5 Methodik

5.1 Datierung

Die Spaltspur-Datierungsmethode beruht auf der spontanen Kernspaltung des Uran-Isotops ²³⁸U. Der Kern spaltet sich in zwei Nuklide mit ähnlich großer Masse, die sich aufgrund ihrer hohen gleichsinnigen Ladung abstoßen und einen linearen Defekt im Kristallgitter hinterlassen (z.B. Price and Walker, 1963). Spontane Kernspaltung unterliegt wie andere Zerfallsarten dem Gesetz des radioaktiven Zerfalls, d.h. Spaltspuren akkumulieren im Kristall in konstanter Rate. Die Dichte der Spaltspuren ist eine Funktion der Zerfallsrate, der Dauer der Anreicherung und der ²³⁸U-Konzentration im Kristall. Aus der Spaltspurendichte und dem Urangehalt kann damit das Spaltspuren-Alter für ein Mineralkorn bestimmt werden (Hurford and Green, 1982). Die Erhaltung von Spaltspuren hängt in erster Linie von der Temperatur ab und wird in Kap. 5.2 und 5.3 erläutert.

Spaltspuren sind extrem dünn, können aber durch Anätzen vergrößert und für das optische Mikroskop sichtbar gemacht werden. Sie werden dann auf einem polierten und parallel zur c-Achse orientierten Anschnitt des Kristalls gezählt. Der Urangehalt wird durch Bestrahlung mit "langsamen" thermalen Neutronen bestimmt, wodurch die Kernspaltung von – idealerweise ausschließlich – ²³⁵U-Atomen induziert wird. Diese induzierten Spaltspuren werden auf einem externen Glimmer-Detektor abgebildet. Über das praktisch konstante heutige Isotopenverhältnis von ²³⁵U/²³⁸U (Cowan and Adler, 1976) ergibt die Dichte der induzierten ²³⁵U-Spaltspuren die Konzentration von ²³⁸U im Kristall.

Für die Spaltspuren-Methode gilt wie für andere radiometrische Datierungsverfahren die prinzipielle Gleichung, die den Zerfall natürlicher radiogener Mutteratome (N_p) zu stabilen Tochteratomen (N_d) beschreibt:

$$N_{d} = N_{p}(e^{\lambda t} - 1) \tag{5.1}$$

Ersetzt man N_d durch die Dichte der spontanen Spaltspuren $\rho_s = \lambda_f/\lambda_d N(e^{\lambda dt}-1)$ und N_p durch die Dichte der induzierten Spaltspuren $\rho_i = {}^{238}NI\sigma\varphi$, erhält man

$$t = 1/\lambda_{\alpha} \ln[(\lambda_{\alpha}/\lambda_{f})(\rho_{s}/\rho_{i})QGI\sigma\phi + 1]$$
(5.2)

die Altersgleichung für Spaltspuren (Wagner and Van der Haute, 1992), wobei:

t = Zeit

 ρ_s = Dichte der spontanen Spaltspuren

 ρ_i = Dichte der induzierten Spaltspuren

 λ_{α} = Zerfallskonstante für α -Emission von ²³⁸U (1.55125 x 10⁻¹⁰a⁻¹; Jaffrey et al., 1973)

 λ_f = Zerfallskonstante für spontane Kernspaltung von ²³⁸U (6.5 bis 8.5 [x 10⁻¹⁷a⁻¹]; zusammengefasst in Wagner and Van der Haute, 1992)

 λ_d = Gesamt-Zerfallskonstante für Uran = $(\lambda_\alpha + \lambda_f)$

 $I = Isotopenverhältnis {}^{235}U/{}^{238}U (7.2527 \times 10^{-3} a^{-1}; Cowan and Adler, 1976)$

 σ = Querschnittsfläche von ²³⁵U für Kernspaltung durch thermale Neutronen (580.2 x 10⁻²⁴cm²; Hanna et al., 1969)

 ϕ = Thermaler Neutronenfluss

Q = Faktor für Ätzbedingungen und individuelle Zählweise des Bearbeiters

G = Geometriefaktor (0.5 für die Methode mit externem Detektor)

In der Altersgleichung ist die Zerfallskonstante für Kernspaltung von 238 U (λ_f) ungenau bestimmt, und der Neutronenfluß φ bei der Bestrahlung ist schwierig zu messen (siehe Wagner and Van der Haute, 1992). Um diese Schwierigkeit zu umgehen, führten Hurford and Green (1982; 1983) die sog. Zeta- bzw. ζ -Kalibrierungsmethode ein, die auf dem Analysieren von Altersstandards basiert. Zusammen mit den Standards (und den Proben) werden Dosimetergläser mit bekanntem Urangehalt bestrahlt, wodurch die Bestimmung eines absoluten Wertes von φ ersetzt wird. Die Altersgleichung wird für jeden analysierten Standard mit bekanntem Alter t_{std} nach ζ aufgelöst:

$$\zeta = \left(\exp(\lambda_{\alpha} t_{\text{std}}) - 1\right) / \lambda_{\alpha} (\rho_{\text{s}} / \rho_{\text{i}})_{\text{std}} G \rho_{\text{d}}$$
(5.3)

mit: t_{std} = Alter des Standards (mit unabhängigen Methoden wie U/Pb, Rb/Sr, K/Ar und Ar/Ar bestimmt)

