

# レーザー加熱による遠隔熱ルミネッセンス

## —惑星探査と年代測定への提案—

高木俊二<sup>1</sup>，山中千博<sup>1</sup>，池谷元伺<sup>1</sup>

離れた物を非破壊・非接触で観察する遠隔測定法はこれまで多く開発されてきた。ここでは、レーザー光を熱源に用いた「遠隔熱ルミネッセンス (Remote Thermoluminescence : R-TL)」の試みを紹介したい。

人為的に $\gamma$ 線を照射した方解石( $\text{CaCO}_3$ )結晶を $\text{CO}_2$ ガス赤外レーザー光で遠隔加熱し、熱ルミネッセンスを測定した。レーザー光照射点が初めに発光し、熱伝導に従い発光場所は時間とともに同心円状に広がっていった。熱伝導方程式の数値シミュレーションから、TL発光像の画像解析および実験データとの比較を行った。将来は遠隔熱ルミネッセンスが、野外調査や惑星探査において年代測定に利用できればと考える。

### 1. はじめに

結晶内に自然放射線などにより生じ蓄積している格子欠陥は、準安定状態の捕獲電子を熱的に励起しホールと再結合するときに観察される熱ルミネッセンス(Thermoluminescence : TL)および磁場中でマイクロ波吸収を調べる電子スピン共鳴(Electron Spin Resonance : ESR)などで測定されてきた。格子欠陥の蓄積量と年代値の相関関係から「ESRまたはTL年代測定法[1,2]」として、結晶生成や再結晶時の年代測定に応用されている。現在、長石・石英・炭酸塩などを用いることによって、火山噴火、隕石落下[3]、クレータ生成[4]、および

人類学的化石などの年代値が測定されている。主に第四紀(200万年前～現在)の年代測定に用いられ、5～20%の精度で測定が行われている。最近は光刺激発光(Optically Stimulated Luminescence: OSL)による捕獲電子の蓄積量から、太陽光がさえぎられて以来の年代、すなわち石英砂の堆積層年代測定にも応用されている。

年代測定の応用範囲が広がるにつれて、精密な測定装置と同様に、簡単にどこにでも持ち運べる小型の測定装置も必要になる。この要請に対して、小さなガスライターで試料を加熱し、半導体光検出器を使った小型軽量のTL測定装置が開発された[5]。装置の軽量さを生かして、野外活動では試料採取をしながら測定ができる強みを持ち、将来は衛星や惑星などに着陸する探査船に積むことも可能と思われる。惑星探査で期待される年代測定は、隕石衝突や加熱などのイベント発生の年代値の評価があげられる。地上に落ちた隕石のTL測定から、隕石は宇宙空間で $0.01 \sim 0.1 \text{ Gy/year}$  (Gy:グレイは放射線の吸収線量の単位で $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J/kg}$ )に相当する放射線を受け、TLの信号が飽和するまでに $10^6$ 年程度の年代がかかること見積もられている[6]。このことから、 $10^6$ 年程度までの年代測定が可能であり、環境温度の低い外惑星ではさらに $10^6 \sim 10^7$ 年までの年代測定が可能である。

ここでは便利さを一歩押し進めた、R-TL測定装置の開発を試みた。試料の加熱にこれまで使われてきたヒータの代わりに $\text{CO}_2$ ガスレーザーの赤外光

<sup>1</sup>大阪大学理学部宇宙地球科学科

を用い、装置から離れた場所の試料を加熱し、発光を画像測定する。このためR-TL測定では離れたところからレーザー光を走査するだけで、一気に地層の鉱物中の格子欠陥濃度分布が決定できるという利点を有する。

## 2. 方解石のR-TL測定実験

### 2.1 R-TL測定装置

試料の加熱のために熱源として、最大出力10WのCO<sub>2</sub>ガスレーザー(Synrad: 48-1-28SW)を用い、波長10.6 $\mu$ mの赤外光を2Wの出力で試料に直接照射して加熱した。レーザー内の反射鏡は3mの曲率半径を持ち、ビーム径は3mm、ビームの収束性は5mradianである。図1にR-TL装置の概略図を示す。試料と装置の間の距離は自由に変えることができるが、実験では1mに距離を固定し測定を行った。TLは波長300-650nmの範囲を集光する事なく光電

