

Durango Apatite の FT に関するアニーリング特性

*野毛 勇二 **渡辺 公一郎 *野崎 徹也 *本多 照幸
(* : 武蔵工大・原研, ** : 九州大・工)

I. 序論

アパタイト (燐灰石)、ジルコンなどのウラン含有鉱物内部に保存される ^{238}U の自発核分裂の飛跡は、熱履歴に応じて収縮し、収縮の割合は加熱 (アニーリング) された温度と時間の関数で表わせる。熱履歴を解明するための一つ的手段として、約 100°C の閉鎖温度を持つアパタイトを用い、その表面トラック (研磨面を切っているフィッション・トラック) の密度や、全長が測定可能な鉱物内部のフィッション・トラック (Confined Fission Track, CFT) の長さを研究することが重要となって来ている。しかしながら、自発核分裂トラックが低密度の試料では、表面トラックと偶然交差するCFTを検出するのは極めて困難である。そこで、今回用いた方法は、加速した高エネルギーの重イオンを鉱物試料の検出面に垂直に照射し、照射による損傷部をエッチングにより拡大し、さらにそれらと交差するCFTをエッチングして検出するというものであり、本研究が初めての試みである。

本研究では、フィッション・トラック年代測定において標準試料として用いられ、結晶が比較的大きく重イオン照射しやすいメキシコ産のDurangoアパタイトを使用し、地質体の低温領域 (100°C 付近) の熱履歴を解明するための基礎研究として、自発核分裂で生じたCFTの長さ、深さ、幅、方位角、また表面トラックの密度と方位角を測定することにより、アニーリング特性を詳細に検討することを目的としており、特に方位角に注目したアニーリング特性 (アニーリング異方性) については本研究が初めてである。

II. 実験

照射試料の作製に際し、先ずDurangoアパタイトを低速カッターで温度上昇を防止し、試料を柱面・底面それぞれに対して平行にカット (約 2mm 厚) した。次に人工的に加熱しない試料をコントロール (計2) とし、他の試料それぞれをシリコンニットPIDアニーリング器により、 275°C 、 295°C 、 330°C 、 365°C 、 380°C 、各々1時間、 250°C 、 300°C 、各々24時間 (計14)、アニーリングした。

1. CFTのアニーリング特性

上記で作製した試料を研磨し、九州大学のタンデム加速器 (エネルギー [93.5MeV]、フルエンス [$2 \times 10^7\text{cm}^{-2}$]) により Ni^{10+} 重イオンを照射し、7% 硝酸、 25°C で柱面に対して平行な試料のコントロールのみ40sec、それ以外の試料は20secエッチングし、それら試料中のCFTの長さ

深さ, 幅, 方位角を各々測定した。

2. 表面トラックのアニーリング特性

次に、上記の試料において重イオン照射をしていない面（CFTを測定した反対の面）を7%硝酸, 25°C, 40secでエッチングし、表面のトラックが完全に消滅するまで研磨した。次に、その表面を7%硝酸, 25°C, 20secでエッチングし、トラック数と方位角を測定した。

観測は全て光学顕微鏡（NIKON BIOPHOTO ×1000 DRY）にセットした高品位CCDカメラ（NIKON HQ-1000M）からモニターテレビに画像を取り出して行なった。

