

[16001]

石英の光刺激ルミネッセンス過程の分光学的説明 EFFECTS OF ION IRRADIATION ON OSL CHARACTERISTICS IN QUARTZ

山中 千博^{#A)}, 長田 章良^{A)}, 高田 将志^{B)}
Chihiro Yamanaka^{#A)}, Akira Osada^{A)}, M. Takada^{B)}

^{A)} Department of Earth and Space Science, Graduate School of Osaka University

^{B)} Department of Geography, Nara Women's University

Abstract

Optically stimulated luminescence (OSL) using radiation-induced centers in solids is now regarded as a standard dating method for buried age in the Quaternary period. Quartz is a typical sample used in the OSL dating. However, the sensitivity of OSL is different in each quartz particle and are dependent on the source and history of the sample. Assuming weathering of the mineral is the reason to change the OSL sensitivity; we carried out ion irradiation on quartz and studied the OSL sensitivity. Preliminary results for experiments for Al⁺, Si⁺, Fe⁺ irradiation at 380 keV were reported.

Keyword: OSL sensitivity, weathering, ion irradiation

1. はじめに

OSL (Optically stimulated luminescence) 年代測定法は、第四紀(現在から過去 260 万年の時代区分)堆積物の普遍的な年代測定法として広まりつつある。本手法は、自然放射線被曝によって物質中に蓄積した発光中心の光刺激再結合(輝尽発光)を観測しており、発光中心量をその再結合光量として定量し、これを年間の自然放射線線量における発光中心の生成量で除して年代値を求める。この点では、放射線誘起の常磁性欠陥を用いる電子スピン共鳴(ESR)、熱ルミネッセンス(Thermoluminescence)年代測定法などと同様の原理に基づいている。ただし、OSLの発光中心は、ESR磁気共鳴の常磁性中心やTLの発光中心とは必ずしも一致しない。OSL中心は、太陽光の曝露でリセットされるため、地層に埋没した後の年代が計測されるため、堆積物の年代測定への応用として重要である。一方で、OSL発光後も試料加熱によりTL発光は観測され、(残留TL)またESR中心は、一部を除いて可視光曝露による緩和は見られない。OSLでは、発光の際に電子捕獲中心から励起した電子が、再度捕獲される回復現象があることも知られている。放射線照射によるそれぞれの

発光中心・欠陥生成効率、よく調べられているが、準安定状態にある中心・欠陥間のそれぞれが、地質時間、あるいは再結合発光段階でどのように相互作用して変化するのは、よくわかっていない。

石英は長石と並んでOSL年代測定に用いられる試料であるが、産地や履歴により、あるいは粒子ごとにOSLの感度の違いがある。そのため、SAR (single aliquot regenerative-dose: 単試料再現法)法などが提唱され、経験的に用いられてきた。SAR法とは、1皿だけの試料を用いて、人為放射線照射とOSL測定を繰り返し行い、その試料におけるOSLの生長曲線を確認して、試料ごとに起きうる発光強度のばらつきを補正する手法である。実際は、各OSL測定前に予備加熱を行うことによる試料の感度変化が起こりうるため、ある放射線線量(test dose)を照射した場合のOSL発光量を使って発光強度を規格化する。その上で、test doseに対する発光強度比が、最初と最後で0.9-1.1に収まる場合のみのデータを採用している。このように、年代測定における実用面では、メカニズムは不明なまま、かなり経験的な手法で対応されているのが実情である。

[課題番号]

さらに OSL 年代測定では、弱い青色光のもとで短時間に発光する、いわゆる Fast 成分が卓越した試料が年代測定に適しているとされている。しかし欧州や中国大陸のような安定大陸起源の石英と日本のような変動帯地域・火山起源の石英ではその特性に大きな違いがある。実際、同じ放射線被曝量に対する OSL 発光量と同様に Fast 成分の割合も試料によって異なっている。

