OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	ESR Study of γ ray-induced Ge-related Centers in Natural Crystalline Quartz : UV-C Light Irradiation and Aging Effects
Author(s)	服部, 渉
Citation	大阪大学, 2007, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/48757
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、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

【21】

氏　　名	服部　渉（はっとり　わたる）
博士の専攻分野の名称	博　士（理　学）
学位記番号	第　２１６３６　号
学位授与年月日	平成 19 年 12 月 20 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 Study of γ ray-induced Ge-related Centers in Natural Crystalline Quartz : UV-C Light Irradiation and Aging Effects **（天然水晶におけるガンマ線誘起ゲルマニウム中心の電子スピン共鳴法による研究：紫外線Ｃの照射効果とエイジング効果（時効））**
論文審査委員	（主査） 教　授　徳永　史生 （副査） 教　授　中嶋　　悟　　教　授　土山　　明　　准教授　山中　千博 准教授　植田　千秋

論　文　内　容　の　要　旨

自然界の鉱物における放射線誘起格子欠陥の光ブリーチの機構は詳しくわかっていない。本研究は天然石英（水晶）中の欠陥であるゲルマニウム中心の紫外線 C による照射効果を中心としたものである。研究手段として電子スピン共鳴（ESR）が使われた。

天然水晶を切断して試料とし、人工的にガンマ線を照射（本研究では 5 kGy が中心）するとゲルマニウム中心の一種である［$Ge(C)e^- / Li^+$］と［$Ge(A)e^- / Li^+$］と名づけられた（不対電子を持つ）格子欠陥が生成する。これらは ESR によって検出され室温ではかなり安定であるが、これまでの他の研究者の研究では太陽光や広帯域の紫外線を被曝すると消滅してしまう。

この試料にさらに人工的に、主として 254 nm の波長を持つ紫外線（UV-C）を 15～30 分照射すると、確かにこれらの欠陥を示す ESR 信号は消滅するが面白いことに同時に未知の欠陥を示す信号が一本観測される。さらにそのまま室温で暗所に保存しておくと１週間～１カ月くらいで徐々にその未知の信号は減衰・消滅していき、代わって同時に第３の信号（この欠陥は既知で Ge E'_2 と考えられる）が徐々に生成する。コンピュータシミュレーションなどの結果、未知の欠陥の構造は　≡Si-Li・Ge≡　と推定される。また ESR 信号が示す不対電子密度の変化を、UV-C 照射前後と時間経過前後という観点で調べると一定に保たれることがわかった。

次に紫外線の当て方を変えてみると（弱い光線を徐々に照射しながらその都度一旦照射を中止して ESR 測定を実施）、ガンマ線のみで生成した信号が減衰しても第２の信号はすぐには現れず、ESR 信号が何も観測されない状態ができることがわかった。しかしその後室温で放置するだけで第２の信号がやはり生成しさらに第３の信号へと転化していくことがわかった。第１の信号の減衰・第２の信号の減衰・第３の信号の生成は分析の結果、二次反応であることがわかった。一連の現象を物理・化学的に説明できるモデルを提案した。

地球の表面には UV-C は到達していないが、高空を飛ぶ風成塵など地球科学的応用の可能性についても論じた。

論文審査の結果の要旨

服部渉君提出の博士論文「ESR study of γ-induced Ge-related centers in natural crystalline quartz：UV-C light irradiation and aging effects」は、ガンマ線照射により天然石英中に誘導されるゲルマニウム（Ge）中心の紫外線照射後の変化について、単結晶試料と電子スピン共鳴測定（ESR）法による研究を行った。

光ブリーチ現象を利用した光誘導ルミネッセンス（OSL）堆積物年代測定は、第四紀の地球環鏡の変遷を調べる上で、極めて重要な手段となりつつある。しかしながら、天然鉱物における放射線欠陥の米ブリーチングの機構解明は、ほとんど行われておらず、また OSL 法それ自身では、詳細に解明することは困難であった。申請者は、Ge 中心が、ESR センシティブであるとともに、太陽光、可視光でブリーチする常磁性欠陥であることに着目し、これを紫外光ブリーチさせることで、そのブリーチング機構の解明につなげる意図のもとに研究を行った。

まず、申請者は試料として天然の単結晶水晶を選び、ガンマ線を照射して Ge 中心を生成させた。次いで水銀ランプを用いて、主波長 254 nm を有する紫外線（UV-C）照射を、照射線量を変えながら実施し、電子スピン共鳴法（ESR）を用いて欠陥の挙動を調べた。その結果、ガンマ線誘起 Ge 中心が、見かけ上のブリーチングを示すこと、しかしその後のエイジングに伴って、他の種類の Ge 中心に転換する過程を発見し、その機構についてさらに研究を進めた。

天然単結晶石英に人工的にガンマ線を照射すると、[Ge(C)e^- / Li^+] と [Ge(A)e^- / Li^+] と名づけられた放射線欠陥が生成する。続いて UV-C 照射を行うと、1.8×10^{18} photons/cm^2 程度までの UV-C 照射で、[Ge(C,A)e^- / Li^+] を示す ESR 信号は完全に消滅し、同時に異なる信号（g 値 1.9946～1.9947）が生成する。申請者は、この新しく発見された信号（X）を示す格子欠陥の構造について、Li 核の存在を考慮した ESR スペクトル計算機シミュレーションにより、≡Si-Li・Ge≡（不対電子を・で表す）であることを明らかにした。この信号は室温で不安定であり 1 ～ 4 週間後には観測されなくなる。興味あることには、aging により X は、第 3 の信号に転換することが判明し、これが Ge E_2' という既知の欠陥であることを確認した。また 5 kGy 程度のガンマ線の照射後、UV-C を照射した場合、試料に観測された電子スピン密度の合計は、ガンマ線照射後から aging の終了までの間、ほぼ一定に保存されていること、すなわち、欠陥が転換しながらも存在し、中途見られるブリーチングは見かけ上のものであることを確認した。さらに、[Ge(C,A)e^- / Li^+] の太陽光線によるブリーチは一次反応であるが、UV-C によるブリーチは二次反応であって異なる機構であることを見出し、さらにX信号の緩和反応と Ge E'_2 信号の生成反応は、絶対値の等しい速度定数を持つ二次反応であることを明らかにした。このほか、最終的に生成した欠陥 Ge E_2' は、石英中での酸素空孔欠陥であり、この酸素空孔がガンマ線照射後の UV-C によって生成されたと考えられる証拠を提出し、最終的に、欠陥転換過程のモデリングとその検討を行った。

以上の成果は、今まで考えられてきた放射線欠陥の光ブリーチの一般的なモデルと異なるケースを明示したことであり、今後の研究の発展が期されるものである。また磁性物理学的には、紫外線照射とエイジングに伴う常磁性－非磁性転換過程の例という興味ある例を示したものといえる。

以上のように、申請者提出の論文は、放射線欠陥を用いた年代測定法の基礎部分に貢献するものであり、また磁性物理分野においても興味深い知見を与えるものである。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値あるものと認める。