

短時間エッチングジルコンの原子間力顕微鏡(AFM)による高解像度観察

大石新之介*・長谷部徳子**・福間剛士***

High-resolution observation of zircon etched for a short time using Atomic Force Microscope (AFM)

Shinnosuke Ohishi*, Noriko Hasebe** and Takeshi Fukuma***

* 金沢大学自然科学研究科, Grad. School of Natural Science and Technology, Kanazawa Univ.

** 金沢大学環日本海域環境研究センター, Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa Univ.

*** 金沢大学フロンティアサイエンス機構, Frontier Science Organization, Kanazawa Univ.

はじめに

現在行われている光学顕微鏡を用いたFT法では、FTの密度が高くなるにつれFT同士の重なり合いが激しくなり計数が困難になるため、必要なエッチング時間と分解能の限界により、測定できる密度がある程度制限される。Ohishi and Hasebe (2012)は、ジルコン中のFTの観察に原子間力顕微鏡(Atomic Force Microscope: AFM, 横山明彦 2009)を使用し、光学顕微鏡ではトラックの重なりにより区別ができない場合も、AFMではエッチング時間を短縮することにより一つ一つFTを区別できることを確認した。これらにより、高密度FTの年代測定ができる可能性が示された。しかし、Ohishi and Hasebe (2012)で使用していたAFM(JSTM-4200D)は使用上エッチング前後で同地点の画像を取るのが困難であった。また、解像度の影響から、極端に短いエッチング時間では、試料の研磨傷とゾーニングの影響により綺麗な画像を得ることが出来ないという問題点があった。本研究では、より解像度の高いAFM “NanoWizard® II”(金沢大学フロンティアサイエンス機構所有)を利用して観察を行った。このAFMは、倒置型の光学顕微鏡が付属しているため、カンチレバーと試料の位置関係がはっきりわかる。また、最高8196×8196 pixelの高い解像度で画像を取ることができる(JSTM-4200Dでは256×256 pixel)。本研究ではAFMの画像のみでFTの認定をどのようにすべきかを提言し、実際に年代測定をすることを目的とした。またAFMのナノスケール観察が行えるという特徴を生かし、アルファリコイルトラックの観察及びそれを利用した密度の見積もりも試みることとした。

アルファリコイルトラック(ART)

ARTは^{238,234,235}U, ^{230,232}Thなどのアルファ崩壊をする多種の核が、アルファ粒子を放出した反動で核が動くことのできる。人工のプラスチックや黒雲母で観察例があるが、他鉱物では観察例がなく、ジルコンでは形状がどのようになっているかまだ報告されていない。ARTはFTに比べ個数が多いことから、FT法では難しい若い年代(1Ma未満)の測定に利用できる可能性がある、また数がFTの10⁶倍もあるので計数誤差を減らすことができるという利点を持つ。

実験手順

トラック密度が $4 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ (NST), $6.5 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ (OD-03), $\sim 10 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ (AMQG), $\sim 20 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ (SH10) の4種類のジルコンを試料とした。以下にあげる実験内容に合わせてエッチングを適宜行いAFMで観察した。

(1) 0.125 μm のダイヤモンドペーストまでと、0.02-0.06 μm のコロイダルシリカまで研磨した試料の表面観察。(2) AMQGを5-13時間、OD-03を2-7時間の段階エッチングをし、トラック密度を計算。LA-ICP-MSでウラン濃度を測定し、FT年代値を算出。(3) NSTを20時間エッチングし、光学顕微鏡でFTのc軸とのなす角と粒子表面への入射角度を算出し、AFM画像のエッチピットの大きさとの関係性を調査。(4) OD-03, AMQGを60-300分段階エッチングし、4096×4096 pixelの高解像度で観察。

結果・考察

その結果以下のような知見が得られた。

✓ コロイダルシリカで研磨した試料は、最終研磨方向に新しい研磨傷を生じず、より綺麗な

表面が得られた。

- ✓ トラックはエッチングの追加により、近くのトラックと結合してしまうことがある(図1). そのため、正確なトラック密度の測定には、エッチング前後での画像を比較しながら補正を行う必要がある(図2).
- ✓ 補正したトラック密度を使用して求めたFT年代値は、従来法で求められた年代値とほぼ一致し、AFMを用いたFT法が成功した(図3).
- ✓ エッチピットの面積は、入射角が大きくなるほど、大きくなる傾向がみられた. しかし、c軸とのなす角との相関は見られなかった(図4).
- ✓ FTとは別にエッチングによる発達のない小さな窪みがたくさんあった. 数が非常に多いことからARTの可能性が考えられる. また、エッチング時間の増加により、周りに存在するこれらの窪みとFTを区別できるようになる(図5).