石英の OSL 年代測定において正確に蓄積線量を求めるためには、OSL 特性が何に起因しているのか理解し、適切な試料採取および試料処理を行う必要がある。単純に考えれば、試料によって不純物や履歴が異なるためと考えられるが、過去の研究で、OSL 特性の変化の物理的機構を明らかにできたものはない。我々は風化によるバルク欠陥導入と発光に寄与もしくは妨害する不純物欠陥の相乗作用を考え、人為的な風化過程・不純物添加をイオンドープにより実現し、本現象の物理的な解明しようと考えた。

2. 実験

本年度は、イオン注入装置を用いて、380 keV までのエネルギーで C^+ および Al^+, Si^+, Fe^+ を、またタンデム加速器を用いて 3-6 MeV で He^+ を石英試料に注入した。前年度に倣い、ビームは $2 \times 2 \text{ cm}$ の拡大照射、密度は $3 \times 10^{12-13}$ 個/cm² となるように調整した。これらのイオン種の選定理由は、前年度実施した Li に次ぐ原子半径の小さなイオン種として C^+ 、酸素過小欠陥を導入するために Si^+ 、石英中の主要な不純物として Al^+ 、TL 発光における妨害中心として知られている Fe^+ を考慮したためである。また He^+ は地殻中の α 粒子を想定して、高エネルギーの照射を行った。

一方、対象とする石英は、粒径 100-250 μm の粉末試料数 10mg を銅板にペーストで固定したものをを用いた。石英としては、OSL の標準的試料とされているユトランド半島産石英砂をフッ酸処理

で精製したもの、マダガスカル産スモーク石英、およびマダガスカル産結晶石英を粉末化したもの 3 種を用いた。

OSL 測定では、照射した石英粉末をペーストから分離し、各 10-20mg を試料皿に載せて、RISO 社の OSL 装置で以下のシーケンスで測定した。

[1] OSL (125°C, 40s)	初期 OSL
[2] β 線照射 (500s, 51.5 Gy)	test dose
[3] pre heat (200°C, 10s)	短寿命欠陥除去
[4] OSL (125°C, 40s)	[2]に対する OSL
[5] OSL (125°C, 40s)	残留分確認
[6] β 線照射 (500s, 51.5 Gy)	
[7] pre heat (200°C, 10s)	
[8] LM-OSL (125°C, 1000s)	fast 成分抽出
[9] LM-OSL (125°C, 1000s)	残留分確認
[10] もう一度[1]-[9]を反復	感度変化確認

なお発光量は試料質量で規格化した。OSL 発光量は、照射後の 500°C, 1hr のアニーリングを行うことにより増大する。また 2 回の OSL 測定では、感度変化により 2 回目が大きく出る傾向があり、1 回目のデータで比較するものとした。

3. 結果と議論

Fig. 1 に 3 MeV He ion 照射の結果を示す。イオン照射のみでは、発光量は大きな変化はないが、アニーリングを施すことで、数倍から 30 倍までの OSL 発光量が得られた。また 380 keV で照射した昨年度の例と同様に、イオン照射量の増加とともに OSL 発光量も増加する傾向が見られた。特にマダガスカル産水晶では、照射量に対して線形に増加した後、一定の値 ($50 \sim 70 \times 10^4$ counts/mg) に収束する結果が得られ、これは 1.8 MeV の場合と同様であった。

[課題番号]

