

14. Durango apatite の

エッチング特性並びに計数効率について

内山 肇^{*}、渡辺公一郎^{**}、野崎徹也^{*}、本多照幸^{*} (*武蔵工大・原研、**九大・工)

I. はじめに

フィッション・トラック年代測定では、 ^{238}U の自発核分裂トラック密度と ^{235}U の誘発核分裂トラック密度の比から年代を求めることを基本的原理としている。したがって、実験的に最も重要な要素のひとつとして、トラックを観測するためのエッチングがあり、化学試薬の種類、温度、エッチング時間といったエッチング条件を鉱物ごとに検討することが求められる。又、誘発トラック密度を外部ディテクタを用いて求めるとき、その計数効率も求める年代値に影響を与える要因のひとつである。

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年代試料として用いられるDurango apatiteの自発フィッション・トラックに関する基礎的特性として、エッチング時間に対するトラック数、径、長さの変化、及び方位を詳細に検討すること、並びに外部ディテクタ法における誘発フィッション・トラックに関する計数効率のzeta値に与える影響について検討することを目的とした。

II. 実験

1. 自発フィッション・トラック (4π) の段階エッチング

Durango apatiteの柱面(約2mm厚にスライスしたもの)を7.0% HNO_3 25°C 40secの条件でエッチングした後、全てのトラックが消失するところまで研磨を施した(3 μm 120min、1 μm 30min、0.25 μm 20min)。

次に、7.0% HNO_3 25°Cで、10、20、30、40、50、60、70secと7段階のエッチングを順次実行した。

各エッチング段階で同じ位置を観測し、出現した個々のトラックに対しその投影長、深さ(屈折率: 1.635)を各々測微装置を用いて測定し、トラックの全長を算出するとともに、径も測微装置を用いて測定した。測微装置の最小読み取り値は0.1 μm である。又、トラックの出現する方向をC-axisを0°として測定を行った。

2. 誘発フィッション・トラック (2π) の段階エッチング

上記で使用した、Durango apatiteの柱面をトラックが消失するまで研磨を行い(自発トラックの研磨条件と同じ)、500°C1時間のアニリングを行った。

表面状態を良くするため、0.25 μm 20minの研磨を行った後、外部ディテクタとしてmica

をとりつけ、武蔵工大炉 (TRIGA II 型、100 kW) の照射溝で、90 分間照射した。

照射後 mica は 4.6% HF 25°C 40 min で、Durango apatite は 7.0% HNO₃ 25°C で 5、8、11、14、17、20、25、30 sec の段階エッチングを施し各々の誘発トラック密度を求めた。

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った。

III. 結果及び考察

1. 自発フィッション・トラック (4π) の段階エッチング

自発トラックのエッチング特性を図 1 に示す。エッチング時間が 50 sec 程度でプラトー領域に達しており、また、50~70 sec 間のプラトー勾配は 0.127 (%/sec) であった。

図 2 に各エッチング段階で新たに出現したトラックの平均長と平均径の関係を示す。ここでは 40 sec までは径が大きくなっているが、50 sec 以後では長さの増加が著しい。これは Bulk etching の効果により面が移動し、新たにトラックが出現したためと思われる。このことから、7.0% HNO₃ 25°C の条件では 50 sec が最適エッチング時間であると考えられる。

図 3 に各エッチング段階での C-axis に対するトラックの方位の分布を示す。エッチング時間 10 sec の段階では 90° 方向のトラックが他の方向に比べて出現しにくくなっている。しかし 20 sec 以後ではその傾向はほぼ解消され、どの方向にも同様の増加傾向を示している様に思われる。

図 4 に 10 sec の段階で出現したトラックのうち、C-axis に平行なトラック及び垂直なトラックの径のエッチング特性を示す。この図から、径の成長速度はトラックの方位により大きな違いがあることがわかる。最適エッチング時間 (50 sec) における径は C-axis に平行な方位のトラックでおよそ 1.5 μm、垂直な方位で 2.6 μm 程度であり平均すると 2 μm 程度である。

