

【 35 】

氏 名	塩 見 直 子 しお み なお こ
学位の種類	理 学 博 士
学位記番号	論 理 博 第 149 号
学位授与の日付	昭 和 41 年 6 月 21 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当
学位論文題目	Radiothermoluminescence in Tetracene-Doped and Hydrostatically Deformed Anthracene Crystals (テトラセンを入れたアントラセン結晶と等方的に歪ませたアントラセン結晶の放射線熱発光)
論文調査委員	(主 査) 教 授 四 手 井 綱 彦 教 授 武 藤 二 郎 教 授 長 谷 川 博 一

論 文 内 容 の 要 旨

主論文は、有機物の放射線熱発光の機構を解明することを目的として、系統的研究を行なったものである。放射線熱発光の現象は、無機物については多くの研究があり、とくにイオン結晶についてはその機構がほぼ明らかになっている。しかし、有機物についての研究は、最近にはじまったばかりで、その機構は明らかでない。

申請者は、試料として代表的有機分子結晶であるアントラセンを採用し、それを化学的および物理的方法によって高純度に精製したものを基礎資料とし、これに重量パーセントで 0 、 10^{-7} 、 10^{-6} 、 10^{-5} 、 10^{-4} 、 10^{-3} のテトラセンを加えた6種の単結晶をつくって、測定資料とした。放射線源としては、 Co^{60} のガンマ線およびバンデグラーフ型加速器による 1.5 MeV の電子線を用い、試料を液体空気の温度にたもって照射を行ない、その熱発光を測定した。得られた主な結果はつぎの通りである。

- 1). 発光曲線は試料の含有するテトラセン濃度と無関係に相似である。
- 2). 熱発光の強度は、照射線量とともに増加して飽和値を示し、その飽和線量と飽和光量とともに試料のテトラセン濃度に比例する。
- 3). テトラセンを含まない結晶に、 7000 気圧の静圧力を加えた後放射線照射を行なった試料は、加圧しない単結晶に比べて、その飽和光量および飽和線量はともに著しく増加する。
- 4). 単結晶を粉碎した粉末試料は、加圧処理を行なった単結晶と同様に、その飽和光量および飽和線量がともに増大する。

$4000 \text{ \AA} \sim 6000 \text{ \AA}$ の波長領域で20種の干渉フィルターを利用して熱発光のスペクトルを調べ、つぎの結果を得た。

- 5). 発光スペクトルは発光温度による変化はなく、テトラセン濃度の増加にしたがって、長波長側が相対的に増大し、発光中心がアントラセン分子からテトラセン分子に移行することを示した。
- 6). 加圧試料および粉碎試料は、ともに相似のスペクトルを示した。

つぎに、これらの試料の、紫外線照射による蛍光スペクトルと、 Sr^{90} のベーター線によるシンチレーションスペクトルを調べ、熱発光スペクトルと比較した。その結果はつぎのように要約できる。

7). テトラセン含有試料について、この三種のスペクトルはほぼ一致する。

8). テトラセン濃度 10^{-5} の試料については、熱発光スペクトルが紫外線蛍光スペクトルに比べて、長波長側が相対的に強い。

9). 加圧試料および粉碎試料では、蛍光スペクトルおよびシンチレーションスペクトルはともにアントラセン分子によるスペクトルであるが、その熱発光スペクトルはアントラセン分子のスペクトルと一致せず、長波長側にずれた固有のスペクトルをしめした。

以上のような実験結果を総合して、つぎの結論を得ている。

放射線によって結晶体に付与されたエネルギーは、結晶中を移動して、トラップにたくわえられる。そのエネルギートラップは、主としてテトラセンによって誘起された結晶歪に付随するものである。この場合の熱発光は、トラップに近接するテトラセン分子へのエネルギー移動によるものが大きい寄与をしている。

不純物を含まない結晶でのトラップは、加工による結晶歪に付随するものであるが、その発光中心は明らかでない。つぎに、初期のエネルギー移動の平均距離を標的理論を修正して、求めている。このときトラップを中心とした一定半径の標的体積をとり、その体積は互に重なりをもつものとした。この仮定によって得られた、エネルギーの移動距離は、テトラセンを含む試料については、 $200\sim 800 \text{ \AA}$ となる。

参考論文 1 は、ガンマ線照射によって生ずる 2 次電子の slowing down spectrum を segment theory をつかって求めたものである。

参考論文 2, 3, 4 は、いずれも主論文の前提となる研究で、2 では各種のアミノ酸を、3 ではポリエチレンを、4 ではアントラセンを試料として放射線熱発光を調べている。とくに 2 では、熱発光が、放射線で生成された遊離基による化学発光ではないことを明らかにしている。

論文審査の結果の要旨

放射線熱発光の現象は、無機物とくにイオン結晶については多くの研究があり、その機構もほぼ明らかになっている。有機物についての研究は少なく、見るべきものがなかった。1960 年以来、Augustine 等によるアミノ酸についての研究、Charlesby 等によるポリエチレンについての研究、Dersulede 等のシクロヘキサンについての研究等が報告されているが、試料の結晶化度および不純物の発光への影響について、互に相反する結果が得られている。この現象の機構解明という見地に立つとき、これら従来の研究で取扱われた試料は必ずしも適切ではなかったと考えられる。申請者はこの点に着目し、高純度単結晶が得られ易いアントラセンを基礎資料にとり、それに既知量のテトラセンを加えた単結晶を自製して試料とし、不純物の影響を中心とした、系統的な研究を行なっている。

この実験の結果、試料のテトラセン濃度によってきまる飽和線量と飽和光量とがあり、それらの飽和量は、テトラセン濃度にほぼ比例することを見出した。

また、高純度単結晶を加圧または粉碎した試料では、熱発光強度が著しく増加し、その飽和線量および

光量も著しく増大することが見られた。

これらの結果を総合して、発光の前段階であるエネルギートラップは、一般に、結晶歪に付随するものであり、テトラセンを含む試料では、それによって結晶中に誘起される結晶歪にトラップは付随すると結論している。

また、各試料について、そのスペクトルと、紫外線蛍光スペクトルおよびベーター線シンチレーションスペクトル等を比較した。その結果は、上述の結論を支持するものであり、放射線熱発光は、放射線エネルギーの吸収、→吸収エネルギーのトラップへの移動とその蓄蔵→加熱による発光中心へのエネルギー移動、の諸過程をへるものであることを実験的にたしかめた。この過程での発光中心は、テトラセン含有試料では主としてテトラセンである。加圧または粉碎した試料の発光中心の性質は明らかでなく、今後の研究課題であるが、放射線熱発光の方法は、有機分子結晶の場合にも、結晶歪に極めて敏感であり、結晶歪検出の一方法をあたえることがわかった。

以上の主論文は、有機分子結晶の放射線熱発光の機構を解明し、この分野における研究の出発点を明らかにしたものであり、参考論文とともに、放射線物理学の発展に寄与することが少なくない。

よって、本論文は理学博士の学位論文として価値があるものと認める。