 ρ_d = Spaltspurendichte im Dosimeterglas

 $(\rho_s/\rho_i)_{std}$ = Verhältnis der Spaltspurendichten im Standard

Der ζ -Wert ist eine dimensionslose empirische Größe, die von der individuellen Zählweise des Bearbeiters und anderen Bedingungen (z.B. beim Anätzen der Proben) abhängt und variiert dementsprechend je nach Bearbeiter. Durch Analysieren einer genügend großen Zahl von Standards wird der individuelle ζ -Kalibrierungsfaktor ermittelt (Kap. 5.8). Die Altersgleichung kann dann in der folgenden Form geschrieben werden:

$$t_{s} = (1/\lambda_{\alpha}) \ln[\lambda_{\alpha}(\rho_{s}/\rho_{i})_{s}\rho_{d}G\zeta + 1]$$
(5.4)

mit: $t_s = A1$

 t_s = Alter der Probe

 $(\rho_s/\rho_i)_s$ = Verhältnis der Spaltspurendichten in der Probe

5.2 Spaltspurlängen

Spaltspuren sind metastabil. Sie verheilen von beiden Enden her und werden irreversibel verkürzt. Der zugrunde liegende physikalische Prozess der Verheilung (annealing) auf atomarer Ebene ist nur teilweise aufgeklärt (z.B. Carlson, 1990), aber experimentell wurde die Temperatur als der überaus kontrollierende Faktor neben der Zeit und anderen Faktoren (z.B. die chemische Zusammensetzung, siehe Kap. 5.5) erkannt und quantifiziert (Green et al., 1986; Laslett et al., 1987; Green et al., 1989b; Ketcham et al., 1999). Die Länge der Spaltspuren beeinflusst die räumliche Dichte der Spaltspuren, auf der die Altersbestimmung basiert: die Wahrscheinlichkeit, dass sich eine lange Spaltspur mit der Anschnittsfläche schneidet,

ist höher als die Wahrscheinlichkeit für kurze Spaltspuren. Dadurch wird ein um so geringeres Alter bestimmt, je stärker die Spaltspuren durch Temperatur verkürzt sind. Um die Bedeutung eines Spaltspuren-Alters zu verstehen, muss die dahinterliegende Längenverteilung bekannt sein.

Die mittlere ätzbare Länge von neu induzierten Spaltspuren beträgt etwa 16.3 μm (Gleadow et al., 1986). Spaltspurlängen werden meist durch Messung von horizontalen und vollständig erhaltenen Spaltspuren bestimmt (horizontal confined track length; Bhandari et al., 1971), d.h. nur die Spaltspuren werden gemessen, die parallel zur Anschnittsfläche orientiert und mit beiden Enden vollständig im Kristall eingeschlossen sind. Diese Methode stellt die beste Approximation der wahren Längenverteilung dar (Gleadow et al., 1986) und sollte aus einer statistisch repräsentativen Stichprobe von 50 bis 100 Längenmessungen je Probe bestehen. Die wichtigsten Parameter der Längendaten sind der arithmetische Mittelwert, die Standardabweichung und die Häufigkeitsverteilung, die gewöhnlich in Form eines Histogramms mit Klassen von 1 μm dargestellt wird.

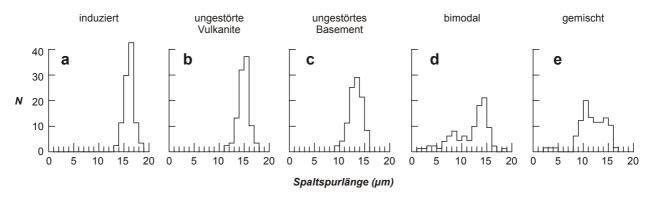


Abb. 5.1: Charakteristische Spaltspurlängen-Verteilungen nach Gleadow et al. (1986) für induzierte Spaltspuren (a), ungestörte Vulkanite (b), ungestörtes Basement (c) sowie bei zweiphasiger (d) oder komplexer (e) Temperaturgeschichte (N = Anzahl der Spaltspuren).

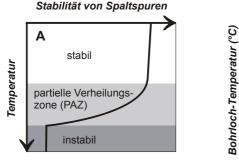
Eine Zusammenstellung von Längenverteilungen aus unterschiedlichen geologischen Situationen, in denen die Temperaturgeschichte abgeschätzt werden kann, zeigt, welche qualitativen Informationen über die thermale Geschichte in den Längenverteilung liegen und dass diese in vier Gruppen unterteilt werden können (Gleadow et al., 1986). Eine weitere Gruppe stellen die durch Bestrahlung neu erzeugten Spaltspuren dar, die nicht über Raumtemperatur erwärmt wurden (Abb. 5.1):

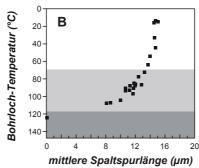
- Durch Bestrahlung induzierte Spaltspuren sind mit 16.3 μm am längsten, und ihre Verteilung ist eng und symmetrisch.
- Vulkanite und ähnliche Gesteine, die sehr rasch abgekühlt sind und nicht mehr über etwa 50°C erwärmt wurden, zeigen mittlere Längen von 14-15 μm und eine ebenfalls enge Verteilung bei geringer Standardabweichung von um ± 1 μm (,,undisturbed volcanic"). Alle Altersstandards gehören zu dieser Gruppe.
- Gesteine, die langsam und kontinuierlich abgekühlt sind, z.B. das kristalline Basement aus Schildregionen, haben eine geringere mittlere Länge von 12-13 μm bei höherer Standardabweichung von ± 1-2 μm und weisen eine breite asymmetrische Längenverteilung auf, die negativ schief zu kurzen Längen hin ist ("undisturbed basement").

