

フィッシュン・トラック年代測定における ジルコンのエッチング過程

平成 2 年度

升本 眞 二

目 次

1. はじめに	-----	1
2. 実験方法および試料	-----	2
3. 実験結果	-----	3
3-1. トラック数	-----	3
[エッチング時間とトラック数]		
[方位角とトラック数]		
[傾斜角とトラック数]		
3-2. トラック幅	-----	4
[トラック幅の平均分布]		
[トラック幅の方位分布]		
[トラック幅の傾斜分布]		
3-3. トラック長	-----	4
[トラック平均長の分布]		
[トラック長の頻度分布]		
[トラック長と方位角]		
[トラック長と傾斜角]		
3-4. コーンアングルの測定	-----	5
3-5. 測定面の低下の測定	-----	6
4. 考 察	-----	7
4-1. トラック数について	-----	7
4-2. トラック幅について	-----	8
4-3. トラック長について	-----	10
5. まとめと今後の問題	-----	14
謝 辞	-----	15
引用文献	-----	16

目 次

第 1 図	エッチング時間とトラック数の変化	18
第 2 図	ジルコンの C 軸からの方位角とトラック数の頻度	19
第 3 図	ジルコンの結晶表面からの傾斜角とトラック数の頻度	20
第 4 図	エッチング時間とトラック幅の変化	21
第 5 図	ジルコンの C 軸からの方位角とトラック幅	22
第 6 図	ジルコンの C 軸からの方位角とトラック幅の増加量	23
第 7 図	ジルコンの結晶表面からの傾斜角とトラック幅	24
第 8 図	ジルコンの結晶表面からの傾斜角とトラック幅の増加量	25
第 9 図	エッチング時間とトラック長の変化	26
第 10 図	エッチング時間ごとのトラック長の頻度	27
第 11 図	ジルコンの C 軸からの方位角とトラック長	28
第 12 図	ジルコンの結晶表面からの傾斜角とトラック長	29
第 13 図	ジルコンの C 軸からの方位角とトラック数の増加	30
第 14 図	ジルコンの結晶表面からの傾斜角とトラック数の頻度	31
第 15 図	フィッシュン・トラックのエッチングの基本モデル	32
第 16 図	C 軸からの方位角とトラック幅の拡大モデルの模式図	33
第 17 図	トラック幅の拡大モデルから推定される 方位角別のトラック幅と測定値	34
第 18 図	エッチングによるトラックの成長モデル	35
第 19 図	観察されるトラック長の変化	36

Etching Process of Zircon in Fission Track Dating

MASUMOTO, Shinji

ABSTRACT

The fission track dating method has now been successfully applied to understand geochronological and geothermal problems. However, there are several problems which have a direct effect upon measured values. These are the detection efficiency of tracks by etching anisotropy, the selection of dating strategy and the determination of neutron fluence. The etching effect becomes a serious problem for general dating. Even at present, a final concrete etching criterion has not been determined.

In this paper, the etching characteristics of fission tracks in zircon by the stepwise etching method are presented. The three-dimensional track geometry was measured with a computerized image-processing system.

The results of an experiment are as follows. The track density increased slightly in proportion to the etching time. The rates of increase of the track density was anisotropic to the azimuth angle from the C-axis. The track width increased in proportion to the etching time. The rates of increase of the track width was anisotropic to the azimuth. The track length increased in the two stages. The rate of increase of the track length was anisotropic to the azimuth. The anisotropy to the dip angle from the crystal surface was not measured for these observations. The bulk etching velocity considered in three dimensional vectors were calculated.

The following points are concluded on the basis of experimental results. The increase of the track density is due to the increase of the tracks parallel to the C-axis. The bulk etching velocity parallel to the C-axis is large compared to the other directions. The track etching velocity has same value along parallel and perpendicular to the C-axis. The anisotropy to the azimuth angle from the C-axis is due to the effect of a difference in bulk etching velocity. The latent track length can be estimated from the track etching velocity and the bulk etching velocities.

1. はじめに

近年、フィッシュン・トラック (FT) 年代測定法が広く普及し、数多くの成果が得られている。しかし、現時点ではフィッシュン・トラック年代測定法は必ずしも完成された手法ではなく、Gleadow (1981) や Hurford and Green (1982, 1983) によって指摘されたように、年代測定法の区分・エッチング・中性子線測定などの多くの問題点が残されている。

とくに、一般の年代測定者が最も注意しなければならないことはエッチングの問題である。現在、FT年代はエッチングされたトラックの計数から求められている。しかし、エッチングの程度を示す指標は規格化されておらず、また、最適なエッチング状態を与えるクライテリアも個々の研究者によって異なり、一致した結論は未だに得られていない。

エッチングの中で最も重要な問題はその異方性である。日本ではFT法にジルコンが多く用いられている。このジルコンのトラックエッチングに関して Krishnaswami *et al.* (1974) は $\text{HF} + \text{H}_2\text{SO}_4$ エッチャントを用いたエッチング異方性を定性的に指摘した。鈴木 (1980) は現在最も普及しているエッチャントである $\text{NaOH} + \text{KOH}$ を用いた実験でも同様な結果があることを指摘し、また、その補正法を提案した。また、Suzuki (1983, 1984) はこの異方性が若い年代試料に強くみられることを述べた。雁沢 (1982, 1983, 1985) はこれらを積極的に支持し、独自の補正法を示し、さらに異方的効果の原因について論じている。このほか、エッチングに関しては外部ディテクター法を用いるときのトラックの検出効率や熱史解明に用いられるトラック長の測定などの種々の問題点があげられる。

Wadatsumi *et al.* (1988) は画像処理装置を導入し、3次元的なトラック像の測定を可能にした。これにより従来非常に困難であったトラックの3次元形態 (トラック長・トラックの幅・結晶軸からの方位角・鉱物表面からの傾斜角) が容易に記載できるようになった。この手法により、エッチングの進行状況を正確に観察すれば上記のエッチングに関する問題を解決できる可能性が生まれた。

本論文では、フィッシュン・トラック年代測定に一般的に使用されるジルコンを対象としてエッチングを段階的に進行させる実験を行い、この各段階でのトラックの3次元的数据を画像処理装置を用いて計測した。これらの結果からトラック数・トラック幅・トラック長の変化などのエッチング過程を検討し、エッチングの特性を解明し、それらの原因について議論した。

なお、本研究に用いた測定システムについては升本・弘原海 (1990a)、測定原理および方法については升本・弘原海 (1990b) に詳細に報告したので参照されたい。

2. 実験方法および試料

ジルコンのエッチング過程を検討するために、一定時間エッチングを行い、エッチングを一時中断し計測を行うという“段階エッチング”の実験を行った。

試料は富山県太美山地域に分布する刀利層白中月長石流紋岩部層の含月長石溶結凝灰岩中のジルコンをを用いた。本試料の年代は K-Ar法で24Ma (山崎・宮嶋, 1970), FT年代で 23.7 ± 2.9 Ma (雁沢, 1983)である。

エッチングは試料のジルコンをPFAテフロンフィルムに埋め込み、エッチャントとして現在最も多用されている NaOH+KOH (1:1) を用い 225°Cで、6時間毎に段階エッチングを行った (Gleadow *et al.*, 1976)。

測定はジルコンの外部面 (2π 面) の自発トラック (spontaneous track) を用い、エッチングが24, 36, 48, 60時間進行したときに、同一場所において、同一トラックのジルコン結晶C軸からの方位角、鉱物表面からの傾斜角、トラック長、およびトラック幅を計測した。

測定装置は顕微鏡画像処理装置 CIPS-FTD (Wadatsumi and Masumoto, 1984, 升本・弘原海, 1990a) を用いた。トラックの各データの測定については升本・弘原海 (1990b) の手法を用いた。トラック像はすべて100倍 (dry) の明暗視野用対物レンズ (Nikon BD Plan) を用いて、画像処理装置のモニター上で5,000倍で観察した。なお、本実験結果のトラック長の分解能は $0.083 \mu\text{m}$ およびトラック幅の分解能は $0.042 \mu\text{m}$ である。

本実験に用いたジルコンの総数は100個であるが、60時間におよぶエッチングの結果、鉱物表面の鮮明度やトラックの不均一性を考慮して、最終的に実験結果として報告するのはそのうちの30個である。

3. 実験結果

エッチングが24, 36, 48, 60時間進行した4つのエッチング段階ごとにジルコンの同一の場所においてトラック数およびトラックの3次元データ（方位角, 傾斜角, トラック幅およびトラック長）を計測した. この結果をトラック数, トラック幅, およびトラック長にまとめた. さらにコーンアングルおよび測定面の低下についての結果も示した.

3-1. トラック数

トラック数の変化をエッチング時間ごとのトラックの総数で示すとともに, 方位角別および傾斜角別にその分布と変化を示す.

[エッチング時間とトラック数]

エッチング時間とトラック数の関係を第1図に示す. トラック数は測定を開始したエッチング時間24時間以降わずかながらであるが直線的に増加している. その増加率はほぼ一定で12時間ごとに約4%（1時間で0.3%）程度の増加率がある. エッチング60時間でのトラック総数は817個であった.

[方位角とトラック数]

各エッチング時間でのC軸からの方位角別のトラック数を第2図に示す. トラック数はC軸からの方位に対して一様ではなく, 方位角 40° 前後を境にして大きく変化する. トラック数は方位角が 0° から 40° の範囲では方位角が 40° 以上に比べて少ない. トラック数の増加は, 方位角が 0° から 40° が多く, 方位角が 40° 以上では少ない. したがって, エッチングの初期にあった差は, 最終段階では少なくなっている. このようにトラック数のC軸からの方位による差はエッチング時間の増加にしたがって徐々に解消される傾向がある.

[傾斜角とトラック数]

各エッチング時間での表面からの傾斜角別のトラック数を第3図に示す. 各エッチング時間ともトラック数は傾斜角が 40° から 50° を中心したほぼ左右対称ななだらかな山形の分布を示し, 水平と垂直なトラックはほとんどない. トラック数の増加も傾斜角が 30° から 60° を中心したトラックの多く分布している付近が多いが, 山形の分布をするという傾向はほとんど変化しない.

3-2. トラック幅

トラック幅の変化をエッチング時間ごとのトラックの平均幅で示すとともに、方位角別および傾斜角別にその分布と変化を示す。ただし、ここで用いたトラック幅はエッチング24時間で現われた724個のトラックのみのデータを用いたもので、後から現れた93個のトラックのデータは含めていない。

[トラック幅の平均分布]

エッチング時間ごとのトラック幅の平均値の変化を第4図に示す。トラック幅は測定開始後は一定の割合で増加する。その分散も徐々に大きくなる。増加率は $0.015 \mu\text{m}/\text{hr}$.である。

[トラック幅の方位分布]

C軸からの方位角とトラック幅およびその増加幅の関係を第5図、第6図に示す。全てのエッチング時間でC軸に平行なトラックの幅が小さくC軸に直交するトラックの幅が大きい。その差はエッチングの初期では少しであるがエッチング時間の増加にともない大きくなる。トラック幅の増加率はエッチング時間に関係なくほぼ一定であり、C軸からの方位角が小さいトラックの幅の増加率は小さく、方位角が大きいトラックの幅の増加率は大きい。

[トラック幅の傾斜分布]

傾斜角とトラック幅およびその増加率の関係を第7図、第8図に示す。トラックの幅は傾斜角にはほとんど関係なくほぼ一定である。また、トラック幅の増加率もほぼ一定であり、傾斜角に対する有為な差は認められない。

3-3. トラック長

トラック長の変化をエッチング時間ごとのトラックの平均長で示すとともに、方位角別および傾斜角別にその分布と変化を示す。ただし、ここで用いたトラック長はエッチング24時間で現われた724個のトラックのみの長さの変化を示したもので、後から現れた93個のトラックのトラック長はデータに含めていない。

[トラック平均長の分布]

各エッチング時間でのトラックの平均長を第9図に示す。トラックの平均長はエッチング時間が増加にともない徐々に増加する。トラック長の増加はエッチン

グ時間24時間から36時間までの間では $0.49\mu\text{m}$ 、36時間から48時間では $0.45\mu\text{m}$ であるが、48時間から60時間までの間では $0.15\mu\text{m}$ となり、増加が減少する。

[トラック長の頻度分布]

各エッチング時間ごとのトラック長の分布を第10図に示す。トラック長は、エッチング時間24時間では $3\mu\text{m}$ から $12\mu\text{m}$ までの間に分布し、その分布は一様ではなく $6\mu\text{m}$ から $7\mu\text{m}$ にピークを持つ右裾ひき形の山形の分布を示す。エッチング時間の増加にしたがって分布域はトラック長の長い方に徐々に移動し、ピーク的位置も同様の傾向を示す。また、その分布は山形から台形にちかづき、エッチング時間60時間では $5\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ 間の一様分布に近くなる。

[トラック長と方位角]

各エッチング時間ごとの方位角別のトラック長を第11図に示す。ただし、この図におけるトラック長とは計測したトラックの平均長である。エッチングの初期では、方位角による差が見られ、方位角が 0° から 30° までのトラック長は他に比べて短い。トラック長の増加は一定ではなく、全体としてはエッチング時間の初期が大きく、とくに方位角の小さいトラックの増加が大きい。この結果、エッチング時間60時間ではトラック長は方位による差がなくなる傾向を示す。

[トラック長と傾斜角]

トラックの平均長と傾斜角の関係を第12図に示す。なお、計測方法の限界と精度の点から傾斜角 70° 以上のデータは除いた。トラック長は傾斜角の小さいものが若干短くなっているが、全体的にみればほぼ一定で有為な差はみられない。トラック長の増加率は傾斜角に関係なく、エッチング時間が長くなると徐々に小さくなる傾向がみられる。

3-4. コーンアングルの測定

コーンアングル ω を求めるには、各トラックの表面でのトラック幅 W_h と内部端点でのトラック幅 W_l とトラック長 L から

$$\omega = \tan^{-1} \left((W_h - W_l) / 2L \right)$$

で求められる。実際には内部端点での幅はトラックの傾斜が大きいものは像がぼやけて見にくいため測定できない。そこで傾斜の小さいもののみ限定し、また、C軸に平行な方向と直交した方向のトラックに限定して測定した。計測はトラック像が最も明瞭なエッチング48時間の段階で行なった。測定結果を以下に示