本実験手順のフローチャートを図1に示す。

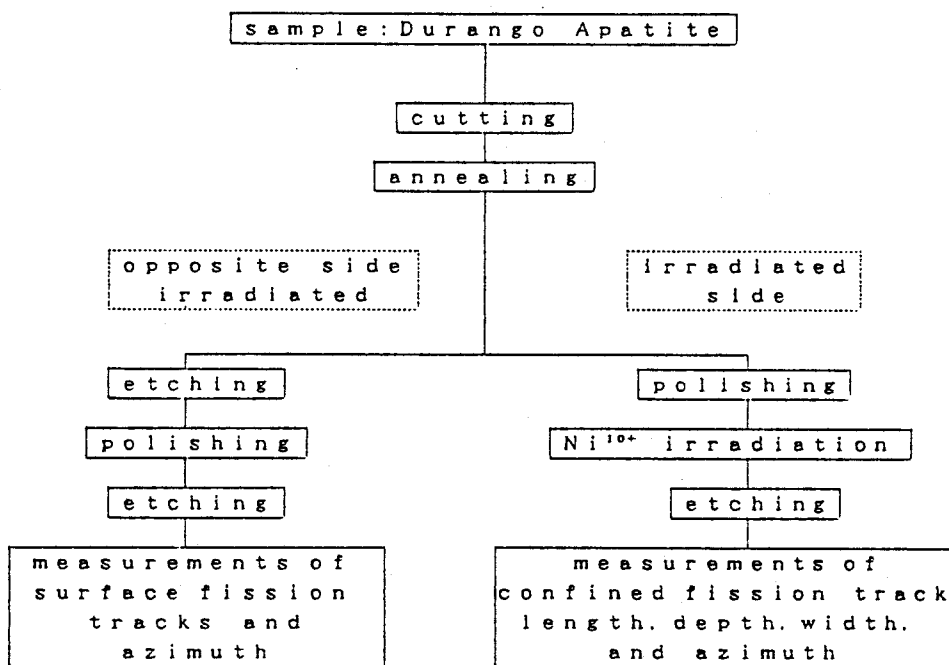


図1. 実験手順のフローチャート

III. 結果及び考察

1. CFTのアニーリング特性

柱面におけるCFTの長さ頻度分布を図2に示す。図よりアニーリング温度が高くなるにした

がって、長さが短縮していることが分かる。

図3に柱面のアニーリング温度-時間における、CFTの幅の分布を示す。各試料のトラック幅が $0.3(\mu\text{m})$ 付近に集中していることから、エッチング状態が一定でったと考えられる。

図4にアニーリング温度-時間とCFTコントロールの長さ(1₀)に対する各試料の長さ(1)の比 $1/1_0$ を示す。アニーリング温度が高くなるにしたがってトラック長の短縮率が大きくなっており、アニーリング1時間よりも24時間の方が短縮率が大きくなっている。また、アニーリング24時間の柱面の試料については傾向が逆になっているが、このことについては現在検討中である。なお、330℃まで加熱した柱面に平行な試料は段階エッチングを行なったものであり、各段階でエッチング液が残留したためトラック長が長くなったものと思われる。

図5にアニーリング温度-時間と $1/1_0$ を示す。図中のA、B、Cとは、各々C軸に対して $0^\circ \sim 30^\circ$ 、 $30^\circ \sim 60^\circ$ 、 $60^\circ \sim 90^\circ$ の方位角領域を表わしており、 $1/1_0$ は各領域のコントロールの長さで割ったものである。図から明かな様にCFT長の短縮率については角度依存性が認められなかった。また、この図は柱面についてであるが、底面についても同様の傾向を示した。

2. 表面トラックのアニーリング特性

図6にアニーリング温度-時間と内部面(4 π 面)に存在するコントロールのトラック密度(ρ_0)に対する各試料のトラック密度(ρ)の比 ρ/ρ_0 を示す。アニーリング温度が上昇すると、トラック密度の減少率が大きくなり、また、アニーリング時間が1時間よりも24時間の方がその減少率が大きい傾向を示している。この図は柱面についてであるが、底面についても同様の傾向を示した。

図7にアニーリング温度-時間と各方位角ごとの ρ/ρ_0 を示す。A領域はC領域よりもトラック密度の減少率が小さい傾向を示しており、トラック密度の減少率については角度依存性が存在することが明瞭である。

3. CFTの長さと表面トラックの密度の関係

図8に各アニーリング温度-時間ごとの $1/1_0$ と ρ/ρ_0 の関係を示す。この関係について $1/1_0$: ρ/ρ_0 が1:1の割合を示してなく、アニーリング温度が低い試料ではトラック密度の減少率の変化が小さく、トラック長の短縮率の変化が大きい傾向があり、また、アニーリング温度が高い試料では逆の傾向を示している。

この理由として、まず、低温アニーリング(275℃、295℃ 各1時間)では、わずかな加熱でC領域のトラックの存在頻度が急に落ち、そのためにエッチングされにくいA領域のトラックの頻度が相対的に増加し、結果として不完全エッチングとなり、見かけ上平均トラック長が短くなったと推測できる。一方、高温アニーリング(300℃、365℃、380℃ 各1時間)ではC領域のトラックの頻度が少ないため平均トラック長に寄与するのはほぼA領域のトラックとなり、中でも真にC軸に平行なトラックは短くなりやすいものと考えられることができる。このアニーリング条件では、80~90%のトラックは消滅しており密度の減少率は大きい、重イオン照射ではA領域のトラック