- Eine zweiphasige Temperaturgeschichte, z.B. durch thermale Überprägung, resultiert in einer charakteristischen bimodalen Verteilung.
- Komplexe Temperaturpfade führen zu einer Vielzahl von Mischformen der Längenverteilung.

5.3 Partielle Verheilungszone

Spaltspuren werden in geologischen Zeiträumen über einen weiten Temperaturbereich verheilt, der z.B. für Durango-Apatit zwischen 125°C und 60 °C liegt (Gleadow and Duddy, 1981). Das für Isotopensysteme übliche Konzept der Schließungstemperatur (Dodson, 1973) ist für das Spaltspur-System nur begrenzt anwendbar, da Verheilung, d.h. partieller Verlust von Tochterprodukten, während der thermischen Geschichte in den obersten ca. 5 km der Kruste stattgefunden haben kann. An die Stelle einer Schließungstemperatur tritt daher im Spaltspuren-System das Konzept der partiellen Verheilungszone (partial annealing zone, PAZ; Gleadow and Fitzgerald, 1987).





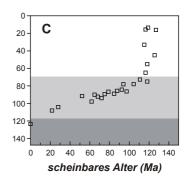


Abb. 5.2: Das linke Schema (A) illustriert die Stabilität von Apatit-Spaltspuren in Abhängigkeit von der Temperatur. In den Diagrammen B und C sind Apatit-Spaltspurdaten aus Bohrungen im Otway-Becken (Australien) gegen die korrigierte Bohrloch-Temperatur aufgetragen (nach Green et al., 1989). Innerhalb der partiellen Verheilungszone (PAZ) nehmen die mittlere Spaltspurlänge und das scheinbare Alter mit steigender Temperatur (Tiefe) ab. Unterhalb der PAZ ist die Spaltspurendichte gleich Null.

Unter Temperaturen, die höher sind als diejenigen der PAZ, werden Spaltspuren nicht erhalten, sondern vollständig ausgeheilt. Der Temperaturwert der Grenze der PAZ zu höheren Temperaturen hängt von der Abkühlungsrate und von den kinetischen Eigenschaften des einzelnen Apatits bezüglich des Verheilungsprozesses ab (Ketcham et al., 1999; siehe Kap. 5.5). In geologischen Situationen, in denen über Zeiträume von >100 Ma ein etwa konstantes Temperatur/Tiefenprofil einwirkte (z.B. im Otway-Becken, Abb. 5.2), wird diese Grenze als die Temperatur bestimmt, bei der die Spaltspurendichte gegen Null geht (100% fading temperature, T_F; Gleadow and Duddy, 1981). Bei nicht konstanter Temperatur eignet sich die Definition als die Temperatur der vollständigen Verheilung, durch die eine bestimmte Spaltspur-Population bei gegebener Erwärmungsrate vollständig ausgeheilt wird (T_A; Issler, 1996), bzw. die Temperatur, unter der bei gegebener Abkühlungsrate die älteste Spaltspur in einer Probe gebildet wurde. Diese Definition ist nützlich, da das Alter der ältesten Spaltspur und die zugehörige T_A Ergebnisse der Modellierungsprogramme sind (Kap. 5.6) und zum Vergleich der modellierten Abkühlungspfade von verschiedenen Datensätzen dienen können. Innerhalb der PAZ werden Spaltspuren in unterschiedlichem,

vor allem von der Temperatur abhängigen Grade verkürzt und ein einheitliches Spaltspuralter wird entsprechend reduziert (Abb. 5.2). Die Grenze der PAZ zu niedrigeren Temperaturen wird dort gezogen, wo der Gradient der Stabilität die stärkste Abnahme aufweist. Innerhalb des Stabilitätsfeldes bleiben Spaltspuren etwa in ihrer ursprünglichen Länge erhalten, und das Spaltspuralter wird kaum reduziert (zur Problematik der initialen Spaltspurlänge siehe Kap. 5.4).

5.4 Verheilungsmodelle

Der Verheilungsprozess von Spaltspuren in Apatit wurde experimentell untersucht (Green et al., 1986; Duddy et al., 1988; Crowley et al., 1991; Carlson et al., 1999). In diesen Experimenten an Apatiten mit bestimmter chemischer Zusammensetzung wurden induzierte Spaltspuren variabler Temperatur und Dauer ausgesetzt und die Verkürzung relativ zur initialen Länge gemessen. Daraus wurden empirische mathematische Modelle abgeleitet, die den Verheilungsprozess in Abhängigkeit von Temperatur und Zeit beschreiben (Laslett et al., 1987; Green et al., 1989b; Crowley et al., 1991; Ketcham et al., 1999). Die grundlegende Formulierung ist ein Arrhenius-Modell (Laslett et al., 1987), d.h. im Diagramm der inversen absoluten Temperatur (1/T) gegen den Logarithmus der Zeit (ln t) verlaufen die Isolinien gleicher Längenreduktion als Geraden. Die Verheilung wird demnach vor allem von der Temperatur und in zweiter Linie von der Zeit bestimmt, wobei eine Temperaturänderung von 10°C etwa denselben Effekt hat wie die Änderung der Zeit um den Faktor zehn (Green et al., 1989b).

