

## ジルコンフィッショントラックの熱水アニーリング実験

## Experimental results of fission track annealing by hydrothermal fluid in zircon

# 山田 国見[1], 下林 典正[2], 田上 高広[3]

# Kunimi Yamada[1], Norimasa Shimobayashi[2], Takahiro Tagami[1]

[1] 京大・理・地球惑星, [2] 京大・理・地鉱, [3] 京大・理・地惑・地鉱

[1] Earth and Planetary Sci., Kyoto Univ., [2] Dept. of Geol. & Mineral., Kyoto Univ.

フィッショントラック長 (FTL) 解析は熱履歴解析法として様々に用いられている。しかしそこでもっとも重要な基礎情報である温度 - 時間 - FTL 短縮の関係については常圧・乾燥環境での室内実験に依存している。一方で、水の存在が相転移を始めとして結晶粒内、結晶粒界変化の速度に影響を与えることが知られている。このことから、熱履歴解析法としての FTL 解析の応用には、水の存在に対する汎用性を検証する必要がある。本実験ではジルコンを熱水中でアニーリングして温度 - 時間 - FTL 短縮の関係について調べ、その結果有意な差は見られないという結論を得た。

## ジルコンフィッショントラックの熱水アニーリング実験

フィッショントラック長 (FTL) を用いた熱履歴解析は比較的低温の温度計として断層近傍の温度分布測定などを始めとして広く利用されている (例えば Tagami et al., 2001)。しかし、定性的な加熱 - 冷却史の再現ではなく、具体的な温度時間推定を目指すには温度 - 時間 - FTL 短縮の正確な関係が明らかである必要がある。これについての室内実験は以前から行われているが、それらは全て常圧・乾燥環境下における加熱実験であった。一方で鉱物学の分野では少量の水の存在が相転移の速度を大きく加速する現象が知られているなど、水の存在が結晶粒界、あるいは結晶粒内部での現象に対してその変化速度に影響を与えることが考えられている。そこで本実験では水熱合成装置を用いてジルコンを超臨界水中でアニーリングして FTL 測定を行い、水の存在がジルコン FT のアニーリング速度に与える影響を評価した。

純水の 20 における液相の比重は 0.998 g/cm<sup>3</sup>、気相の比重は 1.85x10<sup>-15</sup> g/cm<sup>3</sup>、飽和水蒸気圧は 0.023 atm である。これが 360 ではそれぞれ 0.575 g/cm<sup>3</sup>、0.114 g/cm<sup>3</sup>、163 atm となり、374.15 で前二者は 0.32 g/cm<sup>3</sup> で一致し気相・液相の区別がなくなる。臨界点と呼ばれるこの温度よりも高温の水を超臨界水と呼び、多量のケイ酸を溶解したりダイオキシンを分解するなど高い反応性を示す。これは単に高温の水が示す反応性とは明らかに異なり、超臨界状態特有の性質の存在を意味する。また、臨界点での飽和水蒸気圧は 218.3 atm、約 20 MPa であり、この温度圧力条件から地下数 km 以深の熱水が超臨界水であることは珍しいことではないといえる。

ところで、よく知られている通りエッチング前の FT は直径方向には原子数個程度の欠損に過ぎず、その外側に広く高速運動した核分裂生成重イオンのクーロン力による結晶格子の歪んだ領域を持つ。この領域の結晶格子の歪みの回復がアニーリングという現象の本質であるが、超臨界水がアニーリング速度に与える影響はそのメカニズムにより次の相反する二つの要素が考えられる。

1. 触媒として作用し、歪みの回復 = アニーリングが早まる。
2. より高い反応性を示す超臨界水が溶媒となり、結晶の歪んだ領域をエッチングする。この場合、アニーリングが遅くなる、あるいはアニーリングは起きない。

試料は汚染・紛失を防ぐためマウント前にイオン交換水とともに白金カプセルに封入し、Tuttle 型リアクターと電気炉を用いて加熱した。Tuttle 型リアクターは完全密閉型のそれまでのリアクターと異なり、加圧 / 減圧用ポンプ、圧力計、熱電対温度計と接続した状態で運用、リアルタイムに直接リアクター内の温度圧力を測定・制御できるのが特徴である。加熱制御のプログラムにより、設定温度到達までの加熱に必要な時間は設定温度に関わらず 2 時間程度で一定している。この、設定温度到達までの加熱による短縮の影響を除くため、アニーリング時間は 100 時間とした。温度測定は白金ロジウム熱電対を利用し、リアクター内部、試料から 1 cm 以内で測定した。温度は 100 時間に渡ってほぼプラスマイナス 5 程度で安定している。圧力は装置の上限から 1000 kg/cm<sup>2</sup> である。

加熱終了後、カプセルから取り出したジルコンはアルコールで洗浄し、以降通常の手順に従いハンドピック・マウント・エッチングを行った。測定は全て観察面に平行で全長が見える FT を用いて行い、エッチングによる長さの変化の影響を押さえるため直径 1 ± 0.5 ミクロンのもののみを選んだ。また、エッチングに対するジルコンの異方性の影響を押さえるため平均 FTL は C 軸との角度が 60 °を超える FT のみから計算した。

実際の実験は約 450 、 500 、 550 の 3 点で行い測定結果を得た。これを乾燥状態での精密加熱実験であ

る Yamada et al.(1995b) の平均 FTL データと比較したところ、両者に有意な差は見られなかった。トラックの形状等についても明瞭な差はなく、純水を用いた実験温度時間範囲のアニーリングでは水による影響はないといえる。温度時間条件のバリエーションの充実と、天然に存在する各種イオンの影響の評価が今後の課題である。