Zeitschrift:	Eclogae Geologicae Helvetiae						
Herausgeber:	Schweizerische Geologische Gesellschaft						
Band:	83 (1990)						
Heft:	1						
Artikel:	Radiogene Höfe in Biotit als geothermische Langzeitindikatoren						
Autor:	Hradetzky, Helmuth / Lippolt, Hans J. / Wirth, Richard						
DOI:	https://doi.org/10.5169/seals-166577						

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. <u>Siehe Rechtliche Hinweise.</u>

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. <u>Voir Informations légales.</u>

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. <u>See Legal notice.</u>

Download PDF: 30.03.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

Radiogene Höfe in Biotit als geothermische Langzeitindikatoren

Von Helmuth Hradetzky¹), Hans J. Lippolt¹) und Richard Wirth²)

ABSTRACT

Radiohaloes around radioactive inclusions in biotite may serve as indicators for the former longtime ambient temperature of a given rock specimen (deep drilling samples, crustal xenoliths in young volcanic tuffs). The halo formation is due to ionization and displacement of ions from their equilibrium positions by alpha particles emitted from the radionuclides. Heating experiments revealed that in biotite at 600 to 700 °C haloes disappear within less than one hour. Extrapolations of laboratory experiments on haloes in biotite to geological periods are rather uncertain; consequently a check of the extrapolated critical temperatures by investigating rock specimen from a deep drilling bore hole (Urach-III) seemed to be worthwhile.

The temperature at the top of the crystalline section of the Urach-III drill hole was 90 °C and that at its basis 150 °C. Thin sections from parts of the entire crystalline section showed in biotite inclusions with distinct radiohaloes as well as without. This is due to the wide range of U and Th concentrations in such accessory minerals. SEM measurements revealed inclusions without radiohaloes as zircons and those with strong coloured haloes as Th bearing minerals like monazite and thorite. The U and Th contents of monazite are in the % range, those of zircons in the 100 ppm range. The only occurrence of rather weak haloes in the 90 °C level of the bore hole implies that zircon haloes are instable at higher temperatures, whereas radiohaloes of monazite and thorite are still stable at 140 °C over geologic times. The SEM measurements further showed that the inclusions very often have a complex structure and therefore necessitate quantitative measurements of the actual radioactivity rather than pure estimations based on microscopic judgment.

The investigations demonstrate that research on radiohaloes may obtain a new meaning, as the intensities of haloes around inclusions with strongly differing amounts of alpha-radioactive elements may be used to estimate the temperatures within the upper crust to which rock specimen were exposed during geological times.

ZUSAMMENFASSUNG

Verfärbungshöfe (Halos) um radioaktive Einschlüsse in Biotit können als Indikatoren für die Umgebungstemperaturen von Gesteinsproben (z.B. Bohrproben, Xenolithe) herangezogen werden. Die Hofbildung ist eine Folge der α -Strahlung, die zu Ionisation und Ionenversatz im Kristallgitter führt. Aus Heizexperimenten an Biotiten ist bekannt, dass die Höfe bei 600–700 °C in weniger als einer Stunde verschwinden. Extrapolation von experimentell ermittelten Ausheiltemperaturen auf geologische Zeiträume ist mit Unsicherheiten behaftet; eine Überprüfung mittels Gesteinsproben aus tiefen Kristallinbohrungen könnte dieselben verringern.

Die Temperaturen der Forschungsbohrung Urach-III betrugen an der Kristallinoberkante ca. 90 °C und an der Bohrsohle ca. 150 °C. Dünnschliffe aus dem gesamten Kristallinbohrprofil zeigten in Biotit radioaktive Einschlüsse sowohl mit gut ausgebildeten Höfen als auch ohne erkennbare Höfe. Das kommt von den um Grössenordnungen unterschiedlichen U- und Th-Gehalten der Einschlüsse. Mit dem Rasterelektronen-Mikroskop konnten Einschlüsse ohne Höfe als Zirkone und solche mit kräftigen Höfen als Th-reiche Minerale (Monazit, Thorit) identifiziert werden.

Laboratorium f
ür Geochronologie der Universit
ät Heidelberg, Im Neuenheimer Feld 234, 6900 Heidelberg 1, W.-Germany.

²) Institut für neue Materialien gem. GmbH, Bau2, Universität Saarbrücken, 6600 Saarbrücken, W.-Germany.

Die U- und Th-Gehalte von Monaziten liegen bei einigen Prozent, während die von Zirkonen lediglich im Bereich einiger 100 ppm sind. Da in der Temperaturzone um 90 °C nur Zirkone mit sehr schwach ausgeprägten Höfen auftreten folgt, dass Zirkon-Halos nur unterhalb dieser Temperatur stabil sind. Halos um U- und Th-reiche Minerale sind jedoch noch bei 140 °C über geologische Zeiten hinweg stabil. Die REM-Aufnahmen zeigen, dass die Einschlüsse komplex aufgebaut sein können und dass deshalb thermische Aussagen nur über die Messung der tatsächlich vorliegenden radioaktiven Gehalte möglich sind.

Unsere Untersuchungen geben dem Studium von radiogenen Verfärbungshöfen eine neue Bedeutung. Sie eröffnen ein Verfahren, mit dem sich aus der Ausbildung der Halos um Einschlüsse unterschiedlicher U- und Th-Gehalte die Temperturbereiche ermitteln lassen, denen Gesteinsproben aus oberen Krustenbereichen über geologische Zeiten hinweg ausgesetzt waren.

Key words: Radiogenic haloes, geothermometer, biotite, monazite, zircon, thorite, Urach-III drill hole, xenolithe, SEM, U-Th concentrations.

