C/<sup>13</sup>C-Verhältnis für alle durchgeführten Messungen. Für Werte größer als etwa 150 bis 200 konnten nicht exakt bestimmt werden, da das seltenere Isotop eine zu geringe Intensität aufweist. Die ermittelten Werte sind als untere Grenzen angegeben und durch Pfeile statt der Fehlerbalken angedeutet.

## 6.3 Si-Isotopenverhältnisse

In Abbildung 6.11 ist ein 3-Isotopen-Diagramm für Silizium für alle gemessenen Körner dargestellt. Wie von früheren Veröffentlichungen (siehe Abbildung 4.3) bekannt, liegen die SiC-X-Körner im linken, unteren Quadranten mit Verarmungen an <sup>29</sup>Si und <sup>30</sup>Si. Die Punkte liegen meist oberhalb der gestrichelten Linie, die eine Anreicherung an reinem <sup>28</sup>Si darstellt. Die restlichen Körner liegen mit Ausnahme von Korn KJG2-333 im rechten oberen Quadranten. Aufgrund der großen Messfehler lässt sich aber nicht reproduzieren, ob es hierbei bestimmte Korrelationen gibt, wie sie in früheren Veröffentlichungen gezeigt wurden, wie die Korrelation mit einer Steigung von 1,34, die die galaktische Evolution widerspiegelt (Timmes und Clayton, 1996).

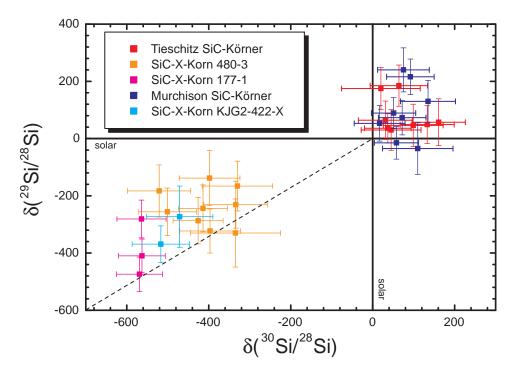


Abbildung 6.11: Aufgetragen sind die  $\delta$ -Werte für <sup>29</sup>Si gegen <sup>30</sup>Si. Im linken unteren Quadranten liegen die SiC-X-Körner mit Verarmungen an <sup>29</sup>Si und <sup>30</sup>Si. Im oberen rechten Quadranten liegen alle übrigen SiC-Körner, die anhand der Si-Isotopie nicht bezüglich ihrer Untergruppen unterschieden werden können.

### 6.4 Al-Isotopenverhältnisse

Bei den SiC-X-Körner ergibt sich ein Trend zwischen dem  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis und den Verarmungen an  $^{29}\text{Si}$  und  $^{30}\text{Si}$ , wenn man das  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis gegen die δ-Werte der Si-Isotopenverhältnisse aufträgt (Abbildungen 6.13 und 6.14). Diese Antikorrelation – mit einem relativ niedrigem Korrelationskoeffizienten von -0,64 in beiden Fällen – ließe sich durch Beimischungen von Al und Si mit solaren Isotopenverhältnissen erklären. Würde es sich um eine solche Beimischung solaren Materials handeln, sollte das  $^{14}\text{N}/^{15}\text{N}$ -Isotopenverhältnis mit abnehmendem  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis zum solaren Wert wandern. Dies ist aber nicht der Fall, sondern das  $^{14}\text{N}/^{15}\text{N}$ -Isotopenverhältnis bleibt konstant bzw. wird noch kleiner (Abbildung 6.12). Außerdem ist eine deutliche Trennung der Körner 177-1 und KJG2-422-X vom Korn 480-3 zu sehen. Für die SiC-X-Körner 177-1 und KJG2-422-X ist eine Korrelation des  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnisses mit dem  $^{14}\text{N}/^{15}\text{N}$ -Verhältnis zu sehen, die einen Korrelationskoeffizienten von 0,80 aufweist.

Die Bildung von zwei "Gruppen" bei den SiC-X-Körnern spricht dafür, dass diese unterschiedliche Ursprungssterne haben. Die unterschiedlichen Werte für die  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ - und  $^{14}\text{N}/^{15}\text{N}$ -Isotopenverhältnisse könnten durch unterschiedliche Massen der Ursprungssterne hervorgerufen werden, wodurch unterschiedlich viel  $^{26}\text{Al}$  und  $^{14}\text{N}$  in der äußeren Schicht beim H-Brennen produziert wird.

Für die Körner 177-1 und KJG2-422-X widersprechen sich die Korrelation des  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnisses mit dem  $^{14}\text{N}/^{15}\text{N}$ -Verhältnis und die – wenn auch schwachen – Antikorrelationen des  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnisses mit den SiIsotopenverhältnissen. Der Hauptproduktionsort für  $^{26}\text{Al}$  ist das H-Brennen in den äußeren Schichten, bei dem  $^{15}\text{N}$  vernichtet wird, so dass man sehr hohe  $^{14}\text{N}/^{15}\text{N}$ -Verhältnisse erhält. Dieses Material muss mit Material aus den inneren Schichten vermischt werden, bei dem im O- bzw. Si-Brennen Anreicherungen an  $^{28}\text{Si}$  mit gleichzeitig niedrigen  $^{14}\text{N}/^{15}\text{N}$ - und  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnissen produziert werden. Bei einer Mischung ergibt sich daher eine Korrelation des  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnisses mit dem  $^{14}\text{N}/^{15}\text{N}$ -Verhältnis, denn je mehr Material aus der äußeren Schicht beigemischt wird, desto höher sind diese beiden Verhältnisse. Die Anreicherungen an  $^{28}\text{Si}$  sollten hierbei niedriger werden. Die Messwerte in den Abbildungen 6.13 und 6.14 sprechen aber eher dagegen.

Eine weitere Erklärungsmöglichkeit für eine Korrelation der (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub>- mit den Si-Isotopenverhältnissen ist eine gemeinsame Produktion von <sup>26</sup>Al mit <sup>28</sup>Si, wie es beim beim C- und Ne-Brennen vorkommt. Neben dem <sup>28</sup>Si wird allerdings auch <sup>29</sup>Si und <sup>30</sup>Si produziert und erst beim O- oder Si-Brennen kommt es zu Anreicherungen an <sup>28</sup>Si gegenüber dem solaren Wert, wie sie beobachtet wurden. Es wäre daher eine Mischung des Si aus den O- und Si-Brenn-Schichten mit dem Al aus den C- und Ne-Brenn-Schichten nötig, um die Zusammensetzung der Körner zu erklären. Dies erscheint allerdings nicht sehr wahrscheinlich und außerdem ist das C/O-Verhältnis in diesen Schichten deutlich kleiner als 1. Wie

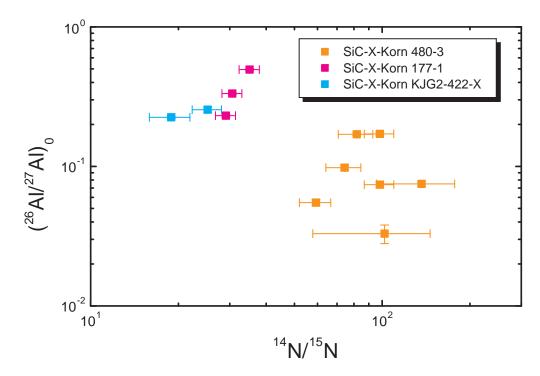


Abbildung 6.12: Bei der Auftragung der berechneten ( $^{26}Al/^{27}Al$ )<sub>0</sub>-Verhältnisse gegen die  $^{14}N/^{15}N$ -Isotopenverhältnisse findet man eine schwache Korrelation für die Körner 177-1 und KJG2-422-X. Mit steigendem ( $^{26}Al/^{27}Al$ )<sub>0</sub>-Verhältnis wird die Anreicherung an  $^{15}N$  kleiner.

