

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第 15 卷 第 2 号

1982 年 12 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

1. 「核理研研究報告」は核理研共同利用による実験報告及びそれに直接関連した研究報告等を掲載します。
2. 本誌掲載の論文に対しては原則として審査を行なっておりません。
但し、特別の事情がある場合には投稿論文の掲載を拒否し、あるいは書き直しを求める事があります。
3. 本誌の論文を欧文の論文中に引用される際は Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University 又は Private Communication として引用する事とし、著者の承諾を得た上で引用して下さい。
4. 本誌は毎年6月と12月に発行します。

投 稿 規 定

1. 邦文の原稿はA4版400字詰原稿用紙を使用して下さい。用語は可能な限り文部省編さん「学術用語集」によって下さい。
2. 引用文献、記号、単位、数式、文字指定等は Journal of the Physical Society of Japan の「投稿の手引」に従って下さい。
特に次の点について御注意下さい。
原稿には添字、ギリシャ文字、イタリック、ゴジック、立体、まぎらわしい大文字及び小文字を赤鉛筆で指定して下さい。但し、文中の文字記号及び数式は原則としてイタリックで組みますので、単位及び元素記号、数式中特に立体とすべき文字記号は必ず立体の指定をして下さい。英文の原稿の場合は、イタリックの方を指定して下さい。
3. 図及び表には1枚毎に「第1図」、「第2表」のように番号を付けて下さい。図は全て墨入れし、縮尺又は刷り上がり寸法を記入して下さい。但し、1/3以下の縮尺は御遠慮下さい。
4. 図及び表の挿入個所を原稿に指定して下さい。
5. 図及び表の説明をそれぞれ別紙にまとめて原稿の末尾につけて下さい。
6. 原稿締切日は4月30日と10月31日です。原稿は下記あて提出して下さい。

仙台市三神峯1-2-1 郵便番号 982

東北大学理学部原子核理学研究施設

「核理研研究報告」編集係

核理研研究報告 第15巻 第2号 目次

I 原子核物理

- I-1 $^{12}\text{C}(e, \pi^+)^{12}\text{B}^*(7\text{ MeV})$ 共鳴状態の研究 (I) 191

(核理研, 教養部*)

取越 正己, 佐々木 修, 遠山 伸一, 小林 毅範

坪田 博明*, 庄田 勝房

- I-2 巨大共鳴領域における $^{45}\text{Sc}(e, p_0)$ 反応 198

(核理研, 教養部*, 情教センター**, 理学部物理***)

田中 陽, 菅原 真澄, 宮瀬 晴久*, 坪田 博明*

川添 良幸**, 塚本 龍男***

- I-3 $^{65}\text{Cu}(e, p_0)$ 角度依存性に依る E 2 成分の検証 203

(教養部, 情教センター*, 理学部物理**)

宮瀬 晴久, 坪田 博明, 川添 良幸*, 塚本 龍男**

II 放射化学

- II-1 β -ジェットン中性二座配位子によるツリウム(III)の協同効果抽出 207

(理学部化学)

中村 重人, 井村 久則, 鈴木 信男

- II-2 Extraction of Uranium by Emulsion Type of Liquid Membrane 215

(選 研)

秋葉 健一, 高橋 敏彦, 菅野 卓治

- II-3 LINACにおける低温照射装置を用いる反跳インプランテーション 219

(理学部化学, 核理研*)

関根 勉, 吉原 賢二, 八木 益男*, 榎本 和義*

- II-4 Nondestructive Multielement Photon-Activation Analysis of
Rocks 224

(理学部地学)

吉田 武義, 藤巻 宏和, 青木謙一郎

II-5	Elemental Abundances in Some Basaltic Rocks from the Japan Arc and Adjacent Area	239
	(理学部地学)	
	吉田 武義, 青木謙一郎, 李 文 遠, 石川 賢一 金子 信行	
II-6	Trace Element Behavior in Fractional Crystallization of Jeju Alkaline Lavas, Korea	249
	(理学部地学)	
	李 文 遠, 吉田 武義, 青木謙一郎	
II-7	岩手火山の地球化学的研究.....	257
	(理学部地学)	
	石川 賢一, 吉田 武義, 青木謙一郎	
II-8	アルミニウム中でのSnの不純物拡散	265
	(工学部金属材料)	
	藤川辰一郎	
II-9	銅の自己拡散における同位体効果.....	273
	(工学部金属材料)	
	藤川辰一郎	
III 加速器・測定器		
III-1	150 MeV 電子パルスビーム・ストレッチャー (SSTR) 基本設計及び性能.....	281
	(核理研, 教養部*, 情教センター**)	
	玉江 忠明, 今野 收, 武藤 正勝, 田中 俊成 吉田 克久, 広岡 恵, 笹沼 東一, 柴崎 義信 浦澤 茂一, 寺沢 辰生, 山田 和芳, 栗原 亮 一戸 隆, 高橋 重伸, 宮瀬 晴久*, 川添 良幸** 鳥塚 賀治, 菅原 真澄	
III-2	150 MeV 電子パルスビーム・ストレッチャー (SSTR) の動作試験結果.....	306
	(核理研)	
	吉田 克久, 今野 收, 玉江 忠明, 広岡 恵 武藤 正勝, 菅原 真澄	

Ⅲ－3 150 MeV 光子標識装置の製作 321

(核理研, 教養部*, メルボルン大**)