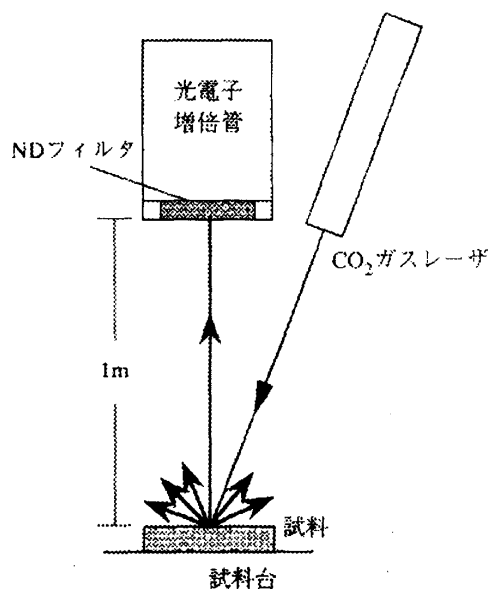


図1. R-TL装置の概略図。試料は赤外光レーザーで遠隔から加熱され、TLは直接直径46mmの光電面をもつ光電子増倍管で測定される。試料とレーザーおよび検出器の距離は1mである。NDフィルタはTL強度が強いときのみ減光するために使用した。

子増倍管(浜松フォトニクス:R878)を用いて直接測定し、発光強度が強すぎる場合はニュートラルデンシティ(ND)フィルタで減光して測定した。写真(コニカ:GX3200)はシャッター時間2秒で撮影を行った。

### 2.2 方解石のTL基礎データ

R-TL測定の基礎データを得るため、方解石の単結晶を<sup>60</sup>Coからの $\gamma$ 線により500Gy照射し、通常のTL測定を行った。毎秒5 $^{\circ}$ Cの昇温速度で測定した結果、図2(a)に示すように230 $^{\circ}$ Cと370 $^{\circ}$ Cに二つの

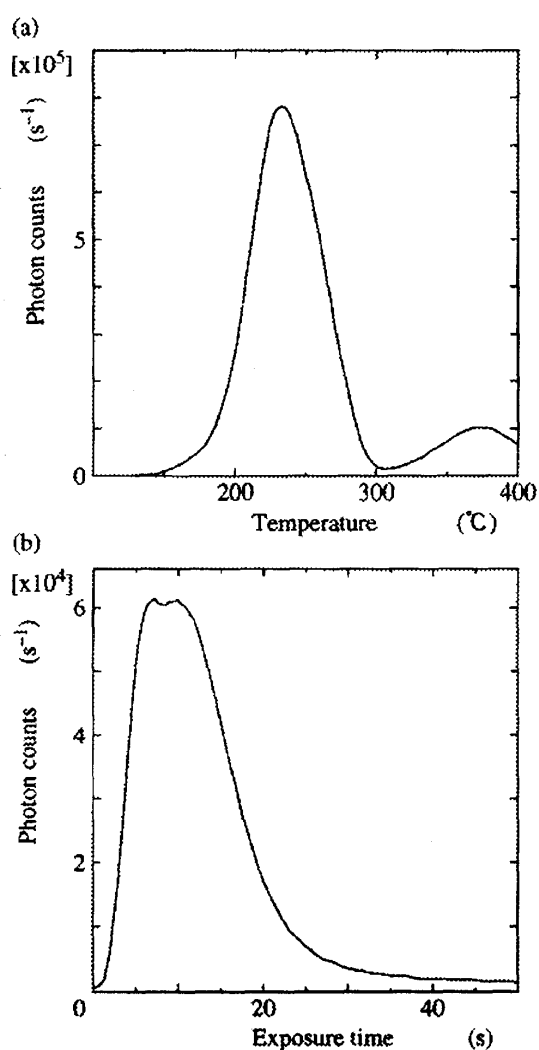


図2. (a) 方解石のTL曲線. (b) 方解石のR-TL測定の結果.