す。

C 軸に平行なトラックのコーンアングルは $0.62^\circ \pm 0.22^\circ$

C 軸に直交なトラックのコーンアングルは $1.02^\circ \pm 0.36^\circ$

(両者とも計測トラック数は30個, 誤差は1σ)

3-5. 測定面の低下の測定

本実験における測定開始からの測定面の低下はエッチング60時間でシステムの垂直成分の測定限界 $0.2 \mu\text{m}$ 以下であった。

4. 考 察

以上の実験結果を基礎にしてジルコンのフィッシュン・トラックのエッチング過程の中で最も重要な、トラック数の変化とトラック幅の変化、およびトラック長の問題を結晶方位とエッチング時間との関係から考察する。

4-1. トラック数について

測定されたトラック数は、エッチング時間24時間から60時間まで一定の割合(12時間で4%)で増加した。以下では、このトラック数の増加の原因とエッチングの特性について考察する。

一般的にエッチング時間を長くしていくと、トラックの幅が顕微鏡で観察が可能な $0.1\mu\text{m}$ 程度以上になる段階でトラック数が急増し(Fleisher *et al.*, 1975)、その後、"Prolonged Etching"とよばれる効果により、徐々に一定の割合で増加する。Khan and Durrani(1972)はガラスを用いた実験から"Prolonged Etching"がバルクエッチングによる測定面の低下に起因することを示した。ジルコンにおいても"Prolonged Etching"の傾向はみられ、馬場(1980)は理論的なモデル計算から、この原因をガラスと同様にバルクエッチングによる面の低下が原因であるとした。

本実験におけるトラック数の増加もこの"Prolonged Etching"の効果に似た傾向を示す。しかし、本実験で得られた測定面の低下はエッチング60時間でシステムの垂直成分の測定限界 $0.2\mu\text{m}$ 以下であり、馬場(1980)に示されているような測定面の低下によるトラック数の増加が原因とは考えられない。

実験結果をジルコンのC軸からの方位角別に集計すると、観察されたトラック数およびその増加率は一様ではない(第2図)。第13図に第2図の頻度分布を比較のために重ねて示す。方位角が 0 から 40° の範囲のトラック数は方位角が 40° 以上のものに比べて少ない。また、トラック数の増加に注目すると、全体の増加数の8割近くが方位角 0° から 40° の間で増加し、エッチング時間の増加にしたがい、方位角別のトラック数の差が少なくなる傾向を示す。一般に、 ^{238}U の自発核分裂により形成されるフィッシュン・トラックは方位角には関係なく一様であり、本実験のように鉱物表面(2π 面)で測定した場合、方位角ごとのトラックの検出確率は理論的には一様である。このことから、トラックの検出能力、いかえればエッチングの進行速度には、方位角 40° 前後を境した方位角に対する異方性が存在することがわかる。

実験結果を結晶表面からの傾斜角別に集計すると、観察されたトラック数は一

様ではなく山形の分布を示す(第3図)。また、トラック数の増加もこの形が保存されるように進行する。傾斜角に対するトラックの分布を理論的に考えると、本実験のように外部面(2π 面)でトラックを計測する場合、傾斜角 ϕ のトラックの出現率 $D(\phi)$ はつぎの通りである。

$$D(\phi) = p \cdot \sin \phi \cdot \cos \phi$$

(p は定数)

第14図は第3図で示した実験結果をエッチング時間24時間におけるトラックの出現率の形で書き改め、その上に上記の理論的なトラック頻度分布を重ねて示したものである。トラックの出現率は理論値とよく一致していることがわかる。このことから、トラック数およびその増加は傾斜角別にみると一様であり、方位角のような異方性は見られないことがわかる。

以上をまとめると、本実験におけるエッチングには方位角に対して異方性を示し、傾斜角に対しては異方性を示さないという特性が存在することがわかる。また、トラック数の増加はバルクエッチングによる面の低下が原因ではなく、この方位角によるエッチングの異方性が主要な原因であることが考えられる。

4-2. トラック幅について

トラック幅は全体としてみると、ほぼ一定の割合で増加するようにみえるが(第4図)、方位角別にみると、異方的な特徴を示す(第5図)。トラック幅はエッチング時間24時間では明瞭な差はないが、エッチング時間の増加にしたがい方位角の小さいものと、方位角の大きいものの差が大きくなる(第5図)。また、トラック幅の増加率はエッチング時間に関係なく、方位角の小さいものは小さく、方位角の大きいものは大きく、それぞれにほぼ一定の割合を示す(第6図)。トラック幅は傾斜角に対して、ほぼ一様で一定の割合で増加する(第7図、第8図)。

これらのトラック幅の増加過程を考えるために、一般的なFTのエッチング過程のモデルを第15図に示す(Henke and Benton, 1971)。フィッション・トラックは実際の潜在トラック幅数 10\AA の部分がトラックエッチング速度 V_t でエッチングされる。それより外はバルクエッチング速度 V_g でエッチングされトラックは拡大される。実際に観察されるためには $0.1\mu\text{m}$ 程度以上のトラック幅が必要であることから、エッチングによるトラック幅の拡大は、ほぼすべてバルクエッチングによると考えても問題はない。

観察されるジルコンの結晶表面のトラックの口の形状がひし形であることから、雁沢(1985)が試みたようにバルクエッチング速度をお互いに直交する3つの方向の成分に分けて考える。

$V_{g a}$: 測定面に垂直な方向のバルクエッチング速度

$V_{g b}$: 測定面に平行でC軸に直交する方向のバルクエッチング速度

$V_{g c}$: 測定面に平行でC軸に平行な方向のバルクエッチング速度

このように定義すると $V_{g b}$ はC軸に平行なトラックのトラック幅の拡大速度の半分, $V_{g c}$ はC軸に直交するトラックのトラック幅の拡大速度の半分と考えることができる. $V_{g a}$ については直接に計測することができないが, ジルコンの結晶構造やトラックの傾斜に対する異方性がほとんどないことから $V_{g a}$ は $V_{g b}$ とほぼ等しいことが考えられる. 実験結果から,

$$V_{g b} = 0.0060 \mu\text{m/hr.}$$

$$V_{g c} = 0.0097 \mu\text{m/hr.}$$

であり, 本実験の計測範囲 (エッチング時間24時間から60時間) では一定の値を示す.

このようにバルクエッチング速度を3成分にベクトル化し, それぞれが鉱物内部で一定と考えれば, エッチングされたトラックは内部の先端点付近を除き, 鉱物表面にひし形の断面を持つ四角柱のようなモデルとして近似でき, 顕微鏡で観察されるトラックの幅は, この四角柱の表面への投影と考えることができる (第16図). このモデルから, 観察されるトラック幅の拡大速度 V_w は, C軸からの方位角 θ により変化し, 第16図に示したように $V_{g b}$ と $V_{g c}$ から考えられるひし形の一辺を延長する角度 α を

$$\alpha = \tan^{-1} (V_{g b} / V_{g c})$$

とすれば,

$0 \leq \theta \leq \alpha$ では

$$V_w = 2V_{g b} \cdot \cos \theta$$

$\alpha \leq \theta \leq 90$ では

$$V_w = 2V_{g c} \cdot \sin \theta$$

となる. C軸に平行なトラック ($\theta = 0^\circ$) では $V_w = 2V_{g b}$ となり, C軸に直交するトラック ($\theta = 90^\circ$) では $V_w = 2V_{g c}$ となる. C軸に対する角度が 0° から α までのトラック幅はC軸に平行なトラック幅と同じエッチングの速度に依存し, α から 90° までのトラック幅はC軸に直交なトラック幅と同じエッチングの速度に依存する. 実験結果から得られた $V_{g b}$ と $V_{g c}$ を上式に代入すると

$$\alpha = 32^\circ$$

という結果を得た. 第17図はこの値をモデルに代入して推定された方位角別のトラック幅とエッチング時間60時間で測定されたトラック幅の結果を比較したものである. モデルからの推定値と実験値はよく一致し, トラック幅の方位角による変化は上記の $V_{g b}$ と $V_{g c}$ が基本的に支配していると結論される.

この様なトラック幅の特性は、トラックの検出効率に大きく影響を与えると考えられる。前述したようにトラックを視覚的に観察する場合、トラックは $0.1\mu\text{m}$ 程度以上の幅が必要であることから、その幅を基本的に支配するバルクエッチング速度の方位による違いが方位角によるトラック検出効率の異方性の主要な原因であると結論される。また、方位角とトラック数の関係がここで示した α の値前後で特徴的に変化することもこの考えを支持する。

なお、ここで $V_g a$ を測定面に垂直方向のバルクエッチング速度と定義したが、これは結晶中でのバルクエッチング速度の垂直成分であり、いわゆる面の移動（低下）速度とは異なる。実際の面の移動速度はC軸に平行な面では、エッチング時間60時間で本測定における垂直方向の測定限界である $0.2\mu\text{m}$ 以下であった。これは鉍物の結晶の表面が結晶内部に比べてエッチングに対して強いという特性を示していると考えられる。

4-3. トラック長について

トラック長はエッチング24時間で出現した全トラックデータからみた場合、エッチング時間の増加にしたがい徐々に増加し、その増加の割合は2段階に変化する傾向を示す（第9図）。このトラック長の変化を頻度分布でみた場合、トラック長はエッチング時間の増加にともない山形の分布から台形分布に近づく。一般に、トラック長は外部面（ 2π 面）で計測を行った場合、理論的には真のトラック長（ $2R$ ）とその半分の長さ（ R ）までの一様分布を示すと考えられている（Gleadow and Lovering, 1977, Green and Durrani, 1978）ので、ヒストグラムでいえば R から $2R$ までの台形分布を示すと考えられる。実験結果はエッチング時間の増加にしたがい、この台形分布に近づいていく傾向を示す。

実験結果のトラック長の変化を方位角別にみた場合、エッチング時間24時間では方位角 40° 前後で変化し、方位角の小さいものが短く、方位角の大きいものは長い。逆に、トラック長の増加率は方位角の小さいものが大きく、方位角の大きいものは小さい。このためエッチング時間60時間ではトラック長は方位による差がなくなる傾向を示している。理論的にいえば潜在するトラックのトラック長は方位角に関して R から $2R$ まで一様に存在するはずであるので、これはトラック数の場合と同様に、トラック長に関するエッチングの異方的な特性が存在することを示す。さらに、その異方性の変化する角度もトラック数の場合とほぼ同じであり、トラック幅で議論したトラック幅の拡大の変化する角度ともほぼ一致する。

実験結果のトラック長の変化を傾斜角別にみた場合、傾斜角に依存せずほぼ一様で、その増加率は徐々に小さくなる傾向にある。傾斜角別の理論的なトラック

長は R から $2R$ まで一様に存在し、一定の長さを示すと考えられる。実験結果はこの理論的な分布とよく一致し、トラック長の傾斜角に対するエッチングの異方的な特性はないと結論される。

これらのエッチングによるトラック長の増加および方位角による異方的な特性を検討するためにトラックのエッチングモデルを考える。前述した Henke and Benton (1971) のエッチング基本モデルから、ジルコンの個々のトラックは、つぎの2つの段階で成長することが考えられる (第18図 (a))。

1. 潜在トラックの長さに達するまでは、トラックエッチング速度 V_t により長くなる。
2. その後、トラックはバルクエッチング速度 V_g により長くなる。

このモデルから考えられるトラック長の変化を第18図 (b) に示す。前述したように、実際の潜在トラック長は R から $2R$ まで存在することから、計測される平均トラック長 R_m は、 R から $2R$ までのトラック長の間値となり3段階に変化する。実験結果のトラックの平均長の変化は、トラック長の値が $5\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の範囲にあることやその増加率が緩やかであることから、このモデルの Step2 と Step3 に相当すると考えられる。

つぎに、このモデルに最も重要なデータであるトラックエッチング速度 V_t を求める方法を考える。一般にトラックのコーンアングル θ はトラックエッチング速度 V_t とバルクエッチング速度 V_g から

$$\sin \theta = V_g / V_t$$

で形成されると考えられる (Henke and Benton, 1971, 第15図)。したがって、トラックエッチング速度 V_t はエッチングされたトラックのコーンアングル θ とバルクエッチング速度 V_g から

$$V_t = V_g / \sin \theta$$

で求められる。ここでバルクエッチング速度は前述したように方位により異なるが、3成分にベクトル化して求めている。実験結果の C 軸に平行なトラックおよび C 軸に直交なトラックのコーンアングルとバルクエッチング速度 V_{g_b} と V_{g_c} の測定値からトラックエッチング速度 V_t を計算すると、

$$C \text{ 軸に平行なトラックの } V_t \text{ は } 0.55 \pm 0.18 \mu\text{m/hr.}$$

$$C \text{ 軸に直交なトラックの } V_t \text{ は } 0.54 \pm 0.19 \mu\text{m/hr.}$$

となる。両方位角の V_t がほぼ同じ値となることは V_t には異方性がないことを示す。

実際にエッチングされたトラックを観察する場合、観察に必要な最低限の幅が必要である。このことから、前述したモデルを基本として実際に観察されるトラック長の変化のモデルを考える。また、 C 軸に平行な方向と直交な方向とではバ

ルクエッチング速度が異なることから、この2方向についてトラック長の変化を検討する。前述したようにC軸に平行な方向のバルクエッチング速度を V_{gc} 、C軸に直交する方向のバルクエッチング速度を V_{gb} とし、潜在トラック長を L 、エッチング時間を t 、観察に必要な最低限のトラック幅を W_0 とする。測定面は低下しないと仮定する。トラックエッチング速度は異方性を示さず、一定の値 V_t をもつことから、個々のトラックのトラック長はつぎの2つの段階で変化すると考える。

1. トラック長が基本的にトラックエッチング速度 V_t による段階では、C軸に直交する方向で観察されるトラック長 l_b は、

$$l_b = V_t (t - W_0 / (2V_{gc})) \\ (t < L / V_t + W_0 / 2V_{gc})$$

となり、C軸に平行な方向で観察されるトラック長 l_c は、

$$l_c = V_t (t - W_0 / (2V_{gb})) \\ (t < L / V_t + W_0 / 2V_{gb})$$

となる。ここでこの2方向のトラック長 l_b と l_c を比較すると、 $V_{gb} < V_{gc}$ より、この段階では $l_b > l_c$ となり、C軸と直交するトラックのトラック長が長く観察される。このことは、この段階ではトラック幅の大きいトラックがより長く観察されることを示す。

