



Title	ESR and Luminescence for Radiation-Induced Species in Synthetic and Antarctic Ice
Author(s)	矢田, 猛士
Citation	大阪大学, 2005, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/45615
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名 矢 田 猛 士

博士の専攻分野の名称 博 士 (理 学)

学 位 記 番 号 第 1 9 2 4 0 号

学 位 授 与 年 月 日 平成 17 年 3 月 25 日

学 位 授 与 の 要 件 学位規則第4条第1項該当

理学研究科宇宙地球科学専攻

学 位 論 文 名 ESR and Luminescence for Radiation-Induced Species in Synthetic and Antarctic Ice

(合成氷および南極氷における放射線誘起種の ESR とルミネッセンス)

論 文 審 査 委 員 (主査)

教 授 土 山 明

(副査)

教 授 川 村 光 教 授 松 田 准 一 教 授 吉 朝 朗

助 教 授 山 中 千 博

論 文 内 容 の 要 旨

照射効果を用いた氷天体上物質の年代測定や地球上の氷の分析に応用することを目的に、合成氷および南極氷における放射線誘起種について、電子スピン共鳴 (ESR)、熱ルミネッセンス (TL)、光励起ルミネッセンスを用いて研究を行った。TL、および、OSL の測定には自作の測定装置を用い、OSL の励起光源には超高輝度 LED (ピーク発光波長: 623 nm)、TL の測定は液体窒素と二つのヒータを用い、昇温速度を 0.25 K/s に制御し、77 K から 260 K の範囲で測定を行った。

ガンマ線を照射した H₂O と D₂O の氷の TL と OSL において、発光強度や発光の減衰過程に著しい違いが測定された。このような違いは氷の発光現象に水素原子あるいは重水素原子の拡散が影響していることを意味している。H₂O および D₂O 氷の OSL は光励起下で 600 秒以上発光が続き、励起を中止すると 1 秒以内に発光強度はゼロになった。土星、天王星、海王星の衛星に存在すると考えられているアンモニア水氷を用いた実験では、アンモニア濃度の増加にともない、OSL の発光強度の増加が測定された。アンモニアが氷中に D 欠陥を導入した結果、OSL の発光強度が増加したと考えられる。

77 K で γ 線を照射した氷では 120 K に H₂O 分子に起因する TL ピークが測定される。この TL ピークの発光強度は H₂O 氷およびアンモニア水氷の両方でガンマ線照射線量に対して少なくとも 15 kGy までは直線的に増加した。仮に年間線量率を 1 mGy/a とした場合、この 120 K の TL ピークを用いた年代測定は 1500 万年までの範囲で可能である。さらに、170 K 以下ではこの TL ピークの寿命は OH、NH₂ ラジカルよりも長いことが判明した。熱安定性の観点から、たとえば海王星の衛星トリトン (~50 K) では、10 億年以上の範囲で年代測定が可能である。

地球の氷の照射効果を使った環境評価の可能性を探るため、南極氷床コア試料、および、霧氷中に生成される放射線誘起種の測定を行った。77 K でガンマ線を照射した氷 Ih において通常測定される OH ラジカルに加え、NO₂ の ESR 信号が両方の氷で得られた。ESR を用いた NO₂ の検出限界はおおよそ 0.02 ppm と見積もられた。感度の面ではイオンクロマトグラフが優れているが、固体の試料でも測定可能であることが ESR の利点である。また、南極氷では H₂O 分子から生成される 120 K の TL ピークのほかに、170 K と 210 K にも TL ピークが測定された。溶存酸素の影響を調べるために行った合成氷の実験では、脱ガスにより 170 K 付近に TL ピークが生成されることが確認され

ている。したがって、南極氷で測定される 170 K TL ピークは氷の脱ガス度の指標となる可能性がある。また、氷の深さが 30 m から 40 m に変わる付近で、170 K の TL ピークの活性化エネルギーの増加が測定された。30 m 付近での氷の電気伝導度の増加と対応が示唆される。

論文審査の結果の要旨

本学位申請者は、 H_2O 氷の放射線損傷欠陥を用いた地球環境・惑星科学的研究を念頭において、合成氷による実験と共に、南極氷床試料と冬期の日本における霧氷などを用いてその複雑な放射線欠陥の安定性を調べた。用いた手法は、主に電子スピン共鳴法 (ESR)、熱ルミネッセンス (TL)、および光刺激ルミネッセンス (OSL) 法である。申請者は低温物質の OSL 測定装置を自作し、定量的研究に耐える試料作成法を工夫し、以下の実験を行った。まず、軽水 (H_2O) および重水 (D_2O) 氷のガンマ線誘起欠陥について、初めて 400 nm 付近の強い OSL データを提示するとともに、その同位体効果を認めた。また OSL を行う前後において TL 実験を行い、OSL 現象が TL の 120 K 付近のルミネッセンスに影響を与えない、すなわち、この TL と OSL において関与する欠陥種が異なることを明らかにした。また照射ガンマ線量と対する欠陥量の飽和を測定し、当該の TL ピークに対して 15 kGy、また OSL に対して 2.5 kGy であることを実験的に示した。このほか ESR による欠陥の熱安定性データと比較、議論を行っている。

次に、惑星科学的に重要であるアンモニア含有氷についてガンマ線による Radiolysis 研究を展開し、400 nm 付近の OSL がアンモニア含有量に依存して増大すること、また TL においては数種のピークを観測し、それらの熱活性化エネルギーや振動数因子などを測定し、ESR によるデータの比較検討を加えている。一般に、ルミネッセンス法による固体中の放射性誘起欠陥種の同定は困難であるが、本研究では束縛電子の影響が OSL に関連していることが示唆された。また 170 K 以下の環境においては、アンモニア含有氷の 120 K にあられる TL ピークが、OH ラジカルや NH_2 ラジカルより安定であることが示された。このことは外惑星環境における放射線欠陥を利用した年代測定や放射線線量測定への指標となる点で重要であると考えられる。

さらに申請者は、地球環境中の氷試料の不純物分析の可能性を考慮して、南極氷床ボーリングコア試料、および国内霧氷試料などを用いて研究を行い、低温におけるガンマ線照射後、ESR により NO_2 ラジカルの存在を確認した。また ESR 法によって固体状態での NO_2 検出限界 ~ 0.02 ppm を得ている。この検出限界数値は質量分析法などに比べれば不満足であるが、固体状態における分析としては十分に高い。南極氷における TL では、不純物発光として、170、210 K のピークが見られたが、ボーリング深度に応じて変動が見られ、南極の環境変動履歴を示唆するデータが得られた。これらは更に綿密な、サンプリングとデータ検証を必要とするが、新たな研究可能性を開くものと期待できる。

以上のように、申請者は、水というシンプルな対象を用いて、惑星科学、環境科学の研究における基礎的に重要な物性的知見を発見し、また各欠陥の放射線量依存性、熱安定性について実験的に複数の手法で調べた。よって博士の学位に相当するものと認める。