

〔論文〕

## X線照射による斑晶石英の熱蛍光グロー曲線

林 正雄\*・許 建明\*\*

Thermoluminescence Glow-curves of Quartz Phenocrysts Irradiated with X-rays

Masao HAYASHI and Jianming XU

**Abstract:** TL glow-curves of quartz phenocrysts irradiated with X-rays at 30, 40 and 50 kV have been observed using a highly-sensitive TL measurement system. Glow-curves of the natural samples have a strong peak at 280°C and an intermediate one at 340°C. The irradiated samples were heated at 130°C for 12 hrs for “thermal washing”. The results show that the intensity ratios of the 280°C to the 340°C for natural specimens reverse after the X-ray irradiation within the experimental conditions, increasing with proportionally to the accelerating voltage of a tungsten X-ray tube. This indicates that exact evaluation of the equivalent dose for TL dating is difficult using X-ray irradiation.

**Keywords:** thermoluminescence, glow-curve, quartz phenocryst.

## 1. はじめに

熱蛍光 (TL) 年代測定においては、年代測定を対象とした鉱物が被曝した等価線量を見積もる必要がある。等価線量は、放射線を段階的に人工照射したのち、TL 強度の変化状況から評価される。一般的には、人工照射には<sup>60</sup>Coからのガンマ線が利用されている<sup>1)</sup>。人工照射装置が TL 測定装置に内臓されている器機では、<sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y や <sup>132</sup>Cs が使用されている<sup>2)</sup>。最近、X線発生装置を搭載した TL 自動測定システムが開発された<sup>3)</sup>。

本研究は、等価線量の評価に X線回折計や蛍光 X線分析装置を用いることを目的として、X線の管電圧・管電流と TL 信号との関係を検討した。その結果、X線照射は簡易的で有効な手法であるが、照射エネルギーによって TL 信号に差異が生じることが明らかになった。

## 2. 測定試料

今回の実験に用いた石英は、大分県玖珠郡九重町宝泉寺 (33° 11' 05" N, 131° 10' 53" E) に分布する玖珠層群中部層溶岩から分離した。本岩は、石英含有普通角閃石黒雲母デイサイトで、直径 1.3mm 以下の石英斑晶を含んでいる。全岩の K-Ar 年代は (0.69±0.08) Ma である<sup>4)</sup>。

試料約 1kg を採取し、最初にハンマーで直径 5cm 以下に粉砕した。この粉砕試料をステンレス鉢に入れ、粉砕に伴って発生する摩擦熱を最小限度に抑えるため、水に浸した状態で直径 5mm 以下に粉砕した。その後、約 200g を自動乳鉢 (日陶科学 ALM-200) に入れ、水を加えて約 10 分間粉砕し、直径 2mm 以下とした。100°C 以下で乾燥後、直径 0.5~1mm の粒子をふるい分けし、ハンドマグネット で磁性鉱物を取り除いた。非磁性鉱物の中から、ピッキング法によって石英粒子を抽出した。抽出した石英は、5 mol の NaOH (常温) で 2 時間処理したのち、HCl (1:1) に 2 時間浸して表面の汚れを除去した。精製した斑晶石

\* 都市基盤デザイン工学科

\*\* 中国・湖南農業大学

英は、高温型であるため、ソロバン玉状の結晶形を示すものが多い (Photo 1)。

Fig. 1 に示すように、この斑晶石英は、三次元の TL スペクトルにおいて、波長範囲が 530~720 nm で、典型的な“赤色 TL 石英 (red TL-emitting quartz)” に酷似している<sup>9)</sup>。発光温度は 200~350°C で、275°C と 330°C にダブルピークを有している。なお、この斑晶石英に X 線を照射すると、同じ温度範囲内の青色領域に、赤色発光よりも強い信号が生成するほか、100~200°C 間にも弱い青色信号が認められる。

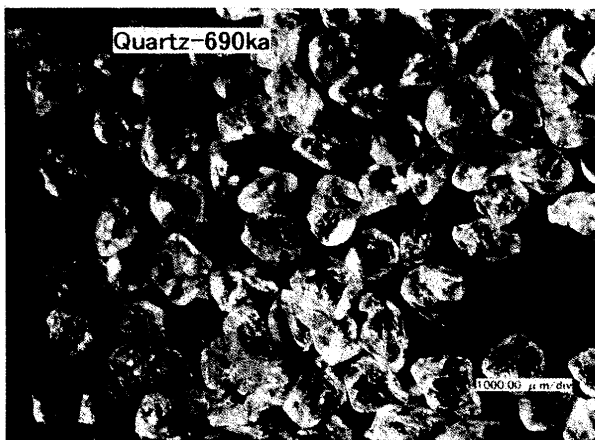


Photo. 1. High-temperature quartz phenocrysts used in the experiment (the bar at the lower-left corner corresponds to 1mm).