2. トラック長が基本的にバルクエッチング速度 V_g による段階では、C軸と直交方向で観察されるトラック長 l_b は、

$$l_b = L + (t - L / V_t - W_0 / 2V_{gc}) V_{gb} \\ (t > L / V_t + W_0 / 2V_{gc})$$

となり、C軸と平行方向で観察されるトラック長 l_c は、

$$l_c = L + (t - L / V_t - W_0 / 2V_{gb}) V_{gc} \\ (t > L / V_t + W_0 / 2V_{gb})$$

となる。この2方向のトラック長を比較すると、 l_b の増加は基本的にバルクエッチング速度 V_{gb} に依存し、 l_c の増加は V_{gc} に依存することから、トラック長の増加は l_b よりも l_c の方が大きくなる。このため、あるエッチング時間以降では $l_b < l_c$ となり、トラック長はC軸と平行なトラックのトラック長が長くなる。

このように、観察されるトラック長の変化はバルクエッチング速度に依存し、C軸に平行なトラックと、直交なトラックでは観察されるトラック長の変化が異なる。このことは実験結果のトラック長の方位角に対する特性とほぼ一致する。

さらに、潜在トラック長 $2R$ を推定するために、上述の観察されるトラック長の伸長モデルに実験から得られた V_{gb} 、 V_{gc} および V_t を代入し、観察可能

な最低限のトラック幅 W_0 を本実験で計測された最も小さいトラック幅である $0.14 \mu\text{m}$ と仮定し、平均トラック長の増加過程を $2R$ を変化させながら数値計算した。その結果、潜在トラック長 $2R$ は $9.7 \mu\text{m}$ が実験結果と最もよく一致することがわかった。第19図 (a) にその場合のトラック長 R と $2R$ の変化を示す。第19図 (b) に平均トラック長 R_m の変化と本実験結果のトラック長を示した。

従来、ジルコンの自発トラックのトラック長は TINT (Lal *et al.*, 1969) などから求められ $11.4 \mu\text{m}$ (Krishnaswami *et al.*, 1974), $10.8 \pm 0.7 \mu\text{m}$ (White and Green, 1986) と報告されている。これらの値はエッチングされたトラックの長さを示しており、本結果の潜在トラック長 $9.7 \mu\text{m}$ に比べて長い。このことは、エッチングで得られたトラック長には上述のモデルで示したようなバルクエッチングの効果により潜在トラック長よりも長くなる効果があるためと考えられる。

以上のように、トラック長のエッチング時間による変化が説明された。また、トラック長の C 軸からの方位角による異方性は、基本的に方位によるバルクエッチング速度の違いが原因することがわかった。さらに、潜在トラック長の推定を行なった。

実際に熱史解析や熱履歴補正等に用いるトラック長を計測し議論する場合、これらのエッチングの特性を補正して用いるか、あるいはエッチングの特性に影響されない潜在トラック長を推定して用いる等の考慮が必要である。とくに、現在トラック長計測に一般的に用いられている内部トラックである TINT の場合は、これらのエッチング特性がトラックの両端に影響することから、データの補正を行なった後に議論しなければならない。

5. まとめと今後の問題

ジルコンの外部面におけるフィッシュン・トラックの段階エッチングの実験を行い、エッチング過程を検討した。計測には画像処理装置を用いて、3次元的なトラックのデータ（方位角・傾斜角・トラック幅・トラック長）を各段階毎に計測した。これらから得られたエッチングの特徴をまとめるとつぎのようになる。

(1) トラック数

エッチング時間の増加にともない徐々に増加する。C軸からの方位角に対して異方的な特性を示す（とくに 40° を境にその特性が変化する）。傾斜角に対しては異方的な特性を示さない。

(2) トラック幅

エッチング時間の増加にともない、一定の割合で増加する。C軸からの方位角に対して異方的な特性を示す（とくに 40° を境にその特性が変化する）。傾斜角に対しては異方的な特性を示さない。

(3) トラック長

トラック長は今回の実験範囲においては2段階に伸長した。C軸からの方位角に対して、異方的な特性を示す（とくに 40° を境にその特性が変化する）。傾斜角に対しては異方的な特性を示さない。

さらに、これらの結果からつぎのことがわかった。

(4) トラック数の増加はおもにC軸からの方位角の小さい部分の増加に起因する。

(5) 3方向にベクトル化したバルクエッチング速度を求めた。C軸に平行な方向のバルクエッチング速度はC軸に直交する方向に比べてはやいことがわかった。

(6) このバルクエッチング速度の方位による違いがトラック幅の方位による異方性の原因となる。

(7) バルクエッチング速度の違いがトラック数の方位による異方性の原因となる。

(8) トラックエッチング速度はC軸と平行な方向と直交な方向では同じ値である。

(9) トラック長の方位による異方性はバルクエッチング速度の方位による違いが原因である。

(10) トラック長の時間変化とトラックエッチング速度、およびバルクエッチング速度から潜在トラック長を推定することができた。

以上、エッチング過程の実験観察からわかったエッチングの各種の特性は主としてバルクエッチング速度の方位による違いで説明することができた。このことは、年代測定やトラック長を用いた熱史解析等の信頼性や精度の向上に重要な指針を与えるものと考えられる。

なお、ここで示したエッチングの諸特性はSuzuki (1984) や雁沢 (1985) が示

したトラックの密度や年代，エッチングに用いるエッチャントの諸特性，林（1989）などに示される結晶学的な特性などにより異なると考えられる。今後、これらの点について詳細な実験および検討を行わなければならない。

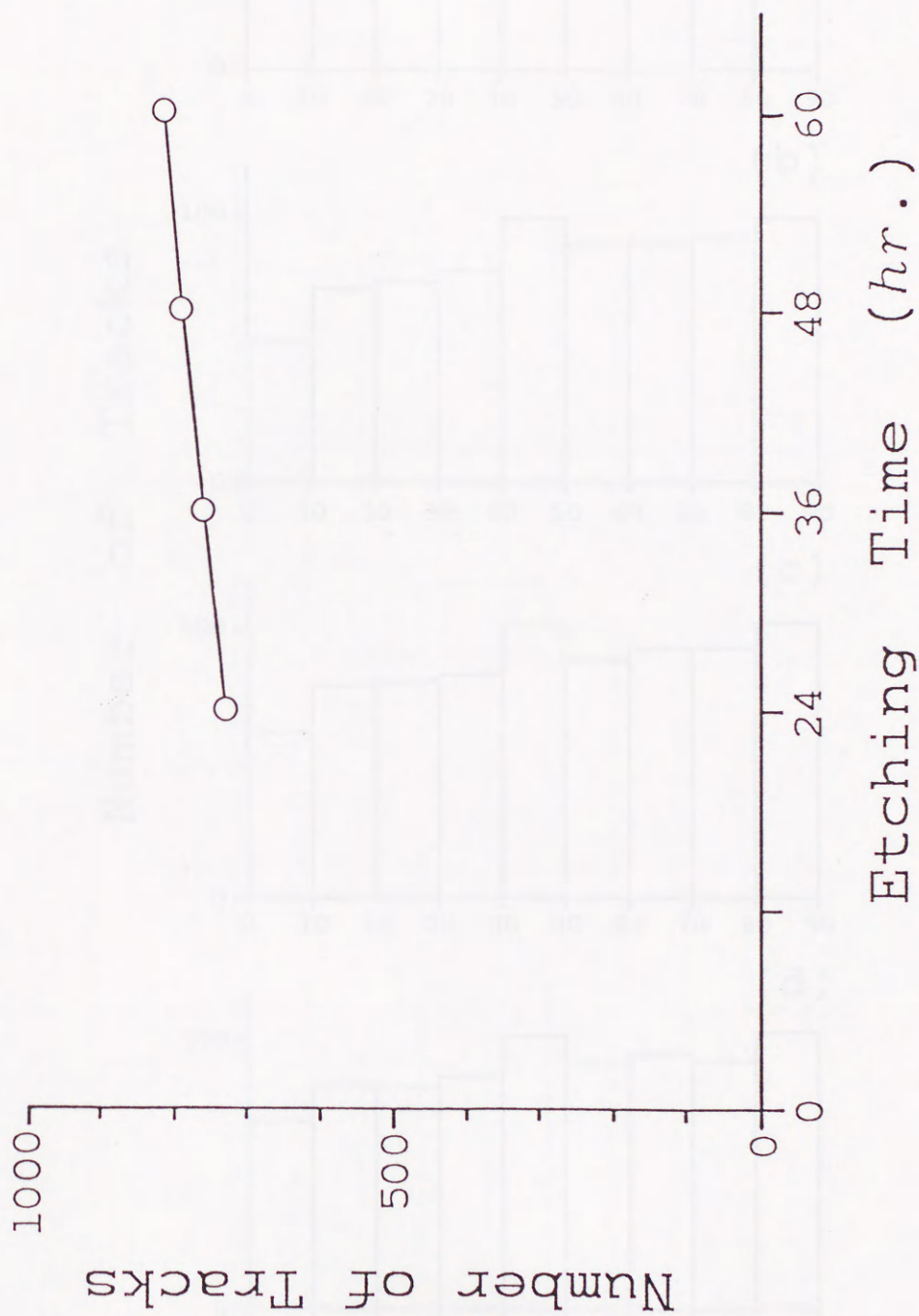
謝 辞 本論文を作成するにあたり，大阪市立大学弘原海清教授，塩野清治助教授には，つねに御指導と御援助を頂いた。また，北海道教育大学雁沢好博氏，武蔵工業大学本多照幸氏および九州大学渡辺公一郎氏には有益な御助言を頂いた。また，フィッシュン・トラック研究会の方々には有意義な御討論をして頂いた。以上の方々に，厚く感謝致します。

引用文献

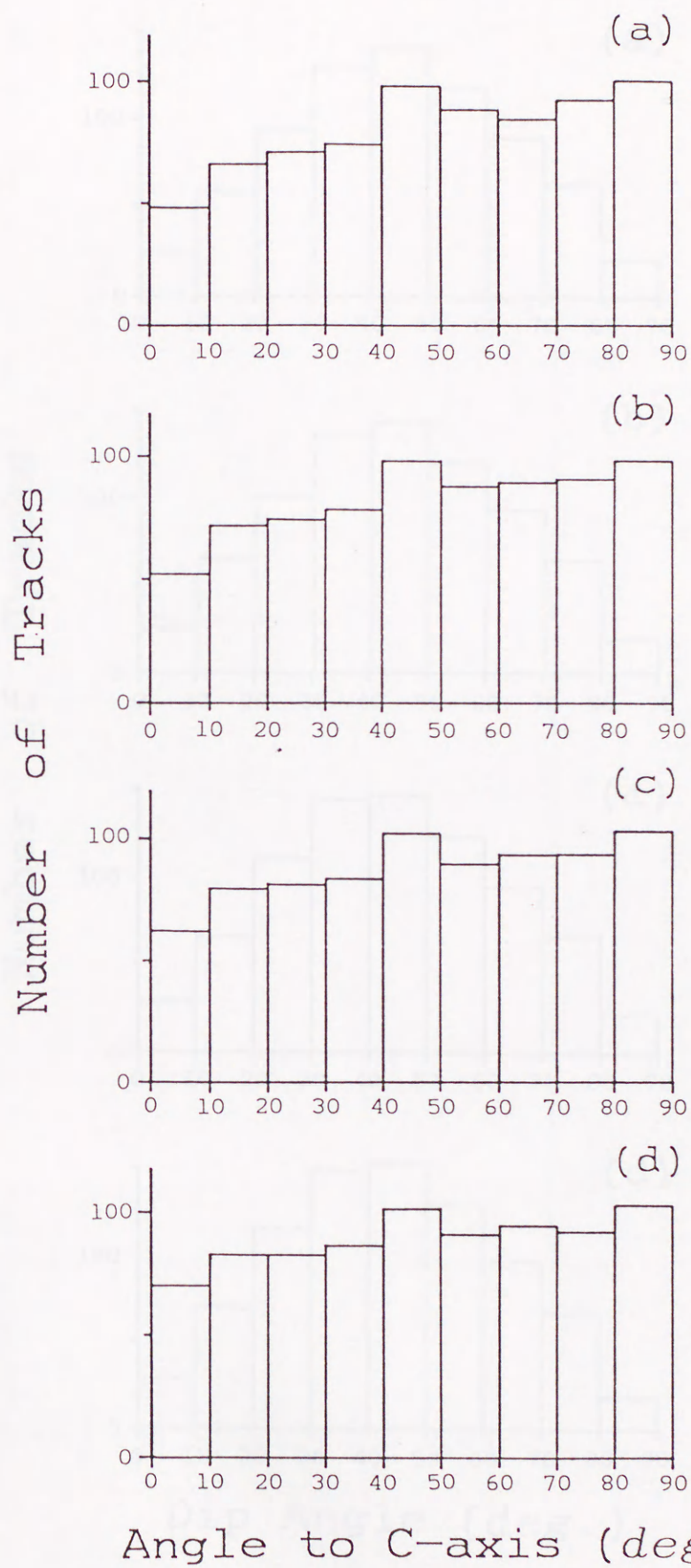
- 馬場 敬 (1980) 鉍物におけるフィッション・トラックのエッチングの問題点及びその解決法 - 特に Zircon とその 弗酸・硫酸混合エッチング溶液について - . 堆積学研究会報, 16, 17-28.
- Fleisher, R. L., Price, P. B. and Walker, R. M. (1975) *Nuclear Tracks in Solids: Principles and Applications*. 605p. Univ. of California Press, Berkeley.
- 雁沢好博 (1982) フィッション・トラック法によるグリーン・タフ変動の年代区分, その 1 - 佐渡地域 -. 地質雑, 88, 943-956.
- 雁沢好博 (1983) フィッション・トラック法によるグリーン・タフ変動の年代区分, その 2 - 富山県太美山地域 -. 地質雑, 89, 217-286.
- 雁沢好博 (1985) フィッション・トラック年代測定におけるエッチングの異方的効果について. 地球科学, 39, 195-209.
- Gleadow, A. J. W. (1981) Fission track dating methods: What are the real alternatives? *Nucl. Tracks*, 5, 3-14.
- Gleadow, A. J. W., Hurford, A. J. and Quaite, R. D. (1976) Fission track dating of zircon: improved techniques. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 33, 273-276.
- Gleadow, A. J. W. and Lovering, J.F. (1977) Geometry factor for external detectors in fission track dating. *Nucl. Track Detection*, 2, 99-106.
- Green, P. F. and Durrani, S. A. (1978) A quantitative assesment of geometry factors for use in fission track studies. *Nucl. Track Detection*, 2, 207-213.
- 林 正雄 (1989) ジルコン結晶形の定量記載. 岩鉍, 84, 152-158.
- Henke, R. P. and Benton, E. V. (1971) On geometry of tracks in dielectric nuclear track detectors. *Nuclear Instruments and Methods*, 97, 483-489.
- Hurford, A. J. and Green, P. F. (1982) A user's guide to fission track dating calibration. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 59, 343-353.
- Hurford, A. J. and Green, P. F. (1983) The zeta age calibration of fission-track dating. *Isotope Geoscience*, 1, 285-317.
- Khan, H. A. and Durrani, S. A. (1972) Prolonged etching factor in solid state track detection and its applications. *Radiation Effects*, 13, 257-266.
- Krishnaswami, S., Lal, D., Prabhu, N. and Macdougall, D. (1974) Characteristics of fission tracks in zircon: applications to geochronology and cosmology. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 22, 51-59.
- Lal, D., Rajan, R. S. and Tamhane, A. S. (1969) Chemical composition of nuclei of $Z > 22$ in cosmic rays using meteoritic minerals as detectors. *Nature*, 221,

33-37.

