

[15021]

花崗岩石英の放射線損傷蓄積による熱蛍光の感度変化

Sensitivity change of RTL signal in quartz grains induced by radiation damage

鴈澤 好博^{A)}

Yoshihiro Ganzawa^{A)},

^{A)} Hakodate Campus Hokkaido University of Education

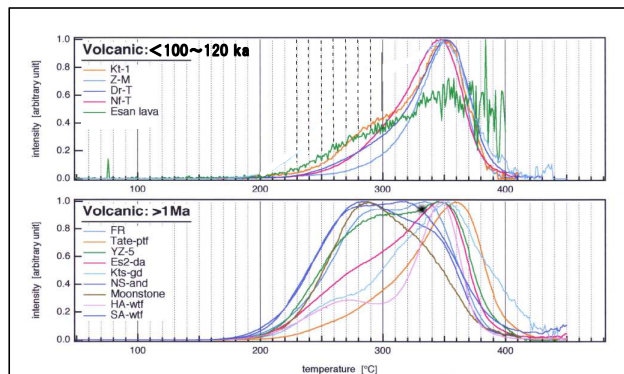
Abstract

RTL emission patterns in both volcanic and plutonic quartz were examined by the two manners, giving a Co60 irradiation in a high dose condition up to 20kGy and a heating for two hours up to 1000°C. The 300°C and 350-360°C emission peaks are commonly identified in both type quartz grains. High dose irradiation was responsible to the appearance and enhancement of the 300°C peak, showing the RTL emission pattern to be a broad type. The heating treatment resulted in more complex intensity changes with the competing two peaks. For example, the 360°C peak was enhanced by heating from room temperature to 400 °C followed by a decrease of the peak intensity from 600°C to 1000°C. The change of the RTL peak pattern could be examined for the estimation of the attained temperature of Hakkoda pyroclastic flow spread out in Aomori prefecture.

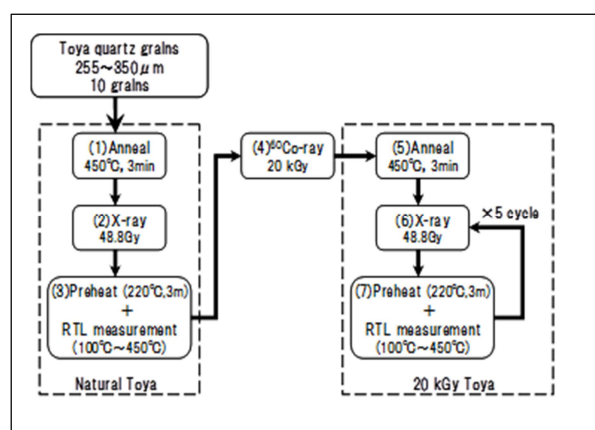
Keyword: RTL peak pattern, sensitivity change, radiation damage, heating treatment

1. はじめに

熱蛍光 (TL) や光蛍光 (OSL) 発光は、加熱や放射線照射により感度変化することが知られている (Wintle and Murray, 2006^[1]). 感度変化とは、照射線量が同量の場合、測定鉱物 (石英) から放出される蛍光シグナル数も同量であるべきにも関わらず、加熱や放射線刺激を受けた石英においては、放出シグナル量が変化することを言う. TL や OSL 法で正確な年代測定を行う場合、感度変化を考慮し、年代補正することが重要とされる (同上). 長い地質時代を経た石英サンプルは、蓄積された放射線量が飽和状態に達しており、その上限は TL の場合、およそ数 kGy, OSL の場合 1kGy 以下であるとされる. このような状態にある石英は地質時間に応じた高い被ばく線量のため感度変化を示すばかりでなく、電子トラップ状態においても何らかの変化を生じてよいが、その実態は必ずしも明確でない. これまで蓄積した火山岩の測定例の場合、地質年代を基準に 2 つの異なる発光パターンに大別できそうである



2Fig.1 RTL emission patterns derived from different source of rocks. (a) volcanic quartz grains younger than 120ka (b) volcanic and plutonic quartz grains older than



1 Ma.

Table 1 Experiment flow to detect a change of RTL emission pattern after repeated high dose Co-60 irradiation.