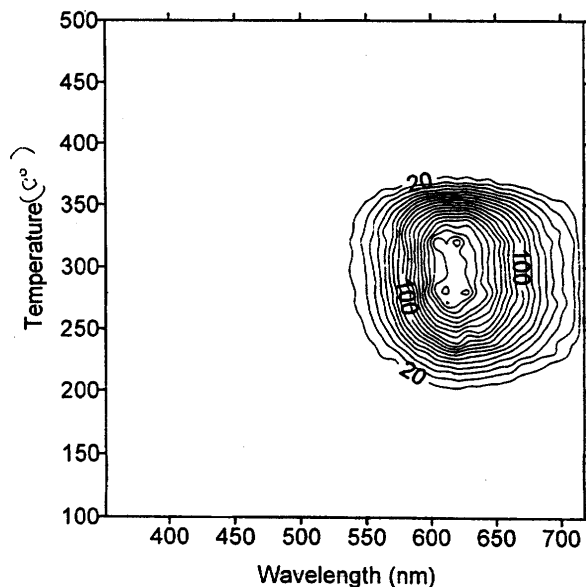


Fig. 1. Three-dimensional TL glow emissions from quartz phenocrysts used in the experiments.

### 3. 実験方法

精製した石英斑晶から、立体顕微鏡下で粉碎されていない円形の粒子を選び、電子天秤によって粒子ごとの重量を 0.01 μg まで秤量した。

秤量した粒子は、超高感度 TL 測定装置 (Fig. 2) を用いてグローカーブを測定した<sup>6)</sup>。昇温率は 1°C/s で、室温から 500°C まで加熱した。TL 信号強度は、100~425°C 間の発光量とバックグラウンドを 1 秒ごとに取得し、両者の差として求めた。

天然 TL 信号を測定した粒子は、厚さ 0.2mm のアルミニウム吸収板で覆った容器に入れ、X 線照射に供した<sup>7)</sup>。

X 線の照射は、九州産業大学総合機器センターの大型試料室付蛍光 X 線分析装置 (理学電機) を使用した。加速電圧・管電流は 30kV・30mA、40kV・40mA、50kV・50mA である。照射雰囲気は真空である。

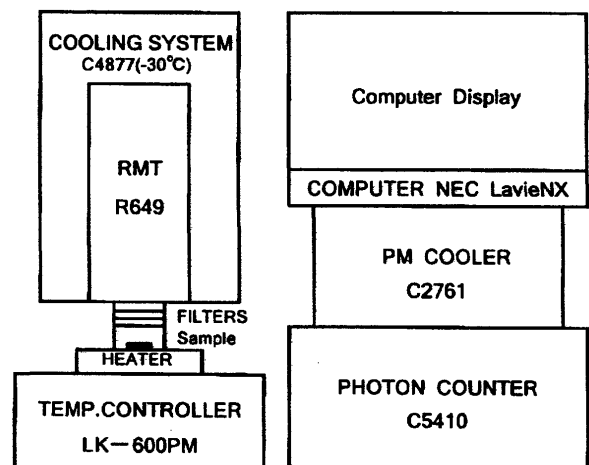


Fig 2. Block diagram of computer-controlled TL system.

### 4. 実験結果および考察

天然試料の TL グロー曲線を Fig. 3 に示している。グロー曲線は 280°C に最強ピークを持ち、340°C に中程度のピークを持っている。単位重量あたりの総発光量は平均  $1.83 \times 10^6$  フォトン (c/mg) で、ピークの 280°C において 18,000 cps/mg/sec である。まれには、発光強度が 1 桁低い粒子も存在するが、この場合低温側の強度低下が著しい。

Fig. 4 は、実線が天然試料のグロー曲線を示しており、破線が X 線を 50kV・50mA・2 分間照射した人工 TL 信号を記録したものである。両者を比較すると、天然信号では 280°C のピークが最強であるが、天然信号では 340°C が最

強になっており、その他 190°Cや 100°C付近にも新たな発光が認められる。これ以後の試料は、照射試料を 130°Cで 12 時間サーマルウオッシングを行い、人工信号の観測を行った。

