

原始太陽系星雲でのMg/Si 元素別・エンスタタイトの蒸発による可能性

橘 省吾¹

葉桜の緑が目立つようになってきた時期に構内のデジタルミュージアムを訪れてみた。そこでは「縄文の記憶」なる特別展示がおこなわれており、縄文式土器や土偶の実物を間近に、またはモニタの中の仮想現実として鑑賞できるようになっていた。ハイテクを駆使した博物館の中で、それらの発掘資料を見ながら、縄文の人々の自然と共生した暮らしや文化に、しばしのんびりと思いを馳せてみた。

さて、時折、地球に落ちてくる隕石は、非常に古い形成年代を示し、太陽系初期の情報を保存していると考えられる。縄文の時より遙か太古の太陽系のはじまりを研究するには格好の資料である。中でも、母天体集積後の大規模な分化を経験していないコンドライトと呼ばれる始源的隕石には、隕石の母天体形成以前の（もしくは形成途中の）原始太陽系星雲での物質進化の情報が少なからず保存されている。コンドライトは元素組成、酸化還元状態、酸素同位体組成に多様性を持ち、グループ分けすることができる。元素組成の多様性は、原始太陽系星雲で元素分別過程を経た物質からコンドライトがつくられたということを示している。元素分別過程は、種々の元素の揮発性の違いにより、凝縮相と気相の間で元素組成の違いが生じ、それらの相が互いに分離されることで起きたと考えられる。原始太陽系星雲での元素分別過程を理解し、コンドライトの化学的多様性を説明しようという試みは、固相-気相間の熱力学平

衡に基づく議論（例えば[1]）が始まりであった。しかし、太陽系は分子雲コアの収縮による原始太陽の誕生から微惑星の集積による惑星系の形成（そして未来における太陽の死）までのひとつの壮大なプロセスであり、熱力学平衡に達するまでの時間スケールが、太陽系の熱的・力学的進化の時間スケールに比べて、十分短い場合は、平衡論を用いることができるが、同程度または長い場合には、もはや平衡論は使えず、反応の非平衡性を考慮する必要が生じる。反応が平衡に起き得たかどうかを知るためにも、平衡論が使えない場合に太陽系の化学進化を追うためにも、凝縮相と気相との間に元素存在度の多様性を作ったと考えられる蒸発・凝縮反応を速度論的に理解することが重要となる。

本稿では、コンドライトに見られる中の主要元素Mg, Siの存在比の多様性をつくったMg/Si元素分別過程に着目する。前半では、Mg/Si分別を引き起こす可能性のある反応のひとつ、エンスタタイト (MgSiO_3) の蒸発について、実験からわかった蒸発カイネティクスを報告する。後半では、実験結果を原始太陽系条件に適用し、エンスタタイトの蒸発によって固相-気相間のMg/Si比の変動がどのような環境でどのくらいの速度で起きるかを見積もり、原始太陽系星雲での物理過程との比較から、原始太陽系星雲内でMg/Si分別が起きるかどうかを議論する [2, 3]。

¹ 東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻

1. 始源的隕石のMg/Si比の多様性

コンドライトのそれぞれの化学グループのMg/Si比を図1に示す。炭素質コンドライト (CI, CM, CV, CO, CK, CR (CHは例外)) のMg/Si比は太陽系元素存在度 (1.074 [4]) にはほぼ等しいが、普通コンドライト (H, L, LL) では約0.8倍、エンスタタイトコンドライト (EH, EL) では約0.7倍になっており、各グループのコンドライトはMgとSiの分別過程を受けた物質から構成されていることがわかる。原始太陽系内でMg/Si比を変動させる反応はいくつか考えられるが (例えば、フォルステライト (Mg_2SiO_4) とSiに富んだガスとの反応によるエンスタタイトの形成反応 [5]・珪酸塩メルトからの SiO_2 に富む成分の選択的蒸発 [6, 7])、エンスタタイトの分解蒸発も候補のひとつである。なぜなら、エンスタタイト (Mg/Si比=1) は蒸発する際、 SiO_2 成分が選択的に蒸発し、蒸発残渣としてフォルステライト (Mg/Si比=2) が形成されるので、固相のMg/Si比は大きく、逆に気相のMg/Si比は小さくなるからである。エンスタタイトの蒸発が、コンドライトに見られる原始太陽系星雲でのMg/Si元素分別過程に大きく寄与してい