DURANGO SPONTANEOUS

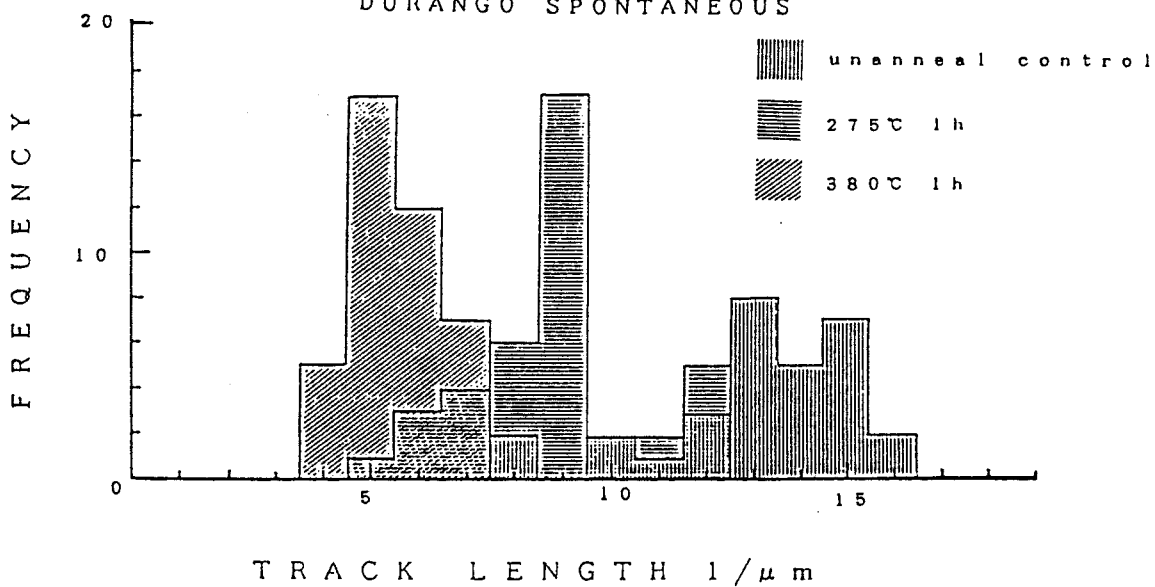


図 2. アニール温度における C F T の長さ頻度分布

DURANGO SPONTANEOUS

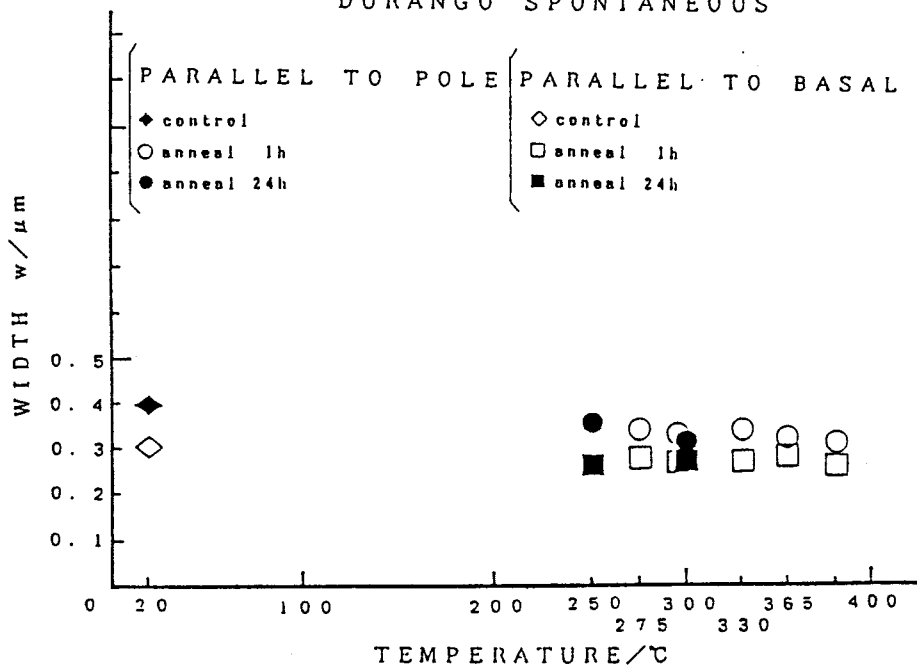


図 3. アニール温度-時間と C F T 幅の関係

DURANGO SPONTANEOUS

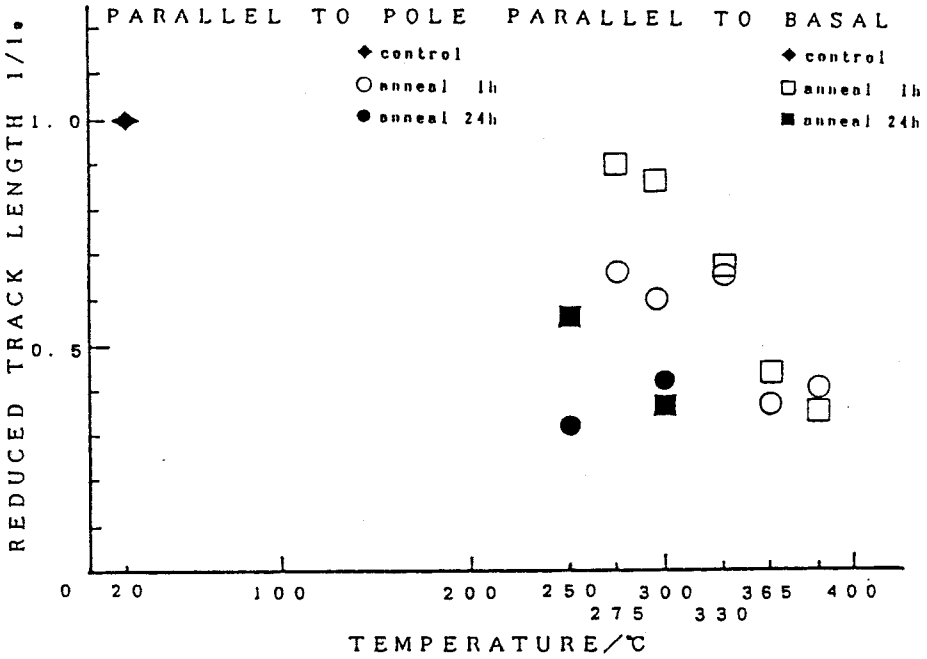


図 4. アニーリング温度-時間とトラック長の control に対する比 I/I_0 の関係

DURANGO SPONTANEOUS

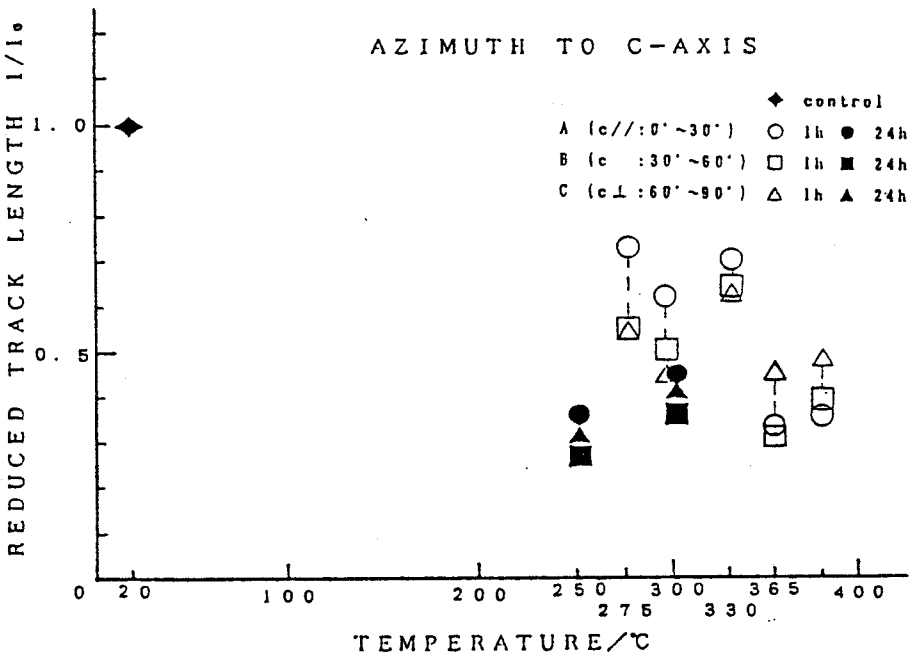