Clayton et al. (1999) gezeigt haben, ist es nicht zwingend erforderlich, dass das Verhältnis C/O  $\geq$  1 ist, um Graphit kondensieren zu lassen, eine Kondensation von SiC-Körner ist hierbei aber nicht möglich (Ebel und Grossmann, 2001). Eine endgültige Klärung, unter welchen Bedingungen die SiC-Körner kondensierten, steht aber noch aus.

Eine Änderung der Wechselwirkungsquerschnitte könnte die Zusammensetzung des zwiebelartigen Aufbaus einer Supernova ändern, so dass es eventuell möglich wird, andere, einfachere Möglichkeiten zu finden, um die richtige Zusammensetzung der Körner zu reproduzieren. Z.B. wurden kürzlich von Wagemans et al. (2001) neue Wechselwirkungsquerschnitte für die Umwandlung von <sup>26</sup>Al in <sup>26</sup>Mg durch Neutroneneinfang bestimmt, die teils um den Faktor drei kleiner als die bisherigen Werte sind. Dies dürfte Auswirkungen auf die (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub>-Verhältnisse haben. Auf neue Berechnungen der Sternmodelle wird man sicher noch etwas warten müssen, denn solch aufwendige Rechnungen werden nicht wegen eines neuen Wertes durchgeführt.

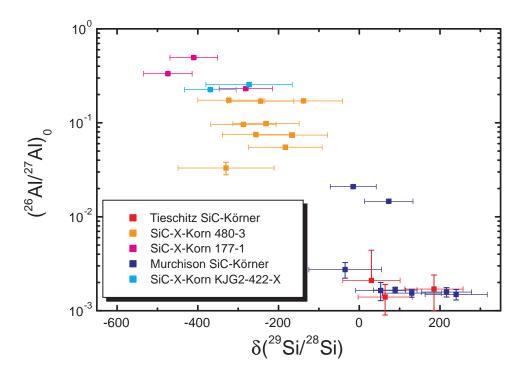


Abbildung 6.13: Auftragung der berechneten, initialen ( $^{26}Al/^{27}Al$ )<sub>0</sub>-Verhältnisse gegen  $\delta(^{29}Si/^{28}Si)$ .

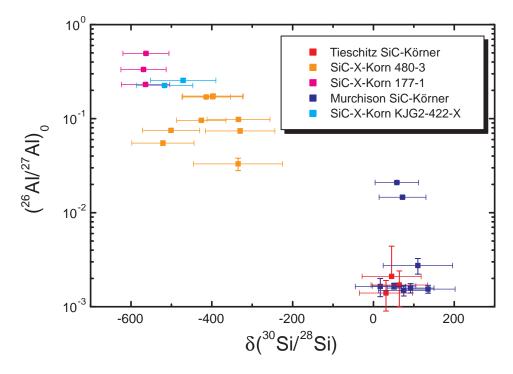


Abbildung 6.14: Auftragung der berechneten, initialen  $(^{26}Al/^{27}Al)_0$ -Verhältnisse gegen  $\delta(^{30}Si/^{28}Si)$ . Für die SiC-X-Körner scheint sich ein Trend von steigendem  $(^{26}Al/^{27}Al)_0$ -Verhältnis mit größeren Verarmungen an  $^{29}Si$  und  $^{30}Si$  abzuzeichnen.

### 6.5 Ungewöhnliche Körner

### 6.5.1 Korn 177-1

Das Korn zeigt im Tiefenprofil einen Abfall im (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub>-Isotopenverhältnis auf etwa die Hälfte, während die übrigen Isotopenverhältnisse – <sup>14</sup>N/<sup>15</sup>N, <sup>29</sup>Si/<sup>28</sup>Si und <sup>30</sup>Si/<sup>28</sup>Si – sich nicht signifikant ändern. Im Unterschied zu den letztgenannten Isotopenverhältnissen, bei denen die verschiedenen Isotope eines Elements gemessen werden, werden beim (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub>-Verhältnis Isotope von zwei verschiedenen Elementen – <sup>26</sup>Mg und <sup>27</sup>Al – gemessen. Da es sich um unterschiedliche Elemente handelt, kann es zu unterschiedlichen Reaktionen der beiden Isotope während der chemischen Extraktion kommen. Es wurde schon früher ein Fehlen des Al im Randbereich von präsolaren SiC-Körnern entdeckt (Stephan und Jessberger, 1996; Stephan et al., 1997). Dies könnte durch eine bessere Löslichkeit des Al bedingt sein. Beim Korn 177-1 würde fehlendes <sup>27</sup>Al im Randbereich den Abfall des (<sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al)<sub>0</sub>-Verhältnisses mit zunehmender Tiefe erklären. Die anderen Isotopenverhältnisse blieben unverändert, da es sich um Isotope des gleichen Elements handelt, die chemisch gleich reagieren.

### 6.5.2 Korn 480-3

In diesem Korn, das zur Auswertung in drei Bereiche A, B und C eingeteilt wurde, findet sich im Bereich C ein ähnliches Verhalten beim  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis wie beim Korn 177-1. Das  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis fällt mit zunehmender Tiefe etwas ab. Für die anderen Bereiche bleibt das  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis nahezu konstant. Bei diesem Korn wurde durch das Ion-Imaging wahrscheinlich soviel Material abgetragen, dass man nun weiter innen im Korn weniger Auswirkungen der chemischen Extraktion vorfindet. Daher kann man die Unterschiede im  $(^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al})_0$ -Verhältnis auch nicht mit unterschiedlichen Tiefen erklären, die beim Sputtern des Korns erreicht wurden.

Da für die Zusammensetzung der SiC-X-Körner eine komplexe Mischung der verschiedenen Zonen einer Supernova nötig ist (siehe Abschnitt 4.5.1), wäre eine heterogene Gaswolke, aus der das Korn kondensiert, durchaus denkbar. Die verschiedenen Isotopenverhältnisse im Korn könnten diese Heterogenität widerspiegeln.