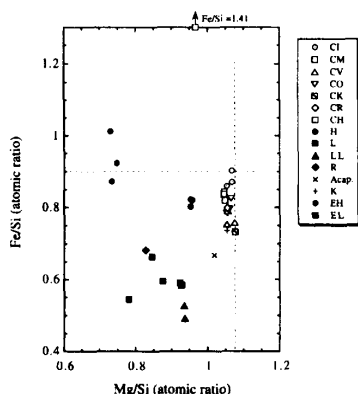


図1 コンドライト (Acapは始源的エコンドライト) のバルクMg/Si, Fe/Si組成(原子比)。破線はそれぞれ太陽系元素存在度 [2]のMg/Si, Fe/Si比。隕石のデータは[14-16]による。

たとすると、蒸発によって生じたMg/Si比の低い気相からの再凝縮でできた固相からコンドライトがつくられることになる。この場合、Mg/Si比の高い固相を分離・除去しておく必要があるが、固相は合体成長で大きくなり、ガスとの相互作用で運動量を失い、原始太陽方向へより速く落ち込んでいくことなどを考えると分離は可能であろう。

2. エンスタタイトの蒸発カインेटイクス

2.1. 実験方法

出発物質として、リチウム・モリブデン・バナジウムの酸化物を用いた溶剤法で合成したオルソエンスタタイト ($MgSiO_3$) 単結晶 (平均的サイズは $1 \times 2 \times 3$ mm) を用いた。実験はタンタルまたはタングステンヒーターとする真空炉 [8, 9] を用い、真空 ($\sim 10^{-6}$ bar) もしくは水素雰囲気中 (水素圧 (=全圧) : 7×10^{-7} , 2×10^{-6} , 6×10^{-6} bar) で、一定温度 (1300-1500°C) で一定時間 (2-240時間) 加熱し、炉の電源を切って急冷という手順でおこなった。いずれの雰囲気での実験においても、実験中は蒸発したガスが試料周辺に溜まらないように、真空チャンバー内を真空ポンプで常に排気した。水素雰囲気での実験では、排気しながらも一定の水素圧を保つように、マイクロバルブで流量を調整した水素ガスを流しながらおこなった。

回収した試料は、表面を走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察、および電子プローブマイクロアナライザー (EPMA) で分析した後、樹脂に埋め、断面の薄片を制作し、光学顕微鏡で観察した。水素雰囲気での実験試料については、試料の表面積・重量をあらかじめ測っておき、実験後の重量変化から単位面積あたりの蒸発量を見積もった。蒸発残渣はEPMA、粉末X線回折装置、フーリエ変換赤外分光光度計により同定した。

2.2 実験結果

真空中で蒸発実験をおこなった試料の断面薄片写真(図2)より、エンスタタイト表面に多結晶の蒸発残渣層が形成されていることがわかるが、この蒸発残渣層はフォスフェライト (Mg_2SiO_4) であると同定された。水素中での実験試料についても、蒸発残渣のフォスフェライトは確認できたが、光学顕微鏡による試料断面の薄片観察で確認できるほどの厚みはなく、かなり薄い層を成していると考えられる。

真空中での蒸発の際のフォスフェライト残渣層の厚み (X_{F_0}) の加熱時間に対する変化を見ると(図3), 1400°Cではフォスフェライト層は、蒸発初期には時間にほぼ比例して厚みが増加するが、やがて一定の厚みとなる。実験中は常に排気しているため、一定厚みになるのは蒸発が止まったためではなく、一定厚みを保ったまま蒸発が進行していることを表している。1450°C, 1500°Cでは X_{F_0} は蒸発初期は時間にほぼ比例して大きくなるが、やがて減少に転じ、一定厚みに落ち着く。したがって、本実験の条件下では、エンスタタイトが蒸発してフォスフェライトを作る際に、フォスフェライト層の厚みを増加させながら蒸発する場合と一定の厚みに保ちながら蒸発する場合の少なくとも