ピークを持つTL曲線を得た。TL曲線から2つのTLピークの活性化エネルギーはそれぞれ1.23 eVおよび1.58 eV，振動数因子(熱エネルギーが捕獲状態の電子に作用する単位時間当たりの回数)は $5 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$ と求められた。このTLピークは， $\text{CaCO}_3$ 中の電子中心 $\text{CO}_3^{\cdot-}$ から生じた $\text{CO}_2^{\cdot-}$ とホール中心 $\text{CO}_3^{\cdot-}$ の再結合によるものと考えられている[7]。このデータをもとにしてR-TL測定の実験結果と比較することによって議論を進めて行きたい。

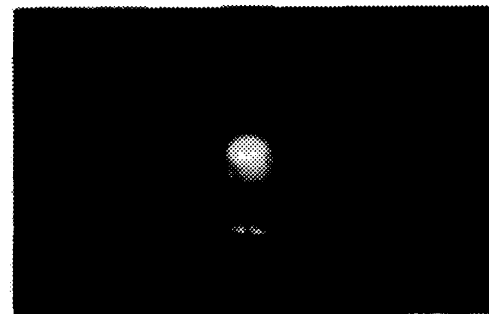
### 2.3 R-TL曲線

図2(b)は方解石の単結晶を1 mの距離からレーザー加熱したときの，結晶全体からのTL強度の時経変化である。レーザー照射と同時に試料は加熱され続ける。それに伴い発光は急激に強くなり，8秒後にピークが現れた。そのピークの肩に重なる形で10秒後にもう一つのピークが現れた。これらは図2(a)の230℃と370℃のピークにそれぞれ対応しているものと思われる。その後60秒程度までTLが観測された。発光が強いためNDフィルタを用い0.3%に減光してある。バックグラウンドは，主にレーザー管から放出される放電光である。

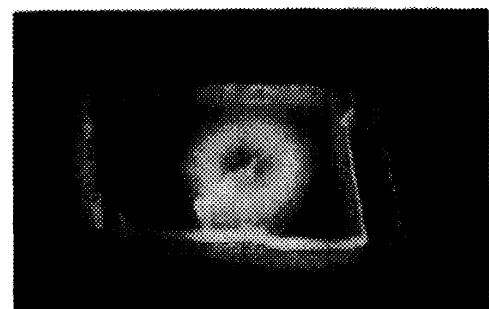
### 2.4 R-TLの連続写真

試料としては， $\gamma$ 線を1000 Gy照射した縦横17×10 mm，厚さ2 mmの方解石の単結晶を用いた。そのR-TLの時間的変化を図3に示す。測定中は赤外レーザーが結晶の中心部分に連続的に照射されている。

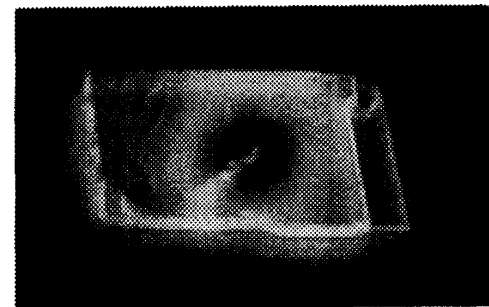
- (1)  $\tau = 1 \text{ s}$ : TLがレーザー照射直後レーザーの当たっている場所に現れた。発光場所は時間と共に広がっていった。
- (2)  $\tau = 30 \text{ s}$ : 温度の上昇と共に中心部分は発光が終わり，その周辺部分が発光をはじめた。従ってレーザー照射部分を中心にしてTLがリング状に時間と共に広がっていくように見える。



$\tau = 1 \text{ s}$



$\tau = 30 \text{ s}$



$\tau = 60 \text{ s}$



$\tau = 150 \text{ s}$

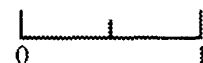


図3. 方解石のR-TLの時間的変化。

- (3)  $\tau=60$  s: 試料が更に加熱されることにより, TLのリングはさらに広がっている.
- (4)  $\tau=150$  s: 結晶の周辺部を残して, TLはほとんど終わっている.

