

· 非传统同位素的理论、分析方法和应用 ·

Mg 同位素平衡分馏系数的理论计算

原杰, 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, 贵阳 550002

镁同位素是非传统同位素, 最早被用来研究地球的起源。Young *et al.*,(2010)计算出高温状态下矿物间同位素分馏系数, 结果显示地幔的镁同位素具有较高的 $^{25/24}\text{Mg}$ 和 $^{26/24}\text{Mg}$ 组成, 因而认为地球具有非球粒陨石的镁同位素组成。碳酸盐沉淀、硅酸盐风化、粘土矿物的形成、植物的吸收等都可以对镁同位素产生分馏。在造山带花岗岩研究中, Teng *et al.*,(2010)指出, 镁同位素在地球表层的分馏信息可以保存在重融再结晶的岩石中, 具有指示壳源成因花岗岩的重要意义。Norman *et al.*,(2006)指出橄榄石有可信的母体同位素比率。Rudnick and Ionov(2007)指出矿物间镁同位素分馏系数可以提供开放体系的交换证据, 对于地幔岩石有特别重要意义。研究手段上, 主要可分为实验测量和理论预测, 这两种方法都有很强的预测能力。实验上对镁同位素的研究精度的提高, 给镁同位素在这些过程中的研究提供了足够的研究信息。Young *et al.*,(2010)给出了地幔橄榄石的镁同位素的数值, 同时也给出了理论预测的信息。Schauble (2011)理论计算了镁同位素在碳酸盐矿物、橄榄石、尖晶石中的分馏系数。Rustad *et al.*,(2010)计算了碳酸盐, 主要是碳酸钙和水溶液中的镁同位素分馏。

Schauble(2011)和 Rustad *et al.*,(2010)的结果存在较大差别。Schauble 指出 Rustad *et al.*,(2007)研究

叶绿素与水分馏的时候给出的水分子簇的计算数值, 大于 Rustad *et al.*,(2010)给出的数值, 并且认为对同一体系应该有同样的结果。而 Rustad *et al.*,(2010)对该结果解释为分子簇大小对溶液体系描述的准确性不够造成的。争论的第二个焦点是, 频率校正因子是否应该在计算过程中应用。对校正系数的理解, Rustad 等多篇文章建议使用直接的计算频率来研究同位素的分馏, 因为 Bigeleisen-Mayer 公式推导的本身就是建立在简谐频率的基础之上的。然而, Schauble 等(2006,2010)确认为要对比不同方法/基集之间的结果, 评估计算数据的质量, 同时提高计算精度的话, 必须通过频率校正因子来校正。总的来看, 计算对同位素的研究还在讨论阶段, 因此还有大量的工作来做。

我们的工作在于尝试解决 Schauble 和 Rustad 的分歧。采用的第一个处理方法是, 按照 Liu *et al.*,(2010)文章建议使用 ZPE 的校正因子, 或者使用略大于实验值的 0.002 的频率校正因子来研究同位素分馏; 采用的第二个方法是, 溶液中的 Mg species, 我们用多个分子簇模型的平均值来模拟不同构型带来的差别, 以得到更精确的分馏系数, 该做法在 Li *et al.*,(2009)和 Li and Liu (2010)关于锆同位素分馏计算中取得了较好的结果。