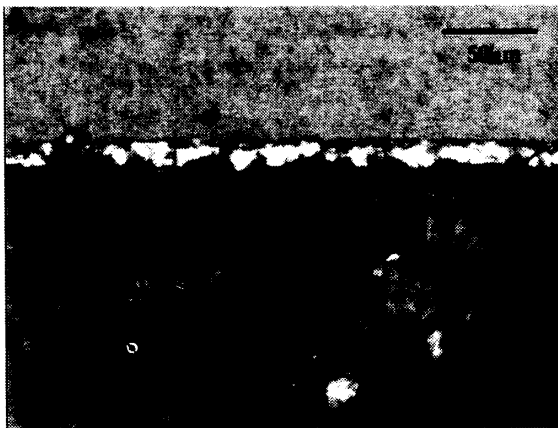


図2 エンスタタイト表面にできた多結晶フォスフェライト蒸発残渣層の偏光顕微鏡写真(直交ニコル)。試料は真空中、1500°Cで90時間加熱したもの。

2種類のメカニズムがあると考えられる。

一方、水素雰囲気では、フォスフェライト残渣層は厚みが薄く測定できないため、単位面積あたり

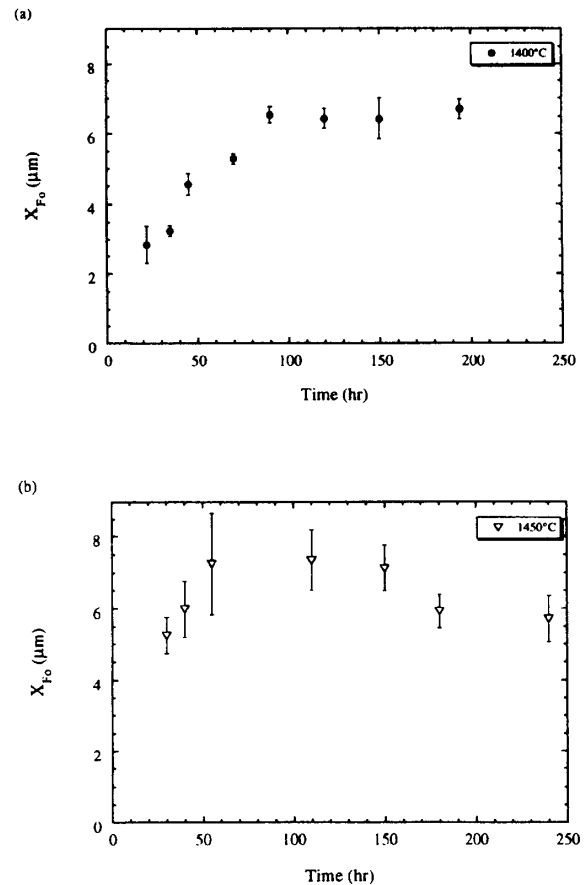


図3 フォスフェライト残渣層の厚み (X_{F_0}) の加熱時間に対する変化(真空中) (a) 1400°C, (b) 1450°C, (c) 1500°C。

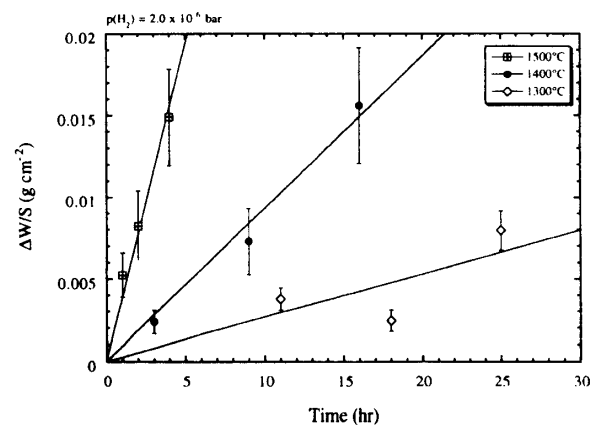


図4 水素中(水素圧 2.0×10^{-6} bar)での蒸発による単位面積あたりの蒸発量(縦軸)の時間変化

の重量減少を蒸発の指標とすると、蒸発による重量減少は、時間にはほぼ比例し、一定速度で蒸発が進んでいると考えられる (図4)。

2.3 考察

(1) 真空中での蒸発

フォルステライト残渣層の厚みが、蒸発初期に時間にはほぼ比例して増加していくのは、初期の残渣層が多孔質で、エンスタタイト表面での蒸発反応で発生したガスが残渣層を簡単に通過することができ、表面反応が律速過程となるためと考えられる。また、本実験の条件下では、残渣のフォルステライト自身も無視できない速度で蒸発するので (例えば1500°Cでは0.3 μm/hr[10])、フォルステライトの蒸発も考慮する必要がある、フォルステライトの厚みの時間変化は次のような式で表される。

$$\frac{dX_{Fo}}{dt} = k_{En} - k_{Fo}$$

ここで k_{En} 、 k_{Fo} は表面反応律速の蒸発速度定数である。 k_{Fo} に真空中でのフォルステライトの蒸発実験のデータ[11]を外挿した値を用い、初期の厚みの時間変化を(1)式でフィッティングし、 k_{En} を求めると、

$$k_{En} (cm/s) = 685 (\pm 1001) \exp(-362 (\pm 21) (kJ/mole)/RT)$$

となる。 R は気体定数、 T は絶対温度である。