### 6.5.3 Korn SiC 3

Das SiC-B-Korn SiC 3 weist sehr niedrige C- und N-Isotopenverhältnisse auf. Es unterscheidet sich von den übrigen Tieschitz SiC-Körnern durch niedrigere Elementverhältnisse und ein tafeliges Aussehen, das bei keinem anderen der Körner zu sehen ist. Die überwiegend niedrigen Elementverhältnisse dieses Korns sind wohl darauf zurückzuführen, dass es sich hauptsächlich um Anlagerungen meteo-

ritischen Materials im AlN handelt, das in diesem Korn nur eine sehr niedrige Häufigkeit aufweist. Obwohl es anhand der C-, N- und Si-Isotopenverhältnisse den SiC-B-Körnern zuzuordnen wäre, sprechen seine Form und elementare Zusammensetzung für eine Abgrenzung von den anderen SiC-B-Körnern. Es wurden schon mehrere SiC-Körner gefunden, die bei ähnlichen C-Isotopenverhältnissen noch niedrigere N-Isotopenverhältnisse wie Korn SiC 3 aufweisen und von denen man vermutet, dass es sich um SiC-Körner aus Novae handelt (Amari et al., 2001a). Aufgrund der geringen SI-Intensitäten konnten leider keine weiteren Isotopenverhältnisse für das Korn SiC 3 bestimmt werden, um zu klären, ob es sich bei diesem Korn auch um ein Nova-Korn handelt.

### 6.5.4 Körner KJG2-243-U und KJG2-333

Bei den Körner KJG2-243-U (Mainstream-SiC-Korn mit niedrigem  $^{12}$ C/ $^{13}$ C  $\approx 27$ ) und KJG2-333 (SiC-B-Korn) ergaben sich signifikante Überschüsse an  $^{49}$ Ti, die sehr wahrscheinlich auf den Zerfall von  $^{49}$ V zurückzuführen sind, wie für SiC-X-Körner zuvor von Hoppe und Besmehn (2002) beschrieben. Eine Produktion von  $^{49}$ V in AGB-Sternen ist eigentlich auszuschließen, da schwere Nuklide in diesen Sternen nur durch den s-Prozess gebildet werden können. Es ist auf diese Weise nicht möglich, neutronenarme Kerne wie  $^{49}$ V zu bilden. Diese lassen sich nur durch Protonenanlagerung oder Photodesintegration im p-Prozess erzeugen, was aber nur in schweren Sternen bei entsprechend hohen Temperaturen oder bei der Schockwellenaufheizung während einer Supernovaexplosion möglich ist.

Mit den Daten einer 25  $\rm M_{\odot}$  Supernova (Meyer et al., 1995) wurde versucht, die Zusammensetzung dieser Körner zu reproduzieren. Es wurden Mischungen der Zonen He/N, in der nur H-Brennen stattfand, und der Zone He/C, in der es zusätzlich zum He-Brennen kam, untersucht. Die Mischungen der beiden Schichten wurden mit einer Schrittweite von 10 % berechnet und mit den gemessenen Ergebnissen verglichen. In der Abbildung 6.15 ist ein Si-3-Isotopendiagramm mit den Werten der Supernova-Mischung und den Daten der Körner KJG2-243-U und -333 aufgetragen. Eine geringe Beimischung von weniger als 10 % aus der He/C-Zone reicht aus, um die Si-Isotopie in etwa zu erklären. Auch für die Ti-Isotopenverhältnisse von <sup>49</sup>Ti und <sup>50</sup>Ti zu <sup>48</sup>Ti genügt ein Anteil von weniger als 10 % aus der He/C-Zone (siehe Abbildung 6.16). In der Abbildung 6.17 ist das initiale <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al-Verhältnis gegen das C-Isotopenverhältnis aufgetragen. Dieses lässt sich ebenfalls mit einer kleinen Beimischung von weniger als 10 % aus der He/C-Zone erklären, während der Wert für das initiale <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al-Verhältnis um zwei Größenordnungen zu hoch ist.

Mit Abstrichen beim initialen <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al-Verhältnis kann man die isotopische Zusammensetzung der beiden Körner also gut mit der H-Brenn-Schicht He/N unter Beimischung eines kleinen Anteils aus der He-Brenn-Schicht He/C erklären. In beiden Zonen ist das C/O-Verhältnis größer als eins, so dass eine Kondensation von SiC-Körner möglich ist.

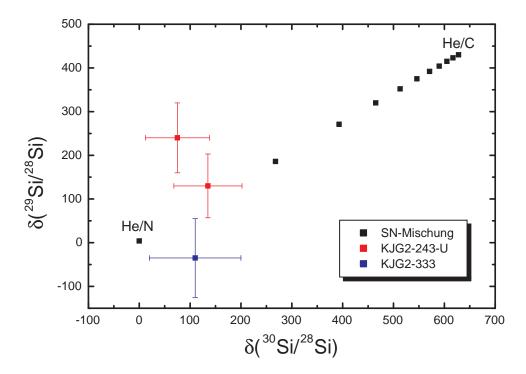


Abbildung 6.15: Si-3-Isotopendiagramm für die Körner KJG2-243-U (2 Messungen) und -333 sowie eine Mischung in 10 %-Schritten der H- und He-Brenn-Schichten einer 25  $M_{\odot}$  Supernova.

Diese Supernova-Körner unterscheiden sich deutlich von den bisher bekannten Supernova-Körnern, den SiC-X-Körnern, da sie keine Anreicherungen an <sup>28</sup>Si besitzen, sondern eher Anreicherungen an <sup>29</sup>Si und <sup>30</sup>Si. Solche Supernova-Körner wurden bereits von Timmes und Clayton (1996) vorhergesagt. Sie lassen sich nicht in die bekannten Gruppierungen einsortieren, da sie anhand der C-, N- und Si-Isotopie als SiC-B- bzw. Mainstream-SiC-Körner klassifiziert würden.

Im Vergleich zu den SiC-X-Körnern ist für diese Körner eine wesentlich einfachere Mischung von benachbarten Supernovaschichten erforderlich. Die Mischungs-Ergebnisse für das initiale <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al-Verhältnis sind für diese Körner zu hoch, während sie bei den SiC-X-Körnern zu niedrig sind. Daher wären für diese Körner niedrigere <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al-Verhältnisse in der He/N-Schicht nötig, während man für die SiC-X-Körner noch höhere Werte bräuchte. Weil für die SiC-X-Körner Anteile aus den inneren Schichten zugemischt werden müssen, könnte man durch höhere initiale <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al-Verhältnisse in diesen inneren Schichten und niedrigeren Werten in den äußeren Zonen die richtige Zusammensetzung für beide Arten von Supernova-Körnern erhalten. Änderungen bei den initialen <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al-Verhältnissen sind, wie im Abschnitt 6.4 beschrieben, durchaus möglich.