図 5 にエッチング 50 sec におけるトラック長の分布を示す。ここで 0~1 μm のトラックが観測されていない。これはトラックが微小なため観測できなかったものと考えられる。実際のトラック密度は、この微小なトラックの分も含めて考えなくてはならない。そこで、0~1 μm のトラック数が 1~15 μm のトラック数の平均値であると仮定すると 1.07 という補正係数が得られる。

2. 誘発フィッション・トラック (2π) の段階エッチング

図 6 にエッチング時間に対する誘発トラック密度の関係を示す。この図から明かな様に、誘発トラック密度はエッチング時間 14 sec でプラトー領域に到達している。また 14 sec~30 sec 間のプラトー勾配は 0.360 (%/sec) であった。

図 7 に、エッチング時間に対する geometry factor g' ($g' = \rho_{ed} / \rho_{2\pi}$) の関係を示す。 ρ_{ed} (外部ダイテクタのトラック密度) はここで一定としてあるので、 $\rho_{2\pi}$ (2π面の誘発トラック密度) がエッチング時間とともに増加するにしたがい g' は減少している。最適エッチング時間

(14sec)における g' は0.945であった。

図6においてプラトー勾配は0.360(%/sec)であったが、これはBulk etchingの効果により面が移動し、新たなトラックが出現した影響と思われる。このBulk etchingの効果がエッチングの初期段階から同じ割合であったと仮定すると、これを補正して、 g' は0.995という値が得られる。

計数効率 g は次式で表される。

$$g = \rho ed / \rho 4\pi$$

2π 面のトラック密度 $\rho 2\pi$ を 4π 面のトラック密度 $\rho 4\pi$ に換算するには、理想的には $\rho 2\pi$ を2倍すれば $\rho 4\pi$ になるはずである。しかし 4π 面には観測限界以下の微小なトラック(ショートトラック)が存在するので、その影響を考慮して次式の様になる。

$$\rho 4\pi \cdot S = 2 \cdot \rho 2\pi$$

(S : ショートトラックの影響を補正する係数)

これにより g は、次のようになる。

$$\begin{aligned} g &= \rho ed / (2 \cdot \rho 2\pi / S) \\ &= (\rho ed \cdot S) / (2 \cdot \rho 2\pi) \\ &= (g' / 2) \cdot S \end{aligned}$$

ここで、各エッチング時間での g を、係数 S に図5の自発トラック長分布から求めた1.07を用いて、プラトー勾配による補正を行ったものと行わないものの2種類について表1に示す。また、最適エッチング時間(14sec)での g に対する他のエッチング時間での g の比も併記した。この表において、エッチング時間が最適エッチング時間よりも短い(under etching)場合、14secでの g と比較して数パーセントの差があることがわかる。また、補正を行わないものについては、最適エッチング時間以上のエッチング(over etching)を行った場合についても同様に数パーセントの差が現われている。補正を行った場合のover etchingではほとんど差は見られないが、これは、段階エッチングを行ったとき、各段階で同じ位置を観測したため、消えかかっているトラックもトラックと判別できたが、段階エッチングを行わない場合、あるいは行っても観測する位置を特定していない場合には、消えかかっているトラックをトラックとして判別できるかどうか疑わしい。したがって、年代測定を行うときにはエッチング時間を最適に設定することが極めて重要である。