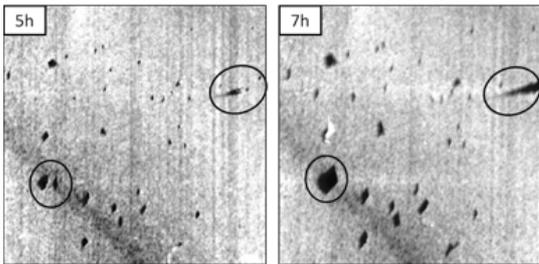


図1 5時間、7時間エッチングした同地点のAFM画像. 丸で囲ったトラックが結合している.

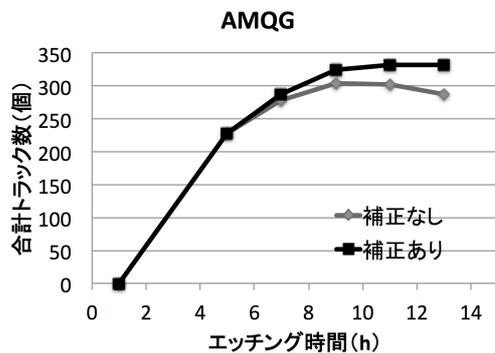


図2 エッチング時間によるトラック数の変化.

- ✓ 断面の波形の波長がARTの距離に相当すると仮定し、スペクトル解析を行ったところ幾つか卓越した波長が見られた(表1).

謝辞

OD03は(株)京都FTよりいただいたものを使用した.

参考文献

- Ohishi and Hasebe, Observations of Fission-tracks in Zircons by Atomic Force Microscope, Radiation Measurements, doi:10.1016/j.radmeas.2012.04.019, 2012
 横山 明彦, 2009, Observation of etched tracks with atomic force microscope for heavy-particle detection, ファッション・トラック ニュースレター 22, 76-81.

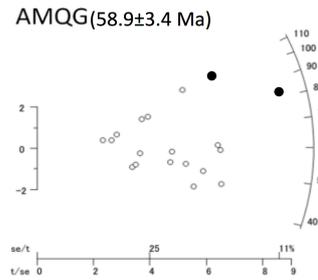


図3 年代値のラディアルプロット. 黒丸が本研究のデータ.

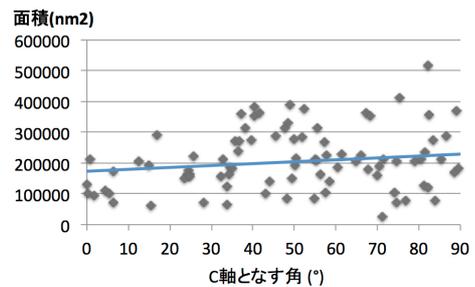
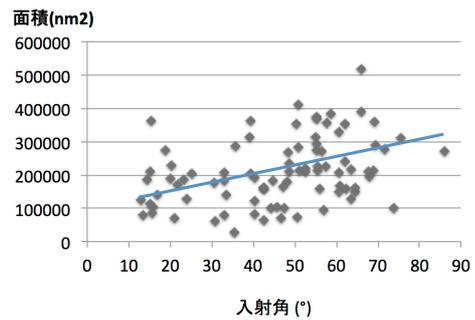


図4 エッチピットの面積 対 入射角・c軸となす角のグラフ. 単線は近似線.

