


Tellurium isotopes and their applications in cosmo- and geochemistry

Doctoral Thesis

Author(s):

Fehr, Manuela 

Publication date:

2004

Permanent link:

<https://doi.org/https://doi.org/10.3929/ethz-a-004805357>

Rights / license:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#)

DISS. ETH NO. 15597

Tellurium isotopes and their applications in cosmo- and geochemistry

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZÜRICH

for the degree of
DOCTOR OF NATURAL SCIENCES

presented by
Manuela A. Fehr
Dipl. Natw. ETH
born December 10, 1974
citizen of Schaffhausen, SH and Rüdlingen, SH

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. A. N. Halliday, Referee

Dr. M. Rehkämper, Co-referee

Dr. D. Porcelli, Co-referee

Prof. Dr. K. Mezger, Co-referee

Zürich 2004

Abstract

This study focuses on the search for the extinct radionuclide ^{126}Sn , which decays to ^{126}Te with a half-life of 234,500 years. Anomalies in the abundance of ^{126}Te from the decay of ^{126}Sn would provide evidence for a triggered formation of the solar system, most probably by the shock wave of a supernova, because of the very short half-life of ^{126}Sn , which is exclusively produced by the *r*-process. Tellurium more generally is a mixture of *r*-, *s*- and *p*-process nuclides and most of these isotopes are produced by only one nucleosynthetic pathway. Therefore, Te isotopes may be used to test models for stars and the contribution of stellar products to the molecular cloud from which the Sun and planets were formed. Presolar diamonds of Allende display large positive anomalies of the *r*-process Te isotopes ^{128}Te and ^{130}Te . However, no Te isotope anomalies have been found so far in bulk meteorites that were analyzed by thermal ionization mass spectrometry (TIMS).

New mass spectrometric techniques have been developed in this thesis for the precise and accurate determination of Te isotope compositions by multiple-collector inductively coupled plasma-mass spectrometry (MC-ICPMS). Compared to published results for meteorite samples obtained by TIMS, using internal normalization for mass fractionation correction, an improvement in precision of about one to two orders of magnitude was achieved for $^{122}\text{Te}/^{128}\text{Te}$, $^{124}\text{Te}/^{128}\text{Te}$, $^{126}\text{Te}/^{128}\text{Te}$ and $^{130}\text{Te}/^{128}\text{Te}$, whereas the data for $^{120}\text{Te}/^{128}\text{Te}$ are better by a factor of 4. Selected extraterrestrial and terrestrial materials were analyzed to search for nucleosynthetic and radiogenic Te isotope anomalies. These include bulk samples of carbonaceous, ordinary and enstatite chondrites, the metal and sulfide phases of iron meteorites, leachates of carbonaceous chondrites, refractory inclusions of Allende, and terrestrial sulfides.

None of the analyzed bulk meteorite samples show resolvable mass dependent Te isotope fractionations larger than 2‰ for $\delta^{126/128}\text{Te}$. The most positive $\delta^{126/128}\text{Te}$ value of $+1.9 \pm 0.6\%$ was obtained for the unequilibrated ordinary chondrite Mezö-Madaras. Five Archean sedimentary sulfides that display both mass dependent and mass independent isotope effects for S yielded Te isotope data, which indicate that both mass dependent and mass independent Te isotope effects are negligible.

Following internal normalization of the data to $^{125}\text{Te}/^{128}\text{Te}$, the Te isotope ratios of all analyzed bulk meteorites were found to be identical to the terrestrial standard, within uncertainties. This provides evidence that the regions of the solar disk that were sampled during accretion of the meteorite parent bodies were well mixed and homogeneous on a large

scale, with respect to Te isotopes. The data obtained for leachates of carbonaceous chondrites and refractory inclusions of Allende provide no evidence of *p*- or *s*-process anomalies for Te isotopes. The largest anomaly detected in this study is a small potential excess of the *r*-process nuclide ^{130}Te in a nitric acid leachate of the Murchison chondrite. This leachate displayed a small anomaly of $\epsilon^{130}\text{Te} = +1.7 \pm 0.8$, which is barely resolvable given the analytical uncertainties. If this excess of $\epsilon^{130}\text{Te}$ is real, it provides evidence for an *r*-process Te component in a (presolar) phase in addition to the known *r*-process Te isotope signatures of presolar diamonds.