一方、一定厚みを保ったままの蒸発は次のように説明される。蒸発残渣層はエンスタタイト表面で粒成長し緻密化することが予想され、その場合、エンスタタイトから SiO_2 成分が蒸発するためにはフォルステライト残渣層中を拡散することが必要となり、拡散が蒸発を律速すると考えられる。エンスタタイトの拡散律速蒸発および表面からのフォルステライト層自身の蒸発の両者を考慮すると、フォルステライト層の厚みの時間変化は(1)式の右辺第一項を書き換えた次式で書き表せる。

$$\frac{dX_{Fo}}{dt} = \frac{k_{En}}{2X_{Fo}} - k_{Fo}$$

k_{En} は拡散律速の蒸発速度定数で、拡散係数と同じ次元を持つ。右辺第一項のみの微分方程式を解くと、 $X_{Fo} \propto \sqrt{k_{En}t}$ となり拡散によるフォルステライト層の厚み変化を表していることになる。(3)式からわかるように、エンスタタイトの蒸発によるフォルステライトの形成速度((3)式の右辺第一項)は、フォルステライト層自身の厚みに依存し、薄い(X_{Fo} が小さい)と速く、厚い(X_{Fo} が大きい)と遅い。 k_{Fo} は真空中で常に排気している環境では一定なので、ある値の X_{Fo} で dX_{Fo}/dt は0になり(定常状態)、以降の蒸発はフォルステライト層の厚みを変化させないまま、フォルステライトの蒸発速度に等しい一定速度(k_{Fo})で進行することになる。定常状態での厚みを X_{Fo}^* とすると、 X_{Fo}^* は(3)式の右辺=0を解いて、

$$X_{Fo}^* = \frac{k_{En}}{2k_{Fo}}$$

で表される。図2に見られる一定厚みの部分が X_{Fo}^* を表していると考えられ、 k_{Fo} ([11]の外挿値)と(4)式から、 k_{En} が次のように求まる。

$$k_{En} (cm^2/s) = 126 (\pm 536) \exp(-451 (\pm 61) (kJ/mole)/RT)$$

k_{En} を決めている拡散種であるが、本反応では蒸発残渣としてフォルステライトを形成するように拡散が起きるので、フォルステライト中の拡散速度の最も遅いイオンが k_{En} を決めることになる。フォルステライト中のMg, Si, Oの拡散を考えると、Mgが最も速いため、反応を律速する拡散種の候補から除外できる。Si, Oについては、拡散係数の値に文献によってばらつきがありどちらが遅いのかははっきりしない。また、活性化エネルギーの値(451±61kJ/mole)もSiまたはOのどちらの拡散と考えるとよい値であるため、今回の結果から