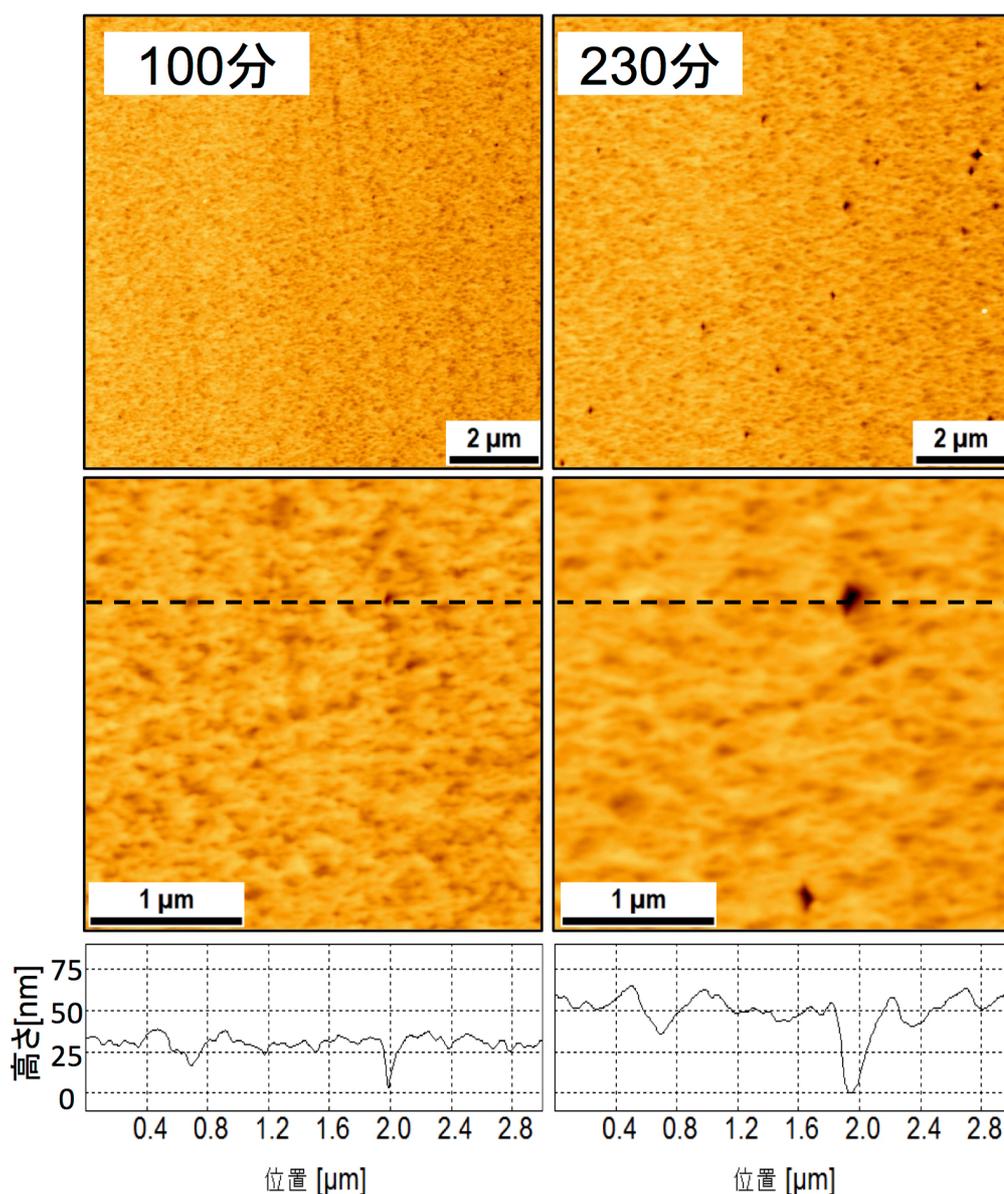


図5 OD-03のAFM画像と点線部分での断面図.

表1 ピークが見られた波長の例と、その波長から求めたARTの面密度(ρ_a).

波長(μm)	ρ_a ($\times 10^6 \text{cm}^{-2}$)	NST	OD-03	AMQG	SH10
0.600	2.8×10^2	○	○	○	○
0.500	4.0×10^2	—	○	○	—
0.420	5.7×10^2	○	○	—	○
0.113	7.8×10^3	○	○	○	○
0.100	1.0×10^4	○	○	○	○
0.089	1.3×10^4	○	○	○	○
0.078	1.6×10^4	○	○	○	○

○は、どの試料がその波長でピークが立ったかを示す。