[15001]

# 石英の光刺激ルミネッセンスに対する放射線照射効果の研究

# THE EFFECTS OF ION IRRADIATION ON OSL PROPERTIES 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 has been used for the dating of buried age in the Quaternary period. Quartz is a typical sample for OSL dating and buried time of the sample after zero set of luminescence centers by sunlight is considered the start of clock for dating. However, the properties of OSL is different in each quartz particle, which is dependent on the source and history of samples. Assuming weathering of minerals causes such difference in OSL properties, we have performed irradiation of ion beams to quartz samples and studied the OSL properties.

*Keyword*: OSL sensitivity, weathering, ion irradiation

## 1. はじめに

OSL（Optically stimulated luminescence）年代測定では、自然放射線被曝によって蓄積した発光中心の再結合を観測している。石英は長石と並ぶ 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) 法などが経験的に用いられてきた。SAR 法とは 1 試料だけを用いて人為放射線と得られる OSL 強度の相関を求め、本来あったその試料の自然被曝蓄積線量を求める手法である。Fig.1 にそのメカニズムを示す。

OSL 年代測定ではまた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おり、また繰り返し標準的な OSL 測定を行うことにより OSL 感度が変化することも知られている[(1)]。

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の試料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ことが必要不可欠であるが、現在用いられている手法は経験的なもので、その物理的な根拠については知られていない。すなわち物理的なメカニズムとしてOSL特性を理解することは重要な課題のままである。本研究では、試料に依存するOSL発光量およびFast成分の割合に注目し、これと不純物または構造的な欠陥との関連の解明を目的としてイオン注入による石英の改質を行った後、OSL特性を評価した。仮説としては、安定大陸産の石英はより古く、放射性鉱物によるα線照射や自発核分裂、その他の風化過程を通して、固体内欠陥や不純物の添加が進んでいる可能性がある。これをHeイオン照射およびその他のイオン注入により模擬することを考えた。

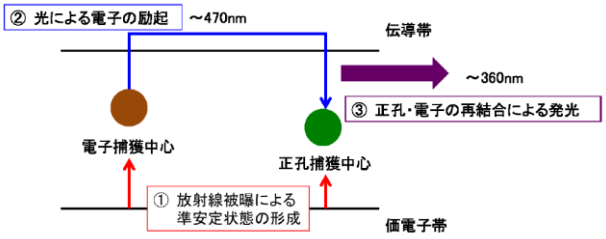


Figure 1. A brief explanation of optical stimulated luminescence at 470 nm excitation for a quartz sample.

#yamanaka@ess.sci.osaka-u.ac.jp

[15001]

## 2. 方法

まず履歴の異なる4種の石英砂を準備し、粒径を100 ～ 250μm に揃えた。試料は購入した試薬石英砂、マダカスカル産の水晶、煙水晶の結晶体、さらにデンマークユトランド半島北端スカーゲン産の砂を6N HCl溶液で338時間、さらに1N HCl / 9N HF溶液で173時間エッチング処理したものを用いた。得られた粉末は、XRD分析により他鉱物の混入のない結晶石英砂であることを確認した。このほかICP-AESによる分析で不純物濃度を調べた。

イオン照射により構造欠陥および不純物元素を注入した。イオン種は$He^+$、$O^+$、$Li^+$、$Eu^+$の４種類を用意し、高崎量子応用研究所および大阪大学理学研究科バンデグラフ加速器施設にて、加速電圧400kV, 1.8MV, 3.0MVでそれぞれ照射を行った。それぞれの照射施設において、粉末の石英試料にイオンビームを照射するために、粉末石英を銅板に貼り付けた試料を用意し、照射部分の面積は各2cm × 2cm とした。ビーム電流は、ファラデーカップによる測定を行い、イオン注入装置、タンデム加速器でそれぞれ約1μA、100nA のビーム電流に調節し、1～500 秒の照射を行った。時間の長い照射（50 秒以上）の場合、照射中にチャンバー内の真空度が悪くなる（～$10^{-5}$ Pa に近づく）現象が起こった。そのため、時間の長い照射の場合は10 秒ずつ区切りながら照射を行った。阪大の装置でもこれに準じて、照射を行っている。

