# コンドリュールの形成過程とその物質化学 的特徴との関連

## 上椙真之<sup>1</sup>,赤木 剛<sup>2</sup>, 関谷 実<sup>2</sup>

## 1. コンドリュールとは

現在地球に落下してくる隕石の質量のうち80%以 上を普通コンドライトと呼ばれるクラスが占めてお り、さらにその普通コンドライトの体積の80%近くを コンドリュールと呼ばれる、主に珪酸塩からなる直径 1mm程度の球形の物体が占めている. このコンドリ ュールはその形状から、宇宙空間で高熱によって溶か された後、再固化することによって形成されたと考え られている.従ってコンドリュールの存在は、初期太 陽系内部で岩石が溶けるほどの高温過程が頻繁あるい は大規模に発生していたことを示している. また, 現 在惑星科学では惑星形成で重要となる微惑星の形成が どのようにして起こったかがわかっていないという大 きな問題を抱えており[e.g. 1], コンドリュールは星 間物質(µm)と微惑星(km)の中間のサイズ分布 を取っている事から、微惑星形成過程についても重要 な情報を持っているのではないかと考えられている. このようにコンドリュールは初期太陽系における高温 現象の情報だけでなく惑星の進化過程の重要な鍵を多 数握っている.

このコンドリュールがいつ形成されたかについては 様々な年代測定法により、太陽系形成におけるきわめ て初期に形成されたことがわかってきた.しかし、「ど こで」「どのように」形成されたかについてはこれま でに多くの説が唱えられてきているが、未だに決め手 となる証拠を得ることが出来ていない [2].本稿では、 これまでのコンドリュール形成に関する研究で得られ た,その形成条件の一部を紹介し,さらにこれまであ まり調べられてこなかったいくつかのコンドリュール の特徴について調べた結果を報告する.

## コンドリュール形成の条件 (これまでの研究)

#### 2.1 加熱速度•加熱時間

コンドリュールは高温での加熱を経て形成されたに もかかわらず、その内部にKやNaといった揮発性元 素が完全に蒸発する事無く存在している [e.g. 3]. ま た, relict grainと呼ばれる加熱時の溶け残りとみら れる組織がコンドリュール内部に存在しており、さら に一度形成された後のコンドリュール、またはその破 片が別のコンドリュール内部にみられることなどから [e.g. 4]、コンドリュールの加熱時間は非常に短かく、 さらにコンドリュール形成過程は複数回にわたって起 こっていたと考えられている. また, コンドリュール 内部の硫化鉄粒子の硫黄同位体組成には同位体分別の 証拠は見られないことが報告されている [5]. コンド リュールの前駆物質に硫化鉄が含まれ、これが加熱さ れた場合,硫化鉄中の硫黄が同位体分別を起こしてし まう. 硫黄元素が, 蒸発による同位体分別を起こさな い条件としてコンドリュールの加熱が始まってからシ リケイトが溶融するまでの時間は非常に短かったこと が考えられ、このことからコンドリュールの加熱の際 の昇温速度は10<sup>4</sup>-10<sup>6</sup> K/hr以上であったと考えられる [5].

<sup>1.</sup> 高輝度光科学研究センター

<sup>2</sup> 九州大学

以上のことから、コンドリュール形成時は急激に温度 が上がり、非常に短く、長くても数分の加熱であっ たと考えられている.これはFlush heatingとよばれ、 コンドリュールが原始太陽系星雲中でどのような現象 によって加熱されたかを考える上で非常に重要なキー ポイントと考えられている.

#### 2.2 冷却速度

コンドリュールにはその内部にガラスを含む物が多 くある.これらはコンドリュールの冷却速度が非常に 速かったため結晶化できなかった物である.このほ か に,Barred Olivine (BO)やRadial Pyroxene (RP) といった組織(図1)はほぼ全溶融の状態から非常に 速い冷却速度で形成されることが結晶組織の再現実験 からわかっており(10<sup>3</sup>-10<sup>5</sup> K/hr [6]),これらのこと から一部のコンドリュールは非常に速い冷却速度で形 成されたことを示している.一方,斑状組織を持つ porphyriticコンドリュールはこれらに比べて元々溶 融度が低い上,遅い冷却速度で形成されたと考えられ ている(~10-10<sup>3</sup> K/hr [7]).したがってコンドリュ



図1: 普通コンドライト中のコンドリュールの透過光によ る顕微鏡写真. 上: 棒状の結晶が平行にのびている Barred Olivine (BO)と呼ばれるコンドリュール. 下: コンドリュールは放射状に輝石の結晶がのびてい るRadial Pyroxene (RP)と呼ばれるコンドリュール. いずれも溶融度の高い状態から形成されたと考えら れている. ールを形成した加熱現象はこういった広い範囲の加熱 の程度,冷却速度を実現するような加熱現象であった だろうと考えられる.