(Fig.1). Fig.1a は 100-120ka 以下の地質年代の比較的若い石英で、360°C 付近に単純なピークを持つモノピーク型であるのに対し、1Ma より古い石英では 360°C ピークに加え 270°C 付近にもピークを持つダブルピーク型である (Fig.1b). こうした発光パターンの違いは、異なる電子トラップの存在を示している.

加えて、もう一点考慮すべき事柄がある. それは、冒頭に述べた加熱による変化である. 火山岩の場合、比較的低温な火砕流から溶結凝灰岩のような高温で定置した火砕流まで加熱された温度に差があると考えられる.

1Ma 以上の古い岩体の場合、固結度の高い溶結凝灰岩などは風化に堪え地層として残されやすいが、100ka 程度の若い年代では風化されやすい比較的低温で定着した火砕流も地層として残されている. したがって、Fig.1 は定着温度を反映しているのかもし

[15021]

れない。

したがって、RTL で見られるこの 2 つの電子トラップ (270℃トラップと 360℃トラップ) は年代差(被ばく線量の大きな差) や火山岩の到達温度に支配されていると考えられる。本論では、Co60 の高線量照射や加熱実験により、これらの 2 つの発光トラップがどのような挙動をとるかを花崗岩や火山岩から抽出した石英を用いて明らかにすることを目的とした。

2. 実験

2.1 Co60 照射実験

Co60 の高線量照射により RTL 発光ピークパターンがどのように変化するかを検証した。そのため、同一の Toya 石英 (255-350 μ m) 10 粒子に Co60 を最大 20kGy (40Gyx 500h) 照射し、高線量照射前と照射後のテスト照射(48.8Gy, X 線照射)の発光パターンを比較した (Table 1)。実験手順(1)-(3)では Co60 照射前のテスト照射の発光測定であり、(5)-(7)では Co60 照射後のテスト照射による発光測定である。(6)-(7)の 5 サイクル測定は高線量照射後のテスト照射発光の安定性を見るものである。

2.2 加熱実験

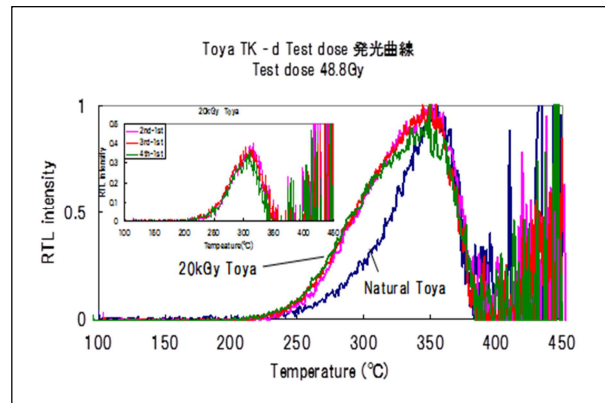
加えて、加熱実験は以下の条件で行った。同じ花崗岩石英 (50 粒子) に対して、400℃から 1000℃まで 200℃ステップで 2 時間の加熱を施し、その後 75Gy の X 線テスト照射の発光パターンの比較を行った。

3. 実験結果

3.1 Co60 照射実験

20kGy 照射前後のテスト照射発光パターンの比較を Fig.2 に示した。高線量 (20kGy) 照射が明らかに発光形状に影響を与えており、高線量照射前の 360℃付近に単一のピークを持つモノピーク型から、300℃付近で発光数が増加したため、ややブロードなピーク形状へと変化している。照射後の発光パターン(カウント) から照射後の発光パターン (カウント) を差し引くと Fig.2 挿入図のように 300℃ピークの形成が明らかである。この発光パターンは実験手順(6)-(7)の 5 サイクル測定でも同様に出現するので、300℃付

Fig.2 Comparison of RTL emission peak between natural



quartz grains of volcanic ash (Toya) and annealed quartz grains after Co60 dosing at 20kGy.