- 升本眞二・弘原海清 (1990a) 画像処理を用いたフィッション・トラックの3次元計測. 地球科学, 44, 127-136.
- 升本眞二・弘原海清 (1990b) フィッション・トラック画像計測システム. 情報地質, 1, 93-102.
- Suzuki, M. (1983) Fission track dating current argument on dating younger zircon crystals. *Hoshasen (Ionization Radiation)*, 10, 68-75.
- Suzuki, M. (1984) Discussion on terminology anisotropy, and inter-procedural cross-checks of fission track age of zircon. *Jour. Geol. Soc. Japan*, 90, 551-563.
- 鈴木達郎 (1980) 男鹿半島第三紀火山岩類に関する fission track 年代, 地質雑, 65, 441-453.
- Wadatsumi, K. and Masumoto, S. (1984) A potential application of computerized image-processing to fission-track dating by re-etch method (Abstract). *Nucl. Tracks*, 10, 436.
- Wadatsumi, K., Masumoto, S. and Suzuki, K. (1988) Computerized image-processing system for fission-track dating; system configuration and functions. *Jour. Geosci. Osaka City Univ.*, 31, 19-46.
- White, S. H. and Green, P. F. (1986) Tectonic development of the Alpine fault zone, New Zealand: A fission-track study. *Geology*, 14, 124-127.
- 山崎正男・宮嶋吉雄 (1970) 富山県南西部に分布する月長石流紋岩の噴出時代について. 岩鉱, 63, 22-27.

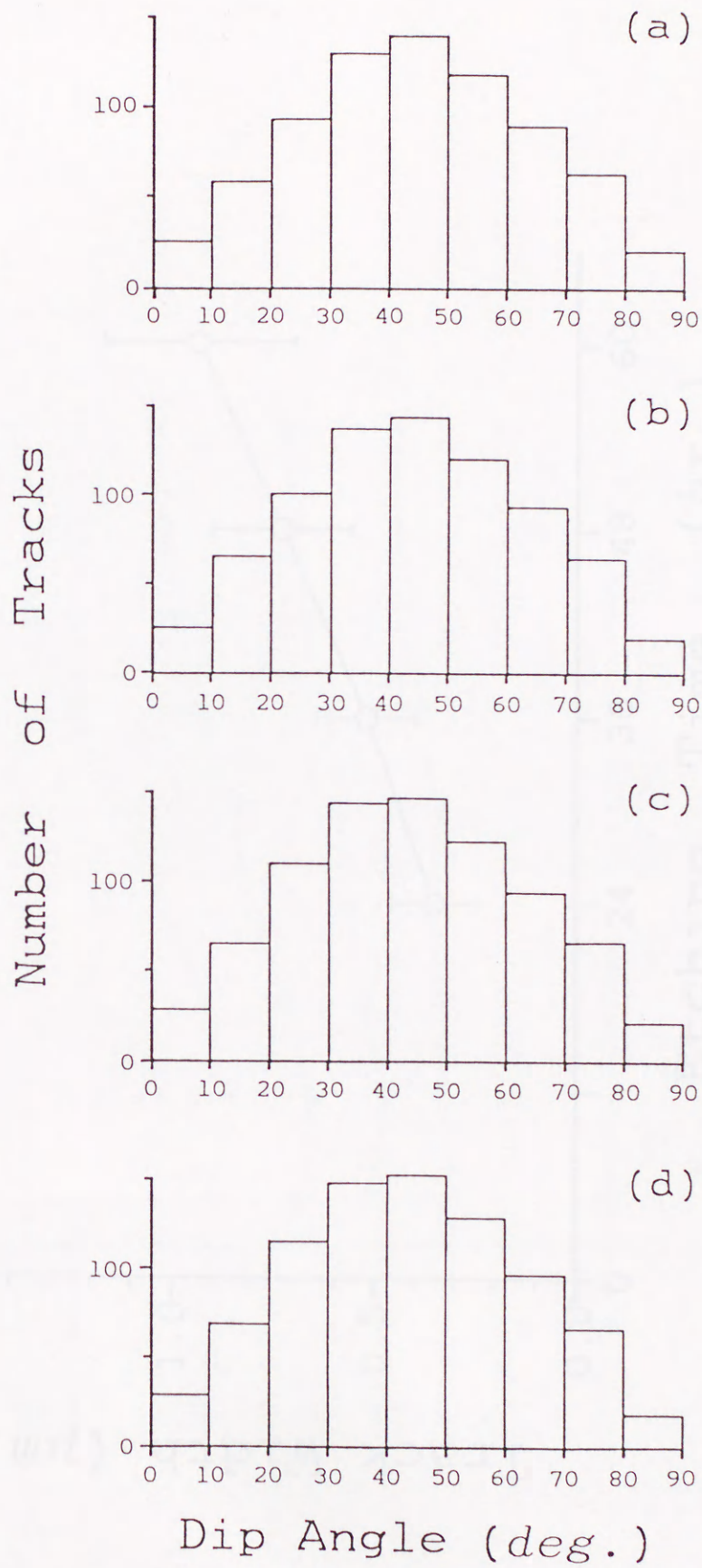


第1図 エッチング時間とトラック数の変化(ジルコン外部面の自発トラック).



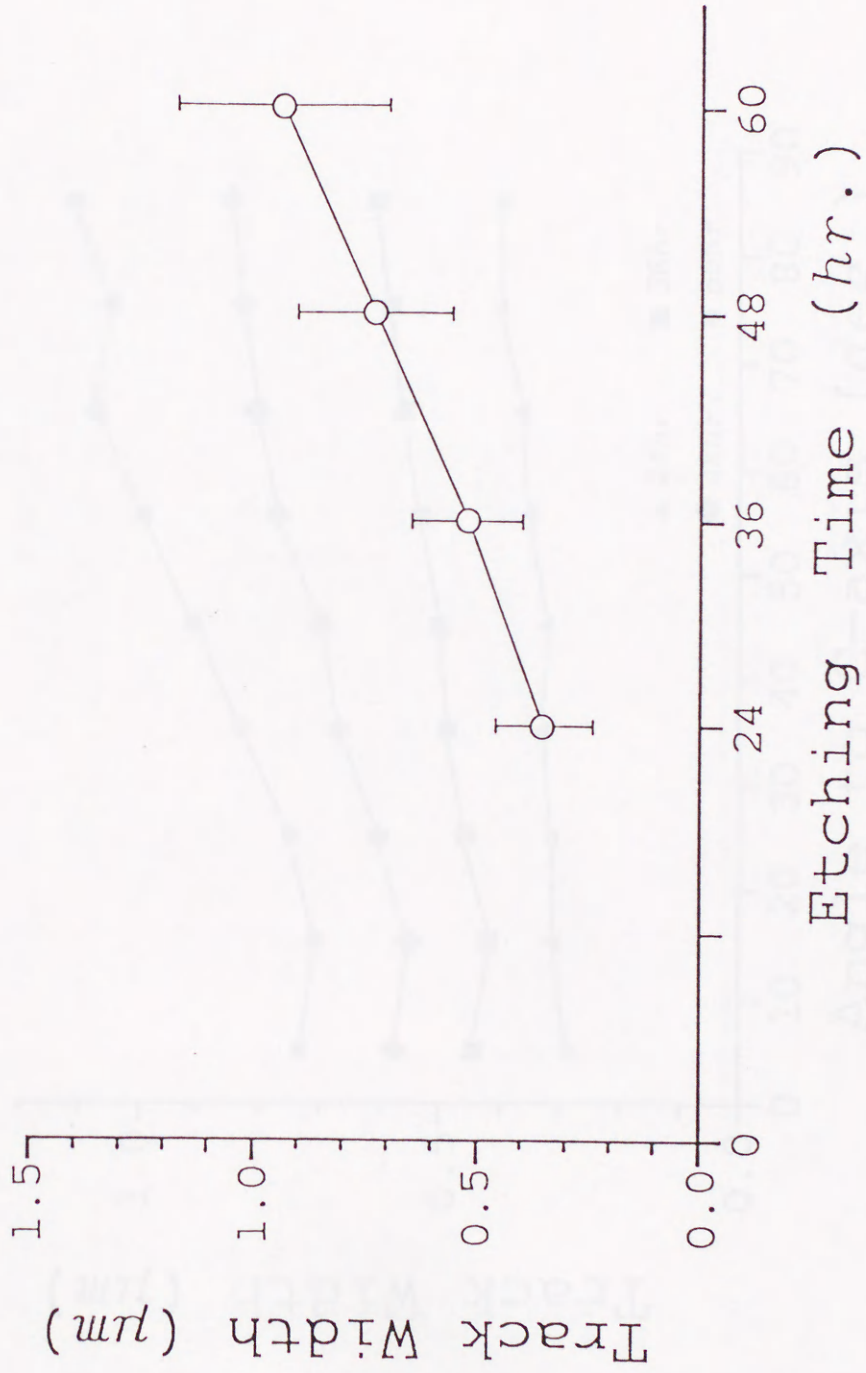
第2図 ジルコンのC軸からの方位角とトラック数の頻度.

(a) 24時間, (b) 36時間, (c) 48時間, および (d) 60時間エッチング.

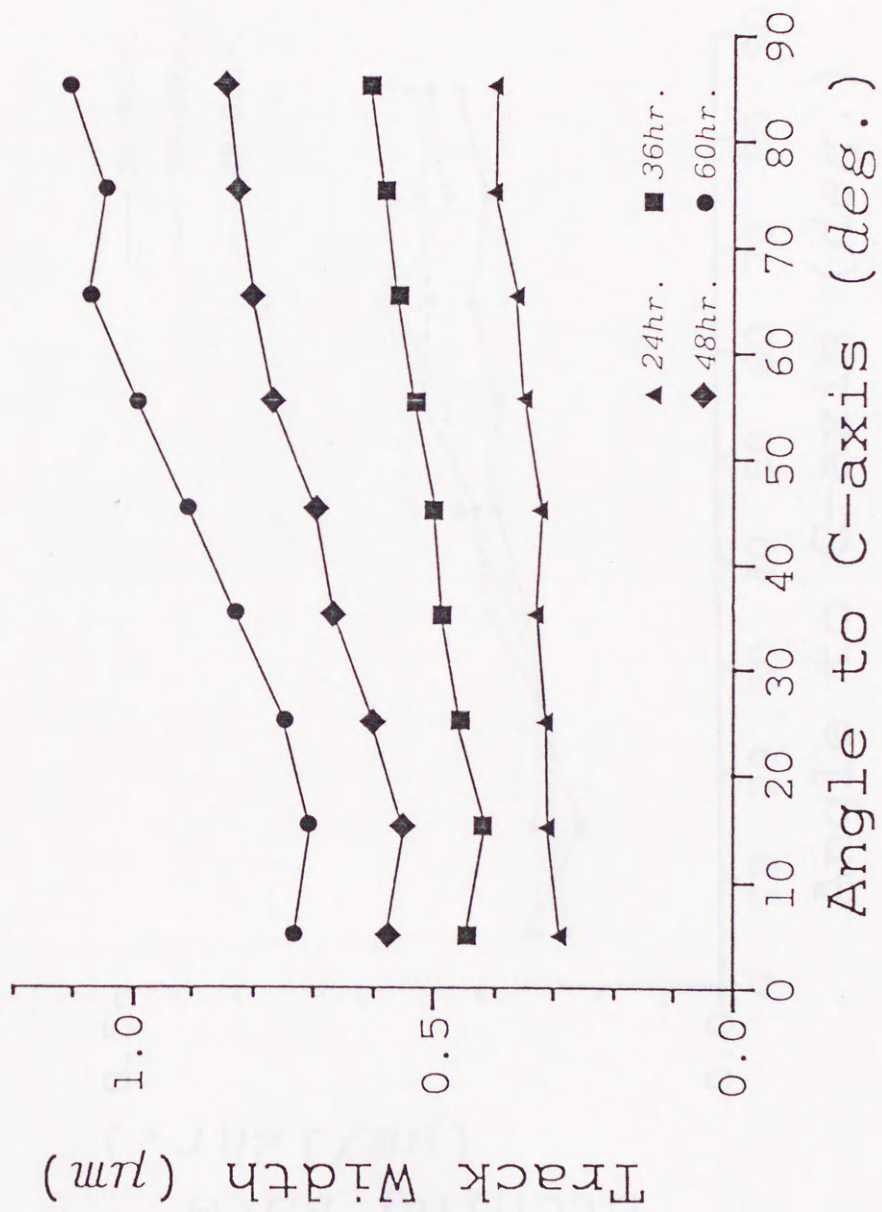


第3図 ジルコンの結晶表面からの傾斜角とトラック数の頻度.

(a) 24時間, (b) 36時間, (c) 48時間, および (d) 60時間エッチング.

