

## 石英のTL特性変化といくつかの放射線欠陥の関係

Dependence of TL-property changes on some radiation-defects in quartzes

# 藤田 博喜 [1], 橋本 哲夫 [2], 片山 肇 [3]

# Hiroki Fujita [1], Tetsuo Hashimoto [2], Hajime Katayama [3]

[1] 新大院自然, [2] 新大・理・化学, [3] 新潟大院・自

[1] Grad. School of Sci. and Tech., Niigata Univ., [2] Dept. Chem., Facul. Sci., Niigata. Univ., [3] Grad. Sci. and Tech., Niigata Univ.

石英の青色TL (BTL) の発光原因は、石英中のSiと置換したAlに隣接するO原子上の正孔 (Alセンター) と準安定状態に捕獲された電子との再結合によるものと提言されている。しかし、不純物としてのAl含有量だけでは石英粒子毎の線量応答性の違いを説明できない。単結晶の石英においてはAl含有量とBTLに負の相関関係が見出された。さらに、赤色TL (RTL) を示す石英粒子も含めて、ESR測定によるAlセンターや水素ラジカルとBTLやRTLとの相関について調べた。その結果、石英中のOH-関連不純物の放射線作用で生成する水素ラジカルがBTLに関連したAlセンターの減少をもたらしていることを見出した。

### 1. はじめに

石英と電離放射線との相互作用の結果の一つとして熱ルミネッセンス (TL) 現象があり、年代測定や被熱測定等に利用されている。しかし、粒子毎のTL線量応答性の違いや熱処理による感度変化などの原因が未だよく分かっていない。これまでの多くの研究から、石英のTLの発光原因は、石英中のSiと置換したAl上の正孔 (Alセンター) と準安定状態に捕獲された電子との再結合によるものと提案されている。しかし、不純物としてのAl含有量だけでは石英粒子毎の線量応答性の違いなどを説明できない。単結晶の石英においてはAl含有量と青色TL (BTL) の負の相関関係が見出されている。さらに、我々の研究室では赤色TL (RTL) を示す石英粒子を火山灰関連地層から見出しており、これらの原因を含めてTLの詳しい発光機構はまだ分かっていない。そこで本研究では、TL発光機構を解明するため線量応答性とアニールによるAlセンターや水素ラジカルとTLとの挙動について考察した。

### 2. 実験

BTLを示す様々な産地からの石英に対し以下の実験を行なった。150~250mmに粉碎した石英粒子に対し、液体窒素中で線を20kGy照射し、その温度を保持したまま、電子スピン共鳴 (ESR) 測定を行ないAlセンター、水素ラジカル信号を観測した。その後、一度室温に戻した後、再度液体窒素温度でESR測定を行ない、信号強度の変化を調べた。一部の試料に対しては、77Kから徐々に保持温度を上昇させ、その時の信号強度の変化も追った。測定後の試料は、放射化分析によるAl含有量の測定やBTL強度の測定を行なった。

また、400~1000 の100 毎で熱処理した石英について、上記と同様の条件でESR測定、BTL測定を行なった。薄片状にした石英についても熱処理を施し、赤外線 (IR) 吸収測定から、熱処理温度の上昇に伴うOH基の吸光度の変化を観測した。

さらに、RTLを示す様々な産地の石英に対しても上記とほぼ同様の実験を行なった。

### 3. 結果と考察

#### 3・1 産地の異なる石英試料間での比較

いずれの天然石英からも液体窒素温度 (77K) 条件下での放射線照射由来のAlセンターとHラジカルを検出することが出来た。

77Kでの線照射により石英に生成するAlセンターは、室温までの温度上昇により減少することが、一方水素ラジカルについては完全に消失することが分かった。このときのAlセンターの減少量は水素ラジカルに依存した比例関係を示していた。更に、77Kからの温度上昇に伴う両信号の減衰は、100K付近で急速な変化を示すほぼ同様の傾向を示した。これらの結果から、水素ラジカルがAlセンターを消す主たる因子であることが推測された。

放射化分析の結果との比較から、一般的にAl含有量の多い石英ほど、水素ラジカルを多く生成し、室温照射でのAlセンターとBTLは正の相関を有していることも観測された。

#### 3・2 熱処理に伴う変化

石英の熱処理実験からは、800 以上の熱処理によりBTL強度が急激に上昇する傾向が確認された。水素ラジカルは800 までは増加を示したが、液体窒素温度照射では、900、1000 では殆ど検出されなかった。

一方、いったん室温に戻した後では、AlセンターはBTL強度の上昇曲線と同様な傾向を示したが、77Kに保持したまま測定したAlセンターは熱処理温度に対し直線的に増加するという異なった傾向を示した。

また、熱処理での水素ラジカルの生成は、3492cm<sup>-1</sup>のIR吸収に対応することが観測された。

以上の事から、石英中の3492cm<sup>-1</sup>に相当するOH基は放射線によりBTLの原因であるAlセンターの形成を阻害

する水素ラジカルを生成することが示された。

### 3・3 RTLを示す石英粒子の線量応答性

RTLを石英粒子に77Kで 線を照射したものと室温で照射したものと、両方とも被曝線量が増加すると残存のAlセンターとRTLの発光強度は同様の傾向を示して増加することがわかった。また、77Kでの照射と室温での照射とでは異なる線量応答性を示した。77Kでの照射においては被曝線量約1kGyでほぼ飽和していることが確認できた。