1. Einführung

Färbungsaureolen um kleine Mineraleinschlüsse, auch Halos oder pleochroitische Höfe genannt (vgl. Fig. 2), wurden erstmals von MICHEL-LEVY (1882) in dunklen Glimmern beschrieben. Dies geschah noch vor Entdeckung der Radioaktivität. Erst von JoLY (1907) und MüGGE (1907) wurde der Zusammenhang zwischen Verfärbungshöfen und Radioaktivität erkannt. Die Verfärbung in den Wirtsmineralen ist auf die ionisierende Wirkung von α-Partikeln und teilweise auf deren Verdrängung von Ionen aus Gleichgewichtspositionen im Kristallgitter zurückzuführen. Beim Vorliegen sehr kleiner Einschlüsse (≤10 μm) mit hohem Gehalt an radioaktiven Elementen kommt es zur Ausbildung unterschiedlich gefärbter konzentrischer Ringe, welche die Reichweite von α-Teilchen spezifischer Energie widerspiegeln. Die Radien dieser Ringe liegen im allgemeinen im Bereich von 10–50 μm. Träger der Radioaktivität können Minerale wie z.B. Apatit, Titanit, Zirkon, Orthit und Monazit sein, während als Wirtsminerale farbige Minerale wie Biotit, Chlorit, Amphibol oder farblose Minerale wie Muskovit, Cordierit, Fluorit in Frage kommen.

Bis in die sechziger Jahre hinein waren radiogene Höfe Gegenstand geochronologischer Forschung. Eine Zusammenstellung der Grundlagen und Datierungsansätze, welche auf der Färbungsintensität der Höfe beruhen, gaben Picciotto & Deutsch (1960). Hirschmann (1967) benutzte das Grössenverhältnis Hof/Einschluss als Datierungsgrundlage. Wegen der grossen Unsicherheiten (vgl. Hirschmann 1967), die mit den verschiedenen Arbeitsansätzen verbunden sind, haben die Halos seit der Etablierung der isotopischen Datierungsmethoden ihre Bedeutung in der Geochronologie völlig verloren. Allenfalls ist mit ihnen ohne grossen Aufwand die Unterscheidung sehr alter und sehr junger Gesteine möglich. In jüngster Zeit ist versucht worden, mit Hilfe neuerer Techniken Halos um Zirkoneinschlüsse zur Datierung von Quarz-Zementen in Sandsteinen heranzuziehen (OWEN 1988).

Das Ziel unserer Untersuchung ist ein völlig anderes. Es galt zu prüfen, ob das weit verbreitete und jedem Petrographen bekannte Phänomen der Halo-Ausbildung in ähnlicher Art wie das Auftreten von Spaltspuren (vgl. FLEISCHER et al. 1975, MILLER & WAGNER 1979, HAMMERSCHMIDT et al. 1984, ZAUN & WAGNER 1985) als Geo-Thermometer Verwendung finden kann. Erste Ergebnisse (HRADETZKY, SCHALL & LIPPOLT 1988) legten es nahe, die Bearbeitung der quantitativen Zusammenhänge zu beginnen.

2. Grundlegendes über die Ausbildung von Halos

Sowohl Spaltspuren als auch Halos sind die Folge radioaktiver Strahlung, welche zu Veränderungen des Kristallgitters führt. Im Falle der Spaltspuren sind die Verursacher Spaltfragmente. Sie werden durch Anätzen als Einzelstörungen grösseren Ausmasses sichtbar. Im Falle der Halos tritt die Summe kleiner Schädigungen, die durch eine Vielzahl von α-Partikeln hervorgerufen wird, in Erscheinung. Beiden Prozessen gemeinsam ist jedoch, dass sowohl für Zwecke der Datierung als auch für eine potentielle Anwendung in der Geo-Thermometrie das zeitliche Integral (vgl. GENTRY 1973) der Strahlenschäden herangezogen werden muss.

Die Ausbildungsqualität eines radiogenen Hofes (Schwärzungsgrad, Grösse) ist von verschiedenen Faktoren abhängig. Neben der Bestrahlungsdosis, den Kristalleigenschaften des Wirtminerals und der Geometrie des Einschlusses ist die Temperatur mitentscheidend. Von Laborexperimenten (POOLE 1928, DEUTSCH 1960) weiss man, dass die Halos in Biotit bei Temperaturen von 600–700 °C nach etwa einer Stunde Heizzeit verschwinden. Weitaus weniger stabil sind sie in Amphibol und Cordierit (GUDDEN 1919). Besonders temperaturresistent sind Halos in Quarz. Sie können mit Hilfe der Kathodenluminiszenz (OWEN 1988, MARSHALL 1988) oder aber unter einem Auflichtmikroskop mit Ölimmersion sichtbar gemacht werden (RINK & ODOM 1989). Heizzeiten von 100 Stunden bei 800 °C bewirken noch keinerlei Veränderungen des Hofes in Quarz (BAKER & OWEN 1986).

Für Spaltspuren in Apatit sind die Ausheiltemperaturen wesentlich niedriger als die obigen Werte. Aus Laborexperimenten ist bekannt, dass bei Temperaturen von 350 °C bereits nach einer Heizzeit von 1,5 Stunden nur noch 20% der Spuren vorhanden sind (WAGNER & REIMER 1972, WAGNER M. 1985). Extrapoliert man diese Werte auf geologische Zeiten, dann ergibt sich für die Spaltspurenstabilität eine kritische Temperatur von ca. 100 °C. Für Zirkon liegt sie bei 200–240 °C und für Titanit bei 250 °C (HURFORD 1984, WAGNER & ZAUN 1985). Über weite Temperaturbereiche hinweg kann die Spaltspurenausheilung mit der Arrhenius-Gleichung beschrieben werden (FLEISCHER et al. 1964, WAGNER & REIMER 1972, WAGNER G.A. 1973, Goswami et al. 1984, WAGNER M. 1985).

Überträgt man die Gesetzmässigkeiten der Spaltspurenausheilung auf die Stabilität radiogener Höfe bei erhöhten Temperaturen und extrapoliert die Ergebnisse der Heizexperimente an Halos auf geologische Zeiträume, so erhält man Temperaturzonen (umrechenbar in Tiefenzonen) der Erdkruste, in welchen radiogene Höfe gerade noch stabil sein sollten. Aus dem Fehlen oder Vorhandensein von radiogenen Höfen kann dann abgeschätzt werden, ob Gesteine oberhalb oder unterhalb einer bestimmten Grenztemperatur über geologische Zeiten hinweg gelagert waren.