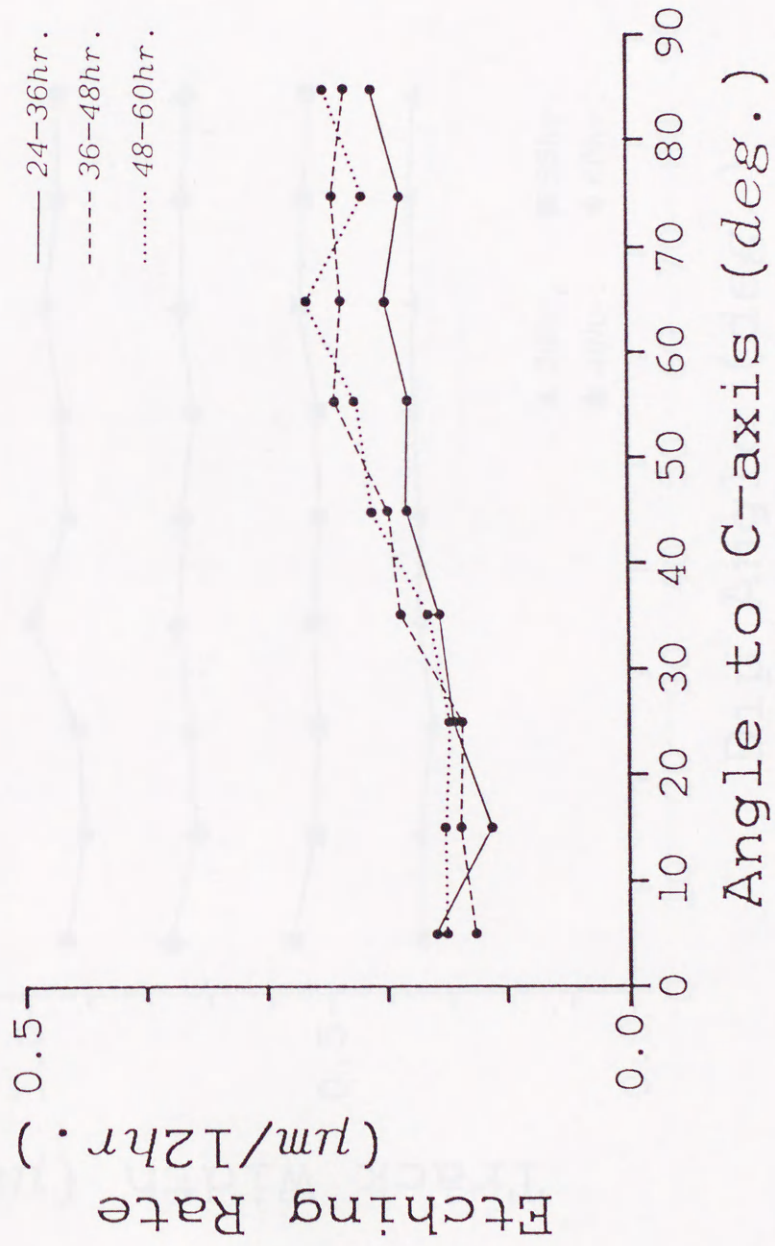


第4図 エッチング時間とトラック幅の変化 (エラーバーは $\pm 1\sigma$) .

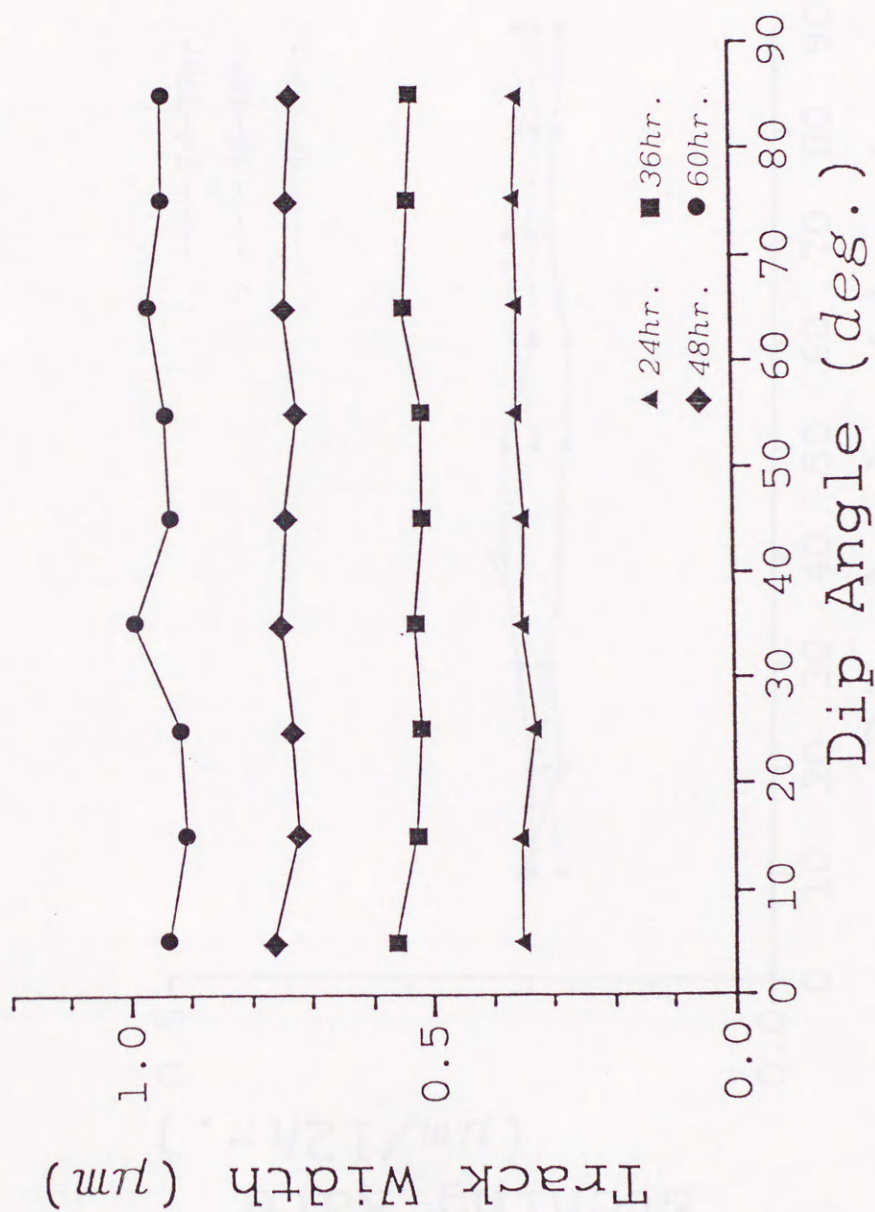


第5図 ジルコンのC軸からの方位角とトラック幅.

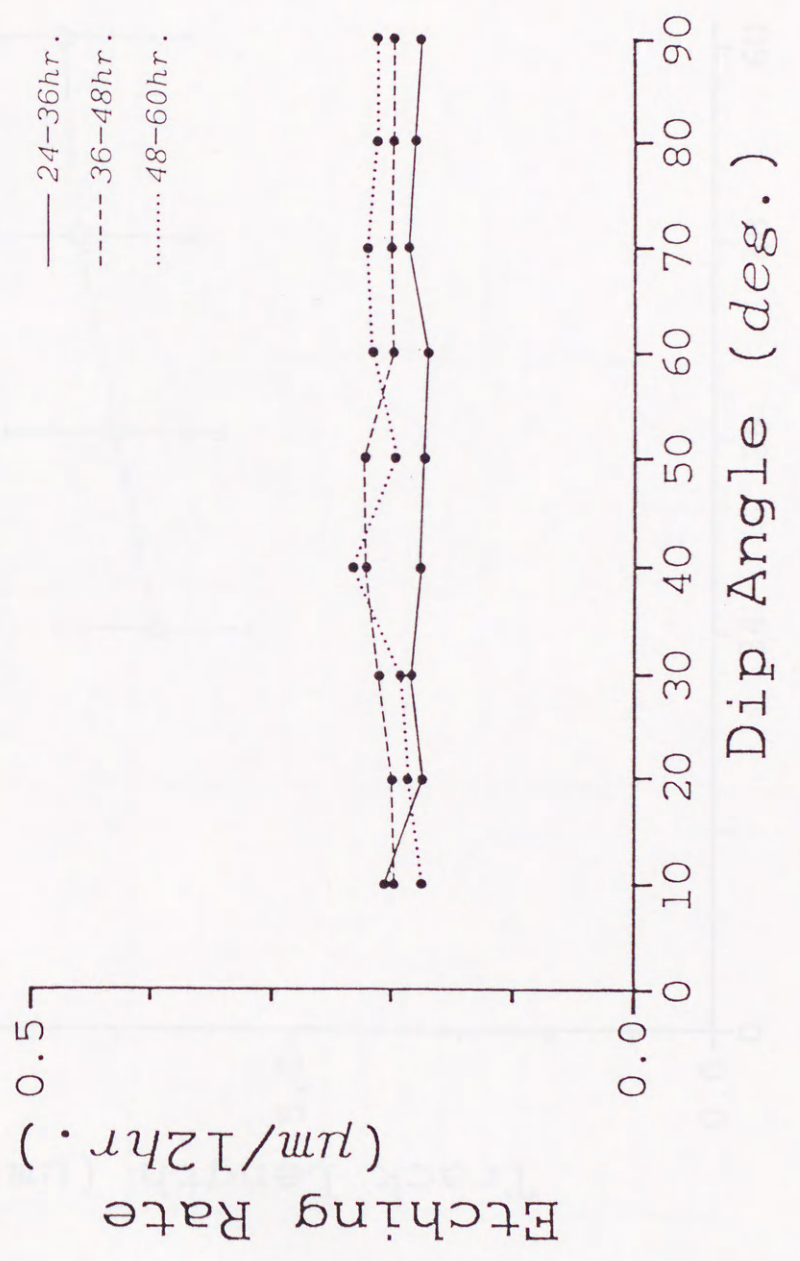
▲ 24時間, ■ 36時間, ◆ 48時間, ● 60時間エッチング.



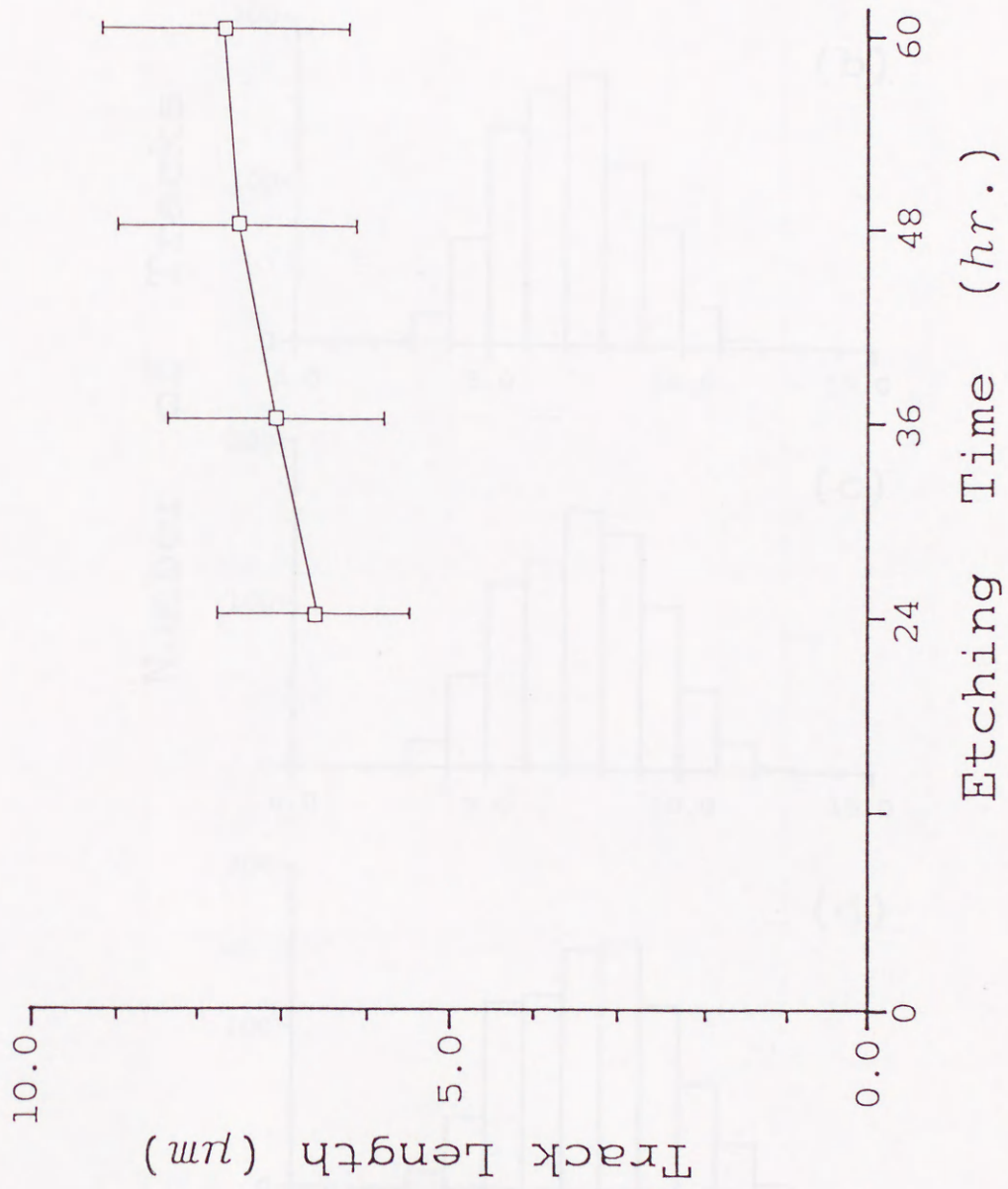
第6図 ジルコシンのC軸からの方位角とトラック幅の増加量。
 実線は24~36時間、破線は36~48時間、および点線は48~60時間。