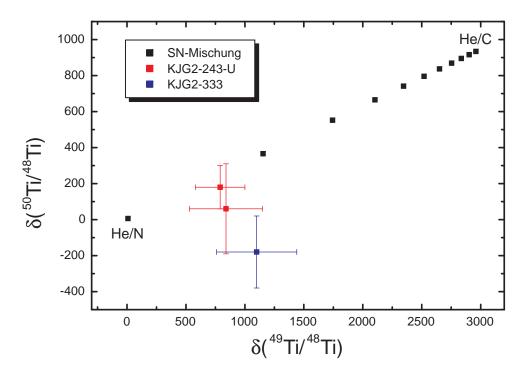


Abbildung 6.16: Ti-3-Isotopendiagramm mit <sup>48</sup>Ti, <sup>49</sup>Ti und <sup>50</sup>Ti für die Körner KJG2-243-U (2 Messungen) und -333 sowie eine Mischung der H- und He-Brenn-Schichten einer 25  $M_{\odot}$  Supernova.

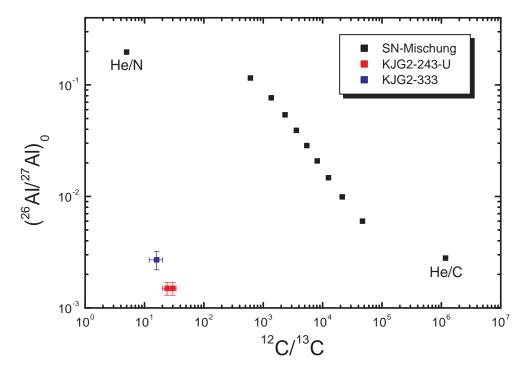


Abbildung 6.17: Auftragung des initialen  $^{26}Al/^{27}Al$ -Verhältnisses gegen das C-Isotopenverhältnis für die Körner KJG2-243-U (2 Messungen) und -333 sowie eine Mischung der H- und He-Brenn-Schichten einer 25  $M_{\odot}$  Supernova.

# Kapitel 7

# Zusammenfassung und Ausblick

Ziel dieser Arbeit war, zuerst die Möglichkeiten der Isotopenmessungen mit TOF-SIMS auszuloten, um dann präsolare SiC-Körner untersuchen zu können. TOF-SIMS bietet den Vorteil komplette Massenspektren bei hoher Orts- und Massenauflösung aufzunehmen und so möglichst viele Element- und Isotopenverhältnisse einzelner präsolarer Körner zu untersuchen.

Die Messungen der Glasstandards und des SiC-Standards SRM 112b haben gezeigt, dass es grundsätzlich möglich ist, Isotopenmessungen mit TOF-SIMS durchzuführen. Die Messfehler liegen in der Größenordnung von bis zu einigen zehn Promill. Diese Genauigkeit ist ausreichend für präsolares Material mit Isotopenanomalien von bis zu einigen Größenordnungen. Die Möglichkeit, die Isotopenverhältnisse sogar im Submikrometerbereich messen zu können, ermöglicht erstmals einen Blick in die präsolaren Körner und damit die Möglichkeit, Auswirkungen von Kondensationseffekten oder der Säureextraktion genauer zu untersuchen.

Bei der Untersuchung von insgesamt 13 präsolaren Körnern konnte der Vorteil der hohen lateralen Auflösung von TOF-SIMS mit etwa 300 nm voll ausgenutzt werden. Man kann sehr gut zwischen dem Korn selbst und weiterem Material unterscheiden. Bei diesem Material kann es sich um weitere präsolare Körner, sonstigem Meteoritemmaterial oder Rückständen von der Säureextraktion handeln. Durch die hohe Ortsauflösung lässt sich dieses Material von der Auswertung ausschließen. Der Vorteil der hohen Auflösung zeigte sich besonders deutlich beim SiC-Korn KJG2-243. Dieses Korn wurde zuvor als ein Korn klassifiziert. Mit TOF-SIMS ließ sich zeigen, dass es sich um zwei verschieden Körner handeln muss, die sich im C- und ( $^{26}$ Al/ $^{27}$ Al)<sub>0</sub>-Isotopenverhältnis sowie dem Al-Gehalt deutlich unterscheiden.

Ein weiterer Vorteil ist der geringe Probenverbrauch von wenigen Atomlagen. Es können mehrere TOF-SIMS-Messungen durchgeführt werden und es bleibt immer noch genügend Material für weitere Messungen mit anderen Methoden. Der geringe Probenverbrauch hat aber auch den Nachteil, dass die gemessenen Intensitäten geringer sind. Dies bedingt relativ große statistische Fehler, die ei-

ne genauere Aussage erschweren können. So wäre es z.B. wünschenswert die Si-Isotopenverhältnisse auf wenige Promill genau bestimmen zu können, um auch bei SiC-Körnern, die keine SiC-X-Körner sind, Aussagen über die Si-Isotopenverhältnisse machen zu können. Hierbei könnte der Einsatz von Laser-SNMS mit resonanter Nachionisation weiterhelfen (siehe weiter unten).

Aus der Untersuchung der Elementverhältnisse ging hervor, dass die Körner je nach Extraktionsmethode mehr oder minder stark mit meteoritischem Material kontaminiert sind. Es zeigten sich schwache Korrelationen zwischen einigen Elementen des Meteoritenmaterials – Li, Mg, K, Ca – mit dem Al-Gehalt der Körner. Dies lässt sich wahrscheinlich dadurch erklären, dass in den präsolaren SiC-Körnern AlN in fester Lösung vorliegt. Durch die Säuren wird dieses teilweise gelöst und zuvor gelöstes Material des Meteoriten kann sich wieder anlagern.

Eine starke Korrelation fand sich zwischen den Elementen Sc, Ti und V, die in den SiC-Körnern in einer gemeinsamen Phase vorliegen müssen. Hierbei handelt es sich zumindest teilweise um TiC-Körner, die als Kondensationskeime in den SiC-Körnern zu finden sind.

Durch die Möglichkeit, die Isotopenverhältnisse im Submikrometerbereich messen zu können, war es möglich, Heterogenitäten in der Verteilung von Isotopenverhältnissen in den SiC-X-Körnern zu analysieren. In einem Korn, SiC-X-Korn 480-3, fand sich eine heterogene Verteilung des initialen <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al-Isotopenverhältnisses, die evtl. während der Kondensation entstand. Für die richtige Zusammensetzung bzgl. der Isotopenverhältnisse des Korns ist eine Mischung der inneren Supernovazonen mit den äußeren notwendig, die zu einer inhomogenen Gaswolke geführt haben könnte, aus der das Korn kondensierte.

In zwei Körnern, KJG2-243-U und -333, fanden sich Anreicherungen an <sup>49</sup>Ti, die auf eine Supernova-Herkunft schließen lassen. Die gemessenen Zusammensetzungen lassen sich mit kleinen Abstrichen durch eine Mischung der äußeren Schichten einer Supernova erklären, die durch das H- und He-Brennen gebildet werden. Es handelt sich allerdings bei beiden Körnern nicht um SiC-X-Körner, die einzigen präsolaren SiC-Körner, von denen man bisher annahm, dass sie von Supernovae stammen. Die Körner KJG2-243-U und -333 würden nach der bisherigen Klassifikation anhand der C-, N- und Si-Isotopie als Mainstream-SiC- bzw. SiC-B-Korn eingruppiert werden, bei denen man massearme Sterne als Ursprungssterne annimmt. Die bisherige Einteilung der präsolaren SiC-Körner stößt hier an ihre Grenzen, da Körner aus verschiedenen Sterntypen nicht unterschieden werden können. Eine eindeutigere Eingruppierung, die den Ursprungsstern des Korn erkennen lässt, wäre wünschenswert. Dies ließe sich erreichen, wenn man mehr Isotopenverhältnisse einbezieht, um größere Einschränkungen bezüglich möglicher Ursprungssterne zu erreichen. Die Körner KJG2-243-U und -333 würden eine erste, neue Klasse von Supernova-Körnern bilden, die keine Anreicherungen an <sup>28</sup>Si zeigen.