### 3. コンドリュールの特徴

以上で紹介した以外にもコンドリュールの結晶・鉱 物学的な特徴や化学・同位体組成に関する多くの特徴 が報告されており、これらはその形成過程における 様々な過程を反映していると思われる.本稿ではこれ まであまり重要視されていなかったそのほかのいくつ かのコンドリュールの特徴について簡単に述べ、さ らにこれらを調べることでどのようなことがわかるか、 検証した結果を報告する.

#### 3.1 コンドリュールの変形

元々コンドリュールは、コンドライト中の主にかん らん石や輝石からなり,加熱・溶融を経験した形跡を 持つ球形 (薄片上では円形) の物体, と解釈されている. コンドライト隕石の薄片観察でかんらん石や輝石の結 晶を含んだ丸い形を確認できればたいていコンドリュ ールであるとされる.しかしそれ以外に、かんらん石 などを含み加熱による溶融を経験した形跡を残してい るものの. 球形ではない物も多く観察されている (図 2). もしもこういったコンドリュールの形状がコンド リュールの形成時に起こったのならば、その形状を調 べることで、形成時の物理的条件を調べることが出来 る、ここで加熱、溶融中のコンドリュールの液滴が変 形する理由としては、(a) コンドリュール同士の衝突 による変形 (b) コンドリュールの高速回転の遠心力に よる変形 (c) コンドリュールと星雲ガスが大きな相対 速度を持っている場合、コンドリュールの表面に加え られるガスの動圧,等があげられる。まず衝突の衝撃 による変形の影響を調べる. コンドリュールが溶融し ている状態を仮定する. このコンドリュールが外部の 衝撃で変形した場合、それが表面張力によって球体に なるのに必要な時間スケールは次の式で表される.

$$t_{\rm deform} = (\rho_{\rm c} r_{\rm c}^3 / 8 \tau_{\rm c})^{1/2}$$

(1)

ここで  $\rho_c = 3.4 \text{ g/cm}^3 \text{ はコンドリュールの平均密度,}$   $r_c$ はコンドリュールの平均的なサイズ (~ 300  $\mu$ m for Hコンドライト),  $\tau_c = 400 \text{ erg/cm}^2$ は溶融したコンド リュールの表面エネルギーである.これらの値を代入 するとこの時間スケールは  $t_{\text{deform}} \sim 10^4 \text{ s}$ となる.こ れはコンドリュールが溶融してから放射冷却によって



図2: 普通コンドライト中 (ALH-78237, L3)のコンドリュール. 中央の Barred Olivine (BO:白矢印)やその右のCryptocrystalline (C:同)コンドリュールは比較的丸いが,それ以外の斑状組織のコンドリュール(黒矢印)は円形をしていない物が多い.

再固化するまでのタイムスケール (r<sub>c</sub> ~ 300 μmでお よそ1-5 s) と比べてきわめて短い。このため,変形 したコンドリュールは固化する前にすぐに球形に戻っ てしまう。従ってコンドリュールの形成時の衝突によ る変形を観察するには,固化が始まる直前から完全に コンドリュールが固化するまでのほんの数秒のあいだ の変形しか観察できない.実際にこのようなコンドリ ュールは観察されている例があるが[8],ケースとし ては非常にまれである上,数値計算などでその形状を 再現することが難しい.このように,コンドリュール 形成時の衝突などによる変形の痕跡を現在の観察から 確認することは非常に難しい.