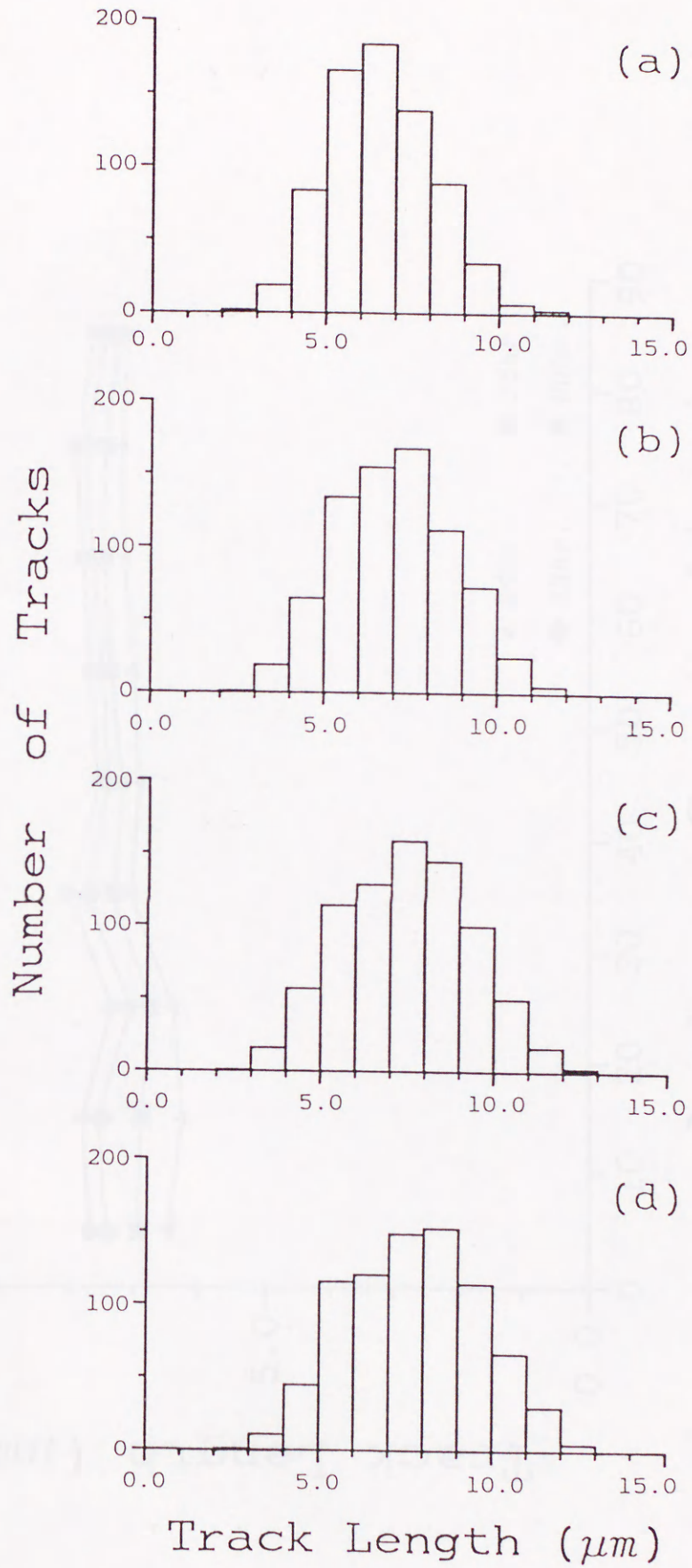
第7図 ジルコンの結晶表面からの傾斜角とトラック幅。
 ▲ 24時間, ■ 36時間, ◆ 48時間, および ● 60時間エッチング。



第8図 ジルコンの結晶表面からの傾斜角とトラック幅の増加量.
実線は24~36時間, 破線は36~48時間, および点線は48~60時間.

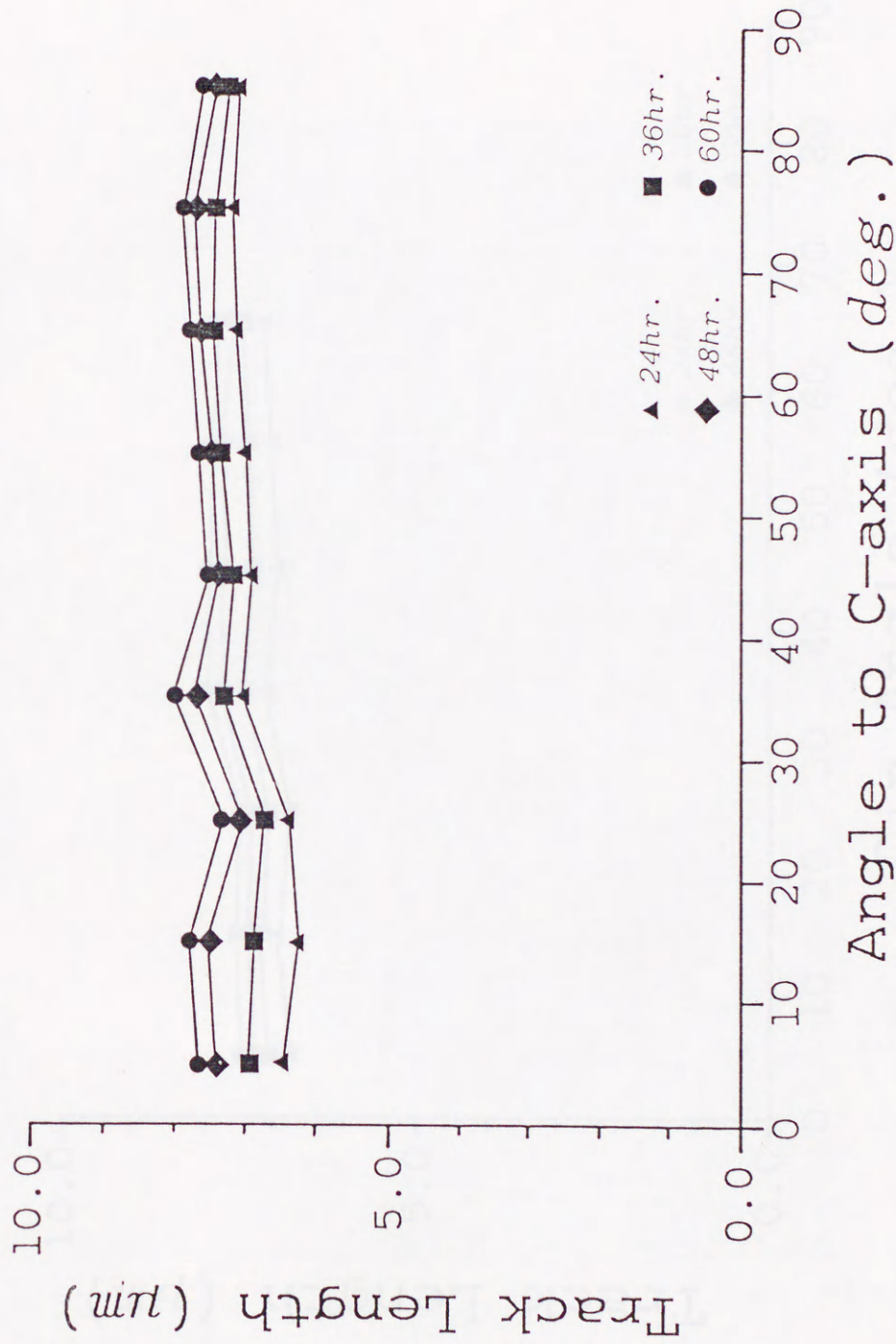


第9図 エッチング時間とトラック長の変化 (エラーバーは $\pm 1\sigma$) .



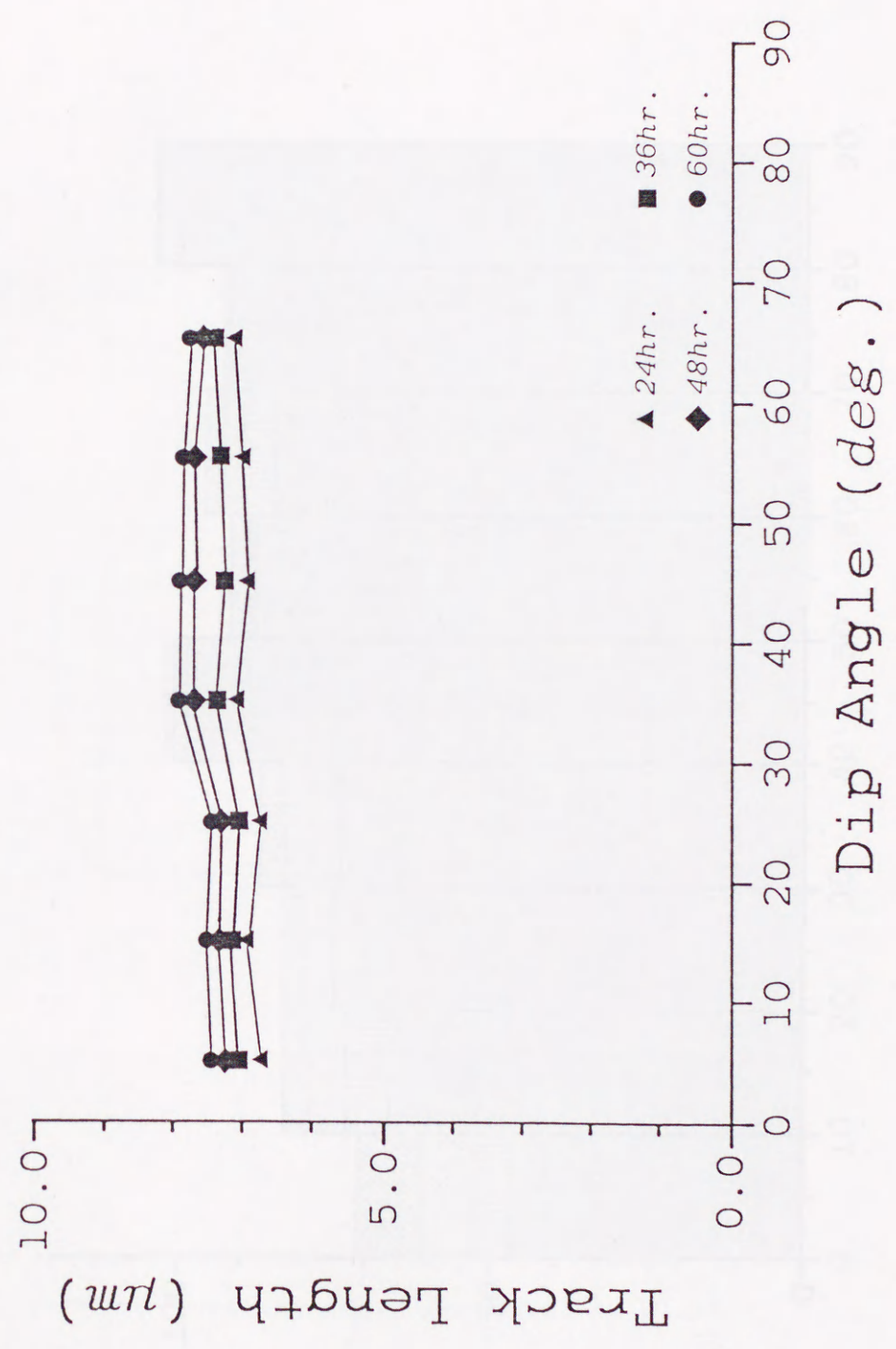
第10図 エッチング時間ごとのトラック長の頻度.

(a) 24時間, (b) 36時間, (c) 48時間, および (d) 60時間エッチング.

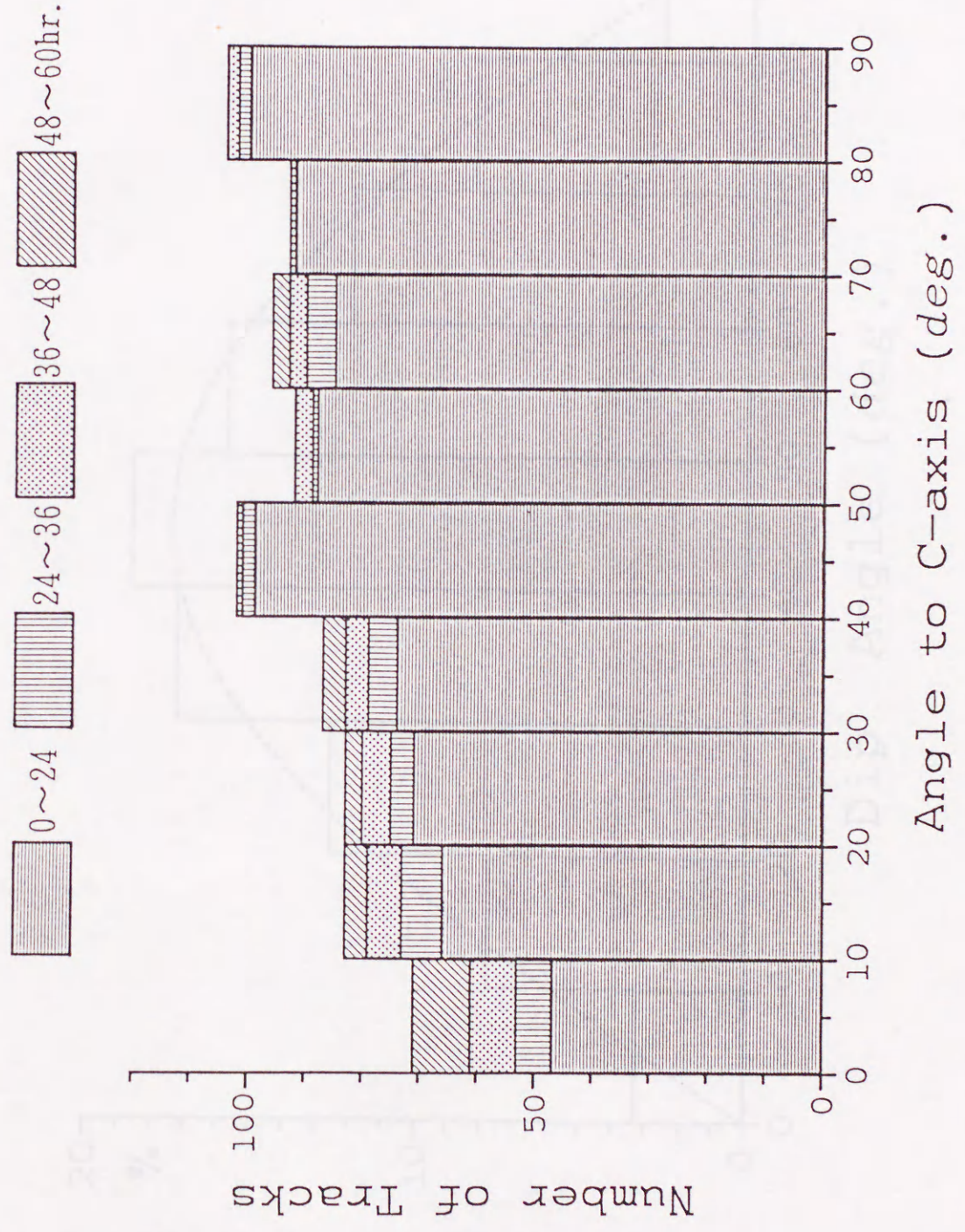


第11図 ジルコムのC軸からの方位角とトラック長.