Die Laser-SNMS-Messungen ließen das Potenzial dieser Methode erkennen. Alle messbaren Elemente werden positiv ionisiert in einer Messung erfasst und der Probenverbrauch ist etwa eine Größenordnung geringer als bei TOF-SIMS. Die Empfindlichkeitsfaktoren für die verschiedenen Elemente weisen geringere Unterschiede auf, weswegen auch Spurenelemente mit geringeren statistischen Fehlern gemessen werden können. Verbesserungsmöglichkeiten gibt es sicherlich noch bezüglich des Restgas-Ionisation, um weniger Störsignale durch C, C<sub>2</sub> oder CO zu erhalten. Längere Standzeiten des Lasers sowie eine Erfassung der Rohdaten während der Messung würden weitere Verbesserungen bringen. Vor allem die Rohdatenerfassung ist – wie sich bei den TOF-SIMS-Messungen zeigte – bei Proben dieser Größe sehr wichtig, da dadurch eine Verschiebungskorrektur ermöglicht wird, die unabdingbar für Messungen im Submikrometerbereich ist.

Weitergehende Möglichkeiten bieten auch neuere Geräte und Messmethoden, die gerade in der Entwicklung sind bzw. in Betrieb genommen wurden. Zum einen ist da die resonante Laser-SNMS, die es ermöglicht, durch selektive Ionisation einzelner Elemente Isotopenverhältnisse ohne Interferenzen durch andere Elemente oder Moleküle zu bestimmen. Auf der anderen Seite gibt es die NanoSIMS, die mit einem Multidetektorsystem ausgestattet ist und laterale Auflösungen  $\geq 50$  nm erreichen kann. Durch das Multidetektorsystem können mehrere Massenbereiche gleichzeitig detektiert werden und die Ausbeute im Vergleich zu den früheren Einzeldetektorsystemen drastisch erhöht werden.

## Literaturverzeichnis

- [Amari et al. 1990] Amari, S.; Anders, E.; Virag, A.; Zinner, E.: Interstellar graphite in meteorites. In: *Nature* 345 (1990), S. 238–240
- [Amari et al. 2001a] Amari, S.; Gao, X.; Nittler, L. R.; Zinner, E.: Presolar grains from novae. In: *Astrophysical Journal* 551 (2001), S. 1065–1072
- [Amari et al. 1994] Amari, S.; Lewis, R. S.; Anders, E.: Interstellar grains in meteorites: I. Isolation of SiC, graphite, and diamonds: size distributions of SiC and graphite. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 58 (1994), S. 459–470
- [Amari et al. 2001b] Amari, S.; Nittler, L. R.; Zinner, E.; Gallino, R.; Lugano, M.; Lewis, R. S.: Presolar SiC grains of type Y: Origin from low-metallicity AGB stars. In: *Astrophysical Journal* 546 (2001), S. 248–266
- [Anders und Grevesse 1989] Anders, E.; Grevesse, N.: Abundances of the elements Meteoritic and solar. In: Geochimica et Cosmochimica Acta 53 (1989), S. 197–214
- [Anders und Zinner 1993] Anders, E.; Zinner, E.: Interstellar grains in primitive meteorites: Diamond, silicon carbide, and graphite. In: *Meteoritics* 28 (1993), S. 490–514
- [Arlinghaus und Guo 1997] Arlinghaus, H. F.; Guo, X. Q.: Depth profiling and imaging with laser postionization SNMS. In: Benninghoven, A. (Hrsg.); Hagenhoff, B. (Hrsg.); Werner, H. W. (Hrsg.): Secondary Ion Mass Spectrometry, Proc. SIMS X, 1997, S. 677–680
- [Bernatowicz et al. 1991] Bernatowicz, T. J.; Amari, S.; Zinner, E.; Lewis, R. S.: Interstellar grains within interstellar grains. In: *Astrophysical Journal Letters* 373 (1991), S. L73–L76
- [Bernatowicz et al. 1999] Bernatowicz, T. J.; Bradley, J.; Amari, S.; Messenger, S.; Lewis, R. S.: New kind of massive stars condensates in a presolar graphite from Murchison. In: *LPSC XXX* (1999), S. 1392–1393

- [Bernatowicz et al. 1996] Bernatowicz, T. J.; Cowsik, R.; Gibbons, P. C.; Lodders, K.; Fegley, B.; Amari, S.; Lewis, R. S.: Constraints on stellar grain formation from presolar graphite in the Murchison meteorite. In: *Astrophysical Journal* 472 (1996), S. 760–782
- [Bernatowicz et al. 2001] Bernatowicz, T. J.; Pravdivtseva, O.; Messenger, S.; Swan, P.: Pristine presolar silicon carbide from Murchison. In: *Meteoritics and Planetary Science* 36 (2001), S. A20
- [Besmehn 2001] Besmehn, A.: Si-, Mg-, Ca- und Ti-Isotopenmessungen an den präsolaren Mineralen Diamant, Siliziumkarbid und Siliziumnitrid aus kohligen und Enstatit-Chondriten, Johannes-Gutenberg-Universität, Mainz, Dissertation, 2001
- [Black und Pepin 1969] Black, D. C.; Pepin, R. O.: Trapped neon in meteorites. In: Earth and Planetary Science Letters 6 (1969), S. 395–405
- [Burbidge et al. 1957] Burbidge, E. M.; Burbidge, G. R.; Fowler, W. A.; Hoyle, F.: Synthesis of the elements in stars. In: *Reviews of Modern Physics* 29 (1957), S. 547–650
- [Burrows und Hayes 1995] Burrows, A.; Hayes, J.: On the nature of corecollapsed supernova explosions. In: *Astrophysical Journal* 450 (1995), S. 830– 850
- [Cameron 1962] CAMERON, A. G. W.: The formation of the sun and planets. In: *Icarus* 1 (1962), S. 13–69
- [Choi et al. 1999] Choi, B.-G.; Wasserburg, G. J.; Huss, G. R.: Circumstellar hibonite and corundum and nucleosynthesis in asymptotic giant branch stars. In: *Astrophysical Journal Letters* 522 (1999), S. L133–L136
- [Clayton et al. 1997] CLAYTON, D. D.; ARNETT, D.; KANE, J.; MEYER, B. S.: Type X silicon carbide presolar grains: Type Ia supernova condensates? In: Astrophysical Journal 486 (1997), S. 824–834
- [Clayton et al. 1999] CLAYTON, D. D.; LIU, W.; DALGARNO, A.: Condensation of carbon in radioactive supernova gas. In: *Science* 283 (1999), S. 1290–1292
- [Ebel und Grossmann 2001] EBEL, D. S.; GROSSMANN, L.: Condensation from supernova gas made of free atoms. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 65 (2001), S. 469–477
- [Herant et al. 1994] Herant, M.; Benz, W.; Hix, W. R.; Fryer, C. L.; Colgate, S. A.: Inside the supernova: A powerful convective engine. In: *Astrophysical Journal* 435 (1994), S. 339–361