Bei der Halo-Bildung in grösseren Erdtiefen, d.h. bei erhöhten Temperaturen, laufen zwei in ihrer Wirkung entgegengesetzte Prozesse ab: zum einen die Strahlenschaden-Bildung und zum anderen die Strahlenschaden-Ausheilung. Beide stehen im dynamischen Gleichgewicht. Im Diagramm der Fig. 1 sind Kurven dargestellt, die auf der Basis der Experimente von Picciotto & Deutsch (1960) und Erkenntnissen, die aus dem Ausheilverhalten von Spaltspuren stammen (WAGNER & REIMER 1972), berechnet wurden. Aufgetragen ist der Halo-Schwärzungsgrad bzw. die α-Teilchen-Spurendichte gegen die Zeit. Die einzelnen Kurven haben verschiedene Temperaturen



Fig. 1. Berechnung der Anzahl von α-Teilchenspuren (y-Achse) als Funktion der Zeit (x-Achse), mit dem Gehalt an radioaktiven Elementen und der Temperatur als Parametern. Die unterbrochenen Linien stehen für U- und Th-Gehalte, wie sie bei Monaziten üblich sind; die durchgezogenen Linien entsprechen den um zwei Grössenordnungen geringeren Gehalten (z.B. von Zirkonen). Die verschiedenen Kurven wurden auf der Basis der Experimente von Picciorto & DEUTSCH (1960) und den Erkenntnissen berechnet, die aus dem Ausheilverhalten von Spaltspuren gewonnen wurden (WAGNER & REIMER 1972).

a-tracks (y-axis) as function of time (x-axis) with concentration of radioactive elements and temperature as parameters. Dashed lines represent U- and Th-concentrations common for monazites, full lines represent concentrations two orders lower (e.g. zircon). The different curves have been calculated using data from Picciotto & DEUTSCH (1960) and the annealing formula of fission tracks (WAGNER & REIMER 1972).

und verschiedene U- und Th-Gehalte als Parameter. Der Verlauf der gestrichelten Kurve mit dem Temperaturparameter 60 °C gibt z.B. an, dass ein Einschluss mit Uund Th-Gehalten, wie sie für Monazite typisch sind (Prozentbereich), nach 10 Million Jahren einen gut sichtbaren Hof besitzt, der sich in seinem Schwärzungsgrad nicht mehr verändert. Bei 90 °C ist dieser Hof nur schwach erkennbar, bei 120 °C überhaupt nicht mehr. Ein Korn, das einen um zwei Grössenordnungen kleineren U-Th-Gehalt besitzt, hat bei 60 °C selbst nach 100 Millionen Jahren nur einen schwach erkennbaren Hof ausgebildet.

3. Untersuchungen an Dünnschliffen der Forschungsbohrung Urach-III

Da die Übertragung experimentell ermittelter Ausheiltemperaturen (hohe Temperatur, kurze Heizzeit) auf geologische Verhältnisse (niedrige Temperatur, lange Heizzeit) mit grossen Unsicherheiten behaftet ist, erschien es sinnvoll, diese Ergebnisse anhand von Gesteinsproben aus einer tiefen Kristallinbohrung zu überprüfen. Dazu bot sich die Forschungsbohrung Urach-III (Schwäbische Alb) an, ca. 30 km südlich von Stuttgart. Sie durchteufte nach 1600 m Deckgebirge rund 1900 m Kristallin und erreichte an der Basis eine Temperatur von mehr als 140 °C. Das durchteufte Kristallin besteht aus moldanubischen Paragneisanatexiten, Metablastiten und Granodioriten (STENGER 1982). Rb/Sr- und K/Ar-Datierungen an Biotiten dieser Gesteine lieferten Werte um 325 Ma. Sie werden als Zeitpunkt der Abkühlung unter 330 °C gedeutet; vor etwa 270 Ma wurden Oberflächentemperaturen erreicht. Mesozoisch erfolgte erneut eine Versenkung dieses Kristallinabschnitts, wobei Temperaturen zwischen 150 und 200 °C erreicht wurden. Zirkon- und Apatitspaltspuren dokumentieren eine anschliessende kontinuierliche Abkühlung der Gesteine seit der Kreidezeit bis auf die rezent gemessenen Temperaturen, die selbst durch den miozänen Vulkanismus nicht unterbrochen wurde. Vor etwa 15 Ma lagen die Gesteinstemperaturen nicht mehr als 20 °C über den heutigen (HAMMERSCHMIDT et al. 1984, WAGNER & ZAUN 1985).

3.1 Ausbildung der Halos in drei Tiefenbereichen

Das Studium von Dünnschliffen dieser Bohrung ergab Einschlüsse mit Halos neben Einschlüssen ohne Halos im gesamten Kristallinbereich. Die Halos werden allerdings nach unten hin seltener und ihr durchschnittlicher Schwärzungsgrad wird geringer. Diese Beobachtung legt die Vermutung nahe, dass die U- und Th-Konzentrationen der Einschlüsse einen grossen Bereich überstreichen müssen. Es konnte sich folglich bei den verschiedenen Einschlüssen nicht um eine einzige Mineralart handeln. Um Grössenordnungen verschiedene Gehalte radioaktiver Elemente haben die häufig auftretenden Minerale Zirkon und Monazit. Bereits SCHWANDER & WENK (1965) haben erkannt, dass Monazite weitaus häufiger Zentren von radiogenen Höfen bilden, als dies allgemein angenommen wird. In den tertiär amphibolitfaziell überprägten Gesteinen der Tessiner Alpen sind die Hofbildner Monazite, während die Zirkone keine Höfe erzeugten.

Um den Zusammenhang zwischen Haloausbildung, Lagerungstiefe bzw. -temperatur und Mineralart quantitativ zu erfassen, wurden aus drei Tiefenbereichen des Kristallins jeweils Einschlüsse mit unterschiedlicher Hofausbildung licht- und rasterelektronenmikroskopisch untersucht. Die REM-Untersuchungen sollten sowohl die Strukturen als auch die U- und Th-Gehalte aufdecken. Die Fig. 2 zeigt die Dünnschliff-Aufnahme einer Probe aus 1600 m Tiefe. Zu sehen sind in einem Biotit-Aggregat Monaziteinschlüsse mit kräftigen Höfen, daneben Zirkoneinschlüsse mit schwachen und Apatiteinschlüsse völlig ohne Höfe. In 2300 m Tiefe haben Zirkone keine Höfe mehr, während sie um Monaziteinschlüsse noch kräftig ausgebildet sind (Fig. 3). Gut ausgebildete Höfe wurden um Monaziteinschlüsse selbst in 3200 m Tiefe noch beobachtet (Fig. 4). Der in Fig. 4 dargestellte Monaziteinschluss ist in seinem Randbereich an einer Stelle mit Zirkon verwachsen. Im Bereich des Zirkons ist keine radiogene Schwärzung



Fig. 2. Lichtmikroskopische Dünnschliffaufnahme einer Probe aus 1600 m Tiefe. In einem Biotitaggregat treten neben Monaziten (Mo) mit kräftigen Halos Zirkone (Zr) mit schwachen and Apatite (Ap) völlig ohne Halos auf. Thin section photograph of a sample taken at a depth of 1600 m showing an aggregate of biotites with different inclusions. The figure shows monazites (Mo) with distinct haloes besides zircons (Zr) with pale haloes and apatites (Ap) without haloes.