は反応を律速する拡散種がSiまたはOのどちらであるかを断定するのは難しい。

次に、1450, 1500°Cの場合に見られた蒸発の進行に伴う X_{Fo} の減少について考えてみる。蒸発初期、(1)式に従って X_{Fo} が増加し、拡散律速の場合の定常厚み X_{Fo}^* を越えて大きくなったとする。この場合には、やがてフォルステライト層が緻密化し、拡散律速に蒸発モードが移行すると、(3)式に従い、定常厚み X_{Fo}^* に向かって X_{Fo} は減少することになる。1450°C, 110時間および1500°C, 90時間でフォルステライト層は緻密化していると仮定し、そこでの X_{Fo} のデータを初期条件とし、(5)式の k_{En} を用いて(3)式を解くと、図2に見られる X_{Fo} の減少のパターンを非常に良く再現するので、 X_{Fo} の減少パターンも表面反応律速から拡散律速への蒸発メカニズムの移行でうまく説明することができる。

k_{En} を独立に求めて、(3)式で表される X_{Fo} の時間変化や(4)式で表される定常厚みを見積もり、実験での X_{Fo} との比較から、モデルの妥当性を議論すべきとの指摘もあろうが、上記のように拡散種ははっきり特定できないことや、 k_{En} に含まれる無次元化された拡散の駆動力の効果をあらかじめ見積もることが難しいため、実験をおこなわずに k_{En} を見積もるのはかなり難しい。

(2) 水素中での蒸発

水素中では残渣層は観察できるほどの厚みはなく、重量が時間に比例して(蒸発速度一定)で減少していく様子が観測された(図4)。残渣層の厚みが増えず、一定速度で蒸発するという蒸発挙動は、真空中での定常蒸発と同じである。水素中での蒸発は定常状態に達していたのであろうか。まず、定常状態でのフォルステライト層の厚みは(4)式で与えられる。 k_{En} はフォルステライト中のSiまたはOの拡散を表すため、水素雰囲気には大きく依存することはない。一方、 k_{Fo} は水素中では、

水素が還元剤として働き、大きくなるので[12]、 X_{Fo}^* は真空中に比べて小さくなる。本実験の水素圧の場合に予想される k_{Fo} [9]と(5)式の k_{En} を用いて、水素中での X_{Fo}^* を見積もると1 μ m以下となり、光学顕微鏡下で観察されないという実験事実と合う。次に水素中の実験で重量減少から得た一定蒸発速度は、定常状態での蒸発であるならばフォルステライトの蒸発速度に等しくなるはずであるが、両者を比較してみると、温度依存性・水素圧依存性どちらも、本実験の条件で予想されるフォルステライトの蒸発速度[9]によく合う。また、実験事実としてフォルステライトが形成されていることから、水素中では k_{Fo} とともに k_{En} も大きくなると予想される。このためエンスタタイト表面は蒸発開始後すみやかにフォルステライトに覆われてしまい、拡散律速モードに蒸発が移行すると考えられる。

以上の点から水素中での蒸発は、蒸発開始後すみやかに定常状態に達し、薄いフォルステライト層を保ったまま蒸発が進行していると考えられ、真空中と同じ蒸発メカニズムで説明可能である。

3. 原始太陽系星雲でのエンスタタイトの蒸発挙動

本節では原始太陽系星雲でのエンスタタイトの蒸発挙動を考察する。低温でエンスタタイト微粒子が、太陽系元素存在度を持つガス中に均一に分散している系(Mg-Si-O-H-C-He系)を考える。この系は、固相-気相間で元素のやり取りが起きても全体としての原子数は保存される閉鎖系であると仮定する。本来、元素分別が起こるためには、化学組成の異なる2相を分離する過程が必要となるが、ひとまず化学組成の異なる固相と気相がつくられるまでを議論する。初期条件として、気相中にMg, Siを含むガスは存在していないものとし、