- [Hoppe et al. 1994] Hoppe, P.; Amari, S.; Zinner, E.; Ireland, T.; Lewis, R. S.: Carbon, nitrogen, silicon and titanium isotopic compositions of single interstellar silicon carbide grains from the Murchison carbonaceous chondrite. In: Astrophysical Journal 430 (1994), S. 870–890
- [Hoppe et al. 1997] Hoppe, P.; Annen, P.; Strebel, R.; Eberhardt, P.; Gallino, R.; Lugaro, M.; Amari, S.; Lewis, R. S.: Meteoritic silicon carbide grains with unusal Si-isotopic compositions: Evidence for an origin in low-mass, low-metallicity asymptotic giant branch stars. In: *Astrophysical Journal Letters* 487 (1997), S. L101–L104
- [Hoppe und Besmehn 2002] HOPPE, P.; BESMEHN, A.: On the origin of Titanium-49 excesses in presolar Silicon Carbide grains of type X. In: LPSC XXXIII (2002), S. 1310–1311
- [Hoppe und Zinner 2000] HOPPE, P.; ZINNER, E.: Presolar dust grains from meteorites and their stellar sources. In: *Journal of Geophysical Research* 105 (2000), S. 10371–10385
- [Huss und Lewis 1995] Huss, G. R.; Lewis, R. S.: Presolar diamond, SiC, and graphite in primitive chondrites abundances as a function of meteorite class and petrologic type. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 59 (1995), S. 115–160
- [Hutcheon et al. 1994] HUTCHEON, I. D.; Huss, G. R.; Fahey, A. J.; Wasserburg, G. J.: Extreme <sup>26</sup>Mg and <sup>17</sup>O enrichments in Orgueil corundum: Identification of presolar oxide grains. In: *Astrophysical Journal Letters* 425 (1994), S. L97–L100
- [Ireland et al. 1991] IRELAND, T. R.; ZINNER, E.; AMARI, S.: Isotopically anomalous Ti in presolar SiC from the Murchison meteorite. In: *Astrophysical Journal Letters* 376 (1991), S. L53–L56
- [Irion 2000] IRION, R.: Supernova pumps iron in inside-out blast. In: Science 287 (2000), S. 203–205
- [Jochum et al. 2000] Jochum, K. P.; Dingwell, D. B.; Rocholl, A.; Stoll, B.; Hofmann, A. W.; 31 weitere: The preparation and preliminary characterisation of eight geological MPI-DING reference glasses for in-situ microanalysis. In: Geostandards Newsletter: The Journal of Geostandards and Geoanalysis 24 (2000), S. 87–133
- [Jürgens 1993] JÜRGENS, U.: Oberflächenanalyse von Si-Wafern mit der Flugzeit-SIMS, Westfälische Wilhelms-Universität, Münster, Dissertation, 1993

- [Jürgens et al. 1992] JÜRGENS, U.; CRAMER, H.-G.; HELLER, T.; NIEHUIS, E.; ZANG, Z.; BENNINGHOVEN, A.: Ultra trace detection of metal contamination on wafer surfaces. In: BENNINGHOVEN, A. (Hrsg.); JANSSEN, K. T. F. (Hrsg.); TÜMPNER, J. (Hrsg.); WERNER, H. W. (Hrsg.): Secondary Ion Mass Spectrometry, Proc. SIMS VIII, 1992, S. 277–280
- [Kollmer 2001] Kollmer, F.: Abbildende Nanobereichsanalyse mit der Flugzeitmassenspektrometrie zerstäubter Ionen (TOF-SIMS) und Neutralteilchen (Laser-SNMS), Westfälische Wilhelms-Universität, Münster, Dissertation, 2001
- [Lee et al. 1976] Lee, T.; Papanastassiou, D. A.; Wasserburg, G. J.: Demonstration of Mg-26 excess in Allende and evidence for Al-26. In: *Geophysical Research Letters* 3 (1976), S. 41–44
- [Lee et al. 1977] Lee, T.; Papanastassiou, D. A.; Wasserburg, G. J.: Aluminum-26 in the early solar system Fossil or fuel. In: *Astrophysical Journal Letters* 211 (1977), S. L107–L110
- [Lewis et al. 1987] Lewis, R. S.; Ming, T.; Wacker, J. F.; Anders, E.: Interstellar diamonds in meteorites. In: *Nature* 326 (1987), S. 160–162
- [Mamyrin et al. 1973] Mamyrin, B. A.; Krataev, V. I.; Shmikk, D. V.; Zagulin, V. A.: The mass-reflectron, a new nonmagnetic time-of-flight mass spectrometer with high resolution. In: *Sov. Phys. JETP* 37 (1973), S. 45–48
- [Mendybaev et al. 2002] Mendybaev, R. A.; Beckett, J. R.; Grossmann, L.; Stolper, E.; Cooper, R. F.; Bradley, J. P.: Volatilization kinetics of silicon carbide in reducing gases: An experimental study with applications to the survival of presolar grains in the solar nebula. In: Geochimica et Cosmochimica Acta 66 (2002), S. 661–682
- [Meyer 1994] Meyer, B. S.: The r-, s-, and p-Processes in nucleosynthesis. In: Annu. Rev. Astron. Astrophys. 32 (1994), S. 153–190
- [Meyer et al. 1995] MEYER, B. S.; WEAVER, T. A.; WOOSLEY, S. E.: Isotope source table for a 25  $M_{\odot}$  supernova. In: *Meteoritics* 30 (1995), S. 325–334
- [Montmerle und Prantzos 1991] Montmerle, T.; Prantzos, N.: *Explodierende Sonnen*. Spektrum Akademischer Verlag, 1991. Aus dem Franz. übersetzt von Gabriele Hengst
- [Nicolussi et al. 1997] Nicolussi, G. K.; Davis, A. M.; Pellin, M. J.; Lewis, R. S.; Clayton, R. N.; Amari, S.: S-process zirconium in presolar silicon carbide grains. In: *Science* 277 (1997), S. 1281–1283