結晶の周囲の空間が光っている様に見えるのは, TLが試料台に反射したものである.

## 2.5 R-TLの数値シミュレーション

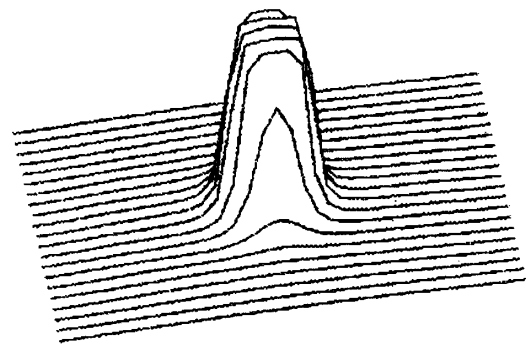
TLのリングが広がっていく速度は物質の密度や熱伝導率などに関係してくる. このことから逆に測定試料のTLに関する活性化エネルギー, 振動数因子などが分かっている場合, 物質の密度や熱伝導率が数値シミュレーションによって遠隔からの測定結果から類推できると思われる. さらに方解石のTL曲線では二つのピークが観測され, それらのピークが二つのTLのリングとして観測されることが期待されたが, 写真には一つのリングしか観察されなかった. そこで, 図2(a)から求めた活性化エネルギー, 振動数因子さらに方解石の比熱などのパラメータをもとに, 数値シミュレーションを行い実験結果を検証してみた.

熱伝導の基礎方程式は, 結晶の温度( $\theta$ ), 物体の密度( $\rho$ ), 物体の比熱( $c$ ), ならびに熱伝導率( $\lambda$ )を温度によらず一定とすると,

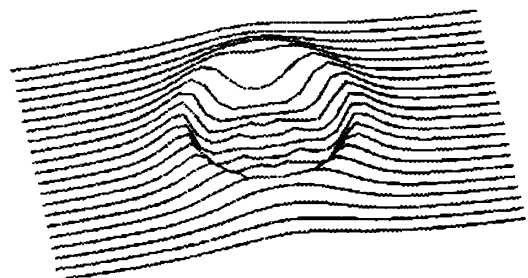
$$\frac{\partial \theta}{\partial \tau} = \frac{\lambda}{\rho c} \left( \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \theta}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} \right) + \frac{Q}{\rho c} \quad (1)$$

になる. ここで,  $Q$ は単位時間当たりの熱流量である.

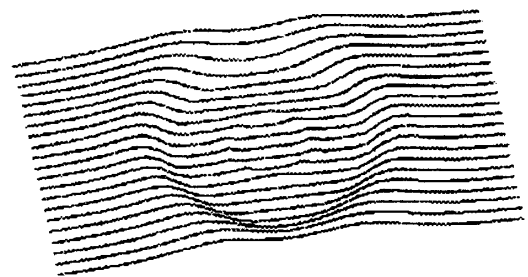
写真に使用したのと同じ大きさのモデルを用いレーザーの吸収効率を100%と仮定し, 上の式に従って数値シミュレーションした結果を図4に示す. 図3に示した連続写真と同じ様に, TLが中心からリング状に広がっていく結果が得られた. 230°CのTLピークに対応する発光は, 370°Cのものよりはるかに強いため, 数値シミュレーションでも内側にある2つ目のTLのリングはほとんど見えない. この



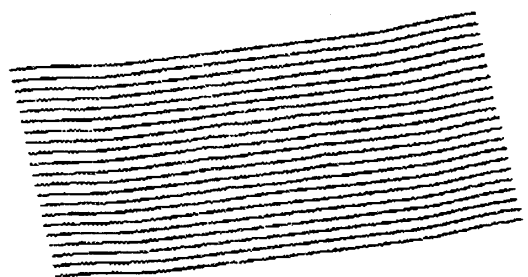
$\tau = 1$  s



$\tau = 10$  s



$\tau = 20$  s



$\tau = 60$  s

図4. 図2(a)の実験結果を基に計算した方解石のR-TLの数値シミュレーション結果.