次にコンドリュールの自転による変形を考える.浮 遊している液滴が回転によって変形した場合の形状は 解析的に求めることができ[9],これは

$$\Sigma = \rho_{\rm c} \omega^2 r_{\rm c}^3 / (8\tau_{\rm c}) \tag{4}$$

で定義される無次元数  $\Sigma$  を用いて図3のように表さ れる.ここで $\omega$ はコンドリュールの回転角速度であ る.各パラメータを  $\rho_c = 3.4$  g/cm<sup>3</sup>,  $r_c = 300 \mu$ m,  $\tau_c$ = 400 erg/cm<sup>2</sup> としたときの回転数は $\Sigma = 2.39$ で1430 rps.となる.X線CTによるコンドリュールの三次元 形状の観察とこの解析の結果を比べることにより,コ ンドリュールの回転速度は50-500 rps.程度であったと 見積もられている[10].このコンドリュールの回転の 原因としてコンドリュールの斜め衝突などが考えられ る.このような現象を解析し,実際のコンドリュール の変形から考えられる回転速度と照らし合わせること で,コンドリュールの数密度,相対速度など,コンド リュール形成過程の様々な物理的条件を調べることが 出来ると考えられる.

最後に (c) のケースを考える. 例えばコンドリュー ルの前駆物質が原始太陽系星雲中の衝撃波につっこん だ場合コンドリュールは主に摩擦熱によって加熱され る. このとき,当然コンドリュールには秒速数kmの 強烈な向かい風が吹き付けており,この星雲ガスによ る動圧(風圧)によってコンドリュールは変形するこ



図3:回転する液滴の平衡形状.軸対称を仮定し、y軸を回 転軸としている.点線で表されている四半円が回転 していない液滴の形状で、この場合全体の形は真球 となる. Σが大きくなるにつれて回転軸に垂直な方 向に広がった形になる.

とが予想される.

図4は衝撃波中で変形したコンドリュールの形状 を,溶融した液滴の分子流による変形の解析解[11] を用いて調べた結果である.図中のDは衝撃波中の コンドリュールの変形の度合いを示すdeformation parameter と呼ばれる無次元数で,

$$D = \rho_{\rm g} V_{\rm rel}^2 r_{\rm c} / \tau_{\rm c} \tag{6}$$

と定義される. ここで  $\rho_{g}$  は衝撃波面以降の星雲ガス の密度,  $V_{rel}$  はコンドリュールと星雲ガスの相対速度 であり, 一般的な衝撃波モデルではコンドリュール を形成することの出来る星雲衝撃波では  $\rho_{g} = 10^{-9} \cdot 10^{-8}$ g/cm<sup>3</sup>,  $V_{rel} \sim 5 \cdot 10$  km/sである. コンドリュールの 平均的なパラメータを用い, ( $r_{c} = 300 \ \mu$ m,  $\tau_{c} = 400$ erg/cm<sup>2</sup>) また,  $\rho_{g} = 6 \times 10^{-9}$  g/cm<sup>3</sup>,  $V_{rel} \sim 7$  km/sとし て計算した場合, この値は ~ 0.23となる. これから 計算される変形は図4の太い実線で描かれた形状とな る. Deformation parameterがD > 5となる場合は非 線形の効果が大きくなり,線形解を用いた形状の評価 が出来なくなる. この場合は非線形モデルを用いた数 値流体計算を行うなどしてその変形の影響を調べる必



図4: 衝撃波を通過したコンドリュールの平衡形状. 星雲ガ スはZ軸正の方向から負の方向へ流れると考え, さら に軸対称を仮定している. 点線で表されている半円 がガスの動圧を受けていないときの形状で, この場 合コンドリュールは真球となる.

要がある.

しかし、コンドリュールを形成することの出来る 様々な衝撃波におけるDを調べると、Dが1を超える ことはないという結果が得られている [12]. したがっ てコンドリュールを形成するような星雲衝撃波ではコ ンドリュールは非線形効果が効いてくるほど大きく変 形せず、その変形の度合いはコンドリュールの半径と 比べて非常に小さなものにとどまると考えられる. さ らにこのDの値は衝撃波によりコンドリュールの表面 に加えられる動圧が最大の時である. これはコンドリ ュールと星雲ガスの相対速度が大きい場合であり、こ のときは当然コンドリュールに加えられる摩擦熱も大 きいため、コンドリュールは溶融状態にあると考えら れる、コンドリュールが再固化する時点ではコンドリ ュールと星雲ガスとの相対速度も小さくなっており, 従って変形もさらに小さくなり、より観察にはかかり にくくなる.