Fig. 3. Lichtmikroskopische Dünnschliffaufnahme einer Probe aus 2300 m Tiefe. Die Zentren der Halos sind Monazite (Mo). Zirkone (Zr) haben in diesem Tiefenbereich keine Halos. *Thin section photograph of a sample taken at a depth of 2300 m. Monazites (Mo) have distinct haloes whereas zircons* (Zr) are without haloes.



Fig. 4. (Links) Lichtmikroskopische Dünnschliffaufnahme eines Biotits mit einem Monaziteinschluss aus dem tiefsten Bereich des erbohrten Kristallins (3200 m). Der Monazit ist randlich an einer Stelle (Pfeil) mit Zirkon verwachsen. Dort fehlt der radiogene Hof, welcher um den Rest des Monazits deutlich ausgebildet ist. (Left) Thin section photograph of a sample taken at the deepest level of the crystalline section (3200 m). The monazite shown in this figure is intergrown at one side (arrow) with zircon. At this place no halo has developed.

Fig. 5. (Rechts) Thorium-Elementverteilung im Einschluss der Fig. 4. Deutlich zu sehen ist die geringere Th-Konzentration an der Stelle, wo der Zirkon in den Monazit eingewachsen ist (Pfeil). (*Right*) Distribution of thorium in the inclusion shown in Fig. 4. Where the monazite is intergrown with zircon (arrow), the Th-concentration is significantly lower.

ausgebildet. Die Fig. 5 zeigt die Th-Elementverteilung des gesamten Einschlusses und belegt den wesentlich niedrigeren Th-Gehalt des Zirkons gegenüber dem Monazit.

In Tabelle 1 wurde die Halo-Ausbildung aller mit dem Lichtmikroskop und dem Rasterelektronen-Mikroskop (REM) identifizierten Einschlüsse für drei Tiefenbereiche zusammengestellt. Zentren der Einschlüsse mit kräftigen bzw. deutlich erkennbaren Halos waren in allen Tiefenbereichen Monazit, Thorit sowie Verwachsungen von Monazit bzw. Zirkon mit Thorit, niemals jedoch Zirkon selbst. Völlig ohne Halos sind in allen Tiefenbereichen der Bohrung nur Apatite und Titanite. Orthite wurden nur im tiefsten Kristallinabschnitt beobachtet. Sie haben keine Halos. Zirkone besitzen z.T. schwach ausgebildete Halos im obersten Bereich des Kristallins, im tieferen Niveau fehlen sie.

Die Beurteilung der Höfe erfolgte nach dem lichtmikroskopischen Eindruck. Als «kräftig» wurden schwarze Halos bezeichnet, deren Radius bei zentraler Schnittlage grösser als etwa 15 µm war; als «schwache» Halos solche, die nur eine leicht graue Färbung und einen Radius von nur etwa 5–15 µm hatten. Bei Einschlüssen «ohne» Halo war in deren Kontaktbereich zum Biotit lichtmikroskopisch keine Verfärbung mehr zu erkennen. Eine photometrische Erfassung der Schwärzung der Höfe wie sie z.B. schon von HENDERSON & BATESON (1934) vorgeschlagen wurde, war im vorliegenden Fall

Tiefe [m]	Temp. [°C]	Apatit Ti	: Or tanit	thit Zirł	Monazi ton Th	.t Ver	Thorit
1600	(90°C)	-	-	E	t +	+	
2300	(110°C)	_	_		- +	+	
3200	(140°C)	-	-		- +	+	+
(-) Hal ¹ ThV	lo fehlt /erw.: Ver	(±) sch wachsung	wacher en von Zirkon	Halo Thori	(+) kı t mit Mo	räftig onazi	ger Halo t,

U+Th-Gehalt größer ---->

Tab. 1: Haloausbildung verschiedener Einschlüsse in Kristallinproben der Bohrung Urach-III als Funktion der Tiefe. Halo appearance around different inclusions in samples of crystalline rocks at three levels of the Urach-III drill hole.

nicht notwendig, da kräftige und schwache Halos häufig eng nebeneinander in einem einzigen Korn auftraten und damit der direkte, objektive Vergleich gegeben war. Ausserdem ist bei der Suche nach der Stabilitätstemperatur der radiogenen Höfe nicht der unterschiedliche Schwärzungsgrad ausschlaggebend, sondern die Beobachtung, ob ein Hof vorhanden ist oder nicht. Die Fig. 6 zeigt die energiedispersiven Röntgenspektren von Apatit, Zirkon und Monazit in einem Schliff, welcher Fig. 2 entspricht. Sie sind sichere Mittel zur Identifizierung der jeweiligen Einschlüsse, besonders dann, wenn eine exakte lichtmikroskopische Bestimmung nicht möglich ist.