近に高線量照射により安定な新たな電子トラップが形成されたことを意味している。図には示していないが、この 300℃ピークは Co 照射線量 2.5kGy までは不明瞭であるが、それ以上の照射線量では、線量増加に応じた線量応答性を持つことが示されている。

一方、実際の地質年代を想定した場合、仮に年間線量を 2mGy とすると、石英の等価 (蓄積) 線量が 2.5kGy では年代が 1.25Ma となる。この年代は TL 年代測定のほぼ上限と考えられるので、2.5kGy 以上の高線量を受けた試料では、真の年代を示していないと考えられる。つまり、300℃に TL 発光ピークを持つ石英は、すでに年代測定可能な上限蓄積線量に達しているため、正確な年代値を示していないと考えられる。

3.2 加熱実験

加熱実験の結果を Fig.3 に示した。用いた石英は低温で晶出した花崗岩石英 (北海道瀬棚町鶴泊産) である。加熱前の発光パターンは 360℃と 300℃にピークを持つブロード型である。これを 400℃2 時間加熱すると、360℃ピークは発光強度を強め、発光パターンがモノピーク型に変化する。その後、加熱温度を 600℃から 1000℃まで上昇させると温度に応じて 360℃ピーク強度が減少する。一方、300℃ピークの発光強度はほぼ安定で 1000℃では増加傾向にある。このように、花崗岩石英の加熱では、電子トラップの位置が変化することはないが、電子トラップ数が

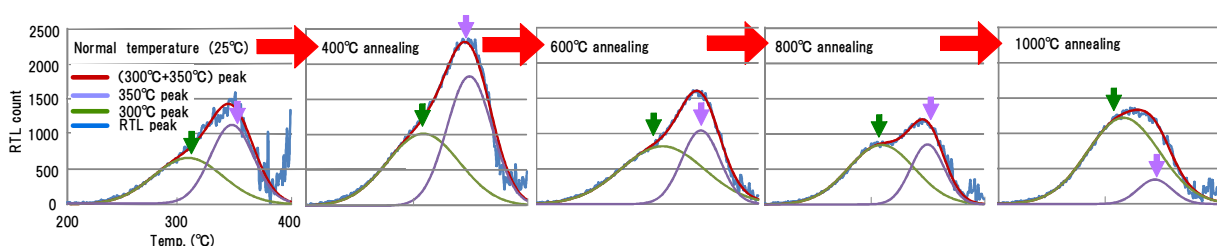


Fig.3 Change of RTL emission pattern composed of 300℃ and 360℃ traps after heating from a room temperature to 1000℃.

[15021]

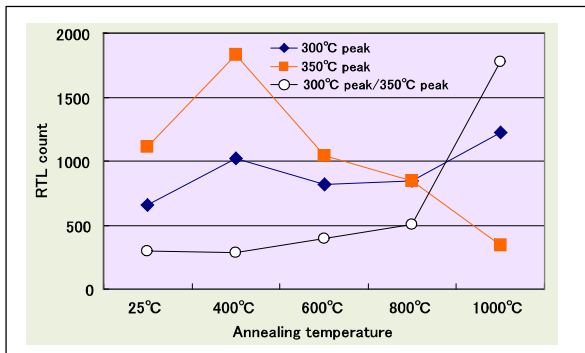


Fig.4 Intensity changes of 300°C and 360°C traps by heating from a room temperature to 1000°C

変化している。

4. 考察

4.1 RTL 発光パターン

天然の RTL 発光パターンは、300°Cトラップと360°Cトラップから構成される。このうち、火山石英 (Toya) では 360°Cトラップが発達し、これに Co60 高線量照射を施すことで、300°Cトラップが新たに形成されることが明らかになった。