ため写真に1つのTLのリングしか写っていない様に見えることが説明された。

数値シミュレーションの方がリングの広がり方が3倍速いのは、レーザーが実際の測定では結晶の表面で反射され、レーザー出力の一部しか加熱に寄与しない事が原因と思われる。このためレーザーの吸収効率の評価が、遠隔測定から物質の密度や熱伝導率を見積もる場合、重要になってくると思われる。

### 3. アエンデ隕石のR-TL実験

着陸に困難が伴う小惑星探査時に、探査船が着陸する事なしに遠隔測定ができれば便利である。小惑星探査時にR-TLが使い得るかを見積もるため、TLが詳しく研究され、比較的大きな試料の入手が容易なアエンデ隕石の小片を用いてTL及びR-TL測定を行った。

アエンデ隕石は1969年にメキシコのアエンデに落ちた炭素質石質隕石で、隕石雨として2トン以上降ったといわれている。白色含有物(calcium-aluminum rich inclusion : CAI)を有し原始太陽系の化学・同位体組成をそのまま保存していると考えられている。また、主に宇宙放射線によって誘起されたと考えられる格子欠陥によって、CAIがOSLを示す事が報告されている[8]。

試料として、未照射の縦横10×10mm、厚さ3mmのものを用いた。まず隕石の小片からアメーバ状のCAIの一部を取り出し、ヒータによる加熱により図5(a)に示すように260℃にピークを持つTL曲線を得た。その他のマトリクスの部分からTLはほとんど検出されなかった。

その同じ小片を1mの距離からR-TLの測定した結果を図5(b)に示す。照射開始後、1秒後と2.5秒後にピークを持つR-TLが観測された。ピークが2つ出た理由として、CAIがアメーバ状だったため、熱

拡散と共に発光している場所が複雑に変化したと考えられる。発光強度が7秒後からしだいに強くなっているのは、隕石試料がレーザーによって加熱されたための黒体輻射である。図で示した10秒以後もレーザーの照射中は発光強度は増大した。

この実験の発光強度から、アエンデ隕石のような小惑星をR-TL測定すれば、2Wのレーザー光で

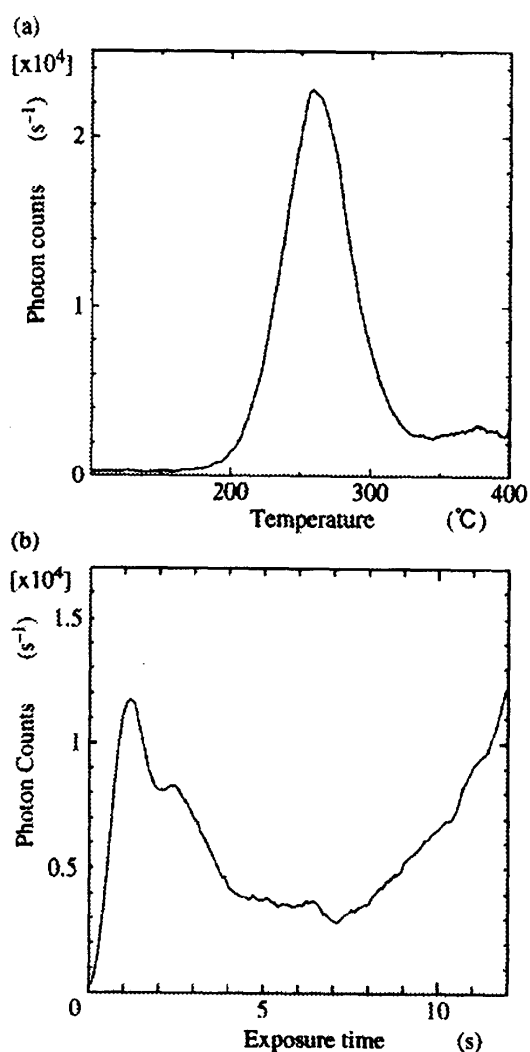


図5. (a) アエンデ隕石のCAIのTL曲線. (b) アエンデ隕石の小片のR-TL測定の結果.

