

MIS028-06

会場:203

時間:5月25日 12:00-12:15

カソードルミネッセンス分光分析を用いた放射線により生成する斜長石中の構造欠陥の検出

Detection of radiation-induced defect center in plagioclase using cathodoluminescence spectroscopy

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 岡山理科大学自然科学研究所, ² 岡山理科大学理学部応用物理学科, ³ 筑波大学生命環境科学研究科

¹Res. Inst. Nat. Sci., Okayama Univ. Sci., ²Dept. Appl. Phys., Okayama Univ. Sci., ³Life Environment. Sci., Univ. Tsukuba

カソードルミネッセンス (Cathodoluminescence: CL) は物質に内在する構造欠陥を鋭敏に反映することから、石英の放射性ハロを観察する手段として CL の利用が図られている。一般に、CL により検出できる放射線損傷を CL ハロと呼ぶ。石英については放射線損傷に関する多くの CL 研究が報告されており、近年加速器を用いた He⁺ イオン照射により放射線が石英の CL に及ぼす影響を定量的に評価する試みがなされている。しかし、試料ごとに線量応答が異なるため、精度の高い地質線量計への応用には至っていない。

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。長石の CL は生成時の温度、圧力だけでなく放射線量にも依存することが知られており、そのため様々な分野において長石の CL を用いた地質線量計への応用が期待されている。しかし長石については、各種放射線により生成される構造欠陥の詳細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線量により生成する構造欠陥の生成効率を評価すべく、アルバイト、オリゴクレイス、アンデシンおよびアノーサイトの 4 つの斜長石に対して He⁺ イオンを照射し、同試料を 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、Minas Gerais、Brazil 産のアルバイト (Or₁Ab₉₉)、愛知県稲武町産のオリゴクレイス (Or₂Ab₈₂An₁₆)、Be-troka, Madagascar 産のアンデシン (Or₁Ab₅₃An₄₆)、東京都三宅島産のアノーサイト (Ab₅An₉₅) 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 (2.18 × 10⁻⁶ から 6.33 × 10⁻⁴ C/cm²) He⁺ イオンを照射した。照射条件は加速エネルギーを 4 MeV (²³⁸U 核種による線量を模擬)、ビーム電流 300 nA、照射領域 20 × 20 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。

CL スペクトル測定の結果、未照射の斜長石には共通して 350、420、560 および 700-740 nm 付近のスペクトルピークが認められた。350 nm のピークは Ce³⁺ 不純物中心に、420 nm は Ti⁴⁺ 不純物もしくは Al-O⁻-Al 欠陥中心に、560 nm は Mn²⁺ 不純物中心に、700-740 nm は Fe³⁺ 不純物中心に帰属される。同様のスペクトルピークは He⁺ イオンを照射した各斜長石試料においても検出されるものの、その発光強度は低い。また、照射線量が高い試料ほど、各スペクトルピークの発光強度は減少する。ラマン分光測定の結果、未照射の斜長石には共通して 505 cm⁻¹ 付近に顕著なピークが認められた。照射線量の増加に伴い、505 cm⁻¹ 付近のピーク強度は減少し、半値幅は増加する。このことから、He⁺ イオン照射により斜長石のフレームワーク構造の一部の結合が破断され、Ce³⁺、Ti⁴⁺、Mn²⁺ および Fe³⁺ 不純物の一部は発光中心として働かなくなると推察される。He⁺ イオンを照射したアルバイトおよびオリゴクレイスにおいてのみ 700 nm 付近に特徴的なスペクトルピークが検出される。照射線量の増加に伴い発光強度は増加することから、700 nm 付近にみられるスペクトルピークは He⁺ イオンの照射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した CL スペクトルにおいて、各スペクトルピークはガウスフィッティングにより 3.05、2.82、2.10、1.86、1.67 および 1.56 eV の 6 つの発光成分に波形分離される。このうち、1.86 eV の発光成分は He⁺ イオンを照射したアルバイトおよびオリゴクレイスにおいてのみ検出される。また、その積分強度は照射線量と正の相関関係を有する。Na に富む斜長石においてのみ検出されることから、1.86 eV の発光成分は O¹⁻/²⁷Al × ²³Na 中心に帰属される。この発光成分は希元素鉱物を包有する斜長石の CL スペクトルにおいても存在する。また、1.86 eV の発光強度は長石の化学組成、結晶構造、微少組織の存在に依存しないことから、CL 分光分析により O¹⁻/²⁷Al × ²³Na 中心の欠陥密度を定量的に評価することができ、地質線量計としての応用が期待される。

キーワード: カソードルミネッセンス, 斜長石, 放射線損傷, 構造欠陥, 放射性ハロ, 波形分離

Keywords: cathodoluminescence, plagioclase, radiation-induced defect center, radiation halo, deconvolution