Ein Problem bei der Anwendung dieser Modelle ist die Extrapolation der experimentellen Messungen auf geologische Zeitskalen von 10⁶-10⁸ a (Green et al., 1989b; Carlson, 1990). Die Modelle wurden durch Untersuchungen von Apatit-Spaltspurdaten aus geeigneten geologischen Bedingungen kalibriert, z.B. den Bohrungen im Otway-Becken (Otway basin reference wells; Green et al., 1989a). Generelle Übereinstimmung der Modell-Voraussagen mit den geologischen Daten konnte gezeigt werden (z.B. Green et al., 1989b; Ketcham et al., 1999), wenn auch Einzelheiten noch unvollständig geklärt sind. So wurden Verheilungsexperimente aus praktischen Gründen an induzierten Spaltspuren durchgeführt, die durch Kernspaltung von 235U im Reaktor entstehen, während Spaltspuren in der Natur fast nur durch spontane Kernspaltung von ²³⁸U entstehen. Wie z.B. Green (1988) zeigte, haben induzierte und spontane Spaltspuren generell ein sehr ähnliches Verheilungsverhalten. Ein genauerer Vergleich ergab allerdings, dass die Verheilungsrate spontaner Spaltspuren etwa 10% höher ist als diejenige von induzierten Spaltspuren (Barbarand et al., 2002). In diesem Zusammenhang besteht das Problem, dass die initiale Länge, ein kritischer Parameter der Verheilungsmodelle, nicht an geologisch entstandenen (spontanen), sondern nur an neu induzierten Spaltspuren gemessen werden kann. Die mittlere Länge spontaner Spaltspuren von rasch abgekühlten Vulkaniten, die seit ihrer Bildung nachweislich unter oberflächennahen Temperaturen verweilten (z.B. Vrolijk et al., 1992), ist grundsätzlich um etwa 1.5 μm kürzer als die initiale Länge von induzierten Spaltspuren. Dies wird dahingehend interpretiert, dass die Enden neu entstandener Spaltspuren sehr instabil sind, und daher auch bei niedrigen Temperaturen eine sehr rasche anfängliche Verheilung um 5-10% stattfindet (Green et al., 1989b).

5.5 Kinetische Variabilität von Apatiten

Das Verheilungsverhalten verschiedener Apatite variiert stark mit der chemischen Zusammensetzung (z.B. Carlson et al., 1999). In Apatit, Ca₅(PO₄)₃[F,Cl,OH], sind die Anionen F⁻, Cl⁻ und OH⁻ untereinan-

der zwischen den Endgliedern Fluor-, Chlor- und Hydroxy-Apatit substituierbar. Aber auch andere Elemente sind variabel, so kann die Kationen-Position von Mangan, Eisen und Seltenen Erden eingenommen werden. Für das Verheilungsverhalten ist das F/Cl-Verhältnis von Bedeutung, indem Chlor-reiche Apatite in der Regel widerstandsfähiger gegen Verheilung sind als Fluor-reiche (Carlson, 1990; O'Sullivan and Parrish, 1995). Der Einfluss der chemischen Zusammensetzung auf das Verheilungsverhalten ist jedoch komplex (Carlson et al., 1999; Ketcham et al., 1999; Kohn et al., 2002) und die physikalischen Prozesse nicht geklärt. Eine Beziehung besteht zwischen dem Chemismus und der Löslichkeit von Apatit in Säure, indem die Ätzbarkeit mit steigendem Cl-Gehalt zunimmt. Die Ätzbarkeit kann durch Messung der Länge von c-Achse-parallelen Ätzfiguren bestimmt werden, die am Durchstoßpunkt von Spaltspuren mit der Oberfläche entstehen (D_{par}, gemessen in μm; Donelick, 1993; Burtner et al., 1994).

Natürliche Proben, besonders von Sedimentgesteinen (in dieser Arbeit wurden nur solche analysiert) enthalten fast immer Apatite mit unterschiedlichem Chemismus und damit variablem Verheilungsverhalten. Voraussagen über die thermische Geschichte aufgrund von Verheilungsmodellen, die nur auf einer bestimmten Apatit-Spezies basieren (Laslett et al., 1987: Durango-Apatit mit einem F/Cl-Verhältnis von ~0.1; Crowley et al., 1991: F/Sr-Apatit), können daher zu erheblichen Fehlinterpretationen führen oder von beobachteten Daten abweichen, wie dies z.B. Green et al. (1989b) für das Modell von Laslett et al. (1987) zeigten. Besonders kritisch ist dies für den Teil des t-T-Pfades einer Probe, in dem weniger resistente Apatite vollständig zurückgesetzt sind, stärker resistente Apatite aber noch Spaltspuren behalten (siehe z.B. Abb. 7.34).

