

# 固体中粒子扩散的同位素动力学分馏研究

李雪芳, 刘耘\*

(中国科学院 地球化学研究所 矿床地球化学国家重点实验室, 贵州 贵阳 550002)

随着高空间分辨率的质谱仪的逐渐普及, 研究矿物中同位素分布及其反映的受热历史, 已经成为未来一个重要的方向。扩散速度的不同是造成同位素在矿物中同位素分布不均匀的根本原因。扩散是由于热运动引起的物质中粒子传递迁移的过程。在晶体中, 扩散是指粒子或者缺陷从一个平衡位置到另一个平衡位置的一系列的跃迁。对于不同的同位素, 由于质量的差异, 轻的比重的扩散的快, 从而产生同位素的动力学分馏。Parkinson 等 (2007) 研究发现, 在上地幔、接触性变质带和岩浆体系中 Li 同位素的分馏与 Li 在这些体系中的扩散有关。Fe 和 Ni 在铁陨石中的含 Ni 矿物冷却或者二者之间交换的过程中, 都会由于同位素的扩散而发生分馏 (Dauphas, 2007)。Hu 等 (2014) 测量了火星陨石中两个橄榄石包裹体从边部到核部  $\delta D$  值, 发现其逐渐降低, 他们用扩散原理建立了水向矿物中扩散的模型, 推测了水向矿物中扩散持续的时间。虽然矿物中同位素的数据正在不断积累, 但是, 这些过程的受热历史是怎样的? 持续了多长的时间? 发生速率的大小, 等等这些过程问题还没有很好的解释, 主要是由于目前仍然缺乏同位素扩散数据的理论基础和基本参数。

经典的关于固体中同位素扩散速率的研究, 早在二十世纪五六十年代已经开展起来 (Schoen 等, 1958; Tharmalingam 和 Lidiard, 1959)。这些研究总结了同位素效应受两个因素影响, 一个称为相关系数 ( $f$ ), 表示粒子跃迁后偏离纯的随机步的程度; 另一个叫耦合常数 ( $K$ ), 用来衡量粒子跃迁时与剩余其他原子之间频率的耦合度 (Mullen, 1961), 二者的乘积用来衡量同位素效应的大小 (LeClaire, 1966):

$$\left( \frac{\left( \frac{D(m_\beta)}{D(m_\alpha)} \right) - 1}{\left( \frac{m_\alpha}{m_\beta} \right)^{1/2} - 1} \right) = fK \quad (1)$$

$D$  为扩散系数、 $m$  为质量、 $\alpha$  和  $\beta$  分别代表两个不同的同位素。

通过仔细研究前人的文献, 我们发现:

- (1) 在推导  $K$  时, 存在一个非常大的近似, 即认为轻重同位素跨跃能垒到达过渡态时, 仅是由于电子间的相互作用, 和核 (同位素) 无关;
- (2) 还存在除了  $f$  和  $K$  以外的影响同位素分馏的因素;
- (3) 虽然  $f$  和  $K$  有明确的物理意义, 但是很难从理论上定量化;
- (4) 从数据上来说, 目前缺乏高压下同位素的扩散数据, 而理论计算并不受压力的限制。

所以, 无论从理论还是数据积累方面都有待我们进一步地挖掘和充实。

我们拟结合统计力学理论, 建立统一的固体中扩散的动力学同位素分馏理论, 并以此理论, 用计算的方法得到其中的参数, 从而产生相对的同位素扩散系数之比, 讨论过程的热历史信息 (研究正在进行中)。

**基金项目:** 国家自然科学基金面上项目 (批准号: 41273025)

**作者简介:** 李雪芳, 女, 1980 年生, 助理研究员, 主要从事同位素理论与计算研究. E-mail: lixuefang@mail.gyig.ac.cn

\* 通讯作者, E-mail: liuyun@vip.gyig.ac.cn