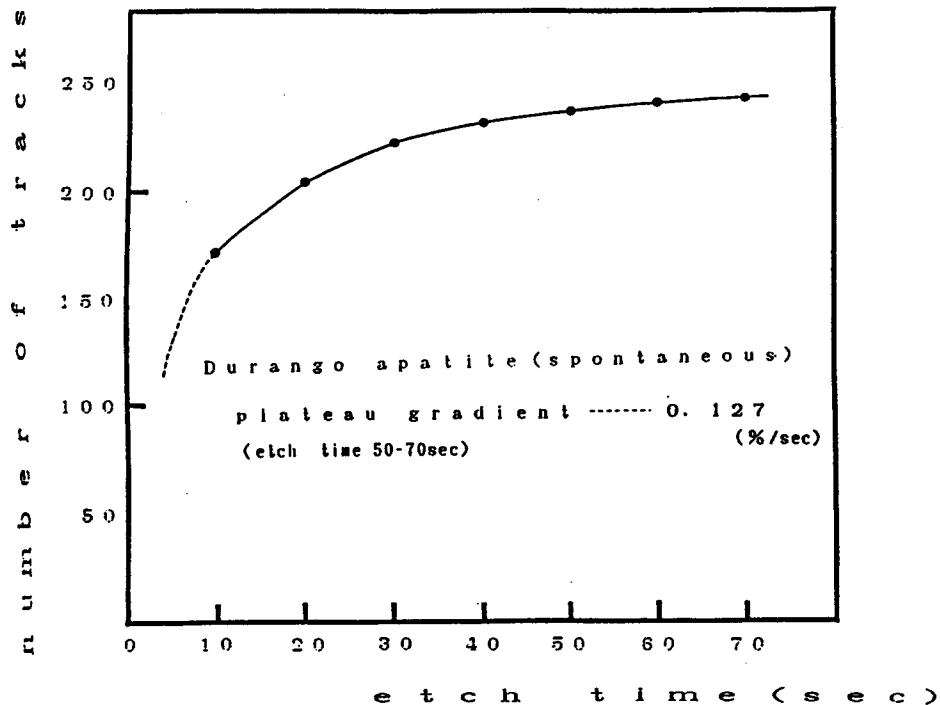


図1. エッチング時間に対する
 自発フィッション・トラック数の変化

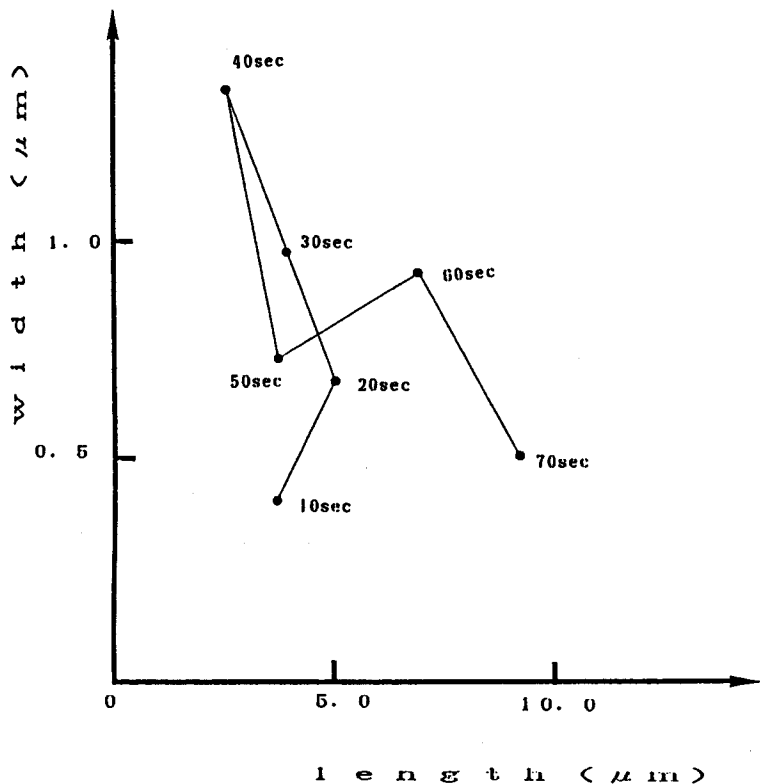


図2. 各エッチング段階で新たに出現した
 トラックの長さとの関係

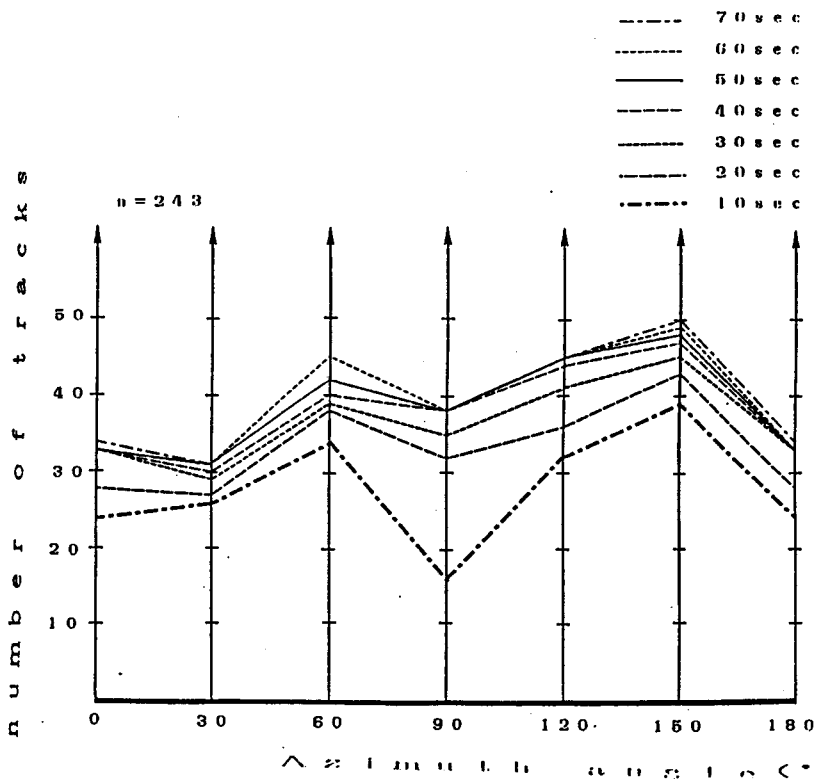


図3. 自発フィッション・トラックの
段階エッチングにおける方位分布

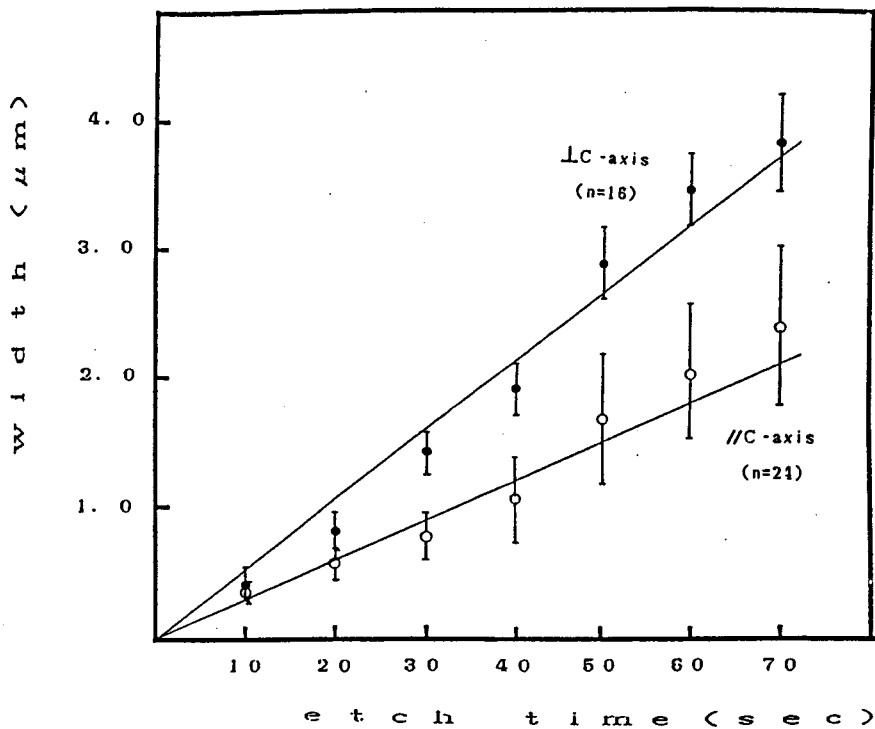


図4. 10 secのエッチングで出現した
自発フィッション・トラックの径の変化

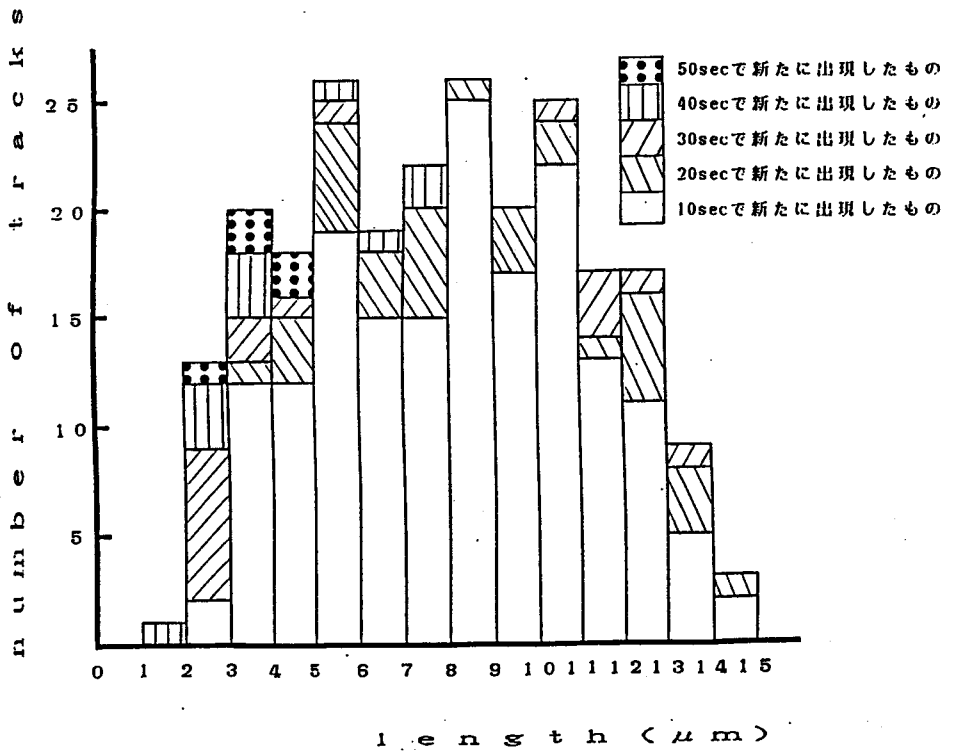