3.2 Komplex gebaute Einschlüsse als Zentren von Halos

Dass es nicht immer genügt, Einschlüsse lediglich lichtmikroskopisch anzusprechen, wird aus der Fig. 7 deutlich. Dargestellt ist die photographische Aufnahme eines Einschlusses unter dem Lichtmikroskop bei starker Vergrösserung (etwa 600fach). Das Korn zeigt einen komplexen Aufbau mit einem Kern und kleinen Kristalliten im Saumbereich. In Fig. 8 ist ein vergleichbares Korn im Rückstreuelektronenbild zu sehen. Hier konnte mit Hilfe energiedispersiver Röntgenspektren im Kernbereich ein Monazit identifiziert werden, der von einem Saum mit Thorit-Kristalliten in einer Apatit-Matrix umgeben wird. Zwingende Kriterien für das Vorhandensein von Mikrostrukturen in Monaziten und Pechblenden fanden auch KRISHNASWAMI & SEIDEMANN (1988). BLACK et al. (1984) konnten mit Hilfe der Elektronen-Mikroskopie Kristallite bzw. Mikrostrukturen von einigen 100 Å in Monaziten und PIRONON (1986) solche ≤1 µm in Pechblenden sichtbar machen. Ein weiteres Beispiel für den komplexen Bau mancher Einschlüsse zeigt die Fig. 9. Im Rückstreuelektronenbild ist ein Zirkonkristall



Fig. 6. Mit dem Rasterelektronen-Mikroskop aufgenommene energiedispersive Röntgenspektren von Apatit, Zirkon und Monazit. Sie dienen der sicheren Identifikation der Einschlüsse, die besonders bei lichtmikroskopischer Unterscheidung von Monazit und Zirkon nicht immer eindeutig ist.

Energy dispersive X-ray spectra taken with a SEM on apatite, zircon and monazite. They reliably identify the various inclusions, whilst by conventional microscopy monazite and zircon often cannot be distinguished unequivocally.



Fig. 7. Lichtmikroskopische Dünnschliffaufnahme eines Einschlusses mit ca. 600facher Vergrösserung. Das Korn zeigt einen komplexen Aufbau mit einem homogenen Kern und einem Saumbereich mit kleinen Kristalliten. Wie Fig. 8 zeigt, kann sich der Saum vom Kern mineralogisch unterscheiden.

Thin section photograph showing an inclusion in biotite (\times 600). The grain is built up by a homogeneous nucleus with a rim of tiny crystallites. As shown in Fig. 8 these crystallites are not necessarily of the same type as the nucleus.

zu sehen, der sich dadurch auszeichnet, dass er mit einer Vielzahl sehr kleiner $(2-5 \ \mu m)$ Uranothoritkristalle durchsetzt ist. Diese verleihen dem Einschluss als ganzem eine sehr viel höhere Radioaktivität, als man sie für einen Zirkon erwarten würde.

3.3 Haloausbildung und Radioaktivität

Das nebeneinander Auftreten von Einschlüssen mit kräftigen Halos und von Einschlüssen völlig ohne Halos kann mit starken Unterschieden im Gehalt der radioaktiven Elemente Uran und Thorium erklärt werden. Um dies quantitativ zu belegen, haben wir Konzentrationsbestimmungen durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tab. 2 bzw. im Diagramm der Fig. 10 dargestellt. Dieses Diagramm verknüpft Radioaktivität, Halo-Ausbildung und Temperatur. Es wurden alle U- und Th-Gehaltsbestimmungen zusammengestellt (x-Achse) und gegen die Tiefe bzw. die Temperatur aufgetragen (y-Achse). Untersucht wurden Einschlüsse aus drei Teufenbereichen (90°, 110°, 140°C.)

Die REM-Analysen wurden mit einem Gerät der Firma Jeol (Jeol 840 A) durchgeführt. Dieses Gerät besitzt neben dem Sekundärelektronen-Detektor einen Rückstreuelektronen-Detektor und ist ausserdem für Konzentrationsbestimmungen mit einem energiedispersiven sowie einem wellenlängendispersiven Analysensystem (TRACOR)



Fig. 8. REM-Rückstreuelektronenbild eines Einschlusses, welcher dem der Fig. 7 ähnelt. Mit Hilfe energiedispersiver Röntgenspektren konnte der Kern als Monazit identifiziert werden, während sich der Saumbereich als Apatit-Matrix mit Thorit-Kristalliten erwies.

SEM back-scattered electron image of an inclusion comparable to the one shown in Fig. 7. The nucleus is identified by energy dispersive X-ray spectra as monazite having a rim built up of thorite crystallites in an apatite matrix.

ausgestattet. Die vorliegenden Daten wurden mit dem energiedispersiven System ermittelt. Vor der Analyse erfolgte eine Bedampfung der polierten, nicht abgedeckten Gesteinsdünnschliffe mit Kohlenstoff. Die Eichung für die Elemente Thorium und Uran wurde mit Hilfe einer Monazitprobe (Th: 3,698%, U: 0,476%) durchgeführt.

Alle analysierten Monazite besitzen U- und Th-Konzentrationen zwischen etwa 5% und 8%. Auch die Gehalte der Verwachsungen von Zirkon bzw. Monazit mit Thorit liegen grössenordnungsmässig in diesem Bereich. Nur reine Thorit-Kristalle haben wesentlich höhere Konzentrationen (60-70%). Die U- und Th-Konzentrationen von Zirkonen liegen im Bereich der Nachweisgrenze der verwendeten Mikrosonde, es wurden ungefähre Werte zwischen 0,01% und 0,1% ermittelt. Mittels induzierter Spaltspuren wurde das an einigen Zirkonen präzisiert. Die U-Konzentrationen dieser Zirkone liegen zwischen 0,02% und 0,09%. An einem Orthit wurden Konzentrationswerte bestimmt, die zwischen denen von Zirkon und Monazit liegen (0,8%).

Ziel dieser quantitativen Untersuchungen ist es, eine Art Temperatur-Stabilitäts-Kurve der Halos als Funktion der Radioaktivität der Einschlüsse zu gewinnen. Bis jetzt können wir nur einen Bereich angeben. Dieser ergibt sich aus folgenden Beobachtungen: Nahe der Bohrsohle haben alle Monazite, Thorite und Verwachsungen von Thorit mit Zirkon bzw. Monazit deutliche Halos ausgebildet, Orthite hingegen haben in dieser Tiefe keine Halos mehr. Damit muss bei etwa 140 °C die für die Ausbildung



Fig. 9. REM-Rückstreuelektronenbild eines Zirkonkristalls, der von einer Vielzahl sehr kleiner (2–5 μm) Uranothorit-Kristalle durchsetzt ist. Diese verleihen dem Einschluss eine sehr viel höhere Radioaktivität als man bei einem reinen Zirkon erwarten könnte.

SEM back-scattered electron image of a zircon containing a lot of very tiny $(2-5 \mu m)$ uranothorite crystallites. Therefore the whole grain is much more radioactive than a normal zircon.

von Halos erforderliche kritische Konzentration von U- und Th im Prozentbereich (1-5%) liegen.