一方、花崗岩石英を用いた加熱実験では、未加熱発達し、未加熱 Toya 石英の発光パターンと明瞭な差異が見られる。しかし、400°C加熱の発光パターンでは明らかに全体のピーク発光数が増加し、特に 360°Cピークの成長 (360°Cトラップ数の増加) が著しい。さらに加熱温度を上昇させると 300°Cピークはほぼ発光強度を維持し、1000°Cでより強い発光となる。一方、360°Cピークは加熱温度と共に発光を減少させ、1000°Cでは 400°C加熱の 25%程度まで減少する。そこで、両者の発光強度比 (300°C発光強度/350°C発光強度) をとると Fig.4 のようになる。常温 (25°C) から 600°C加熱まで両トラップの挙動は同様であるが、800°Cを超えると 2 つのトラップは大きく異なる振る舞いを見せる。加熱温度により、電子トラップが増減少する現象が生じている。こうした加熱によるトラップパターンの違いは、天然石英の到達温度推定に利用できる可能性がある。

3.2 RTL による火砕流の到達温度推定

ここでは、RTL 発光パターンの変化から推定された火砕流の到達温度推定の一例を述べる。用いた試料は青森県西部に分布する八甲田火砕流である。青森市で見られるこの火砕流は上下 2 層から構成され、下位は水中火砕流、上位は陸上火砕流から構成される。両者の RTL 発光パターンは明瞭に異なっており、300°Cピークで陸上火砕流がより強い発光を示している (Fig.5a)。この 300°Cピークの両火砕流での差異は、Fig.4 の結果から、陸上火砕流がより高温で定着したためと推定される。また、古地磁気の測定から陸上火砕流が約 600°Cで定着したと推定されている。

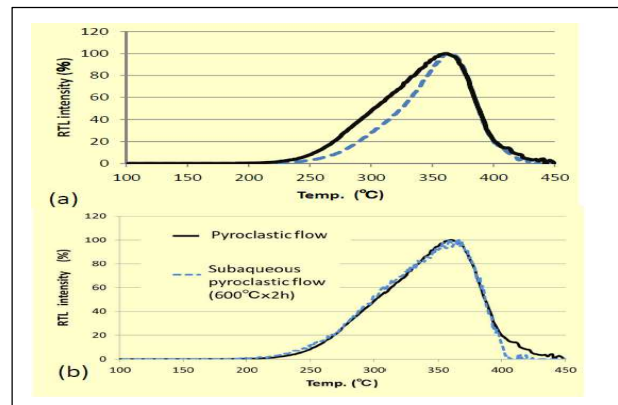


Fig.5 (a) Comparison of natural RTL emission of quartz grains between Hakoda pyroclastic flow and subaqueous pyroclastic flow. (b) RTL emission curve comparison between them after heating the subaqueous pyroclastic flow at a temperature of 600°C for two hours.

(佐々木, 2001^[2])。そこで水中火砕流を 600°C, 2 時間の条件で加熱を施した。その結果、テスト照射 (100Gy) から得られた水中火砕流の発光パターンは 300°Cピークが発達し、陸上火砕流の発光パターンとよく一致するようになった (Fig.5b)。この結果は、陸上火砕流の定着温度がほぼ 600°Cであったことを示唆している。このように、発光パターンの形状 (300°Cトラップと 360°Cトラップの比) は火砕流の定着温度推定にあたって有効である可能性が示された。

文献

[1] A.G.Wintle, A.S.Murray, A review of quartz optically stimulated luminescence characteristics and their relevance in single-aliquot regeneration dating protocols. *Radiation Measurements*, 41, 369-391, 2006.

[2] 佐々木 寿, 浅海へ堆積した火砕流堆積物の特徴-青森県津軽盆地更新統鶴ヶ沢層の例- 日本火山学会講演予稿集, 56, 2001.