

## 石英におけるカソードルミネッセンスの新たな温度消光モデル

## New temperature quenching model of cathodoluminescence in quartz

# 奥村 輔 [1]; 西戸 裕嗣 [2]; 蜷川 清隆 [3]

# Tasuku Okumura[1]; Hirotsugu Nishido[2]; Kiyotaka Ninagawa[3]

[1] 岡山理大・自然研; [2] 岡山理大自然研; [3] 岡山理大

[1] Res. Inst. Nat. Sci., Okayama Univ. Sci.; [2] Res. Inst. Nat. Sci., Okayama Univ. Sci.; [3] Applied Phys. Okayama Univ. of Science

天然石英のCL発現は低温下において顕著であるが、その発光メカニズムについては未だ不明な点が多く、試料温度がCLに及ぼす影響についてはほとんど分かっていない。我々は、石英のCL発光が温度に大きく依存することに注目し、これまでに石英のCLの温度消光過程における活性化エネルギーを定量的に評価して、この値が石英の生成履歴により異なることを見出した[1]。今回、石英CLの温度消光過程を包括的に解明するため新たな温度消光モデルを検討した。

測定には、比較的低温で晶出した熱水起源の石英と花崗岩中の石英（これらを低温石英と呼ぶ）、高い生成温度を示す高温型仮晶をなす石英（高温タイプ石英）および地殻中で最も高い圧力により生じた変成岩中の石英を用いた。

CLスペクトル測定は、走査型電子顕微鏡（JEOL: JSM-5410LV）に回折格子分光器（OXFORD: MonoCL2）を組み込んだSEM-CL装置によった。加速電圧15kV、照射電流0.03-0.05nA、スキャンモードの条件で、液体窒素温度から室温までの範囲を約20おきに、光電子増倍管によるフォトンカウンティングにより計測した。

-192から室温まで段階的に試料温度を上昇させCLスペクトル測定を行った結果、すべての石英から450-500nmにダブルピークをもつブロードなスペクトルがみられた。ルミネッセンス効率は、試料温度の上昇に伴い減少し、その現象は温度消光と呼ばれる。これは温度上昇に伴い非輻射遷移の確率が大きくなることに起因する。-192から室温までのCLスペクトル測定で得られた結果から、ルミネッセンス効率への温度効果をMott-Seitzの配位座標モデルに基づき、温度消光過程における活性化エネルギー（E）をArrheniusプロットにより求めた。その結果、石英のCLには2つの温度消光過程の存在が明らかとなった。低温石英において、Eは-110までが約0.03eV、-100以上で0.23eVである。また、高温タイプ石英と変成岩中の石英から得られた活性化エネルギーは、それぞれ低温石英とは大きく異なる値を示す。しかしながら、Mott-Seitzモデルを用いて2つの温度消光過程を包括的に説明することはできない。多重量子井戸構造に基づく温度消光モデルから新たに“two-step quenchingモデル”を考案した。これは、励起状態と基底状態との間に局所的なエネルギー準位の存在を仮定し、この準位から励起状態への遷移過程を考慮するものである。これにより二段階の温度消光過程を最小自乗法により解析でき、石英における温度消光のメカニズムを説明することが可能となった。

いずれの石英からも低温下において450~500nmを中心とするバンドスペクトルが出現する。これは、局所的なエネルギー準位にある電子の基底状態への輻射遷移に基づく発光からなり、試料により波長に変化がみられないことから局所的な準位のエネルギーレベルは一定である。解析結果は、局所的なエネルギー準位から励起状態への活性化エネルギーが、低温石英、高温タイプ石英ならびに変成岩中の石英ごとに異なることを示す。したがって、石英の生成環境や変成履歴が励起状態と局所的なエネルギー準位間のエネルギー差に影響を及ぼしていると推察される。また、two-step quenchingモデルは、局所的なエネルギー状態からの発光、つまり励起子発光メカニズムを仮定したものであることから、低温下における石英の青色発光は、自己束縛励起子によると推察される。

## 参考文献:

[1] Okumura, T., Nishido, H. and Ninagawa, K. (2004) 32nd Internat. Geol. Cong., Abs. #114-24.