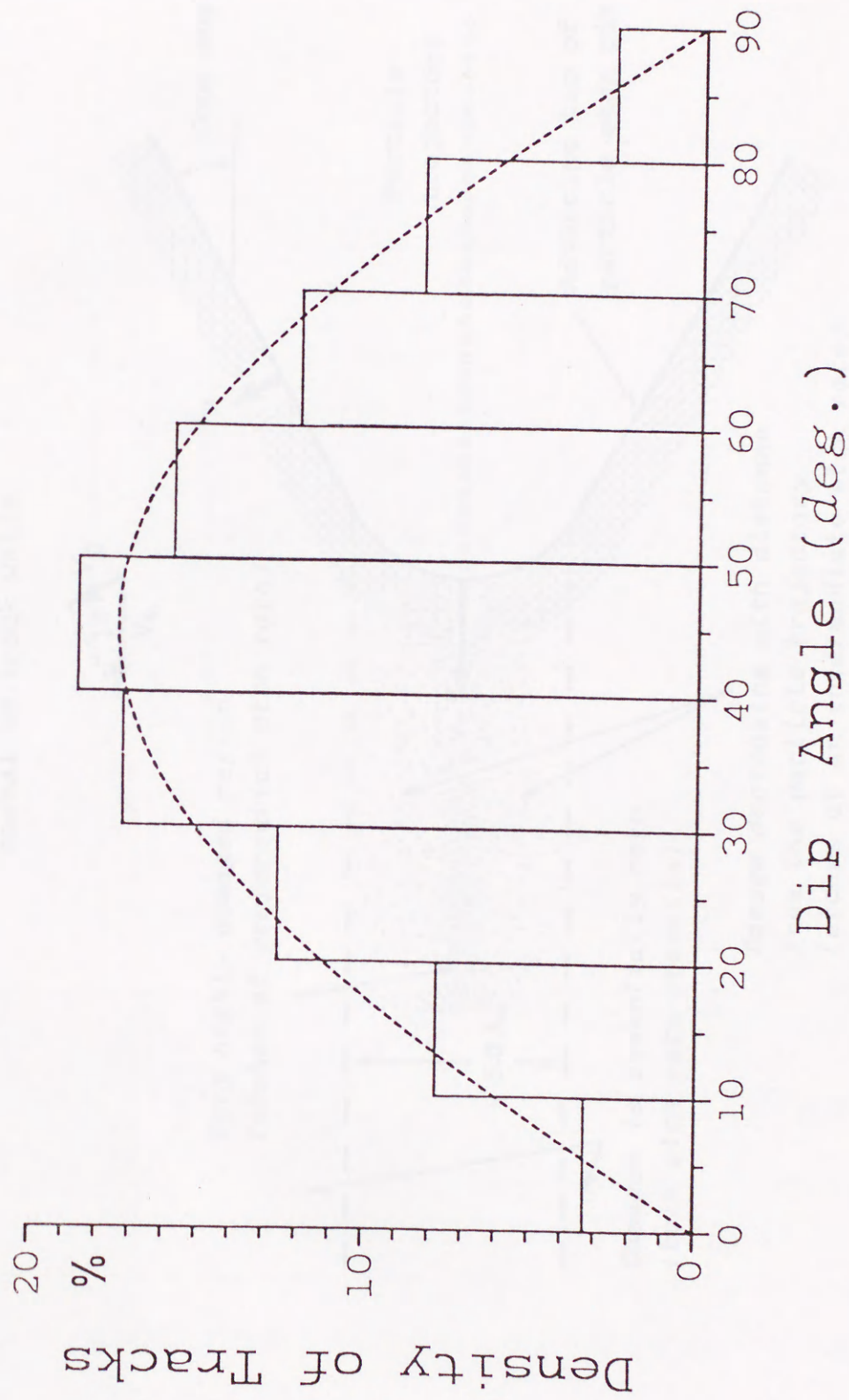
▲ 24時間, ■ 36時間, ◆ 48時間, ● 60時間エッチング.



第12図 ジルコンの結晶表面からの傾斜角とトラック長。
▲ 24時間, ■ 36時間, ◆ 48時間, ● 60時間エッチング。

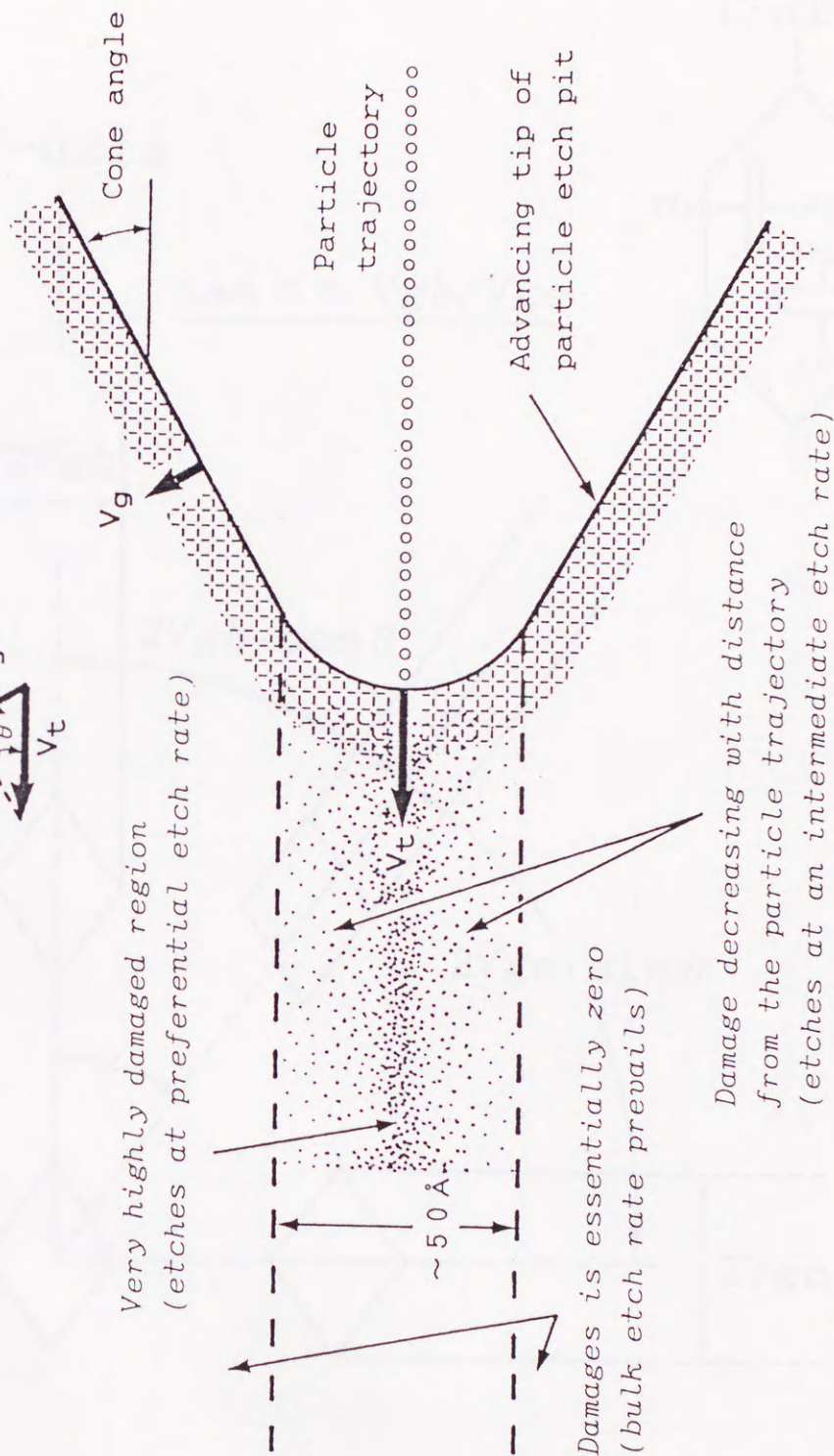


第13図 ジルコンのC軸からの方位角とトラック数の増加.

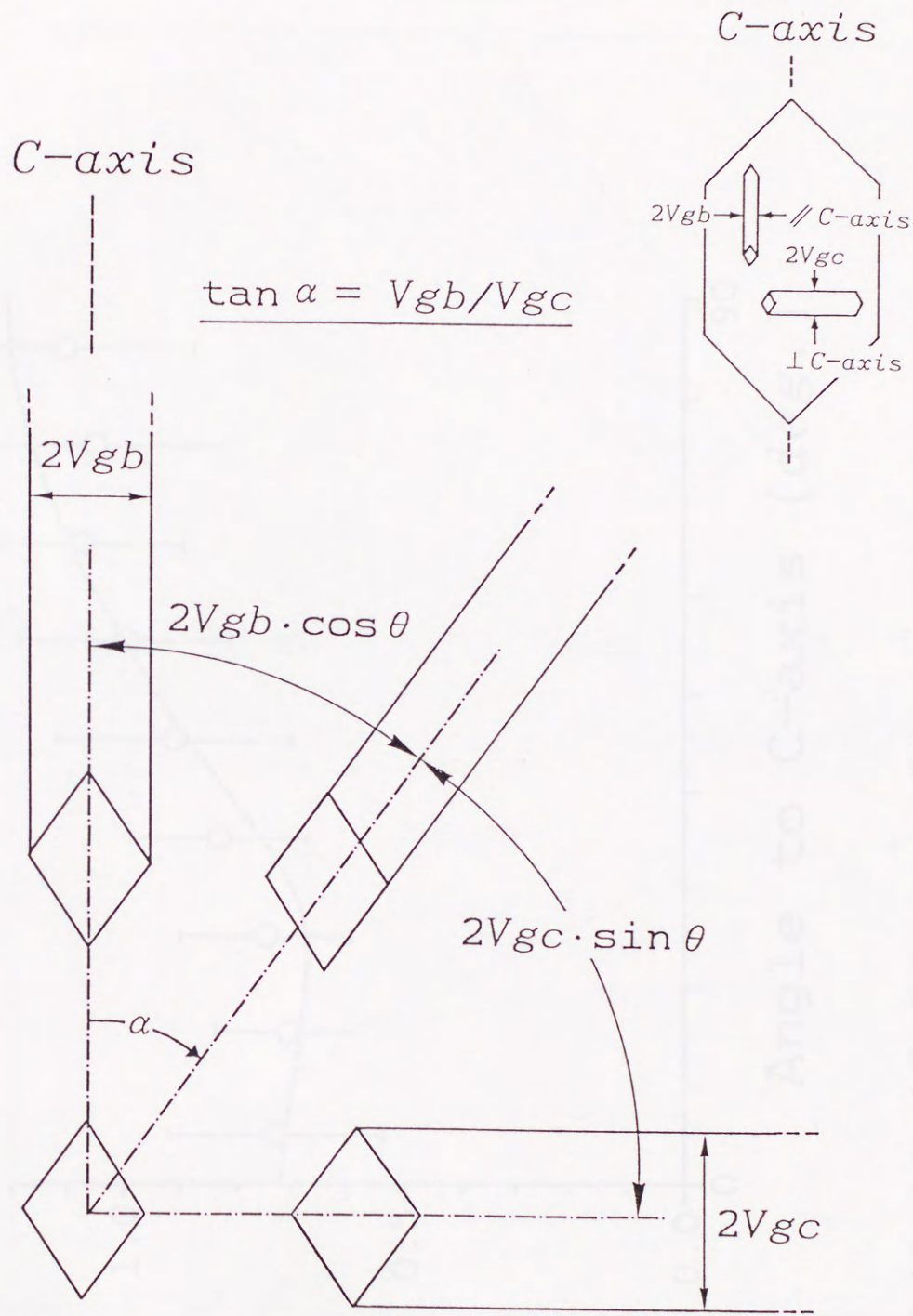


第14図 ジルコンの結晶表面からの傾斜角とトラック数の頻度 (エッチング24時間).
破線は理論値を示す.

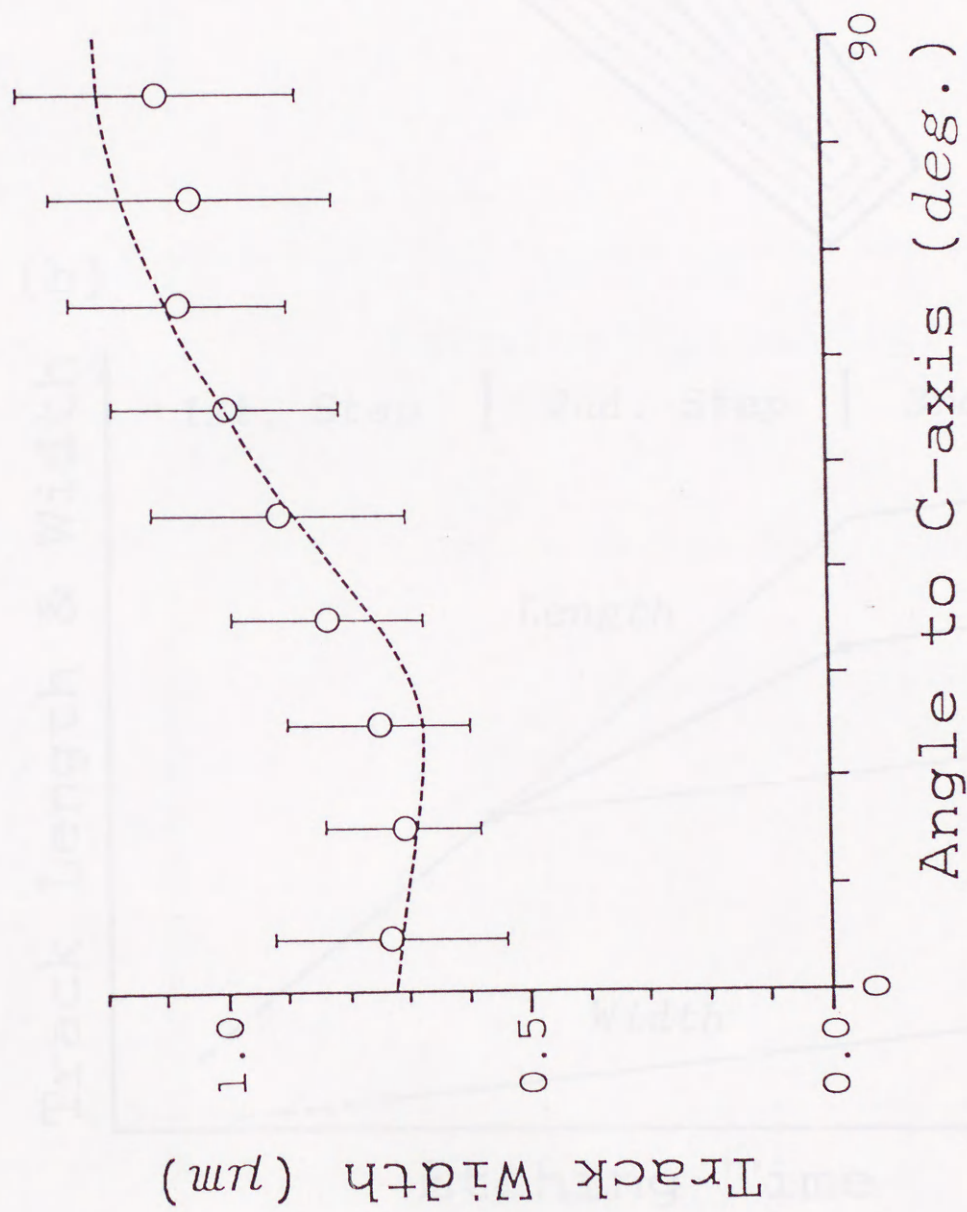
Projection of V_t in direction normal to track walls



第15図 ファイッション・トラックのエッチングの基本モデル (Henke and Benton, 1971).