以上の結果から、コンドリュールは表面エネルギー が非常に大きく、またサイズも小さいため、外部の力 に対して変形しにくく, コンドリュールの溶融度が高 い場合その形成時(溶融時)の変形を現在の観察で見 つけることは難しい. したがって, 形成時の液滴の変 形の内、現在の観察で確認できるのは回転による変形 だけである。それ以外のコンドリュールの変形の理由 としては、 固化した後の衝突現象によるコンドリュー ルの破壊、加熱後の結晶成長による表面の変形、前駆 物質が中途半端な加熱による不完全な溶融を経てコン ドリュールを形成したため、表面張力によって球面を 得ることができなかったケース等,その形成時の液滴 の変形が原因ではないものがほとんどであると考えら れる、実際、図2でもわかるとおり、球体・楕円体か ら大きく変形したコンドリュールのほとんどは比較 的溶融度の低い状態から形成されたと考えられている porphyriticコンドリュールである. また, このよう なコンドリュールでは回転による変形の影響だけを見 積もることも難しい. 一方, BOやRPといった溶融度 の高い状態から形成されたと考えられるコンドリュー



図5: 隕石中のコンドリュールに存在する鉄からなる包有物の薄片写真. 黒い矢印が硫化鉄、白い矢印が金属鉄の部分を示している. これらはすべてBOもしくはRPコンドリュールで,溶融度の高い状態から形成されたと考えられる. 一部の鉄からなる包有物はコンドリュール内部に存在している.

ルは,薄片上の観察では楕円形をしていることが多い. これはコンドリュールが回転していることがその形状 にもっとも大きく寄与しているからであると考えられ る.このように,コンドリュールの形成過程をその形 状から調べる場合,BO,RPといったコンドリュール についてその形状を精密に調べ,その回転の要因を特 定することが重要である。.

なお、コンドリュールの外形の成因については、以 上で述べた他に、母天体上での衝撃による変形、熱変 成、水質変成など、コンドリュール形成過程以降の現 象による影響も考えられるが、これらの影響の小さい コンドライトを選べばその影響を除外できるため、本 稿ではこれらは考慮していない.

#### 3.2 鉄

コンドリュールには、おもに鉄からなる粒子がコ ンドリュールの表面や内部に観察されることがわかっ ている (図5). この鉄粒子はコンドリュールの大部分 を占める珪酸塩の部分とは密度,表面エネルギー,融 点などの物性が大きく違う構成要素であり、コンドリ ュール形成環境のダイナミックな環境を調べるのに 良い指標である.本稿では例として,原始太陽系星雲 中の衝撃波によってコンドリュールが溶かされた場 合,この鉄粒子がどのような挙動を示すかを調べた例 を紹介する。星雲衝撃波で溶融したコンドリュールの 内部には非常に高速な流れが引き起こされることがわ かっており [12]、この流れはコンドリュールの物性に 大きな影響を与えると考えられる. この流れの一つ の指標としてコンドリュール中の鉄粒子を使うことが できる、図6は星雲衝撃波によってほぼ全溶融したコ ンドリュールの内部に発生する流れとその流れによっ てコンドリュール内部の鉄粒子が移動する様子の計算 結果である [13]. この計算結果では、コンドリュール が溶融した後、内部の鉄粒子はきわめて短時間でコン ドリュールの表面に到達する (<5s). さらに鉄粒子 の半径がコンドリュールの0.23倍以上になると、図中 trajectory Aとして示されている, ゆっくりと放出さ れる領域が無くなり、すべての鉄粒子はコンドリュー ル内部を旋回することなくの表面へ直接到達する。こ のとき放出されるまでのタイムスケールは次式で表さ れる.

$$t_{\rm s} \sim 0.02 \left(\frac{\eta}{2\text{poise}}\right) \left(\frac{\rho_{\rm g} V_{\rm rel}^2}{3000 \,\mathrm{dyn/cm^2}}\right)^{-1} \mathrm{s} \tag{7}$$

このタイムスケールはコンドリュールの溶融している タイムスケールより非常に短く,従ってコンドリュー ルが原始太陽系星雲中の星雲衝撃波で全溶融した場合 は,鉄粒子はコンドリュール内部にとどまることが出 来ず,必ずコンドリュールの表面に放出される.