None of the analyzed samples revealed any anomalies in the abundance of ^{126}Te from the decay of ^{126}Sn , even though the $^{118}\text{Sn}/^{128}\text{Te}$ ratio varied between about 0.01 and 10 for leachates of carbonaceous chondrites. This indicates that the free decay interval between the last supernova and the formation of the solar system may have been too long for sufficient amounts of ^{126}Sn to be incorporated into early solid phases. However, none of the samples display a very high $^{118}\text{Sn}/^{128}\text{Te}$ ratio, such that the anomalies in the abundance of ^{126}Te may simply be too small to be resolvable. In addition, alteration processes could have modified the Sn/Te ratios of the samples and homogenized Te isotope signatures. The data acquired for leachates and bulk carbonaceous chondrites indicate that the initial $^{126}\text{Sn}/^{118}\text{Sn}$ ratio of the solar system was less than $(0.6 \pm 1.2) \times 10^{-5}$, but this is dependent on the assumption that there has been no redistribution of Sn and Te since the start of the solar system. The measurements of refractory inclusions of Allende have only limited precision and revealed $\epsilon^{126}\text{Te}$ values that were identical to a terrestrial standard within the uncertainty of about $\pm 1\%$.

Kurzfassung

Die Suche nach dem ausgestorbenen Radionuklid ^{126}Sn , welches mit einer Halbwertszeit von 234,500 Jahren zu ^{126}Te zerfällt, steht im Mittelpunkt dieser Doktorarbeit. Anomalien in der Häufigkeit von ^{126}Te , welche aus dem Zerfall von ^{126}Sn stammen, würden darauf hindeuten das die Bildung des Sonnensystems durch die Schockwelle einer Supernova ausgelöst wurde. Eine solche Schlussfolgerung ist möglich, weil ^{126}Sn eine extrem kurze Halbwertszeit hat und da dieses Isotop zudem ausschliesslich durch r -Prozess Nukleosynthese hergestellt werden kann. Das Element Tellur hat zudem 8 Isotope die, mit der Ausnahme von ^{125}Te und ^{126}Te , alle ausschliesslich entweder durch den nukleosynthetischen r -, s - oder p -Prozess gebildet werden. Deshalb können Te Isotope auch möglicherweise dazu verwendet werden, um astrophysikalische Modelle von Sternen zu überprüfen und um den Ursprung des Materials aus dem sich die Sonne und die Planeten gebildet haben, zu untersuchen.

Präsolare Diamanten die aus dem Allende Meteorit isoliert wurden zeigen grosse positive Anomalien in den Häufigkeiten der r -Prozess Isotope ^{128}Te und ^{130}Te . Isotopenmessungen die mit der herkömmlichen und relativ ungenauen TIMS Technik (thermal ionization mass spectrometry) durchgeführt wurden, konnten jedoch bisher keine Te Isotopenanomalien in Gesamtgesteinsproben von Meteoriten nachweisen. In dieser Untersuchung wurden deshalb neue massenspektrometrische Methoden zur präzisen und akkuraten Bestimmung von Te Isotopenzusammensetzungen entwickelt. Diese Messungen wurden mit einem MC-ICPMS (multiple collector inductively coupled plasma mass spectrometer) Massenspektrometer durchgeführt. Im Vergleich zu schon publizierten TIMS Messungen für Meteoritenproben zeichnet sich diese neue Analytik, nach interner Normierung der Daten auf $^{125}\text{Te}/^{128}\text{Te}$, durch eine signifikant verbesserte Reproduzierbarkeit aus. Für die Messung der $^{122}\text{Te}/^{128}\text{Te}$, $^{124}\text{Te}/^{128}\text{Te}$, $^{126}\text{Te}/^{128}\text{Te}$ und $^{130}\text{Te}/^{128}\text{Te}$ Isotopenverhältnisse ergibt sich eine Verbesserung in der Präzision von einer bis zwei Grössenordnungen und für $^{120}\text{Te}/^{128}\text{Te}$ um einen Faktor 4. Um mögliche nukleosynthetische als auch radiogene Te Isotopenanomalien aufzuspüren wurden verschiedene extraterrestrische und terrestrische Proben untersucht: kohlige, gewöhnliche und Enstatit Chondrite, die Metall- und Sulfidphasen von Eisenmeteoriten, Leachates von schrittweise aufgelösten kohligen Chondriten, refraktäre Einschlüsse von Allende und eine Reihe von terrestrischen Sulfiden.