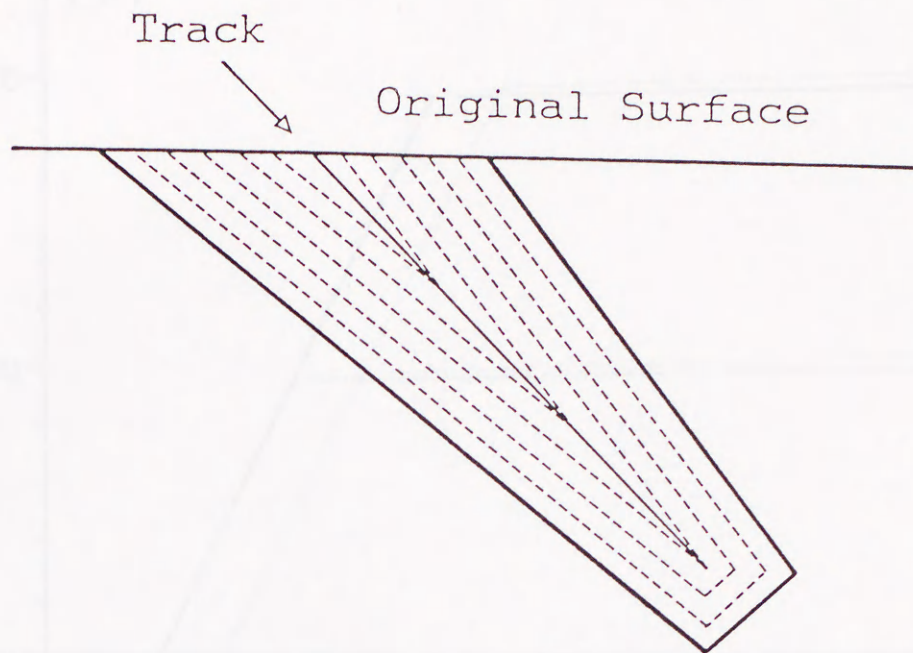


第16図 C軸からの方位角とトラック幅の拡大モデルの模式図.

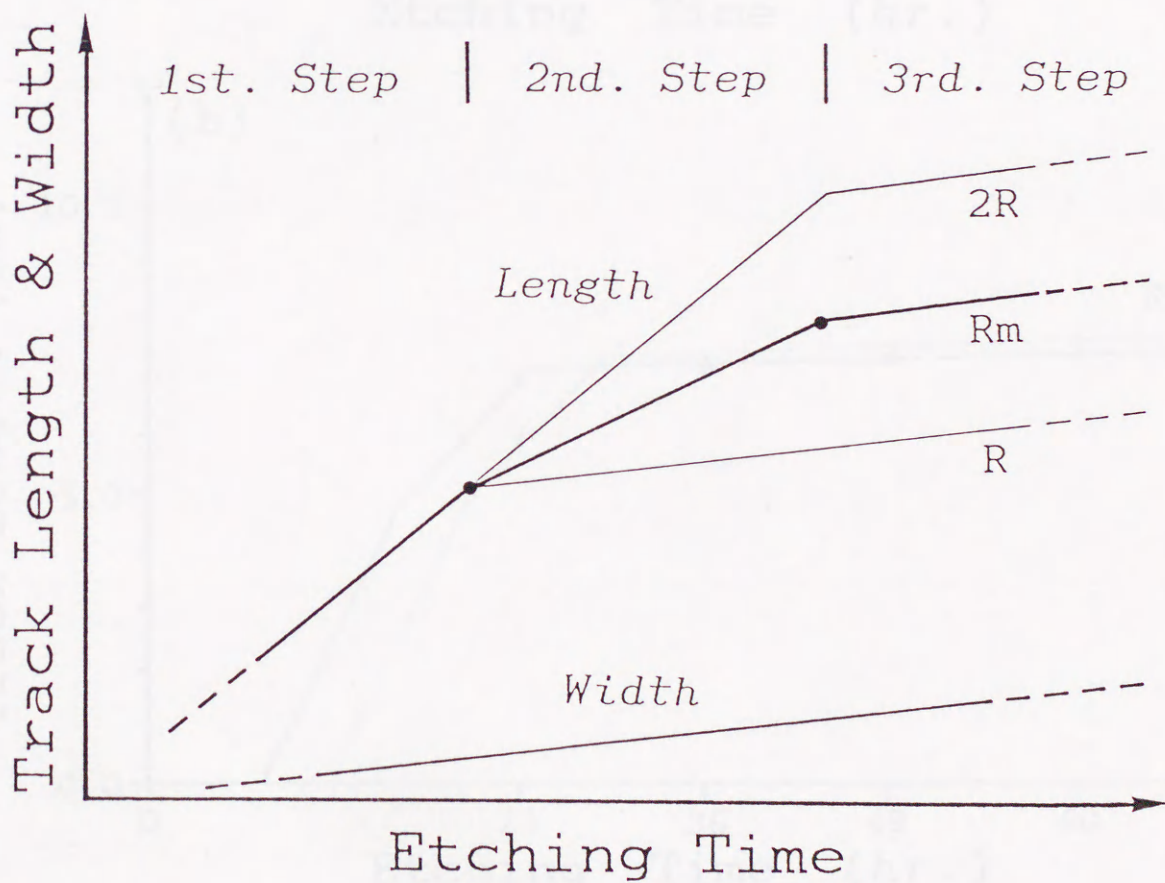


第17図 トラック幅の拡大モデルから推定される方位角別のトラック幅と測定値。
 ○はエッチング60時間でのトラック幅の測定値(エラーバーは $\pm 1\sigma$)。
 破線は推定値。

(a)

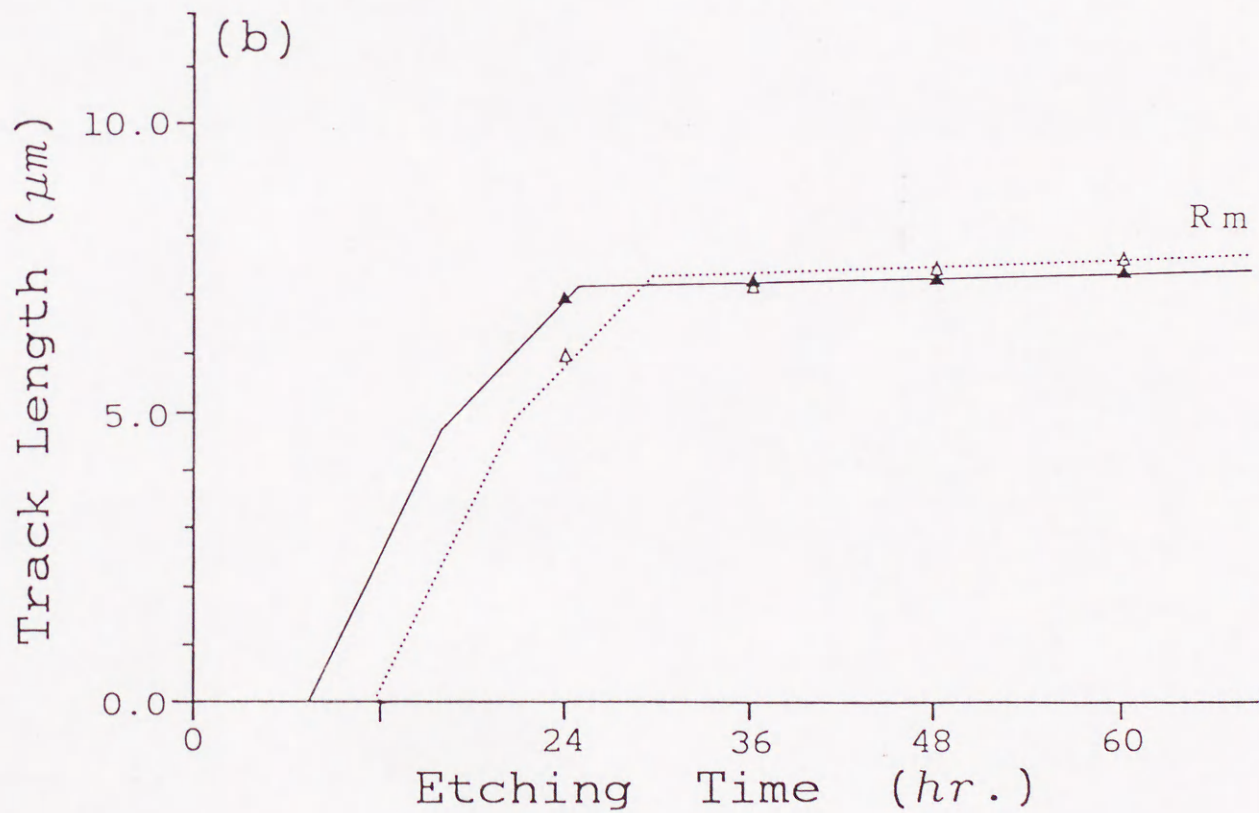
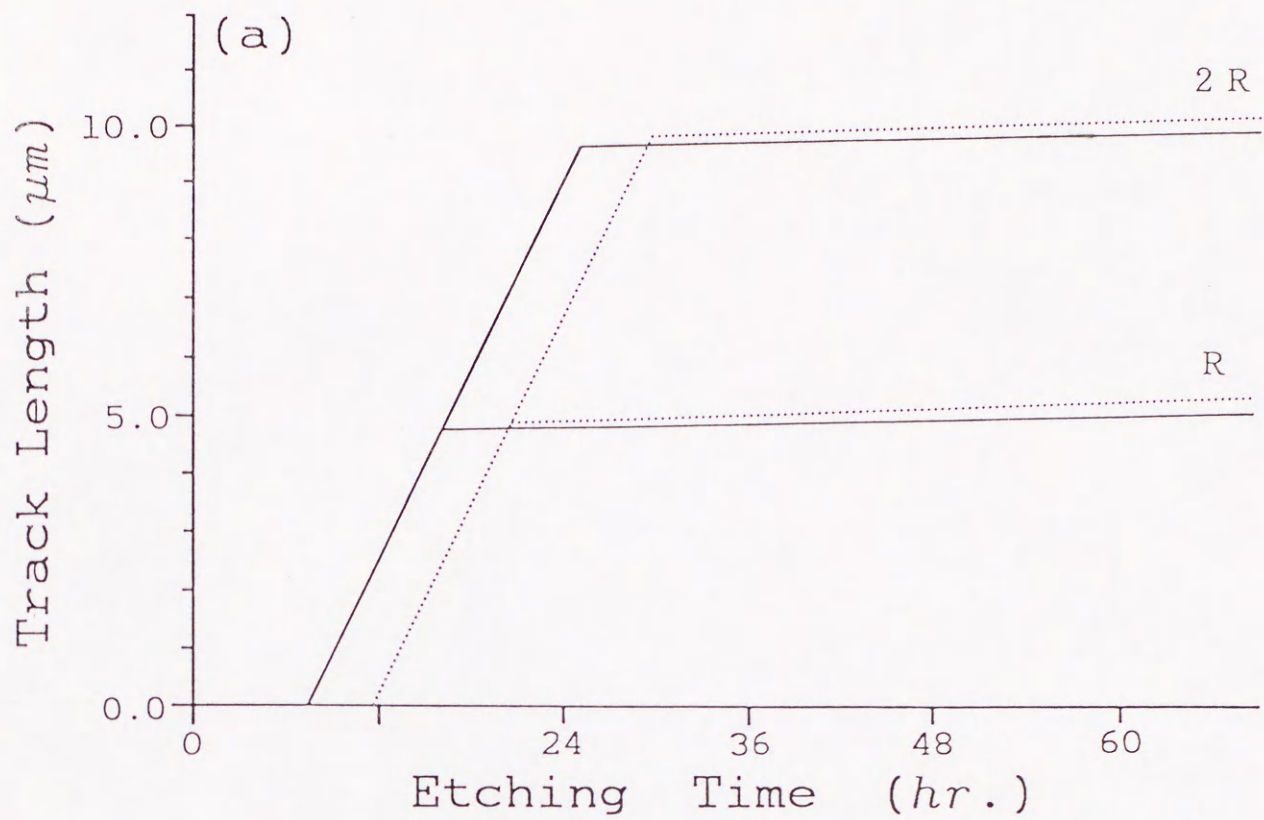


(b)



第18図 エッチングによるトラックの成長モデル.

(a)トラックの成長概念図, (b)トラック長とトラック幅の変化. 平均トラック長 R_m は3段階に変化する.



第19図 観察されるトラック長の変化.

実線はC軸と直交するトラックのトラック長, 点線はC軸と平行なトラックのトラック長. (a)トラック長がRと2Rの場合の変化. (b)平均トラック長 R_m の変化と測定値. \blacktriangle はC軸と直交するトラックのトラック長, \triangle C軸と平行なトラックのトラック長.