一般に石英のOSL感度（同一量の人為的βorγ線に対するOSL発光強度）は加熱処理に増大する。そこで、すべての試料が同一条件になるように、照射後それぞれの試料に500℃, 1時間の加熱操作を行った。またOSL 測定は、Risoe 社TL/OSL Reader を用いて行った。放射線源としては$^{90}$Sr=$^{90}$Y β線源を使用し、照射量は、The Nordic Center for Luminescence Research が配布しているCalibration Quartz を用いて測定した結果、0.103Gy/s だった。

OSL 測定の手順を以下に示す。

1. 初期OSL 測定: 測定温度：125℃ 測定時間40 s.
データ採取を行う測定の前に、元々試料が蓄積している線量情報をリセットする目的で、初めに光照射を行った。

2. β線照射: 照射時間500 s （51.5Gy）
OSL試料装置内で、すべての試料に対して同線量のβ線照射を行った。

3. プレヒート: 200℃ 10 s.
OSL 測定前に加熱（160～300℃）を行い、不安定な（shallow trap）信号を消去した。

4. OSL 測定: 測定温度：125℃ 測定時間40 s.
照射したβ線51.5Gy に対するOSL 信号を本測定データとした。

5. バックグラウンドOSL測定: 測定温度：125℃ 測定時間40 s. 測定のバックグラウンド成分を差し引くために実施した。なお、このほかの測定においても標準的なOSL測定に従って実験を行った。

## 3. 結果

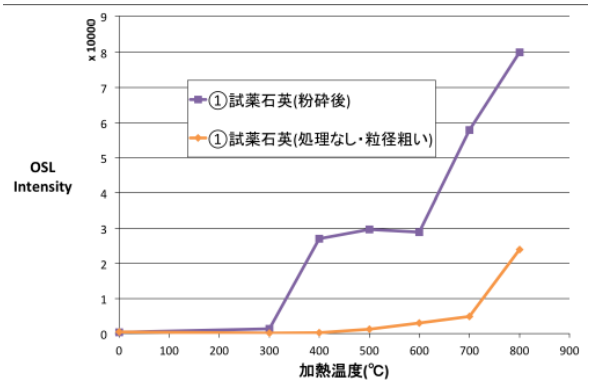


Figure 2. OSL intensity for reagent quartz powders annealed at 100-800℃ for 1hr before OSL measurements.

Fig. 2 に、イオン照射を行わなかった試薬石英について、OSL 測定前に 100-800℃の範囲で 1 時間加熱

[15001]

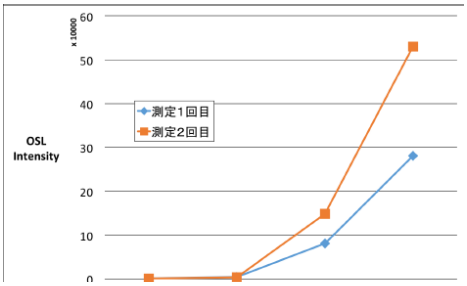


Figure 3. Effects of ion irradiation on OSL intensity for reagent quartz irradiated by $He^{+}$ at 380 keV. OSL measurements were performed after 500℃ 1hr annealing.

を与えたものの OSL 発光強度の変化を示す。粉砕前の粒径 250 μm 以上の試料と粉砕後の粒径 100～250 μm の試料では傾向が大きく異なり、同じ質量で比較しても、粉砕前は加熱温度 500℃で加熱なしの場合の 2.8 倍、600℃で 6.8 倍に OSL 発光量が増加した一方で、粉砕後は 400℃で 69 倍まで大きく増加した。

実際、試薬石英では同一薬瓶内から得た試料でもその OSL 特性についてはばらつきが見られた。しかし、この結果は、試料間のばらつきより、試料の粒径、すなわち、試料表面で OSL の特性が変化していることを示唆している。そこで以降の測定ではすべて、同じ粒径 100～250 μm を使用して測定を行った。以下では、平成 27 年度に実施した 400 keV（実質は 380 keV）イオン照射によって得られた結果から代表的なものを記す。