図5. 段階エッチングにおける
 自発フィッション・トラックの長さの分布

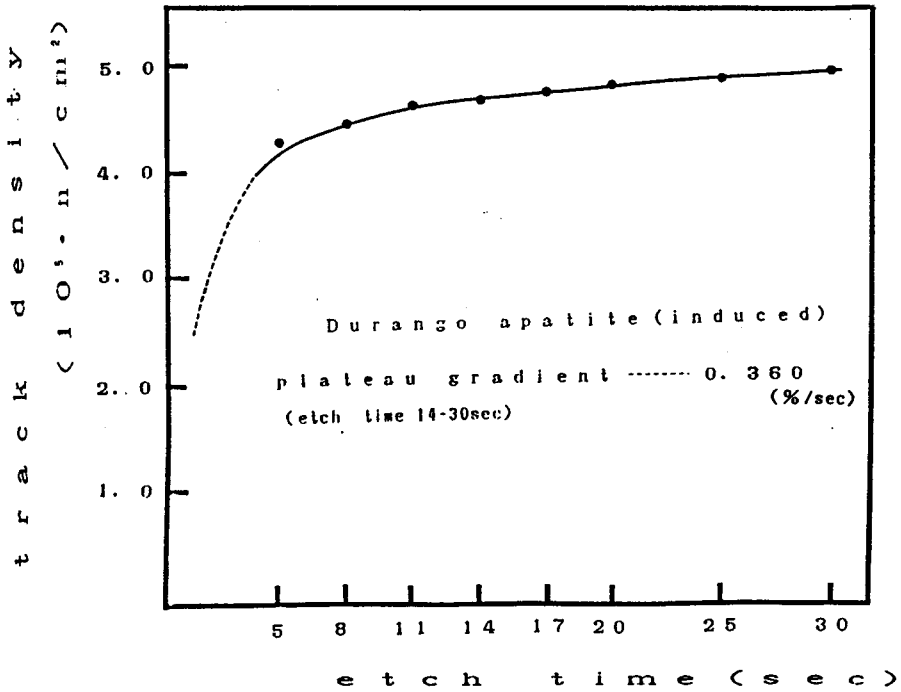


図6. エッチング時間に対する
 誘発フィッション・トラック密度の変化

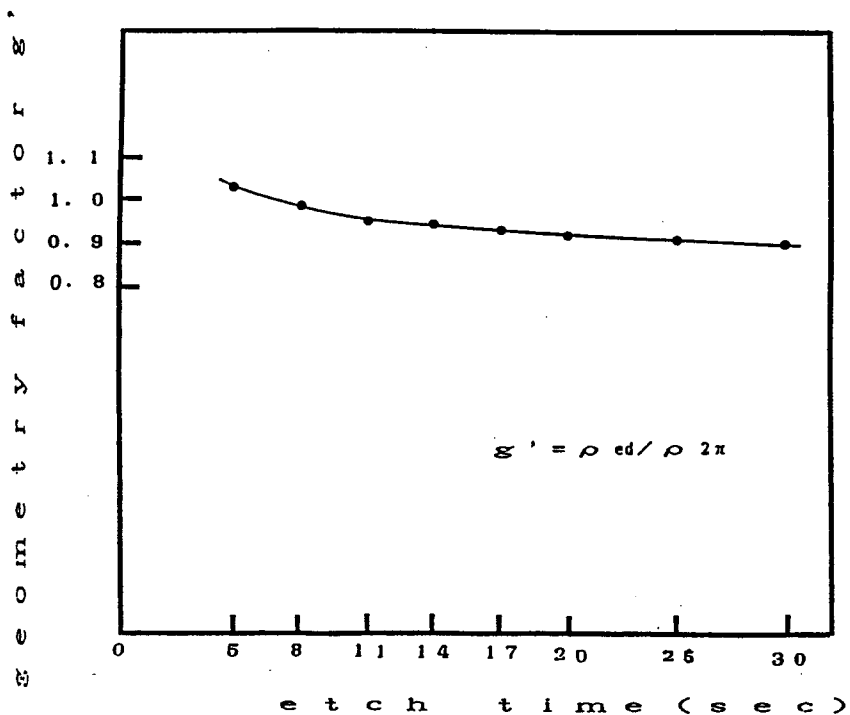


図7. エッチング時間による
geometry factor g' の変化

表1. under etching及びover etchingのzeta値に与える影響

sec	ϵ_1 (補正前)	比	ϵ_2 (補正後)	比
5	0.553	1.093	0.564	1.058
8	0.530	1.047	0.547	1.026
11	0.511	1.010	0.532	0.998
