

カソードルミネッセンス分光分析を用いた放射線損傷により生成された構造欠陥の検出

Cathodoluminescence characterization of radiation-induced luminescence centers in albite

鹿山 雅裕^{1*}, 西戸裕嗣¹, 豊田新², 小室光世³, 蜷川清隆²

Masahiro Kayama^{1*}, Hirotsugu Nishido¹, Shin Toyoda², Kosei Komuro³, Kiyotaka Ninagawa²

¹岡山理大自然研, ²岡山理大・理・応物, ³筑波大・生命環境

^{*}Res. Inst. Nat. Sci., Okayama Univ. Sci., ²Dept. Appl. Phys., Okayama Univ. Sci., ³Life Environment. Sci., Univ.

ウランやトリウムなどの放射性各種を含む鉱物は、それと接する鉱物に放射線ハロを生じさせることはよく知られている。カソードルミネッセンス (Cathodoluminescence : CL) は、主として物質に含まれる不純物元素の存在や結晶構造の乱れ (構造欠陥、転移など) を鋭敏に検出することができるため、石英については放射線損傷によるハロを評価する手段としてCLの活用がなされている。CLにより検出できる放射線損傷をCLハロと呼ぶ。長石は希元素鉱物を包有することが多く、放射線損傷による変色域がしばしば視認できる。しかし、長石鉱物については希元素鉱物を包有することが多く、放射線損傷による変色域がしばしば視認できるにもかかわらず、このような α 線粒子により生成される放射線損傷やそれに関係する構造欠陥の詳細については未だ解明されていない。そのため、本研究では長石を対象として自然界における α 線により生成する構造欠陥の生成効率を評価すべく、産地を異にする三つのアルバイトに対して He^+ イオンを照射して生じたハロをCL分光法ならびにラマン分光法により検討した。

測定には、ブラジルMinas Gerais、新潟県糸魚川および滋賀県田ノ上山に産するアルバイトの単結晶を用いた。日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所イオン照射研究施設のダンデム加速器を用いて各々10試料に対して線量の異なる (1.231×10^{-4} - $7.388 \times 10^{-4} \text{C/cm}^2$) He^+ イオンを照射した。照射条件は加速エネルギーを4 MeV (^{238}U 核種による α 線を模擬)、ビーム電流300 nA、照射領域 $20 \times 20 \text{ mm}$ とした。CLスペクトル測定には、走査型電子顕微鏡 (JEOL: 5410LV) に回折格子型分光器 (Oxford: Mono CL2) を組み込んだSEM-CLを用いた。得られたCLスペクトルは、標準光源を用い感度補正を行った。また、高分解能のCL画像撮影にはMiniCL装置 (Gatan) を用いた。

CL像観察の結果、 He^+ イオンを照射したすべてのアルバイトにおいて試料表面から深さ方向に15 μm 付近まで帯状の発光の強い領域 (CLハロ) が認められた。このハロ幅は ^{238}U の壊変により放出される α 線粒子の飛程と一致する。 He^+ イオンを照射していない各試料に対してCLスペクトル測定を行った結果、アルバイトには共通して400、560および740 nm付近のスペクトルピークが認められた。420 nmのピークはAl-O-Al欠陥に、560 nmは Mn^{2+} 不純物中心に、740 nmは Fe^{3+} 不純物中心に帰属される。CLハロにおいても同様の発光が認められるものの、その発光強度は低い。また、 He^+ イオンの照射線量が高い試料のハロ域ほど、これらスペクトルピークの発光強度は減少する。ラマン分光分析から、 He^+ イオン照射によりフレームワーク構造の一部の結合が破断され、 Ti^{4+} 、 Mn^{2+} および Fe^{3+} 不純物中心の一部は発光中心として働かなくなると推察された。CL発光は照射線量の増加に伴い減少したと示唆される。一方、各試料のCLハロにおいてのみ620 nm付近のスペクトルピークが検出される。この発光強度は、照射線量の増加に伴い増加する。このことから、620 nm付近にみられるスペクトルピークは α 粒子による放射線損傷により生成された構造欠陥に帰属される。エネルギー単位で表示したCLスペクトルにおいて、ハロ域にお

いて認められるスペクトルピークはすべて、3.05、2.10、1.86および1.56 eV付近をピークエネルギーとする四つのガウス曲線のコンボリューションにより近似される。これら発光成分のうち、1.86 eVの積分強度は衝撃圧力と正の相関関係を、3.05、2.10および1.56 eVの積分強度は負の関係を有する。CL線分析の結果、照射線量の異なる各アルバイトともに試料表面から内部に向かって、放射線損傷により生成された構造欠陥に起因するCLの発光強度は指数関数的に増加し、試料表面から約15 μm の深さで最も高くなる。損傷領域のCL線分析において発光強度分布は、Bragg's curveとよく合い、荷電粒子の侵入に伴う比電離のエネルギー消失過程を反映している。このことから、CL分光分析により α 線粒子の照射により生成される構造欠陥を検出することが可能である。また、660 nm付近のスペクトルピークは希元素鉱物を包有する天然のアルバイトにおいても認められている。このスペクトルピークの発光強度は照射線量と正の相関を示すことから、発光強度から α 線により生成される構造欠陥の欠陥密度を評価することが可能となり、アルバイトのCLによる放射線量計への応用が期待できる。

キーワード:カソードルミネッセンス,アルバイト,放射線損傷, CLハロ,構造欠陥, α 線

Keywords: cathodoluminescence, albite, radiation damage, CL halo, lattice defect, alpha-particle