- [Nicolussi et al. 1998a] NICOLUSSI, G. K.; PELLIN, M. J.; LEWIS, R. S.; DAVIS, A. M.; AMARI, S.; CLAYTON, R. N.: Molybdenium isotopic composition of individual presolar silicon carbide grains from the Murchison meteorite. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 62 (1998), S. 1093–1104
- [Nicolussi et al. 1998b] Nicolussi, G. K.; Pellin, M. J.; Lewis, R. S.; Davis, A. M.; Clayton, R. N.; Amari, S.: Strontium isotopes in single presolar silicon carbide grains. In: *Meteoritics and Planetary Science* 33 (1998), S. A116
- [Niehuis 1990] NIEHUIS, E.: Exact mass determination using TOF-SIMS. In: Benninghoven, A. (Hrsg.); Evans, Jr., C. A. (Hrsg.); McKeegan, K. D. (Hrsg.); Storms, H. A. (Hrsg.); Werner, H. W. (Hrsg.): Secondary Ion Mass Spectrometry, Proc. SIMS VII, 1990, S. 299–304
- [Niehuis et al. 1987] NIEHUIS, E.; HELLER, T.; FELD, H.; BENNINGHOVEN, A.: Design and performance of a reflectron based time-of-flight secondary ion mass spectrometer with electrodynamically primary ion mass separation. In: *J. Vac. Sci. Technol.* A 5 (1987), S. 1243–1246
- [Nittler und Alexander 1999] NITTLER, L. R.; ALEXANDER, C. M. O.: Automatic identification of presolar Al- and Ti-rich oxide grains from ordinary chondrites. In: *LPSC XXX* (1999), S. A2041
- [Nittler et al. 1994] NITTLER, L. R.; ALEXANDER, C. M. O.; GAO, X.; WALKER, R. M.; ZINNER, E.: Interstellar oxide grains from Tieschitz ordinary chondrite. In: *Nature* 370 (1994), S. 443–446
- [Nittler et al. 1997] NITTLER, L. R.; ALEXANDER, C. M. O.; GAO, X.; WALKER, R. M.; ZINNER, E.: Stellar sapphires: The properties and origins of presolar Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in meteorites. In: *Astrophysical Journal* 483 (1997), S. 475–495
- [Nittler et al. 1993a] NITTLER, L. R.; AMARI, S.; WALKER, R. M.; ZINNER, E. K.; LEWIS, R. S.: Identification of exotic SiC grains from the Murchison meteorite by ion imaging. In: *Meteoritics* 28 (1993), S. 413
- [Nittler et al. 1995] NITTLER, L. R.; HOPPE, P.; ALEXANDER, C. M. O.; AMARI, S.; EBERHARDT, P.; GAO, X.; LEWIS, R. S.; STREBEL, R.; WAL-KER, R. M.; ZINNER, E.: Silicon nitride from supernova. In: Astrophysical Journal Letters 453 (1995), S. L25–L28
- [Nittler et al. 1993b] NITTLER, L. R.; WALKER, R. M.; ZINNER, E.; HOP-PE, P.; LEWIS, R. S.: Identification of an interstellar oxide grain from the Murchison meteorite by ion imaging. In: *LPSC XXIV* (1993), S. 1087–1088

- [Oberhummer 1993] OBERHUMMER, H.: Kerne und Sterne. Barth, Leipzig, Berlin, Heidelberg, 1993
- [Reynolds und Turner 1964] REYNOLDS, J. H.; TURNER, G.: Rare gases in the chondrite Renazzo. In: *Journal of Geophysical Research* 69 (1964), S. 3263–3281
- [Richter et al. 1998] RICHTER, S.; OTT, U.; BEGEMANN, F.: Tellurium in pre-solar diamonds as an indicator for rapid separation of supernova ejecta. In: *Nature* 391 (1998), S. 261–263
- [Rolfs und Rodney 1988] ROLFS, C. E.; RODNEY, W.: Cauldrons in the Cosmos. University of Chicago Press, 1988
- [Rost 2000] Rost, D.: TOF-SIMS analyses of interplanetary dust particles, Ruprechts-Karls-Universität, Heidelberg, Dissertation, 2000
- [Rost et al. 1999] Rost, D.; Stephan, T.; Jessberger, E. K.: Surface analysis of stratospheric dust particles. In: Meteoritics and Planetary Science 34 (1999), S. 637–646
- [Schnieders 1999] Schnieders, A.: Quantitative surface analysis by laser postionization of sputtered neutrals, Westfälische Wilhelms-Universität, Münster, Dissertation, 1999
- [Sharp und Wasserburg 1995] Sharp, C. M.; Wasserburg, G. J.: Molecular equilibria and condensation temperatures in carbon-rich gas. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 59 (1995), S. 1633–1652
- [Sigmund 1969] SIGMUND, P.: Theory of sputtering. I. Sputtering yield of amorphous and polycrystalline targets. In: *Phys. Rev.* 184 (1969), S. 383–416
- [Södervall et al. 1987] SÖDERVALL, U.; ENGSTRÖM, E. U.; ODELIUS, H.; LODDING, A.: Isotope mass effects in secondary ion emission. In: BENNINGHOVEN, A. (Hrsg.); Huber, A. M. (Hrsg.); Werner, H. W. (Hrsg.): Secondary Ion Mass Spectrometry, Proc. SIMS VI, 1987, S. 83–88
- [Stephan 2001] STEPHAN, T.: TOF-SIMS in cosmochemistry. In: *Planetary* and Space Science 49 (2001), S. 859–906
- [Stephan und Jessberger 1996] Stephan, T.; Jessberger, E. K.: TOF-SIMS analysis of interstellar SiC grains. In: *LPSC XXVII* (1996), S. 1267–1268
- [Stephan et al. 1997] STEPHAN, T.; ROST, D.; JESSBERGER, E. K.; BUDELL, R.; GRESHAKE, A.; ZINNER, E. K.; AMARI, S.; HOPPE, P.; LEWIS, R. S.: TOF-SIMS Analysis of SiC Grains with High Lateral Resolution. In: LPSC XXVIII (1997), S. 1371–1372