Diese Variabilität der Verheilungskinetik wurde von Carlson et al. (1999) durch Verheilungsexperimente an 15 verschiedenen Apatit-Spezies mit einem weiten Spektrum in der chemischen Zusammensetzung quantifiziert. Die Versuche zeigten Unterschiede in den Verheilungsraten, die um fast eine Größenordnung größer sind als die Unterschiede zwischen den bisherigen monokompositionellen Modellen. Ein weiteres Ergebnis war, dass der Cl-Gehalt und die Ätzbarkeit (Dpar) die Unterschiede in den Verheilungsraten vieler, aber nicht aller untersuchten Apatite erklären kann, und dass ihr Effekt durch andere chemische Variablen überlagert wird. Die Korrelationen zwischen der Verheilungsresistenz und diesen Variablen konnten nicht vollständig geklärt werden (Carlson et al., 1999). Dennoch fanden Ketcham et al. (1999) einfache Funktionen, die das relative Verheilungsverhalten beliebiger Apatit-Paare beschreiben, und entwickelten ein einheitliches Verheilungsmodell, in dem das Verheilungsverhalten jedes untersuchten Apatits auf den resistentesten Apatit bezogen wird. Für die Anwendung dieses Modells braucht man einen verlässlichen Parameter, der die kinetischen Eigenschaften jedes Apatits charakterisiert. Der Cl-Gehalt und die Ätzbarkeit (Dpar) haben gleichwertige, wenn auch nicht vollständig robuste Voraussagekraft für die Verheilungskinetik (Ketcham et al., 1999). Sie treffen für das Verheilungsverhalten von etwa 90% der untersuchten Apatite zu und versagen vorwiegend für Apatite mit exotischer Zusammensetzung. Durch dieses multikinetische Verheilungsmodell kann die kinetische Variabilität in Apatit von einer Beschränkung zu einem Vorteil bei der Rekonstruktion der thermischen Geschichte werden. So erhöht sich z.B. die Aussagekraft, wenn verschiedene Abschnitte des Zeit-Temperatur-Pfades durch kinetisch unterschiedliche Apatit-Populationen belegt werden.

5.6 Modellierung von Apatit-Spaltspurdaten

Die partielle Verheilung von Apatit-Spaltspuren führt zwar einerseits zu scheinbaren Altern, andererseits ist aber mit der Längenverteilung eine sensible Funktion der thermischen Geschichte gegeben. Da Spalt-

spuren kontinuierlich gebildet und verheilt werden, erfährt jede Spaltspur einen unterschiedlichen Teil des Temperaturpfades und enthält eine entsprechende Information. Durch Modellierung des Verheilungsprozesses kann die thermische Geschichte, die beobachteten Spaltspurdaten zugrunde liegt, abgeschätzt werden. Zur Anwendung der verschiedenen Verheilungsmodelle (Laslett et al., 1987; Crowley et al., 1991; Ketcham et al., 1999) wurden Computerprogramme entwickelt (Green et al., 1989b; Gallagher, 1995; Willett, 1997; Ketcham et al., 2000). In dieser Arbeit wurde das Programm AFTSolve Version 1.2.2 (Ketcham et al., 2000) verwendet, dem das multikinetische Verheilungsmodell von Ketcham et al. (1999) zugrunde liegt, und mit dem die kinetische Variabilität in Apatit am besten berücksichtigt werden kann.

Das Programm erstellt Vorwärtsmodelle, indem für einen gegebenen Zeit-Temperatur-Pfad die Längenverteilung und das scheinbare Alter berechnet werden. Für beobachtete Spaltspurdaten wird über iterative Vorwärtsmodellierungen innerhalb vorgegebener Zeit-Temperatur-Randbedingungen eine Temperaturgeschichte rekonstruiert. Eine große Zahl von t-T-Pfaden wird nach einem zufallsgenerierten Suchsystem ausgewählt und die modellierten Ergebnisse durch statistische Tests auf ihre Übereinstimmung mit den beobachteten Daten evaluiert. Die Modellierung von Spaltspurdaten stellt also keine Inversion dar, sondern einen statistischen Prozess, der den Lösungsraum eingrenzt.

Eingabe-Daten sind die Einzelkornalter und Längendaten einer Probe. Zur Charakterisierung des Verheilungsverhaltens werden der Cl-Gehalt oder die Ätzfigur-Länge (D_{par}) für jeden Apatit eingegeben, an dem ein Alter oder eine Spaltspurlänge bestimmt wurde. Das Verheilungsmodell von Ketcham et al. (1999) korrigiert auch die Anisotropie der Längenreduktion bezüglich der kristallographischen c-Achse (Donelick, 1991; Green et al., 1986) durch das Projektionsmodell von Donelick et al. (1999), so dass für die Längendaten auch der Winkel zur c-Achse eingegeben wird. Eine kritische Vorgabe ist der Wert für die initiale Spaltspurlänge L_i (siehe Kap. 5.4). Im Verheilungsmodell von Ketcham et al. (1999) wird die Variabilität von L_i in Abhängigkeit vom Chemismus der Apatite berücksichtigt. Dazu ist eine von Carlson et al. (1999) ermittelte lineare Funktion zwischen D_{par} (oder Cl-Gehalt) und L_i implementiert (Abb. 5.3), welche die Variabilität aller von Carlson et al. (1999) untersuchten Apatit-Spezien bezüglich L_i gut annähert. Der Benutzer muss ferner Zeit-Temperatur-Vorgaben in Form von zeitlich fixierten Temperatur-Fenstern setzen. Zwischen dem mindestens nötigen Start-Temperaturintervall und der rezenten Oberflächentemperatur können weitere Vorgaben gesetzt werden, wenn sie durch unabhängige geolo-