Bei 90 °C liegt die kritische Konzentration im Bereich einiger hundert ppm (0,01–0,1%). Sie wird definiert durch Zirkone, die in diesem Temperaturbereich gerade noch erkennbare Halos ausgebildet haben. Der mittlere Teil der Kurve ist bislang nicht gut definiert, da wir in dieser Temperaturzone keine Einschlüsse mit mittleren U- und Th-Konzentrationen gefunden haben (z.B. Orthite). Der Grenzbereich der Halo-Stabilität ist schraffiert. Rechts von diesem Bereich sind Halos stabil, links davon nicht. Die Stabilitätsgrenze radiogener Höfe liegt damit bei deutlich höheren Temperaturen, als dies aus den Modellrechnungen auf der Grundlage der Labor-experimente hervorgeht (vgl. Fig. 1).

4. Anwendung radiogener Höfe als Temperaturindikatoren

Welche Erkenntnisse liefert das Diagramm der Fig. 10 für die Anwendung radiogener Höfe in der Geothermometrie? Im unteren Teil des Diagramms sind Literaturwerte durchschnittlicher U- und Th-Konzentrationen der wichtigsten hofbildenden Minerale aufgetragen (ROGER & ADAMS 1978a, b). Verknüpft man diese Werte mit dem oberen Teil des Diagramms, dann lässt sich voraussagen, welche dieser Minerale unterhalb bestimmter Grenztemperaturen Halos ausbilden können. Demnach wird

Probe	Tiefe [m]	T [°C]	Halo	Mineral	U [%]		Th [%]	
U1/1	1.634	91	sehr schwach	Zirkon		-	-	
บ1/5	1.634	91	kräftig	Monazit	0.5	± 0.3	6.7 ± 1.0	
U1/10a	1.634	91	schwach	Zirkon		-	-	
U1/10b	1.634	91	sehr schwach	Zirkon		-	-	
U6/2	1.638	91	sehr schwach	Zirkon		-	_	
U6/3	1.638	91	kräftig	Monazit	0.2	± 0.1	7.3 ± 1.0	
บ7/1	1.640	91	fehlt	Zirkon	0.04		0.03	
U7/2	1.640	91	kräftig	Monazit+Thorit+Apatit	0.4	± 0.2	9.3 ± 1.2	
บ7/3	1.640	91	schwach	Zirkon	0.01		0.00	
U8/1*	1.641	91	schwach	Zirkon	0.07	± 0.04	-	
U8/5*	1.641	91	schwach	Zirkon	0.03	± 0.02	-	
U8/6*	1.641	91	fehlt	Zirkon	0.02	± 0.01	—	
U8/9*	1.641	91	sehr schwach	Zirkon	0.09	± 0.05	-	
U61/2a	2.303	112	fehlt	Zirkon		_	_	
U61/5	2.303	112	kräftig	Monazit	0.3	± 0.2	4.5 ± 0.6	
U65/2	2.306	112	schwach	Monazit	0.3	± 0.2	7.0 ± 0.9	
U65/3	2.306	112	fehlt	Zirkon	0.1	±	0.0	
U65/5	2.306	112	kräftig	Monazit+Thorit	0.5	± 0.3	13.2 ± 1.8	
U97/2	3.057	136	fehlt	Orthit	0.05	± 0.05	0.8 ± 0.1	
U105/1	3.210	141	mittelkräftig	Monazit	0.7	± 0.4	5.6 ± 0.8	
U105/2	3.210	141	fehlt	Zirkon	0.02		0.0	
U110/2	3.257	143	mittelkräftig	Thorit	1.5	± 0.7	62.1 ± 9.5	
U110/4	3.257	143	schwach	Zirkon+Uranothorit	2.6	± 1.6	2.2 ± 0.3	

* - Halo nur schwach, da Biotit alteriert

Tab. 2: U- und Th-Konzentrationen verschiedener Einschlüsse aus drei Tiefenbereichen. Die Konzentrationsbestimmungen erfolgten mit einem für Elementanalyse ausgestatteten REM. Die Konzentrationen der Zirkone, die mit «*» gekennzeichnet sind, wurden mit Hilfe induzierter Spaltspuren bestimmt; die anderen Werte sind nur ungefähre Werte, da sie im Bereich der Nachweisgrenze des REM-Gerätes lagen. Im Falle der verwachsenen Einschlüsse wurden die U- und Th-Gehalte der Einzelkomponenten bestimmt und ein durchschnittlicher Wert für den Gesamteinschluss errechnet. Die Temperaturen für die jeweiligen Teufen wurden aus HAENEL & ZOTH (1982) übernommen.

U- and Th-concentrations of different inclusions from three levels of the drill hole, measured with a SEM equiped for element analysis. Concentrations of zircons marked with **** have been determined by induced fission track analysis; the zircon values only are approximate values because measured close to the detective limit of the SEM. The concentrations of inclusions intergrown with thorium minerals are calculated values based on measurements on the individual minerals. The temperatures were taken from HAENEL & ZOTH (1982).



Fig. 10. Stabilitätskurve von Biotit-Halos. Das Diagramm verknüpft Halo-Ausbildung, Radioaktivität und Temperatur. Es wurden alle U- und Th-Gehaltsbestimmungen zusammengestellt (x-Achse) und gegen die Tiefe bzw. die Temperatur (y-Achse) aufgetragen. Der schraffierte Bereich gibt den Grenzbereich der Halo-Stabilität an. Rechts dieses Bereichs sind Halos über geologische Zeiten im dynamischen Gleichgewicht von Bildung und Ausheilung, links davon fehlen sie. Im unteren Teil des Diagramms sind Literaturwerte durchschnittlicher U- und Th-Konzentrationen der wichtigsten hofbildenden Minerale aufgetragen.

A graph showing the stability of haloes in biotite. It combines the quality of appearance of the haloes with radioactivity and temperature. All U- and Th-concentrations determined are drawn in (x-axis) against depth respectively temperature (y-axis). The hatched band indicates the minimum concentrations of radioactive elements that at a given temperature is necessary for the development of haloes. Haloes are stable at the right side of the band. Halo development and annealing are in dynamic equilibrium. The lower part of the diagram shows average U- and Th concentrations taken from literature for the most important halo producing minerals.

z.B. Zirkon nur unterhalb von ca. 90 °C einen sichtbaren Hof haben, Orthit unterhalb von ca. 120 °C und Monazit unterhalb von ca. 140 °C.