Die Gesamtgesteinsproben von Meteoriten zeigen keine massenabhängigen Te Isotopenfraktionierungen die grösser sind als $\pm 2\%$ für $\delta^{126/128}\text{Te}$. Die größte Fraktionierung, mit $\delta^{126/128}\text{Te} = +1.9 \pm 0.6\%$, wurde für den unequilibrierten gewöhnlichen Chondriten Mezö-

Madaras bestimmt. Fünf sedimentäre Sulfide aus dem Archaikum, welche sowohl massenabhängige als auch massenunabhängige Isotopeneffekte für Schwefel aufweisen, haben zudem eine normale Te Isotopenzusammensetzung

Nach der interner Normierung der Daten, sind die Te Isotopenverhältnisse aller Gesamtgesteinsproben von Meteoriten identisch, innerhalb des analytischen Fehlers, zu einem terrestrischen Standard. Dies zeigt, dass die Regionen des solaren Nebels aus dem die Mutterkörper der Meteoriten entstanden sind, während der Akkretionsprozesse in Bezug auf ihre Te-Isotopenzusammensetzung über grosse Distanzen hinweg gut gemischt und homogen waren. Die Ergebnisse für die sequentiell aufgelösten kohligen Chondrite und die refraktären Einschlüsse von Allende weisen keine Anomalien in den Häufigkeiten der *p*- und *s*-Prozess Isotope ^{120}Te , ^{122}Te , und ^{124}Te auf. Die grösste Anomalie, die in dieser Arbeit entdeckt wurde ist ein potentieller Überschuss des *r*-Prozess Nuklids ^{130}Te in einem Salpetersäure - Leachate des kohligen Chondriten Murchison. Diese Probe zeigt eine kleine Anomalie von $\epsilon^{130}\text{Te} = +1.7 \pm 0.8$, welche aber aufgrund der Messunsicherheit nur knapp auflösbar ist. Falls sich dieser kleine Überschuss an ^{130}Te tatsächlich bewahrheiten sollte, würde dies für die Anwesenheit einer (präsolaren) Phase mit einer *r*-Prozess Signatur sprechen, die unabhängig von den schon bekannten präsolaren Diamanten (die auch an *r*-Prozess Isotopen angereichert sind) vorkommt.

Die untersuchten Proben zeigen keine Anomalien in der Häufigkeit von ^{126}Te aus dem Zerfall von ^{126}Sn , obschon das $^{118}\text{Sn}/^{128}\text{Te}$ Verhältnis in sequentiell gelösten kohligen Chondriten von etwa 0.01 bis 10 variiert. Dies deutet an, dass das freie Zerfallsintervall zwischen der letzten Supernova und der Bildung des Sonnensystems möglicherweise zu lang war, sodass fast das gesamte ^{126}Sn schon vor der Bildung der ersten festen Phasen vollständig zerfallen war. Keine der Proben zeichnete sich jedoch durch ein sehr hohes $^{118}\text{Sn}/^{128}\text{Te}$ Verhältnis aus, sodass etwaige Anomalien in der Häufigkeit von ^{126}Te zu klein sind, um noch messbar zu sein. Zudem könnten Alterationsprozesse die Sn/Te Verhältnisse der Proben verändert und die Te Isotopensignaturen homogenisiert haben. Die Auswertung der Daten für die Gesamtgesteinsproben und Leachates der kohligen Chondriten weist darauf hin, dass das initiale $^{126}\text{Sn}/^{118}\text{Sn}$ Verhältnis des Sonnensystems kleiner war als $(0.6 \pm 1.2) \times 10^{-5}$. Dieses Ergebniss beruht allerdings auf der Annahme, dass in den Meteoriten keine Umverteilung von Sn und Te stattgefunden hat. Die Messungen für die refraktären Einschlüssen von Allende haben nur eine beschränkte Reproduzierbarkeit und die gemessenen $^{126}\text{Te}/^{125}\text{Te}$ Isotopenverhältnisse sind innerhalb des Messfehlers von etwa 1‰ identisch zu dem terrestrischen Standard.