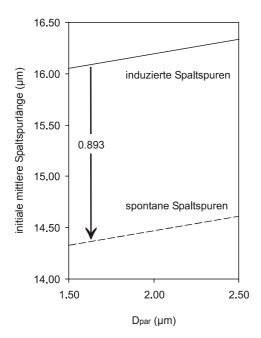


Abb. 5.3: Lineare Beziehung zwischen der initialen mittleren Länge von induzierten Spaltspuren und dem kinetischen Parameter D_{par} nach Carlson et al. (1999). Die initiale Länge spontaner Spaltspuren von Altersstandards ist gegenüber induzierten Spaltspuren reduziert. Der Reduktionsfaktor von 0.893 ist im Programm AFTSolve (Ketcham, 2000) voreingestellt.

gische Informationen (Datierungen anderer Minerale, Ablagerungsalter etc.) angenommen werden sollen.

Als Suchsystem für die zu testenden t-T-Pfade kann entweder die Monte Carlo-Simulation (Gallagher, 1995) verwendet werden, die nach dem Zufallsprinzip unabhängige t-T-Pfade auswählt oder die *Controlled Random Search*-Methode (CRS; Willett, 1997), bei der innerhalb einer zufallsgenerierten Anfangsmenge von t-T-Pfaden durch einen iterativen Prozess unmögliche Pfade aussortiert werden. Diese Methode eignet sich bei schlecht bekannten Randbedingungen.

Die Güte der Anpassung des Modells an die Eingabe-Daten wird durch statistische Tests beschrieben. Für die modellierte Längenverteilung wird der Kolmogorov-Smirnov-Test (Willett, 1992; Willett, 1997) verwendet und für das modellierte Alter ein ähnlicher Test (*Goodness-Of-Fit*, GOF; Ketcham et al., 2000). Beide Tests beschreiben die Wahrscheinlichkeit, dass eine Stichprobe aus dem Modell diesem unähnlicher wäre als die Daten. Diese Wahrscheinlichkeit ist um so größer, je besser die Daten mit dem Modell übereinstimmen, und kann Werte zwischen 0 und 1 annehmen. Für Werte > 0.05 kann das Ergebnis als "akzeptabel" und bei Werten > 0.5 als "gut" bezeichnet werden, was graphisch als entsprechende Flächen dargestellt ist (Abb. 5.4). Die beiden Tests können kombiniert werden, indem ihr Minimum verwendet wird (Willett, 1997). Ferner gibt AFTSolve den t-T-Pfad mit der "besten" Anpassung an. Dieser muss weder die zutreffende noch die einzig mögliche Temperaturgeschichte darstellen. Durch Verändern der Vorgaben können z.B. sehr unterschiedliche t-T-Pfade mit gleichermaßen guter Anpassung erzeugt werden (siehe Kap. 7.1). Daher sind unabhängige Informationen nötig, um zu entscheiden, welche Temperaturgeschichte am besten mit der geologischen Situation der Daten übereinstimmt.

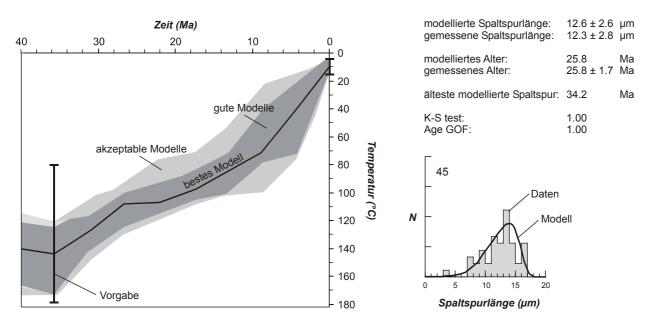


Abb. 5.4: Ergebnisse der Vorwärtsmodellierung von Apatit-Spaltspurdaten mit dem Programm AFTSolve (Ketcham et al., 2000) am Beispiel der Probe EC08. Das linke Diagramm zeigt graphisch die modellierten Zeit-Temperatur-Pfade und die Güte ihrer Anpassung an die gemessenen Daten. Die Modell-Parameter für den Pfad mit der besten Anpassung sind rechts im Vergleich zu den Daten dargestellt (weitere Erläuterungen im Text).

Ein weiteres Ergebnis der Modellierung ist das Alter der ältesten modellierten Spaltspur, welche die am stärksten verkürzte Spaltspur der Modell-Längenverteilung darstellt. Dieses Alter entspricht nach der

Definition von Ketcham et al. (1999) dem Zeitpunkt, an dem die Temperatur der vollständigen Verheilung T_A unterschritten wurde. Bis dahin reicht die Aussagekraft des Modells in der Zeit zurück. Der modellierte Pfad vor diesem Zeitpunkt ist durch die Modelldaten nicht mehr belegt, sondern ergibt sich zwangsläufig aus dem Modellierungsalgorithmus.

