

走査型電子顕微鏡による Cu-Ni 表面の トリチウムの分布の観察

高 安 紀・中 野 美 樹・竹 内 豊 三 郎

富山市五福3190

富山大学理学部

Autoradiographical Detection of Tritium in Cu-Ni Alloy by Scanning Electron Microscopy

Osamu Takayasu, Yoshiki Nakano, and Toyosaburo Takeuchi

Faculty of Science, Toyama University, Gofuku 3190, Toyama 930, Japan

(Received February 24, 1982)

The autoradiograph of tritium dispersed in Cu-Ni alloy sheet by ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ reaction was obtained by a scanning electron microscope. Prior to the irradiation of neutrons ${}^6\text{Li}$ was deposited on the sheet by evaporation. The liquid emulsion, Fuji-ER, was used in this study. The distribution of tritium was detected by the dispersion of silver grains remaining in the emulsion after the development was carried out.

It was shown that the silver grains accumulated preferentially along grain boundaries. The width of the lines of silver grains is very small (less than 1/10) in comparison with that obtained by the stripping method.

結 言

金属に吸着したトリチウム(T)の、ストリッピングタイプのオートラジオグラフでは、粒界の幅が $10\mu\text{m}$ 以上のもので観測された¹⁾²⁾³⁾しかしながら、金属の粒界の幅は大きく見積っても $10^{-3}\mu\text{m}$ にすぎないから、⁴⁾このオートラジオグラフにみられる粒界の大きな幅は乳剤膜の解像力に原因するものと考えられる。一般にストリッピングタイプのオートラジオグラフ乳剤膜の厚さは $15\mu\text{m}$ 以上もあるので、解像力を改善しようとするれば、膜厚を薄くする必要がある。

このような試みの一つとして試料に直接液体乳剤を塗布する方法が考えられる。このよ

うな目的のために電子顕微鏡オートラジオグラフ用液体乳剤を用いれば、これに含まれるハロゲン化銀粒子が $10^{-2}\mu\text{m}$ と小さく、⁵⁾またゼラチン量も極めて少ないので、 $10^{-1}\mu\text{m}$ 以下の極めて薄い乳剤膜を試料表面に得ることができるはずである。一方、このようにして得られる小さな現像銀粒子は通常の光学顕微鏡では確認できない。しかしながら、走査型電子顕微鏡による2次電子像あるいは反射電子像を用いれば、銀粒子が明るく見え、この分布を容易に確認できるはずである。

本研究はCu-Ni(1:1)合金内のTの分布を観測する目的で、乳剤膜によるオートラジオグラフを作り、走査型電子顕微鏡で観察したものである。以下これについて述べる。

実 験

既に報告されたように、¹⁾²⁾³⁾Tを試料の中に分散させるために、試料の表面にあらかじめLiを蒸着しておき中性子を照射した。試料にはCu-Niが1:1の合金板(純度99.99%)を用いた。Liの蒸着に先立ち、合金板(5×20×0.3mm)を1000℃で12時間熱処理してから25時間かけて室温にまで冷却し、紙ヤスリで研磨した後、表面を滑らかにする目的で電解研磨を行った。電解研磨は硝酸30cm³、酢酸50cm³、磷酸10cm³の混合溶液を用いて室温で0.05A/cm²の電流で1~2分間行われた。

Li蒸着試料を真空状態で石英アンブルに封じたままJRR-2号原子炉で中性子照射を行った。照射条件は30℃の重水冷却で線量が $4 \times 10^{19}\text{nvt}$ であった。中性子照射によってNiおよびその不純物から生ずる誘導放射能が小さくなるまで、照射した試料を約2か月間放置してから用いた。

照射した試料の表面に残存しているLiを取り除く目的で再び電解研磨した後、その表面に電子顕微鏡オートラジオグラフ用乳剤を塗布した。この乳剤には富士写真フィルム(株)製のER型を用いた。その塗布にあたっては試料上に乳剤を1~2滴下し、試料を静かに傾けて乳剤で試料表面をおおうた後、過剰の乳剤を濾紙に吸いとらせた。試料表面に塗布した乳剤が乾燥してから20~100時間放置して露出した後、試料に乳剤をつけたまま現像定着処理を行った。現像はD-19処方によった。このようにして試料板上に得られた現像銀粒子を走査型電子顕微鏡で観測した。走査型電子顕微鏡には島津製作所製EMX-SM型を用いた。