またエンスタタイトのみが固相として存在するので、系のMgとSiの存在比は1である（太陽系元素存在度でのMg/Si比は1.074 [2]）。系内のエンスタタイト微粒子とガスの存在比を変えるために、系のSiとHのモル比を太陽系元素存在度のSi/H比の η 倍に変化させるパラメータ η （ダスト濃集度）を導入し、 η を0.01-10000の範囲で変化させる。同様に、Mg, エンスタタイト微粒子に含まれるOとHの比も η 倍する。この系が、900-1400°C（1173-1673 K）の範囲のある温度に加熱された場合、系の平衡状態を示したのが図5で、温度・ η の値に応じ、ガスのみが存在する場合、フォルステライトとガスが共存する場合、エンスタタイト・フォルステライト・ガスが共存する場合の3つの状態が存在する。低温の系が加熱されたことで起こるエンスタタイトの蒸発によって、これらの最終状態に達すると考えると、それぞれ、エンスタタイトの完全蒸発（CE: complete evaporation）、エンスタタイトの部分蒸発による残渣のフォルステライトとガスの平衡化（PE/F: partial evaporation with equilibration of forsterite and gas）、エンスタタイトの部分蒸発によるエンスタタイト・フォル

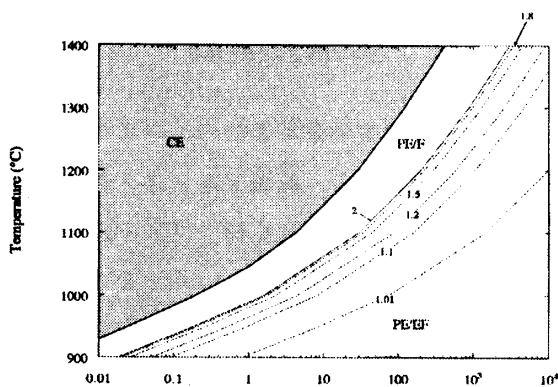


図5 エンスタタイト微粒子が、太陽系元素存在度を持つガス中に均一に分散しているMg-Si-O-H-C-He系の平衡状態。横軸 η はダスト濃集度（本文参照）。平衡状態として、ガスのみが存在する場合（CE）、フォルステライトとガスが共存する場合（PE/F）、エンスタタイト・フォルステライト・ガスが共存する場合（PE/EF）の3つの状態が存在。PE/EFの領域の破線は、平衡状態での固相のMg/Si比。

ステライト・ガスの平衡化（PE/EF: partial evaporation with equilibration of enstatite, forsterite and gas）と言うこともできる。平衡状態での固相-気相間のMg/Si比を見ると、CEの場合には固相は存在せず、気相のMg/Si比は1である。PE/Fの場合、固相のMg/Si比は2で、気相のMg/Si比は <1 となる。PE/EFでは固相のMg/Si比は >1 で（図5中の点線）、気相のMg/Si比は <1 となる。固相-気相間でMg/Si比が大きく変動するのは、PE/FおよびPE/EFで固相のMg/Si比が >1.1 程度になる条件で、これらの条件で固相と気相を分離できれば、Mg/Si分別が可能となる。[1]で議論されているように、適当なダストとガスの存在比を選べば、図5のすべての温度範囲でMg/Si比の変動が期待でき、太陽系元素存在度での平衡凝縮モデルで議論されたMg/Si元素分別が起こる温度範囲（図5の $\eta=1$ で1000°Cを中心とした100K程度の範囲）に比べて広がる。

実験で求めたエンスタタイトの蒸発カインेटクスを用いて、エンスタタイトの蒸発によって図5の平衡状態に達するまでのタイムスケールを見積もってみる（エンスタタイト微粒子の半径は1 μ mとする）。エンスタタイトの蒸発速度は k_{En} （(5)式）を用いるが、これは常に排気している実験環境での値で、蒸発したガスが固体の周囲に残る環境では、平衡に近づくにつれ、拡散の駆動力が小さくなり k_{En} の値が小さくなることが予想される。例えば、PE/EFの条件ではエンスタタイトがガスと平衡化するときには、 $k_{En}=0$ となるはずであるが、 k_{En} に対する周辺ガスの影響を、現状では見積もられていないため、今回は k_{En} を一定と仮定し、周辺のガスの分圧が系の平衡蒸気圧に等しくなった時点で $k_{En}=0$ とする。こうして得られるタイムスケールは実際のタイムスケールを（特にPE/EFの条件で）過小評価するもので、その点は注意していただきたい。フォルステライトの蒸発について