5.7 Präparation

Gesteinsaufbereitung und Mineralseparation wurden am Institut für Geowissenschaften der Universität Potsdam durchgeführt. Die Proben ausschließlich sedimentärer Gesteine von 5-8 kg ergaben generell wenig Apatit und viel Zirkon. Nach der Vorkonzentration der Schwermineral-Fraktion mit dem Nassrütteltisch und der Separation des nicht-magnetisierbaren Anteils mittels Magnetscheider, wurde die zwischen den Schwereflüssigkeiten Natriumpolywolframat mit einer Dichte von 2.85 g/cm³ und Diiodmethan mit einer Dichte von 3.3 g/cm³ liegende Fraktion abgetrennt. Diese Fraktion betrug in der Regel um 300 mg und ihr Gehalt an Apatit war gering. Von 110 separierten Proben enthielten 26 keinen oder für eine Analyse zu wenig Apatit. Präpariert und bestrahlt wurden 89 Proben, von denen 30 Proben in dieser Arbeit analysiert wurden. Die aus Zeitgründen nicht mehr analysierten Proben sind in Tab. A2 und Abb. A1 (Anhang) aufgeführt.

Die Präparation der Apatite erfolgte in dem von Dr. Edward Sobel geleiteten Spaltspur-Labor der Universität Potsdam. Die Apatitkörner wurden in Epoxid (Araldit) auf Objektträgern eingebettet, angeschnitten und poliert (letzter Schritt: 0.1 μm AlO₃). Alle Apatit-Proben wurden vor der Bestrahlung in 5.5 mol HNO₃ für 20 Sekunden bei 21°C und die Glimmer-Detektoren nach der Bestrahlung in 40% HF für 45 Minuten bei 21°C angeätzt. Die Ätzbedingungen für Apatit wurden wie in Carlson et al. (1999) gewählt, um bei den Messungen der Ätzfigur-Längen Vergleichbarkeit mit dem Verheilungsmodell von Ketcham et al. (1999) zu gewährleisten (Kap. 5.5).

Die Bestrahlung der Apatit-Präparate mit einem angestrebten Neutronenfluss von 9 x 10^{15} Neutronen/cm² wurde von folgenden Einrichtungen durchgeführt: RISØ National Laboratory, Isotope Division (Roskilde, Dänemark), ANSTO Australian Radioisotopes, Lucas Heights Research Laboratories (N.S.W., Australien) und im Triga-Reaktor der Oregon State University, Radiation Center (Corvallis, USA). Als Uran-Dosimeterglass wurde CN5 mit 12.17 ± 0.62 ppm natürlichem Uran verwendet (Hurford, 1998). Je nach Reaktor und Höhe des zu erwartenden Gradienten im Neutronenfluss wurde ein Dosimeterglas je 7-15 Proben/Standards hinzugefügt (Tab. A1, Anhang).

5.8 Analyse

Die Dichten der spontanen und induzierten Spaltspuren wurden mit der *external detector*-Methode (Hurford and Green, 1982) bestimmt. Sie wurden unter dem optischen Mikroskop der Marke Leica bei 1250-facher Vergrößerung ohne Immersion gezählt, und die Proben der Bestrahlungsserien UP23 und UP24 unter gleichen Bedingungen mit dem Zeiss-Mikroskop des GFZ Potsdam. Das angeschlossene Digitalisierungstablett wurde mit der Steuerungssoftware FT-stage Version 3.11 von Dumitru (1993) betrieben und für die Längenmessungen mit einem Mikrometer kalibriert.

Die Ermittelung des ζ -Kalibrierungsfaktors wurde mit drei Apatit-Altersstandards durchgeführt, und für die Berechnung der ζ -Werte wurden folgende von Green (1985) vorgeschlagene Referenz-Alter verwendet:

- Fish Canyon Tuff (Colorado, USA),: 27.9 ± 0.5 Ma (K/Ar und Ar/Ar; Hurford and Hammer-schmidt, 1985)
- Durango Vulkanit (Cerro de Mercado, Mexiko): 31.4 ± 0.5 Ma (K/Ar; McDowell and Keizer, 1977)
- Mount Dromedary Monzonit (N.S.W., Australia): 98.7 ± 0.6 Ma (K/Ar und Rb/Sr; Williams et al., 1982)

Die ζ-Werte aus elf Analysen von Apatit-Altersstandards (Tab. 5.1 und Abb. 5.5) ergeben einen gewichteten Mittelwert von 362.3 \pm 5.7, der zur Altersbestimmung nach Gleichung 5.4 (Kap. 5.1) verwendet wurde.