実験結果

図1は現像銀粒子の2次電子像で、図2は反射電子像である。倍率は図1が図2よりも4倍大きい。いずれの図においても1~2 μm の白い現像銀粒子が粒界に沿う線条として観測される。また図2では電子線の照射による乳剤膜のプリスタ(A)、およびプリスタが破壊された跡とみられる合金面の露出(B)が観測される。

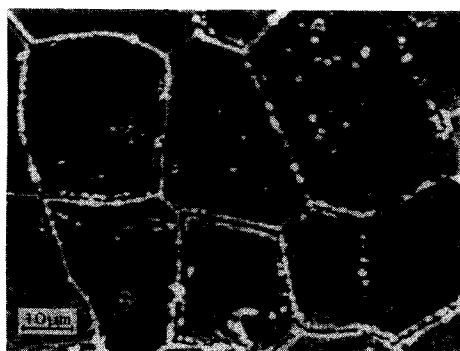


Fig.1. The secondary electron image of silver grains obtained from the scanning electron-microscope autoradiograph of tritium on Cu-Ni(1:1) alloy. Exposure: 25 hrs. Energy of electron probe: 20 KeV.



Fig.2. The backscattered electron image of silver grains obtained from the scanning electron-microscope autoradiograph of tritium on Cu-Ni(1:1) alloy.

Exposure: 90 hrs. Energy of electron probe: 30 KeV. A: blister of emulsion caused by the irradiation of electrons. B: the surface of the alloy.

考 察

電子の物質に対する反射率は原子番号の大きな元素ほど大きい。すなわち、合金やゼラチンよりも反射率の大きな銀粒子は反射電子像では明るくなる。2次電子像における銀粒子も、ゼラチン中での電気伝導性のわるさから生じる負電位のため、2次電子放出が促されて明るくなる。この場合、さらに反射電子の寄与も考えられねばならない⁶⁾

図2にみられるAとBとから、試料表面には現像銀粒子だけではなくゼラチンも同時に表面に存在することがわかる。現像銀粒子はこのゼラチンに保持されているので、現像銀粒子の本質的移動は認めがたい。

図1と図2とでは、粒界上に並ぶ現像銀粒子の線条が観測されている。この線条の幅はストリッピングタイプのものの¹⁾²⁾³⁾ $\frac{1}{10}$ 以下であるので、本研究で用いたオートラジオグラフの解像力のすぐれていることがわかる。

以上より走査型電子顕微鏡の電子プローブの径を、本実験に用いたものより小さなものを用い、拡大倍率を大きくすれば、各種の固体表面上の吸着トリチウムの分布について、より明確に知ることができるはずである。本実験では均一に混じる合金を用いたが、2つ以上の成分からなる不均一な合金を用いれば、これとは異なるオートラジオグラフが得られると期待される。

文 献

- 1) T. Takeuchi, D. Miyatani, K. Okamoto, Y. Takada, and O. Takayasu, Proc. 5th Int. Cong. Catal., p.555. North-Holland, Amsterdam, 1973.
- 2) T. Takeuchi, O. Takayasu, S. Uchida, and Y. Nakano, Int. J. Appl. Radiat. Isot., **26**, 736 (1975).
- 3) E. Kuki, Y. Nakano, O. Takayasu, and T. Takeuchi, J. Radioanal. Chem., **36**, 185 (1977).
- 4) E. D. Hondros, in G. A. Chadwick and D. A. Smith (ed.), "Grain Boundary Structure and Properties", p.265, Academic Press, London and New York, 1976.
- 5) R. Bogoroch, in P. B. Gahan (ed.), "Autoradiograph for Biologists", p.65, Academic Press, London and New York, 1972.
- 6) P. Duncumb and S. B. J. Reed, "Quantitative Electron Probe Microanalysis", p.133. N. B. S. Special Pub., Washington, 1968; 内山郁, 渡辺融, 紀本静雄著,「X線マイクロアナライザー」 p.27, 135. 日刊工業新聞社, 東京, 1972.