Fig. 5 は、X線を 30kV・30mA・2 分間照射した人工信号を示している。ほとんどの粒子は、340°Cに最強ピークを持ち、280°Cの信号が非常に弱い。例外的には、天然試料と類似したグロー曲線や中間的なグロー曲線を示すものも認められる。

Fig. 6 は、X線を 40kV・40mA・2 分間照射した人工信号を示している。全粒子とも類似したグロー曲線で、340°Cに最強ピークを持つが、280°Cの信号もほぼ同等の強度を有している。

Fig. 7 は、X線を 50kV・50mA・2 分間照射した人工信号を示している。全粒子とも類似したグロー曲線で、280°Cのピークに比べて 340°Cのピークがかなり強くなっている。

以上のように、照射 X 線のエネルギーによって、発光信号のパターンに明らかな違いが生じ、X 線のエネルギーが大きくなると、高温側の信号が強くなることが明らかになった。

3次元 TL スペクトル観測データによると<sup>5)</sup>、今回実験に用いた同じ石英に X 線を照射した試料は波長 350~550nm 領域の青色領域に、天然信号よりも強い 250~350°C の発光が認められ、サーマルウオッシング後にもその一部は残存している。一方、200°Cより低温の信号はサーマルウオッシングによって完全に消失する。

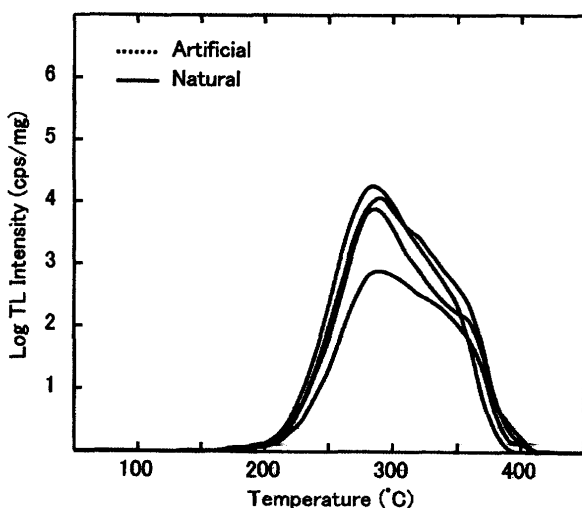


Fig 3. Glow-curves of natural quartz phenocrysts separated from dacite of 690 ka.

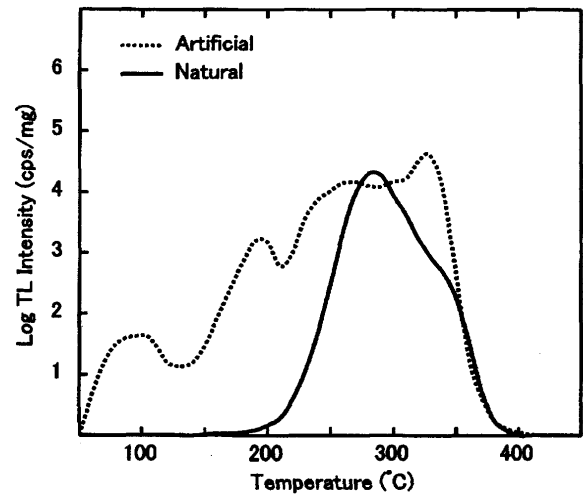


Fig 3. Glow-curves of natural quartz (solid line) and an X-ray irradiated sample (dotted line).

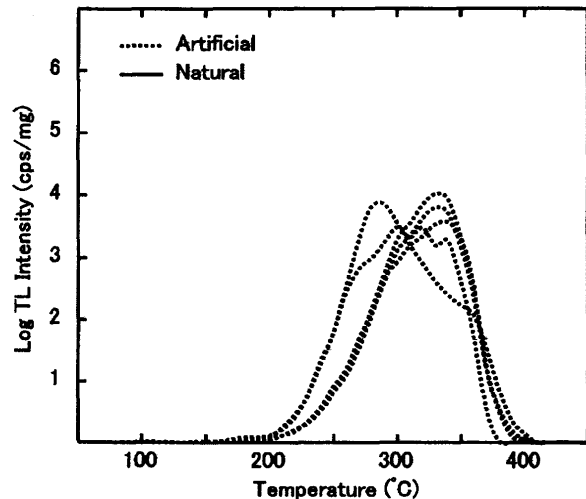


Fig 4. Glow-curves of quartz irradiated with X-rays at 30kV and 30mA for 2min.

