

凝縮相中の拡散に律速された自由蒸発における元素分別と同位体分別

Chemical and isotopic fractionation during diffusion-controlled free evaporation from a condensed phase

小澤 一仁 [1], 永原 裕子 [2]

Kazuhito Ozawa [1], Hiroko Nagahara [2]

[1] 岡山大・固地センター, [2] 東大・理

[1] ISEI, [2] Geol. Inst., Univ. Tokyo

コンドライトや惑星の化学組成をみると、揮発性成分元素分別がおきているにもかかわらず同位体分別を伴っていないことがあり（例えば月、Humayun and Clayton, 1995）、化学分別は元素凝縮時におきたもので、惑星形成時に蒸発が起きなかった証拠と考えられた。本研究では、蒸発過程における元素分別と同位体分別の挙動を拡散律速で自由蒸発する2成分系の凝縮相について検討した。この結果、揮発性成分に関しては蒸発速度と粒径の積が拡散速度よりかなり大きい場合、初期組成に対する化学的分別は起きるが同位体分別は抑制されることがわかった。従って、同位体分別の欠如は蒸発がおこらなかったことの証拠とはなりえない。

コンドライトや惑星の揮発性成分の化学的分別は同位体分別を伴わないことが報告されている（例えば、Humayun and Clayton, 1995）。これはコンドライトや惑星形成前の元素の凝縮過程における化学分別であり、それら天体の形成に伴う蒸発は起きなかったとされた。本研究では、後者の可能性を検討するために、蒸発過程における元素分別と同位体分別の挙動を拡散律速で自由蒸発する2成分系の凝縮相について検討した。

モデルは、Ozawa & Nagahara (1998) の多成分・多同位体の蒸発モデルで、Wang et al. (1994) や Tsuchiyama et al. (1995) のモデルと基本的には同じであるが、多成分系を取り扱うため、新しいパラメータとして化学分別係数 (K) を導入した。 K は、蒸発反応の速度定数である蒸発フラックス (J) を界面の組成 (C) で割ったもの (J/C) の二つの成分の比である。それぞれの成分の速度定数は一定とし、よって K も一定とする。自由蒸発している2成分系凝縮相は球形とし、2成分の化学的拡散（組成依存性を持ち得る）と一つの成分の微量同位体（主要同位体より重いとする）の自己拡散を別々に計算し、その結果から同位体比を求めた。本研究で注目したパラメータは、蒸発速度と粒径の積を拡散係数で割った蒸発ペクレ数 β （拡散と蒸発の時間スケールの比）と化学分別係数 K である。以下の説明では分別係数として $K=2$ と500の結果を取りあげる。初期組成は0.5とし、同位体分別係数は0.96、化学拡散係数と自己拡散係数の比は1.0とした。

結果として注目すべき点は、同位体分別は二つの異なる K についてほとんど同様であることで、 β が大きくなるに従って分別が抑制される。 β が0.1ではほぼレイリー分別に一致し、 β が100以上で90%近く蒸発しても数パーミル以下の分別しか示さない。 K にほぼ依存しないこのような同位体分別は、 J/C を一定としているためであり、この速度定数の組成依存性が大きくなると K に依存するようになる。一方、初期組成に対する化学的分別は、 K によって顕著に変化する。 $K=2$ の場合には、 β が大きくなると次第に分別が抑制されるようになり、 β が100以上では、90%蒸発しても初期組成の5%以下しか分別しない。これに対して、 $K=500$ では、 β が大きくなっても分別が抑制されることがない。以上の結果から、 K が1に近い（他の成分と同じ程度に蒸発しやすい）場合には、 β が大きくなり拡散律速になると、同位体と元素の両者ともに分別しなくなる。これに対して K が大きい（他の成分に比べて非常に蒸発しやすい）場合には、 β が大きくなると元素は分別するが同位体の分別が抑制されるので、元素分別と同位体分別のデカップリングが起きる。

なぜ、 K が大きいと β が大きくなっても元素分別が抑制されないのかは、表面の組成変化を検討することではっきりする。 $K=2$ では、 β が大きくなると界面組成は蒸発開始後すぐに定常状態に達し、その後一定の値を保つ。これが、蒸発による元素分別を抑制するメカニズムである。一方 $K=500$ の場合には、 β が大きくなると蒸発開始後、界面組成は急速に小さくなるが一定にはならない。このため、元素分別は抑制されない。しかし、両者の場合とも、界面の同位体比は β が大きければ、すぐに定常値に達するので、同位体分別は抑制される。

以上の結果から、 K が大きい揮発性成分でその蒸発速度と距離（粒径）の積が拡散速度よりかなり大きい場合には（ β = 蒸発ペクレ数が ~ 100 以上）、初期組成をに対し元素分別は起きるが同位体分別は抑制されることがわかった。元素分別をしかつ同位体分別を抑制させるメカニズムの一つとして、完全平衡後の急速なガスと凝縮相の物理的分離が考えられている。蒸発ペクレ数の大きい条件での揮発性成分の蒸発も同様に元素分別を引き起こす。対流を伴わない、あるいは対流の効果のごく小さいマグマオーシャンにおいて表面境界層が形成され、カリウムなどの揮発性成分が蒸発により損失したが同位体分別がおこらなかったという状況は十分にありうる。