Zur Bestimmung des Spaltspuralters einer Probe werden 20-30 Apatitkörner durch Messung der Dichte der spontanen Spaltspuren im Apatit und der Dichte der induzierten Spaltspuren auf dem Glimmer-Detektor datiert (Kap. 5.1). Aus diesen Einzelkornaltern wird das Spaltspuralter der Probe als Mittelwert bestimmt, indem die Anzahlen der spontanen und induzierten Spaltspuren (N_S und N_I) summiert werden und nach Gleichung 5.4 das mittlere Alter (sog. pooled age) berechnet wird (Galbraith and Laslett, 1993). Die Einzelkornalter haben je nach Urangehalt und Größe der Zählfläche unterschiedlich große Fehler und streuen aufgrund der Poisson'schen Unsicherheit des Zählverfahrens. Streuung von Einzelkornaltern kann aber auch andere Ursachen haben. In thermisch ungestörten detritischen Proben besitzen die Apatite unterschiedliche Abkühlungsalter ihrer jeweiligen Herkunftsgebiete. Auch der Chemismus der Apatite kann Ursache für Streuung der Alter sein, da die Verheilungsresistenz mit der Zusammensetzung stark variiert (Kap. 5.5). Der Chi-Quadrat- $(\chi^2$ -)Test (Galbraith, 1981) liefert die Wahrscheinlichkeit, mit der die Einzelkornalter innerhalb der statistischen Streuung konsistent mit einem gemeinsamen Alter sind. Ist diese Wahrscheinlichkeit < 5%, so weichen die Einzelkornalter statistisch signifikant von einander ab und gehören mindestens zwei verschiedenen Populationen an. Das "pooled age" als arithmetischer Mittelwert hat dann eine unscharfe oder gar keine geologische Bedeutung. Für diese Daten entwickelten Galbraith and Laslett (1993) eine statistische Methode zur Berechnung des sog. zentralen Alters (central age). Zur geeigneten Darstellung der Fehler der Einzelkornalter und ihrer relativen Streuung dient das Radial-Diagramm (radial plot, Galbraith, 1990), das in Abb. A2 (Anhang) erläutert ist. Mit diesem Diagramm wird graphisch veranschaulicht, ob die Einzelkornalter den χ^2 -Test passieren: Dies ist der Fall, wenn alle Datenpunkte von einem $\pm 2\sigma$ -breiten Streifen umfasst werden können.

Tab. 5.1: Zeta- $(\zeta$ -)Werte und Spaltspurdaten der analysierten Altersstandards (FCT: Fish Canyon Tuff, MDR: Mount Dromedary, DUR: Durango). N_S ist die Anzahl der gezählten spontanen Spaltspuren, N_I die Anzahl der gezählten induzierten Spaltspuren, ρ_S bzw. ρ_I sind die gemessenen Dichten der spontanen bzw. induzierten Spaltspuren (Spaltspuren/cm²). N_D ist die Anzahl der gezählten induzierten Spaltspuren und ρ_D die gemessene Spaltspurendichte (Spaltspuren/cm²) im externen Glimmer-Detektor auf dem Dosimeterglas (CN5). $P(\chi^2)$ gibt die Wahrscheinlichkeit an, dass die Einzelkornalter normalverteilt sind.

Alters- standard	N	$\rho_{\rm S}$ $\times 10^6$	N _S	ρ _I x 10 ⁶	N _I	P(χ ²) %	ρ_S / ρ_I	ρ _D x 10 ⁶	N _D	zeta	±1 σ
FCT	30	0.2077	491	1.6314	3857	73.91	0.1273	1.1713	6892	375.04	19.71
MDR	30	1.1054	1318	2.5169	3001	53.51	0.4392	1.1708	6892	386.85	13.81
DUR	30	0.1724	501	1.0629	3088	18.18	0.1622	1.1702	6892	331.59	17.29
DUR	30	0.1464	365	0.9728	2426	56.01	0.1505	1.1697	6892	357.73	21.32
FCT	26	0.2060	465	1.2569	2837	40.98	0.1639	0.9752	6406	349.86	19.10
DUR	25	0.1550	377	0.8504	2069	19.54	0.1822	1.0014	6406	345.02	20.54
MDR	30	0.8472	1008	1.6785	1997	69.86	0.5048	1.0145	6406	388.45	15.95
DUR	21	0.1685	345	1.1918	2440	91.46	0.1414	1.2335	4981	360.96	22.14
DUR	21	0.1744	357	1.2577	2575	32.69	0.1386	1.2317	4981	368.66	22.25
FCT	21	0.2344	396	1.3340	2254	77.22	0.1757	0.9630	6406	330.53	19.40
FCT	20	0.1898	280	1.5098	2227	95.43	0.1257	1.2333	9338	360.63	24.05

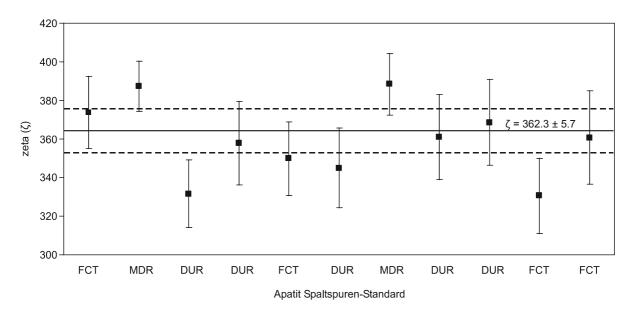


Abb. 5.5: Variation des zeta-Faktors (ζ , $\pm 1\sigma$), der an 11 Apatit Spaltspur-Alterstandards zwischen August 2000 und März 2003 (chronologisch von links nach rechts angeordnet) bestimmt wurde (FCT: Fish Canyon Tuff, DUR: Durango und MDR: Mount Dromedary). Die durchgezogene Linie markiert den gewichteten Mittelwert und die gestrichelten Linien dessen 1σ -Fehler.