以上述べたことから、X線照射によって天然の TL 発光を再現するためには、より低エネルギー領域の線源を使用する必要がある。さらに、130°Cで 12 時間のサーマルウオッシングを行っても、青色領域の高温の信号を除去することができない点も問題である。結論的には、X線照射によって天然の TL 発光状態を復元することは非常に困難であり、TL 年代測定における等価線量を X線照射によって評価するためには、さらなる検討が必要である。

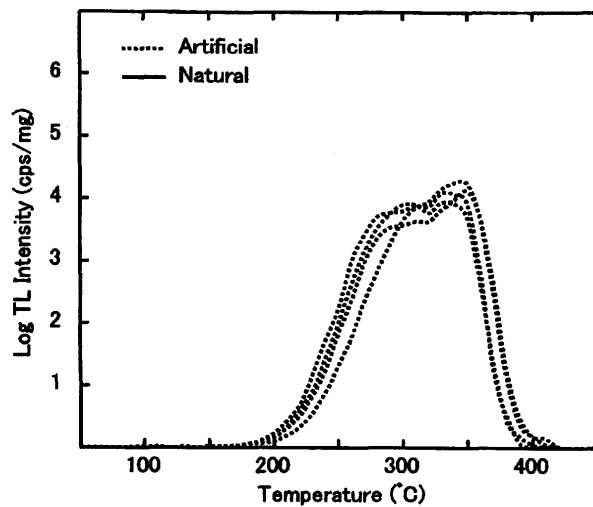


Fig 5. Glow-curves of quartz irradiated with X-rays at 40kV and 40mA for 2min.

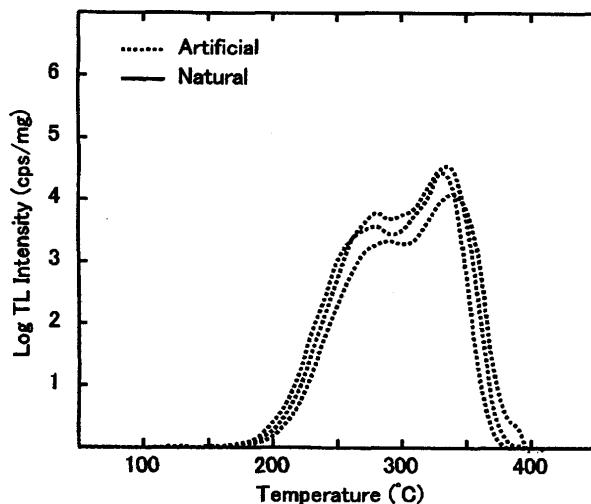


Fig 6. Glow-curves of quartz irradiated with X-rays at 50kV and 50mA for 2min.

## 5. まとめ

放射年代が690kaのデイサイトから分離した斑晶石英(赤色発光型)について、粒子ごとの天然およびX線照射試料のTLグロー曲線を検討した結果、以下のことが明らかになった。

(1) 天然試料のTLグロー曲線は280°Cに最強ピークを持ち、340°Cに中程度のピークを持っている。単位重量あたりの総発光量は平均  $1.83 \times 10^6$  (c/mg) で、ピークの280°Cにおいて18,000cps/mg/secである。

(2) X線を照射した人工信号は、340°Cのピークが最強になり、190°Cや100°C付近に新たな発光が認められる。

(3) 280°Cと340°Cのピーク強度比は、照射X線のエネルギーに比例して大きくなる。

(4) 今回の実験条件内では天然試料のTL発光状況を再現することはできなかった。

(5) X線照射とサーマルウオッシングによって、TL年代測定における等価線量を評価するためには、さらなる検討が必要である。

## 引用文献

- 1) Aitken, M.J.(1985) Thermoluminescence Dating. Academic Press, London. 1-359.
- 2) Murray, A. S. and Wintle, A. G. (2000) Radiat. Meas., 32, 57-73.
- 3) 橋本哲夫・中川貴博・薄田隼人・八幡崇 (2002) 分析化学, 51,625-632.
- 4) 宇都浩三・須藤茂 (1985) 地調報告, 264, 65-83.
- 5) 林正雄・許建明 (2005) 九州産業大学総合器機センター研究報告, 8, 1-8.
- 6) Xu, J., Ishida, K. and M. Hayashi (2005) Bulletin of the Graduate School of Social and Cultural Studies, Kyushu University., 11, 93-98.
- 7) 鷹澤好博・白井理沙・田中瞳・東剛 (2007) 地質学雑誌, 113, 470-478.