図 5. アニーリング温度-時間と方位角ごとの I/I_0 の関係

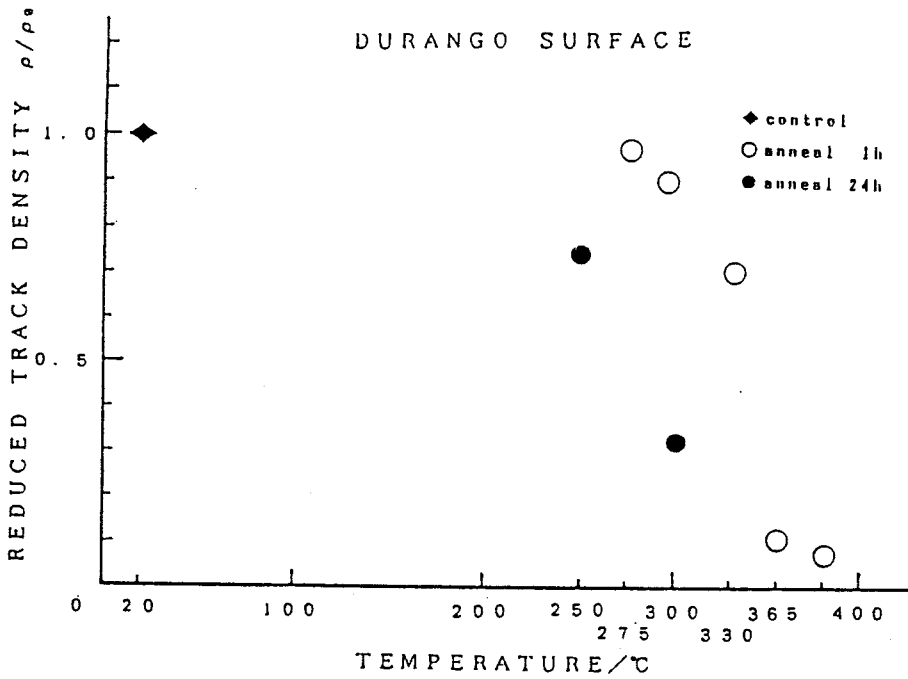


図 6. アニール温度-時間とトラック密度の control に対する比 ρ/ρ_0 の関係

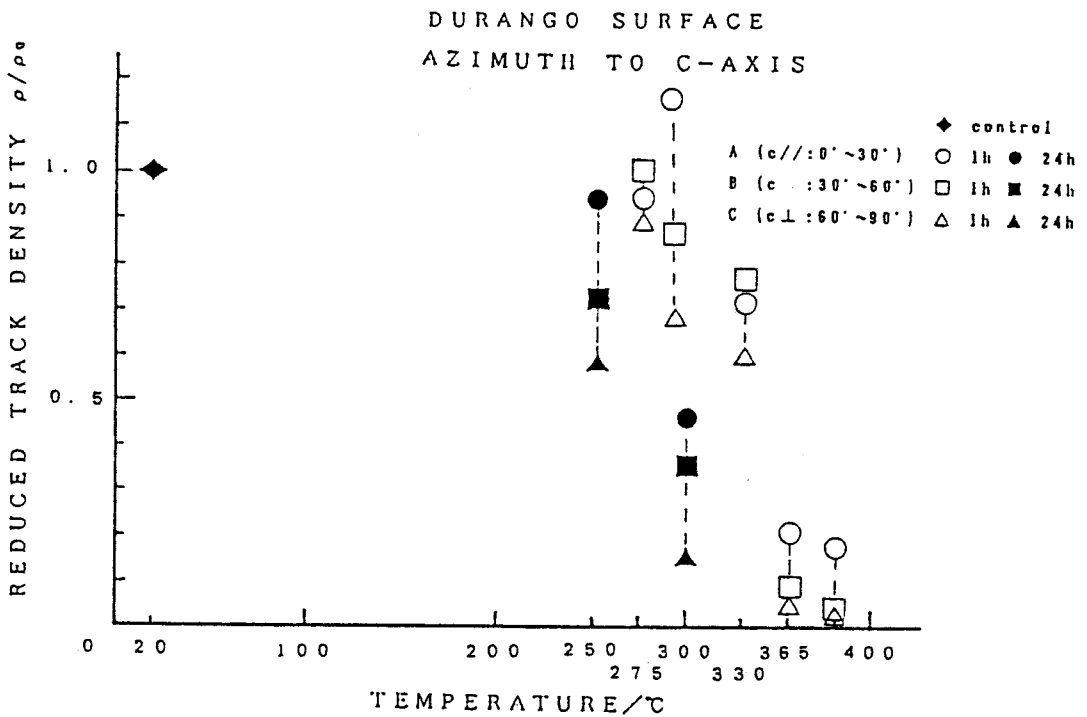


図 7. アニール温度-時間と方位角ごとの ρ/ρ_0 の関係

を効果的に検出しているためトラック長の短縮率は大きくならないものと推測できる。しかしながら、現段階では確言できず検討中である。

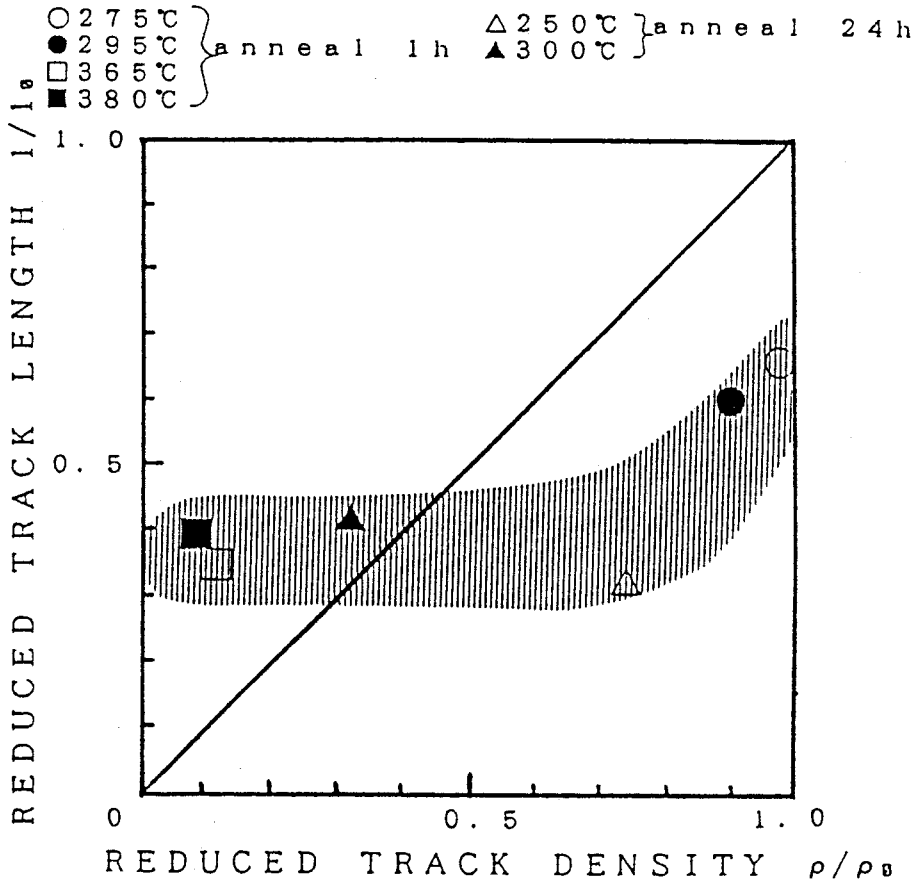


図8. アニーリング温度-時間ごとの
 l/l_0 と ρ/ρ_0 の関係