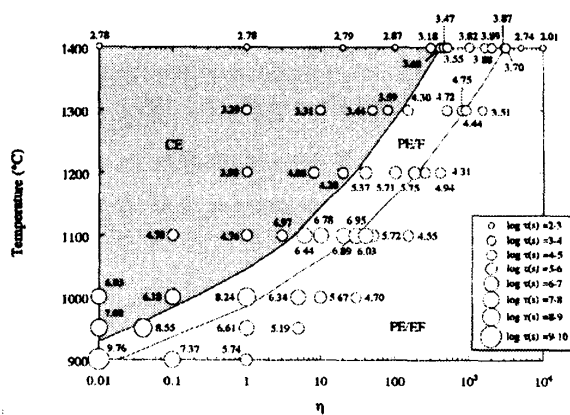


図6 エンスタタイト微粒子（半径 $1\mu\text{m}$ ）の蒸発によって、図5の平衡状態に到達するまでのタイムスケール（白丸）。○に付属して書いてある数字は、蒸発のタイムスケール（秒）の対数表示。

は [13] で過去の実験データと蒸発モデルを用いて予測された原始太陽系条件下での蒸発速度を用いる。表面反応律速の蒸発速度は、蒸発ガス種の平衡蒸気圧に比例する自由蒸発の蒸発速度と、そのガス種の周辺ガスにおける分圧に比例する凝縮速度との差で表されるので、蒸発に伴い周囲ガス中で蒸発ガス種の分圧が上がれば、蒸発速度は小さくなっていく。これらの蒸発カイネティクスを基に、 $1\mu\text{m}$ のエンスタタイト粒子の蒸発をシミュレートし、求めた最終状態に達するまでのタイムスケールを平衡相図とともに図6に示した。図6のタイムスケールを簡単にまとめると、 1400°C では数時間、 1200°C では1日～数ヶ月、 900°C では1週間～200年程度である。

4. エンスタタイトの蒸発によるMg/Si元素分別の可能性

図6のタイムスケールをふまえて、エンスタタイトの蒸発が原始太陽系星雲内のいつ・どこで・どのように起これば、蒸発によるMg/Si分別が可能かということを考えてみる。 $1400\text{--}1200^\circ\text{C}$ でエンスタタイトの蒸発によるMg/Si分別が起こるため

には、かなり高いダストの濃集（太陽系の平均値の数百倍）が必要とされる。このようなかなり高いダストの濃集は、原始太陽系赤道面へのダストの沈降時には期待できるかもしれない。この時期には原始太陽系星雲内の乱流も収まりつつあり、星雲自身の温度はあまり高くないことが予想されるので、 $1400\text{--}1200^\circ\text{C}$ という高温は何らかの加熱機構が必要であろう。ただし蒸発のタイムスケールは数時間程度と短くてすむので、短時間の加熱機構を考えればよい。例えば、放電、衝撃波、衝突などによる加熱が候補として考えられる。これらの加熱機構はコンドリュール形成の熱源の候補としても考えられているので、Mg/Si分別とコンドリュール形成の時期を議論する上で非常に興味深い。 $1200\text{--}1000^\circ\text{C}$ では太陽系の平均値の数倍?数十倍程度の濃集で十分である（あまり濃集度が高いとほとんど蒸発しない）。この程度の濃集は原始太陽系星雲の活動的なステージで乱流によるダストのはきよせで可能であろう。蒸発のタイムスケールを考えると、短時間の加熱では蒸発が十分に起きない。したがって、恒常的に存在する熱源が適しており、乱流粘性による加熱が熱源としては有効と考えられる。 $1000\text{--}900^\circ\text{C}$ では太陽系の平均値よりダスト/ガス比の小さい環境が必要で、これは中心面へのダストの沈降や、乱流によるダストのはきよせの相補的条件として起こりうる。加熱機構は蒸発のタイムスケールが長いことから、短時間の加熱機構ではなく乱流による加熱などが適している。