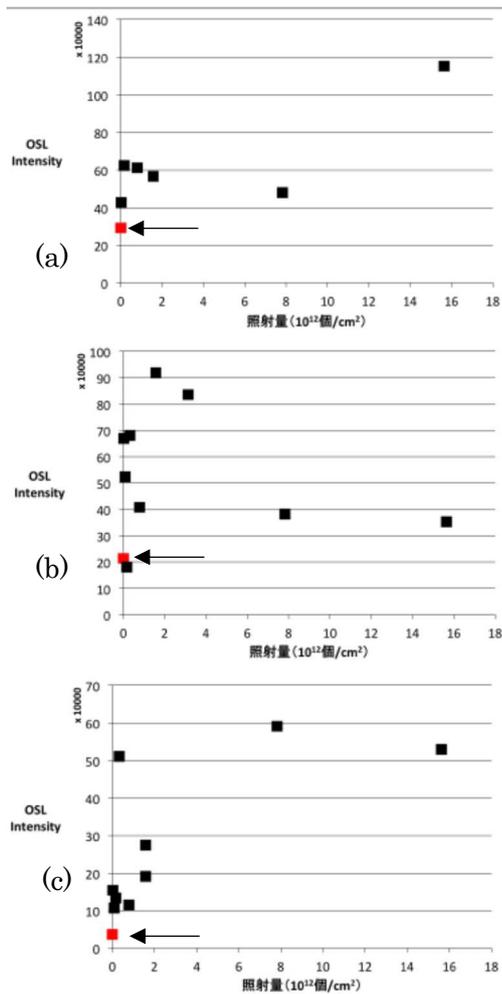


Fig. 1. OSL of quartz sand irradiated by 3 MeV He⁺ and annealed at 500°C for 60 min. (a) Quartz sand from Jutland, (b) smoke quartz from Madagascar, (c) quartz from Madagascar. Arrows indicate data for non-irradiated sample.

380 keV のイオン照射においても、一般に照射状態のままでは OSL 発光量は抑制的であるが、500°C 60 分のアニーリングにより、OSL 発光量は増大する。しかしながら、煙水晶に対する Al⁺ および Fe⁺ 照射では、イオン注入量 $3 \times 10^{12-13}$ の全範囲で、未照射かつ熱処理を行った試料に対して、1/100 程度まで OSL 発光量は抑制された。逆に Si⁺ の照射では、OSL 発光量はその強度を保ち、イオン注入量が多くなると次第に低減する傾向となった。 Fig. 2 に Al⁺ 380 keV 照射およびアニー

リング後の OSL 変化を示す。

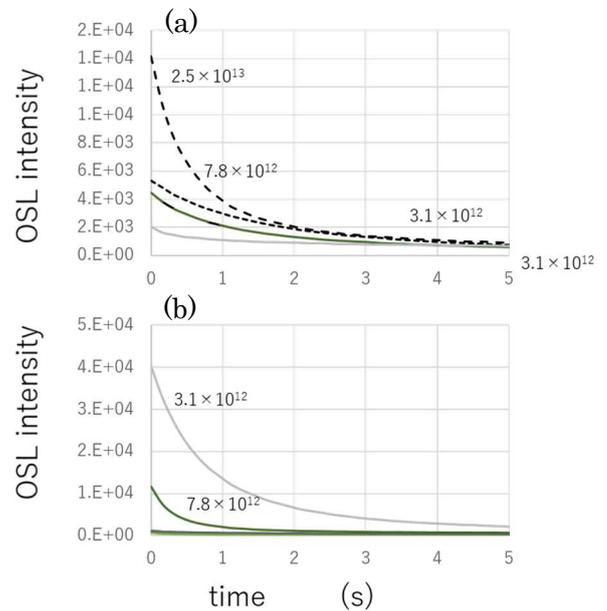


Fig.2. OSL shine down curve for after irradiation of Al⁺ and annealing at 500°C for 60 min. (a) Quartz sand from Jutland and (b) Madagascar quartz.

Fig.2 に示されるように、ユトランド石英砂では、Al⁺ の注入量が多い方が、OSL 発光は多くなっているのに対し、マダガスカル石英では、少ない注入量で大きく発光していることがわかる。実際、ユトランド石英砂では、 2.5×10^{13} 個のイオン注入によって、本来あるべき OSL 発光の 40% 程度になっているので、Al⁺ 照射は OSL 発光に対して阻害要因となっている。煙水晶ではその Al 含有率が高く、照射により濃度消光が現れたと考えられる。興味深いことは、純度のよいマダガスカル石英に対しては、 3.1×10^{12} の注入時に、極めて強い OSL 発光が得られていることで、これは本来の OSL 発光強度の 100 倍に達している。また fast 成分も確認でき、感度が向上していることが示されている。これが、照射効果なのか、個々の試料の特性によるかについては、今後の追測定をもって判断する予定である。