IV. 結論

本研究を通じて Durango アバタイトのアニーリング特性について得られた知見は以下の通りである。

1. CFTのアニーリング特性

アニーリング温度-時間と l/l_0 の関係で、アニーリング1時間の柱面・底面いずれにおいてもアニーリング温度が増加するとトラック長の減少率が大きくなる傾向があり、アニーリング

24時間ではアニーリング温度が増加すると、トラック長が柱面は増加、底面は減少する傾向を示した。

また、アニーリング温度-時間と方位角ごとの l/l_0 の関係を見ると、角度依存性は認められなかった。

2. 表面トラックのアニーリング特性

アニーリング温度-時間と ρ/ρ_0 の関係を見ると、アニーリング温度が増加するに従ってトラック密度が減少しており、アニーリング24時間の方が1時間よりも減少率が大きかった。

また、アニーリング温度-時間と方位角ごとの ρ/ρ_0 の関係を見るとA領域ほどトラック密度の減少率が小さく、C領域ほど減少率が大きかった。アニーリング温度-時間とトラック密度との間に角度依存性が存在することが確認できた。

3. CFTの長さ と 表面トラックの密度の関係

アニーリング温度-時間ごとの l/l_0 と ρ/ρ_0 の関係を見ると、アニーリング温度の低い方ではトラック密度の減少率はあまり変化はないがトラック長の短縮率は大きくなった。また、アニーリング温度が高い方ではトラック密度の減少率は大きくなりトラック長の減少率はあまり変化がなかった。この理由について、エッチング異方性及びアニーリング異方性から説明できることが示唆され、現在検討中である。