10mの距離から毎秒120フォトンの測定ができると見積もれた。レーザの出力を上げ、検出器の前に鏡を置いて集光すれば、更に遠隔より測定ができると思われる。例としてコヒーレンスが0.1mradian, レーザ径1cmのレーザを100Wで照射する場合を考える。レーザ光は1km先で10cm径程度に拡散し実験とほぼ同じ強度になるので、このとき起こる発光を1m<sup>2</sup>の集光鏡を用いれば、1kmの距離から毎秒400フォトンが観測可能であると推定される。

#### 4. まとめと展望

測定試料をレーザによって加熱し、その熱ルミネッセンスを測定する遠隔測定法を提案した。方解石の測定を行なった結果、TLがレーザの照射点を中心にリング状に広がっていく様子が観測された。さらに応用へ向けた予備的な実験として、アエデ隕石のCAIを含む小片をR-TL測定した。10mの距離から毎秒120フォトンの測定が現在使っている装置ででき、小惑星探査機に搭載しても十分に役立つと期待される。実験では熱源に気体レーザを用いているが、探査機に搭載する場合ダイオードレーザで固体レーザを励起する2段階励起のレーザを用いる方が、エネルギー効率・小型化の面で適していると思われる。

R-TLの利点の一つとして、レーザを走査することによる広範囲の画像化があげられる。今後、ヒータによる加熱が困難な大きな試料の測定や、野外で地層の遠隔測定などの応用例が考えられる。さらに、赤外放射を検出したり、イメージ増倍管(I.I.)やCCDカメラを組み合わせた装置によって数値化された観測結果を得れば、そのようなR-TL装置は逆に物質の熱伝導率や熱放射率の測定にも利用できるであろう。

#### 参考文献

- [1] Ikeya, M., 1993: *New Applications of Electron Spin Resonance – Dating, Dosimetry and Microscopy–*, World Scientific Publishing, Singapore.
- [2] Aitken, M. J., 1985: *Thermoluminescence Dating*, Academic Press, Oxford.
- [3] Ninagawa, K., Miono, S., Yoshida, M., and Takoaka, N., 1983: Terrestrial Age of an Antarctic Meteorite by Thermoluminescence Technique, *Lett. Nuovo Cimento* **38**, 33-36.
- [4] Ogoh, K., Yamanaka, C., Toyoda, S., Ikeya, M., and Ito, E., 1994: ESR Studies on Radiation Induced Defects in High Pressure Phase SiO<sub>2</sub>, *Nucl. Instr. Meth.* **91**, 331-333.
- [5] Ikeya, M., Katakuse, I., and Ichihara, T., 1990: Portable Thermoluminescence Reader for Dosimetry and Dating in Fields, *J. Nucl. Sci. Tec.* **27**, 188-190.
- [6] Benoit, P. H., Sears, D. W. G. and McKeever, S. W. S., 1991: The Natural Thermoluminescence of Meteorites –II. Meteorite Orbits and Orbital Evolution–, *Icarus* **94**, 311-325.
- [7] Miki, T. and Ikeya, M., 1978: Thermoluminescence and ESR Dating of Akiyoshi Stalactite, *Jpn. J. Appl. Phys.* **17**, 1703-1704.
- [8] Takaki, S., Yamanaka, C., and Ikeya, M., 1994: Optically Stimulated Luminescence of Meteorite, *Proc. NIPR Symp. Antarct. Meteorites* **8**, 353-358.