14	0.506	1.000	0.533	1.000
17	0.499	0.986	0.530	0.994
20	0.492	0.972	0.529	0.992
25	0.485	0.958	0.530	0.994
30	0.479	0.947	0.533	1.000

IV. まとめ

本研究を通じてDurango apatiteに関して得られた知見は以下のとおりである。

1. 自発フィッション・トラック (4π) の段階エッチング

- 1) 自発フィッション・トラックの最適エッチング時間は、7.0% HNO₃ 25℃の条件で50 secでありプラトー勾配は、0.127 (%/sec、50~70 sec)であった。
- 2) 最適エッチング時間までは、新たに現われるトラックの径が増加し、それ以後に現われるトラックでは真の長さが増加する。
- 3) 10 secのエッチングではC-axisに対し直交方向のトラックが現れにくい、20 sec以後ではその傾向はほぼ解消され、どの方向にも同様の増加傾向を示している様に思われる。
- 4) 最適エッチング時間における径は、 $> 2 \mu\text{m}$ であった。
- 5) 計数されないショートトラックの寄与が大きくなると値は大きく見積られる。

2. 誘発フィッション・トラック (2π) の段階エッチング

- 1) 最適エッチングでの誘発フィッション・トラックの geometry factor g' ($\rho_{ed}/\rho_{2\pi}$)は0.945であった。
- 2) エッチングが充分行われないと値を小さく見積ることとなる。