5. 太陽系化学進化モデルの構築

前節までに、エンスタタイトの蒸発カイネティクスから蒸発反応のタイムスケールを見積もり、原始太陽系星雲で起こる様々な物理過程と比較し、原始太陽系星雲進化の中で蒸発による元素分

別が起きうる可能性があることを示した。しかし、最終的には、原始太陽系星雲全体の進化という大きな枠組みの中での元素分別過程を議論してこそ、コンドライトに記された元素分別の痕跡を理解し、太陽系の化学進化を明らかにできると言えよう。今後、原始惑星系円盤の進化に関する理論的・観測的研究と、物質科学的研究の橋渡しになる研究を進めていくことが重要である。一方で、隕石などの資料からどれだけ正確に情報を読みとるかという非常に細かいスケールでの研究も重要である。コンドライトに見られる元素組成・酸素同位体組成の多様性、酸化還元状態の違いなどが、原始太陽系の異なる進化のステージでつくられたのか、それとも異なる空間でつくられたのかという時空間の情報をうまく分けられていないのが現状で、これを微小部同位体分析などでどう解決するか今後の課題であろう。前者のような広い視点と、後者のような細かく突っ込んだ視点をうまく切り替えつつ研究を進めて行く必要がある。

デジタルミュージアムでは、土器を見て、ほんやりと縄文時代に思いを馳せることができたが、この業界にここまで足を踏み入れてしまうと、隕石を見て、太古の太陽系にのんびりと思い馳せてばかりもいられない。やるべきことは山積みだ。

謝辞

本研究は、筆者が大阪大学在学時に博士論文のテーマとしておこなってきたものであり、大阪大学の土山明博士、東京大学の永原裕子博士には、有意義な議論をしていただき、数々の助言をいただきました。京都大学の北村雅夫博士、東京大学の小澤一仁博士からも、有益な助言をいただきました。また、査読者の方からも助言をいただきました。ここに記して、深く感謝いたします。

参考文献

- [1] Wood J. A. and Hashimoto A., 1993: *Geochim. Cosmochim. Acta* 57, 2377-2388.
- [2] Tachibana S., Tsuchiyama A. and Nagahara H., 2000: LPSC XXXI, 1588.
- [3] Tachibana S., Tsuchiyama A. and Nagahara H., 2000: submitted to GCA.
- [4] Anders E. and Grevesse N., 1989: *Geochim. Cosmochim. Acta* 53, 197-214.
- [5] Imae N., Tsuchiyama A., and Kitamura M., 1993: *Earth Planet. Sci. Lett.* 118, 21-30.
- [6] Hashimoto A., 1983: *Geochem. J.* 17, 111-145.
- [7] Nagahara H. and Ozawa K., 1996: *Antarctic Meteorite XXI*, 125-127.
- [8] Ozawa K. and Nagahara H., 2000: *Geochim. Cosmochim. Acta* 64, 939-955.
- [9] Tsuchiyama A., Takahashi T. and Tachibana S., 1998: *Mineralogical J.* 20, 113-126.
- [10] Nagahara H. and Ozawa K., 1999: *Proc. Japan Acad.* 75, 29-34.
- [11] Hashimoto A., 1990: *Nature* 347, 53-55.
- [12] Nagahara H. and Ozawa K., 1996: *Geochim. Cosmochim. Acta* 60, 1445-1459.
- [13] Tsuchiyama A., Tachibana S. and Takahashi T., 1999: *Geochim. Cosmochim. Acta* 63, 2451-2466.
- [14] Dodd R. T., 1981: *Meteorites*, 368pp.
- [15] Wasson J. T. and Kallemeyn G. W., 1988: *Phil. Trans. R. Soc. Lond.* A325, 535-544.
- [16] Lodders K. and Fegley B., Jr., 1999: *The Planetary Scientist's Companion*, 371pp.