コンドリュール内の鉄がいつ形成されたかは詳しく はわからないが,硫化鉄の包有物の場合,これはコン ドリュールの前駆物質に含まれていたと考えることが できる。還元反応などで溶融したコンドリュール内部 に鉄が形成される場合,まず金属鉄が形成されるが, コンドリュール内部の硫黄の含有量は非常に少ないた め,半径比0.23以上の金属鉄がすべて硫化鉄になるこ とは無いからである。

以上の計算はコンドリュールが回転していない場合 の計算である.しかし、コンドリュールの形状を三次 元的に観察することでそのコンドリュールの形成時の 回転速度を見積もることができる.今後あらかじめ回 転の影響の度合いの少ないコンドリュールを選び、そ の内部の硫化鉄からなる鉄粒子の分布や、コンドリュ ールとのサイズ比を調べれば、コンドリュールが星雲 衝撃波で形成されたかどうかを調べることが出来ると 考えられる.



図6: 衝撃波によって溶融したコンドリュール(半円)内 部で,溶融したシリケイトの流れによって運ばれる 鉄粒子の軌道. 星雲ガスは図の上から下に向かって 流れている.

#### 3.3 複合コンドリュール

最後に,複合コンドリュールの分析から得られた最 新の結果を報告する.複合コンドリュールはその名の 通り複数のコンドリュールが互いに複合した構造を示 す物であり,いろいろなコンドライトクラスに普遍的 に存在している.この複合コンドリュールを構成する コンドリュールのうち,球形の外形を保っている方 (primaryコンドリュールと呼ぶ)は複合コンドリュー ル形成時にすでに固化しており,このコンドリュール に付着することで外形が変形している方 (secondary と呼ばれる)は形成時にはまだ溶けていたと考えられ る.このように複合コンドリュールは,その形成時に 溶融の度合いの違う二つのコンドリュールが非常に近 い距離に存在できたという,その構造自体が非常に大 きな情報を示唆している.

図7は普通コンドライト中の複合コンドリュールで ある.これは、porphyritic コンドリュールが Radial コンドリュールに付着している構造を示している.こ の複合コンドリュールを構成するそれぞれのコンド リュールのBulkの化学組成を測定し、その値を用い て計算された融点の値を表1に示す.複合コンドリュ ールを構成するコンドリュールはprimaryが主に輝石 からなっており、一方secondaryが主にかんらん石か らなっている.また、融点はsecondaryの方が明らか



図7: 普通コンドライト (ALH-77011, L3) 中の複合コンド リュール. 右側の放射状の結晶を含むコンドリュー ルはほぼ円形を保っており (primary), そのコンド リュールに左側の斑状組織のコンドリュールが付着 している (secondary).

に高い事がわかる。例として、原始太陽系星雲中の1 回の加熱で複数のコンドリュールが溶融し、これら のコンドリュールがこの加熱現象で形成された周囲の 輻射場と平衡を保ちながら冷却をしていったとすると (この場合コンドリュールの温度はそのサイズによら ない)、融点の高いコンドリュールが先に固化を始め る. しかし、図7のケースでは先にsecondaryのコン ドリュールが固化し、その後primaryが固化するとい う,実際とは正反対の結果になってしまう。この複合 コンドリュールは、別々の加熱で出来たコンドリュー ルが、周囲の輻射と平衡にならなかった(複合コンド リュールの構成コンドリュール同士は、衝突直前まで 違う温度を持っていた)ような加熱現象で形成された ということを示している.図7のケースでは衝突直前 まで, secondaryの方がprimaryよりも少なくとも86 K以上温度が高かったことを示している.

この結果から、コンドリュールの形成過程に関して いくつかの可能性が示唆される.まず、コンドリュー ルが周囲の輻射場と平衡にならなかったと仮定すると、 実際にコンドリュールを加熱した現象ではsecondary だけが溶かされるような非常に局所的な加熱である事 が必要である.複合コンドリュールを形成するために は、少なくとも溶融したコンドリュールが固化する 前にすでに固化しているコンドリュールと衝突しなけ ればならない.しかし、あまり近い距離にいると融点

| wt%               | primary | secondary |
|-------------------|---------|-----------|
| $SiO_2$           | 38.53   | 40.56     |
| $Al_2O_3$         | 2.88    | 2.16      |
| FeO               | 23.18   | 19.12     |
| MnO               | 0.43    | 0.25      |
| MgO               | 20.82   | 29.47     |
| CaO               | 2.40    | 0.72      |
| Na <sub>2</sub> O | 1.48    | 0.94      |
| $Cr_2O_3$         | 0.56    | 0.57      |
| $SO_3$            | 3.41    | 0.78      |
| Liquidus T.       | 1655 K  | 1741 K    |