- [Stephan et al. 1994] STEPHAN, T.; ZEHNPFENNIG, J.; BENNINGHOVEN, A.: Correction of dead time effects in time-of-flight mass spectrometry. In: *J. Vac. Sci. Technol.* A 12(2) (1994), S. 405–410
- [Stone et al. 1991] STONE, J.; HUTCHEON, I. D.; EPSTEIN, S.; WASSERBURG, G. J.: Correlated Si isotopes anomalies and large <sup>13</sup>C enrichements in a family of exotic SiC grains. In: *Earth Planet. Sci. Lett.* 107 (1991), S. 570–581
- [Strebel 1998] Strebel, R.: SIMS studies of presolar silicon carbide and Alrich oxide grains from acid-resistant meteorite separates, Universität Bern, Dissertation, 1998
- [Thielens et al. 1998] THIELENS, A. G. G. M.; WATERS, L. B. F. M.; MOLSTER, F. J.; JUSTTANONT, K.: Circumstellar silicate mineralogy. In: Astrophysics and Space Science 1 (1998), S. 415–426
- [Timmes und Clayton 1996] TIMMES, F. X.; CLAYTON, D. D.: The galactic evolution of silicon isotopes: Application to presolar SiC grains from meteorites. In: Astrophysical Journal 472 (1996), S. 723–741
- [Virag et al. 1992] VIRAG, A.; WOPENKA, B.; AMARI, S.; ZINNER, E.; ANDERS, E.; LEWIS, R. S.: Isotopic, optical, and trace element properties of large single SiC grains from the Murchison meteorite. In: Geochimica et Cosmochimica Acta 56 (1992), S. 1715–1733
- [Wagemans et al. 2001] WAGEMANS, J.; WAGEMANS, C.; GOEMINNE, G.; GELTENBORT, P.; MOENS, A.: Investigations of the thermal  $^{26}$ Al(n, p<sub>i</sub>) $^{26}$ Mg and  $^{26}$ Al(n,  $\alpha_i$ ) $^{23}$ Na reactions. In: *Nuclear Physics A* 696 (2001), S. 31–44
- [Wooden 1997] WOODEN, D. H.: Observational evidence for mixing and dust condensation in core-collapse supernova. In: Bernatowicz, T. J. (Hrsg.); ZINNER, E. (Hrsg.): Astrophysical Implications of the Laboratory Study of Presolar Materials Bd. 402, 1997, S. 317–376
- [Zinner 1989] ZINNER, E.: Isotopic measurements with the ion microprobe. In: Proc. Workshop on new frontiers in stable isotope research: Laser probes, ion probes and small sample analysis Bd. 1890, 1989, S. 145–162
- [Zinner 1998a] ZINNER, E.: Stellar nucleosynthesis and the isotopic composition of presolar grains from primitive meteorites. In: Annual Review of Earth and Planetary Science 26 (1998), S. 147–188
- [Zinner 1998b] ZINNER, E.: Trends in the study of presolar dust grains from primitive meteorites. In: *Meteoritics and Planetary Science* 33 (1998), S. 549–564

- [Zinner et al. 1991] ZINNER, E. ; AMARI, S. ; ANDERS, E. ; LEWIS, R. S.: Large amounts of extinct  $^{26}$ Al in interstellar grains from the Murchison carbonaceous chondrite. In: *Nature* 349 (1991), S. 51–54
- [Zinner et al. 1989] ZINNER, E.; TANG, M.; ANDERS, E.: Interstellar SiC in the Murchison and Murray meteorites: Isotopic compositions of Ne, Si, C, and N. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 53 (1989), S. 3273–3290

## Danksagung

Nach 152 TOF-SIMS- und Laser-SNMS-Messungen, zig REM-Sitzungen, unendlicher Fehlersuche in der TOF-SIMS-Auswertesoftware, 2 Windows-Neuinstallationen, unzähligen Tassen Kaffee und Espresso (nicht nur während mittäglichen Kaffeerunde), Tagungsreisen nach Oxford, Rom und Nördlingen, einem halben Dutzend Mitarbeiterseminarvorträgen, zig gebastelten Doktorhüten, nervenaufreibenden Windowsproblemlösungsversuchen und vielen spaßigen Stunden im Institut wird es Zeit einigen Leuten für ihre Unterstützung zu danken:

Da sind meine Chefs, der große und der kleine. Prof. Dr. E. K. Jessberger hat keine Kosten und Mühen gescheut, mir eine sehr gute Arbeitsumgebung und zusammen mit HDoz. Dr. T. Stephan ein wunderbares Thema für meine Arbeit zu stellen, das abwechslungsreicher kaum sein konnte. Thomas Stephan war auch immer der richtige Ansprechpartner für TOF-SIMS-Fragen, denn er konnte einfach alles beantworten. **Danke.** 

Ohne die Bereitstellung der Proben durch PD Dr. P. Hoppe (MPI für Chemie, Mainz), Prof. Dr. E. K. Zinner und Dr. S. Amari (beide Laboratory for Space Sciences, St. Louis, USA) wäre diese Arbeit natürlich auch unmöglich gewesen. **Danke.** 

Ebenso wichtig waren Prof. Dr. H. F. Arlinghaus und Dipl.-Phys. Michael Fartmann vom Physikalischen Institut der Universität Münster, die mich an ihrem Laser-SNMS-Gerät messen ließen bzw. die Messungen für mich durchführten und bei der Interpretation der Daten halfen. **Danke.** 

Für jeden Wissenschaftler sehr wichtig sind die Diskussionen der Ergebnisse. Hier seien PD Dr. P. Hoppe und Prof. Dr. B. S. Meyer (Clemson University, Clemson, USA) besonders erwähnt, die mir Tipps und Anregungen gegeben haben. **Danke.** 

Da ist vor allem der Doktor Det, der als ständiger Bürokollege immer wusste, wie was funktionierte, und mir die vielen Tücken des TOF-SIMS-Gerätes gezeigt hat. Auch in seiner Freizeit scheute er keinen Kino- oder Kneipenbesuch und hat sich aufopfernd durch eine erste Version meiner Dissertation gekämpft. **Danke.** 

Da sind noch einige weitere Mitbewohner des ersten Zimmer im Hause, Raum 01a, besser bekannt als "Mobbingcenter" oder "Café Morlok". Jeder hat auf seine Art und Weise zur guten Unterhaltung beigetragen. Nadja Vogel mit einer umwerfenden Begrüßung, Christian Heiss, der viel zu starken Kaffee kochte, Andreas

Morlok, unser waschechter Schwabe, Michael Commer, der viel zu schnell nach Köln abwanderte, und Martin Wille, unser Knecht, ähhhh Diplomand. **Danke** für die vielen kurzweiligen Stunden.

Nicht zu vergessen: Dr. Iris Weber, die nicht müde wurde, die AFM-Messungen für mich durchzuführen und bei der Auswertung zu helfen. Thorsten Grund, der mich in die Geheimnisse des Rasterelektronenmikroskops eingeführt hat. Frank Bartschat, der in der Foto- und Graphikbearbeitung immer weiter wusste, wenn man mit seinem Anfängerlatein am Ende war. Gea McCormack, der gute Geist des Instituts, die alle Verwaltungsprobleme gekonnt löste. **Danke.** 

Last but not not least seien noch die angesprochen, die ich in meiner Zerstreutheit vergessen habe. Es war bestimmt keine Absicht. **Danke.** 

## Lebenslauf

#### Torsten Henkel

Geboren am 28.03.1972 in Marburg/Lahn, Familienstand ledig

#### Eltern:

Heinz Henkel und Erna Henkel, geb. Starck

### Schulbildung:

Grundschule: 1978–1982 Mittelpunktschule Battenberg Gymnasium: 1982–1991 Edertalschule Frankenberg(Eder)

Erlangung der Hochschulreife am 11. Juni 1991

### Studium:

Studium der Physik von Oktober 1991 bis September 1997 an der Philipps-Universität Marburg Abschluss mit Diplom am 22. September 1997

### Tätigkeiten:

Anstellung als wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Philipps-Universität Marburg von Oktober–Dezember 1997 Zivildienst von Februar 1998 bis Februar 1999 bei der Rettungsdienst Mittelhessen gemeinnützige GmbH

#### **Promotion:**

Beginn der Dissertation März 1999, Betreuer HDoz. Dr. Thomas Stephan und Prof. Dr. Elmar K. Jessberger Beginn des Promotionsstudiums im Fach Planetologie an der Westfälischen Wilhelms-Universität im Sommersemester 1999