Eine der möglichen Anwendungen der Temperatur-Stabilitätskurve radiogener Höfe sehen wir bei der Untersuchung von Krustenxenolithen in vulkanischen Tuffen. Diese Xenolithe sind oft wichtige und einzige Indikatoren für den Krustenaufbau bestimmter Regionen, sie können jedoch nur selten eindeutig einer bestimmten Herkunftstiefe zugeordnet werden. Das Auftreten von Halos in solchen Gesteinsfragmenten weist, falls die Heizung beim vulkanischen Transport von untergeordneter Bedeutung geblieben ist, auf die maximalen Temperaturen hin, denen die Xenolithe über geologische Zeiten ausgesetzt waren. Damit ist auch eine Aussage zur maximalen Herkunftstiefe möglich. Kommen in den Xenolithen Einschlüsse verschiedener U-Th-Gehalte nebeneinander vor, so lassen sich nicht nur Maximal- bzw. Minimaltemperaturen, sondern im günstigen Fall – d.h. wenn radioaktive Minerale mit gerade noch erkennbaren Höfen, neben Mineralen geringerer Radioaktivität ohne Höfe auftreten – enge Temperaturbereiche angeben.

Die Untersuchung radiogener Höfe wird im allgemeinen auf Xenolithe in Tuffen beschränkt sein, da in diesen die Temperatureinwirkung des Magmas während und nach der Eruption am geringsten ist. Ein weiterer einschränkender Faktor ist der Zeitpunkt der Eruption. Liegt sie geologisch weit zurück, so besteht die Möglichkeit, dass die radioaktiven Einschlüsse ihre Höfe erst an der Oberfläche ausgebildet haben. Deshalb sollten nur Xenolithe herangezogen werden, die einem sehr jungen Vulkanismus (Quartär!) zuzuordnen sind. Derzeit wird von uns untersucht, welche U- und Th-Konzentrationen in jungtertiären bis quartären Intrusivgesteinen radiogene Höfe erzeugt haben.

Eine weitere interessante Anwendungsmöglichkeit der Halo-Geothermometrie bietet die Untersuchung von Gesteinsproben aus tiefen Bohrungen. Das Auftreten von Halos in Bohrkernen gestattet Aussagen darüber, ob rezent mit anderen Mitteln im Bohrloch gemessene Temperaturen über geologische Zeiträume hinweg dominiert haben.

5. Zusammenfassung und Ausblick auf weitere Studien

Die Untersuchung von Halos der Bohrung Urach-III hat gezeigt, dass die Stabilitätsgrenze für Halos mit spezifischer Radioaktivität der Einschlüsse höher liegt, als dies aus der Extrapolation von Heizexperimenten hervorgeht. Radiogene Höfe sind geeignet, um langzeitliche thermische Lagerungsbedingungen von Gesteinen zu erhellen. Sie zeichnen sich besonders dadurch aus, dass mit ihnen ohne grossen technischen Aufwand direkt an Gesteinsdünnschliffen von Proben, die unter erhöhten Temperaturen in der Erdkruste gelagert waren, Temperaturabschätzungen durchgeführt werden können. Diese lassen sich dann mit Hilfe von U- und Th-Konzentrationsbestimmungen der Einschlüsse präzisieren. Aus dem Vorhandensein bzw. Fehlen von radiogenen Höfen lassen sich maximale bzw. minimale Temperaturen ableiten.

Die Untersuchung zeigt ausserdem, dass entgegen der weit verbreiteten Ansicht, Zirkone seien die Hauptverursacher von Halos in Biotiten, auch Thoriumminerale eine wesentliche Rolle spielen (vgl. auch SPEER et al. 1982). Besondere Bedeutung kommt dem Mineral Monazit zu. Die Untersuchungen mit dem Rasterelektronen-Mikroskop haben darüberhinaus deutlich gemacht, dass viele akzessorische Minerale, die unter dem Lichtmikroskop als Zirkone oder Monazite angesprochen werden, in Wirklichkeit sehr komplex aufgebaute Aggregate aus mehreren Mineralen sein können.

Das Ziel weiterer Untersuchungen wird nun zum einen sein, den Grenzbereich der Halo-Stabilität für die verschiedenen radioaktiven Minerale einzuengen und den Verlauf dieser Kurve im Temperaturbereich um 120 °C durch das Auffinden von halobildenden Mineralen mit U-Th-Gehalten zwischen 0,1% und 1% abzusichern. Zum anderen ist zu überprüfen, inwieweit die strahlungsbedingten Verfärbungsempfindlichkeiten unterschiedlicher Biotite, die aus der Halo-Datierung früherer Jahre bekannt sind (vgl. PICCIOTTO & DEUTSCH 1960), in den Kurven-Verlauf eingehen. Geeignetes Probenmaterial könnte z.B. auch das derzeit laufende Kontinental-Tiefbohr-Programm (KTB) liefern.

Verdankungen

Die Autoren danken Dr. R. Stenger (Mineralogisches Institut Freiburg) für die Überlassung von Dünnschliffen der Forschungsbohrung Urach-III, Prof. B. Grauert (Münster) für die Überlassung einer Monazitprobe und Dipl.-Phys. G. Schall für seinen Beitrag zu den Modellrechnungen. Herr M. Schuler (Saarbrücken) führte die REM-Messungen durch, die Herren K. Schacherl und H.J. Leyk fertigten einige Photo-Abzüge bzw. einige der Reinzeichnungen an, ihnen sei für die sorgfältige Ausführung dieser Arbeiten gedankt. Frau G. Voigt-Kirsch gebührt Dank für ihre Unterstützung bei der Uran-Bestimmung mittels induzierter Spaltspuren. Die Untersuchung ist durch DFG-Mittel gefördert worden.