表1: 図7の複合コンドリュールの化学組成,及びそれぞれ のリキダス温度. の低いprimaryがsecondaryと同様に溶けてしまうか. あるいは融点の高いsecondaryがprimaryと同様に固 化してしまう.両者が温度差を保ったまま衝突するた めには、ある程度離れた位置から(コンドリュール間 の温度差が保たれる距離から) 高速で相対移動し, 両 者が同じ温度になる前にお互いが衝突する必要がある. 衝突実験などで、コンドリュールが衝突しても壊れな い速度はおよそ100 m/s程度であり[14], 融点付近の 温度のコンドリュールが周囲の輻射と平衡になるタイ ムスケールが5-6秒であるとすると、複合コンドリュ ールを構成するコンドリュール同士の距離のスケール は < 1km程度となる. これがそのままコンドリュー ル形成の加熱現象の空間スケールとなる。また、この ほかにコンドリュール形成において輻射以外の、コン ドリュールの半径などに強く依存するような加熱がコ ンドリュールの温度に対して支配的であったというこ とも考えられる.

このように、図7のような複合コンドリュールは非 常に限られた条件の下で形成することができる.また、 本稿ではまだ未整理のため報告を見送ったが、複数の 複合コンドリュールを調べた結果、30-50%がこの例 のようにsecondaryの方が融点が高いことを示唆する データがある.今後これらの複合コンドリュールをよ り詳しく調べることで、その形成過程における非常に 強い制約条件を得ることが期待される.

## 4. 今後の研究

コンドリュールの形成過程は100年以上も議論が続いているにもかかわらず,未だにはっきりしない.今後は原始太陽系星雲中の現象をモデル化し,数値計算を行うだけではなく,高精度の分析機器による分析の結果をモデル計算により検証し,それを星雲中の現象にフィードバックするような研究がより重要になってくる.例えばX線CTのようなこれまで隕石の観察にはあまり用いられてこなかったような機器を用いてコンドリュールの形状,あるいは鉄包有物や複合コンド

リュールの産状や形状を精密に、そして数多く調べ、 数値計算の結果と比較すれば、さらにこれまで得るこ とのできなかったコンドリュール形成領域の物理条件 を得ることができるだろう.

- [13] Uesugi et al., 2005, Meteorite. Planet. Sci. 40, 1103.
- [14] Ueda et al., 2001, Earth Planets Space 53, 927.

### 謝辞

薄片サンプルは国立極地研究所から提供していただ きました.また,九州大学の岡崎隆司博士には本稿を 投稿する機会をいただき,また有益なコメントをいた だきました。名古屋大学の田中今日子博士には多数の 有益な査読コメントをいただきました。この場を借り てお礼を申し上げます.

## 参考文献

- Sekiya, M. and Takeda, H., 2003, Earth Planets Space 55, 263.
- [2] Jones, R. H. et al., 2000, in Protostars and Planets IV, Edited by V. Mannings, A. P. Boss and S. S. Russell, 927.
- [3] Tsuchiyama, A. et al., 1981, Geochimi. Cosmochimi. Acta 45, 1357.
- [4] Nagahara, H. 1981, Nature 292, 135.
- [5] Tachibana, S. and Huss, G. R., 2005, Geochimi. Cosmochimi. Acta 69, 3075.
- [6] 塚本勝男他, 1999, 遊星人 8, 261.
- [7] Radomsky, P. M. and Hewins, R. H., 1990, Geochimi. Cosmochimi. Acta 54, 3475.
- [8] Akaki T. and Nakamura T., 2005 Geochimi. Cosmochimi. Acta 69, 2907.
- [9] Chandrasekhar, S., 1965, Proc. Roy. Soc. London, Ser.A, 286, 1.
- [10] Tsuchiyama et al., 2000, LPS XXXI, 1566.
- [11] Sekiya et al., 2003, Progr. Theor. Phys. 109, 717.
- [12] Uesugi et al., 2003, Earth Planets Space 55, 493.