Fig. 3 にイオン照射前後および 500℃, 1 時間の加熱後の OSL 強度の変化を示す。イオン照射のみを行った試料では OSL 発光量に変化は見られなかったが、その後加熱を行った試料では、イオン種・照射エネルギーに関わらずイオン照射量とともに発光量が増加した。また同一試料を続けて 2 回 OSL 測定を行った際、OSL 発光量を比較すると、2 回目の方が大きくなる傾向も見られた。これは Murray, Wintle (2000) でも報告されている、測定時の β 線照射および加熱による感度変化に起因していると考えられる。

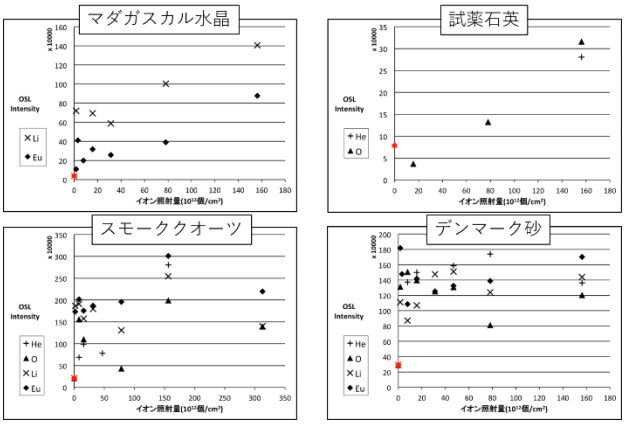


Figure 4.　OSL intensity as a function of the dose of irradiated ion.

Fig. 4 に用いた試料とイオン種についてイオン照射量と500℃, 1hrのアニーリング後に測定したOSL強度の関係を示す。

イオン照射のみによる変化は見られなかったが、照射後の500℃加熱によりOSL信号強度は増加した。その増加量はイオン照射量と相関が見られた。また不純物(Al)が多く含まれていると考えられるスモーククオーツで、照射＋加熱後に最も大きなOSL信号が見られた。

石英には構造欠陥として、酸素空格子があり、いわゆるE'中心の前駆体であることは知られている。この酸素空格子は500℃ の加熱で解消されるため、実験で見たOSLの発光量変化には、積極的に寄与しないことがわかる。一方、Li、Euのイオン注入により、OSL信号の感度（Fast成分の割合）にも増加が見られた。このFast成分について詳細は割愛するが、すでにFast成分の割合が高いデンマーク試料では、大きな変化は見られなかった。一方で、元々Fast成分の観測されなかった石英砂に対して、イオン照射量の増加に相関してFast成分の割合が最大7倍まで増加し、その後一定値に収束する傾向が得られた。

[15001]

## 4. まとめ

イオン照射のみを行った試料では照射前と比較して、その OSL 発光量に変化は見られなかった。しかし、その後 500℃, 1 時間の加熱を行った試料では、イオン種・照射エネルギーに関わらずイオン照射量とともに発光量が増加し、特に $Li^{+}$を照射した試料で 40 倍まで増加した。また発光量全体に対する Fast 成分の割合は、照射・加熱処理を施した後でも変化はなかったが、元々Fast 成分の観測されなかった石英砂に対してイオン照射を施した試料では、照射後の加熱によってイオン照射量の増加に相関して Fast 成分の割合が最大 7 倍まで増加し、その後一定値に収束する傾向が見られた。その収束値は試料によって異なり、Al などの不純物元素が多く含まれる試料で、最も高い値を示した。

現在までの結果ではイオン照射の作用により形成された電子・正孔捕獲中心の増加、そして不純物としての Li の存在が OSL 発光量増加に寄与することがわかった。また今回照射した元素以外の不純物元素の存在が、Fast 成分卓越化に寄与している可能性も示唆された。なお次年度以降もエネルギー範囲とイオン種を変えつつ、実験と解析を進めていく予定である。

## 参考文献

[1] F. Preusser et al., *Radiation Measurements* **41**, pp.871-877. (2006)

[2] A. S. Murray, A. G. Wintle, *Radiation Measurements* **32**, pp.57-73. (2000)