LITERATURVERZEICHNIS

- BAKER, E.B., & OWEN, M.R. 1986: 800 °C threshold for cathodoluminescence in zircon and radiation-damage halos in metaquartzite. Geological Society of America, Abstracts with Programs 18, 532.
- BLACK, L.P., FITZGERALD, J.D., & HARLEY S.L. 1984: Pb isotopic composition, colour and microstructure of monazites from a polymetamorphic rock in Antarctica. Contrib. Mineral. Petrol. 85, 141–148.
- DEUTSCH, S. 1960: Influence de la chaleur sur la coloration des halos pléochroïques dans la biotite. Nuovo Cemento 16, 269-273.
- FLEISCHER, R.L., PRICE, P.B., & SYMES, E.M. 1964: Fission track ages and track-annealing behavior of some micas. Science 143, 349-351.
- FLEISCHER, R.L., PRICE, P.B., & WALKER, R.M. 1975: Nuclear tracks in solids. University of California Press, Los Angeles.
- GENTRY, R.V. 1973: Radioactive halos. Ann. Rev. Nucl. Sci. 23, 347-362.
- Goswami, J.N., JHA, R., & LAL, D. 1984: Quantitative treatment of annealing of charged particle tracks in common minerals. Earth Planet. Sci. Lett. 71, 120–128.
- GUDDEN, B. 1919: Pleochroitische Höfe. Dissertation (unveröffentlicht), Göttingen.
- HAENEL, R., & ZOTH, G. 1982: Temperature measurements and determination of heat flow density. In: The Urach Geothermal Project (Ed. by HAENEL, R.), 81–88, Schweizerbart, Stuttgart.
- HAMMERSCHMIDT, K., WAGNER, G.A., & WAGNER, M. 1984: Radiometric dating on research drill core Urach III: a contribution to its geothermal history. J. Geophys. 54, 97–105.
- HENDERSON, G.H., & BATESON, S. 1934: A quantitative study of pleochroitic halos I. Royal Society of London Proceedings, ser. A 173, 238-249.
- HIRSCHMANN, G. 1967: Eine Altersbestimmungsmethode für kristalline Gesteine mittels radioaktiver Höfe. Ber. deutsch. Ges. geol. Wiss., Ser. B, Miner. Lagerstättenf. 12, 373–397.
- HRADETZKY, H., SCHALL, G., & LIPPOLT H.J. 1988: Radioaktive Verfärbungshöfe als Temperaturindikatoren. Fortschr. Mineral. 66, Bh. 1, 70.
- HURFORD, A.J. 1984: On the closure temperature for fission tracks in zircon. Proc. 4th Int. Fission Track Dating Workshop, Troy, N.Y. (abstract).

JOLY, J. 1907: On pleochroitic halos. Phil. Mag. 13, 381.

- KRISHNASWAMI, S., & SEIDEMANN, D.E. 1988: Comparative study of ²²²Rn, ⁴⁰Ar, ³⁹Ar and ³⁷Ar leakage from rocks and minerals: Implications for the role of nanopores in gas transport through natural silicates. Geochim. Cosmochim. Acta 52, 655–658.
- MARSHALL, D.J. 1988: Cathodoluminescence of geological materials, Unwin Hyman Ltd, London.
- MICHEL-LEVY, A. 1882: Sur les noyaux à polychroïsme intense du mica noir. Compt. Rend. 94, 1196.
- MILLER, D.S., & WAGNER, G.A. 1979: Age and intensity of thermal events by fission track analysis: the Ries impact crater. Earth Planet. Sci. Lett. 43, 351–358.
- Mügge, O. 1907: Radioaktivität als Ursache der pleochroitischen Höfe. Zbl. Miner. Geol. 71, 113–142.

OWEN, M.R. 1988: Radiation-damage halos in quartz. Geology 16, 529-532.

- PICCIOTTO, E.E., & DEUTSCH, S. 1960: Pleochroitic halos. Summer course on nuclear geology, Varenna. Comitato nazionale per l'Energia nucleare, 263–310, Pisa.
- PIRONON, J. 1986: Zonalites géochimiques et minéralogiques dans les bassins continentaux uranifères. Geol. Geochim. Uranium. Mem. 13, Nancy.

POOLE, J.H. 1928: The action of heat on pleochroitic halos. Phil. Mag. 5, 132-141.

- RINK, W.J., & ODOM, A.L. 1989: Giant radiation-damage halos in quartz. Geology 17, 54.
- ROGERS, J.J.W., & ADAMS, J.A.S. 1978a: Thorium: Thorium Minerals (II). In: Handbook of Geochemistry II/5 (Ed. by WEDEPOHL, K.H.), 90D1-90D2, Springer, Heidelberg New York.
- 1978b: Uranium: Abundances in rock forming Minerals (I). In: Handbook of Geochemistry II/5 (Ed. by Wedeронц, K.H.), 92D1–92D3, Springer, Heidelberg – New York.
- Schwander, H., & WENK, E. 1965: Monazit als Kern pleochroitischer Höfe in Biotiten der Tessiner Gneise. Schweiz. Mineral. Petrogr. Mitt. 45, 797–806.
- SPEER, J.A. 1982: The actinide orthosilicates. In: Reviews in Mineralogy, Vol. 5, Orthosilicates (Ed. by RIBBE, P.H.), 113–132, Mineralogical Society of America, Washington.
- STENGER, R. 1982: Petrology and geochemistry of the basement rocks of the research drilling project Urach-III. In: The Urach Geothermal Project (Ed. by HAENEL, R.), 41–48, Schweizerbart, Stuttgart.
- WAGNER, G.A. 1973: Anwendung anätzbarer Partikelspuren in Geochronologie und Geochemie. Habilitationsschrift (unveröffentlicht), Universität Heidelberg.
- WAGNER, G.A., & REIMER, G.M. 1972: Fission track tectonics: The tectonic interpretation of fission track apatite ages. Earth Planet. Sci. Lett. 14, 263–268.
- WAGNER, G.A., & ZAUN, P.E. 1985: Spaltspuren Uhr und Thermometer f
 ür Gesteine. Geowissenschaften in unserer Zeit 3, 127–134.
- WAGNER, M. 1985: Spaltspurendatierungen am Bohrkern Urach-III. Ein Beitrag zur Wärmegeschichte der geothermischen Anomalie Urach. Dissertation (unveröffentlicht), Universität Heidelberg.
- ZAUN, P.E., & WAGNER, G.A. 1985: The potential of zircon fission track studies for deep-drilling projects. Naturwiss. 72, 143-144.

Manuskript eingegangen am 26. Juni 1989 Revision angenommen am 27. September 1989