藤井 芳昭, 守 和彦, 寺沢 辰生, 玉江 忠明
斎藤悌二郎, 小山田正幸, 菅原 真澄, 庄田 勝房
鳥塚 賀治, 前田 茂和*, 宮瀬 晴久*,
P.Harty**, M. N. Thompson**

Ⅲ－4 東北14cmフレオン泡箱のテスト 328

(理学部泡箱, 東北学院大工学部*)

北垣 敏男, 田中 昌, 林野 友紀, 早野 仁司
加賀 広靖, 高山 知明, 中嶋 隆

I. 原 子 核 物 理

$^{12}\text{C}(e, \pi^+)^{12}\text{B}^*(7\text{MeV})$ 共鳴状態の研究 (I)

核理研, 教養部*

取越正己・佐々木修

遠山伸一・小林毅範

坪田博明*・庄田勝房

§ 1. 序

前期に行なわれた $^{12}\text{C}(e, \pi^+)$ 反応実験の結果を報告する。尚以下では、エネルギースペクトルについての議論以外では、 (γ, π^+) と表現する。^{1,2)}

$^{12}\text{C}(e, \pi^+)$ 実験では現在までに、残留核 ^{12}B を基底状態、第一励起状態(0.95 MeV)³⁾及び励起エネルギー4.5 MeV⁴⁾に残す実験が行なわれ、それぞれの共鳴状態への (γ, π^+) 反応微分断面積が測定された。これらの共鳴状態のスピン-パリティは基底状態、第一励起状態は 1^+ , 2^+ であり、M1, E2転移で励起される。4.5 MeVに見られる共鳴状態は 2^- , 4^- の複合によるもので、従ってM2, M4転移により励起される。前2者に関する反応微分断面積角分布はCohen-Kurathの波動函数を用いたDWIA計算でよく再現された。²⁾ 励起エネルギー4.5 MeVの共鳴状態の角分布はgiant-shell-modelを用いたDubach-HaxtonのDWIA計算, shell-modelによるSinghamのDWIA計算で良く再現出来た。⁴⁾

今回の実験では更に励起エネルギー7 MeV付近にもスピン反転型の共鳴状態の存在が明らかになった。 (γ, π^+) の類似の反応である (π^-, γ) の実験⁵⁾で得られた γ -線エネルギースペクトルにも ^{12}B の励起エネルギー7 MeV付近に強いピークが見られる。この共鳴状態のアイソバリックアナログ状態が ^{12}C の励起エネルギー約22 MeV付近に見られると考えられる。 ^{12}C ではその励起エネルギー21~25 MeVの領域は非弾性電子散乱⁶⁾や光核反応⁷⁾等の実験からE1巨大共鳴の存在が明らかになっている。特に山口等の $^{12}\text{C}(e, e')$ の実験⁸⁾では、 ^{12}C の励起エネルギー22~25 MeVの領域にいくつかのピークが観測された。その中で22.7 MeVに見られる相互作用の横成分による散乱のピークは、その形状因子が σ - τ mode 1^- 励起のKIA model⁸⁾及びT. W. Donnellyのp-h model⁹⁾でよく説明された。今回の (γ, π^+) 反応実験及び文献3の (π^-, γ) に見られる ^{12}B の励起エネルギー7 MeVの共鳴状態は、山口等の見出した、 ^{12}C の22.7 MeVの σ - τ mode E1による共鳴状態とエネルギー的に近く、互いにアイソバリ

ックアナログな状態である可能性がある。

§ 2. 実験と解析

実験は東北大学核理研 300MeV 電子リニアックより得られる電子線を用いて行なわれた。実験方法は他の文献^{1,2)} に詳しいため、ここでは省略する。

標的としては、厚さ 154 mg/cm^2 の ^{12}C (graphite) を用いた。絶対値を決定するために $\text{H}(e, \pi^+)$ 実験も同時に行った。このための標的としては粉状の LiH を圧縮して固めた円板状のものを用いた。厚さは約 120 mg/cm^2 である。

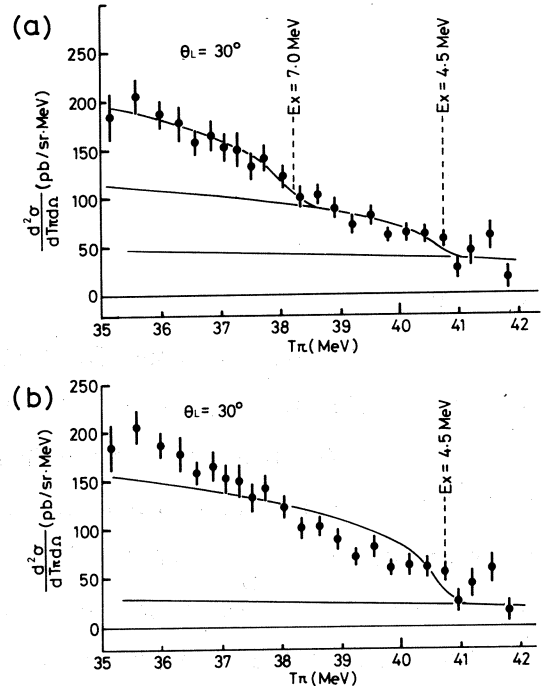
実験条件は、入射電子エネルギー $E_e = 200 \text{ MeV}$ 、そのエネルギー分解能は 0.3% にした。角分布の測定角度は 30° から 150° まで 20° 毎とした。

第 1 図 a, b に測定角度 (θ_L) 30° で測定された (e, π^+) エネルギースペクトルを示す。第 1 図(a), (b)の実線に就いては後程説明する。

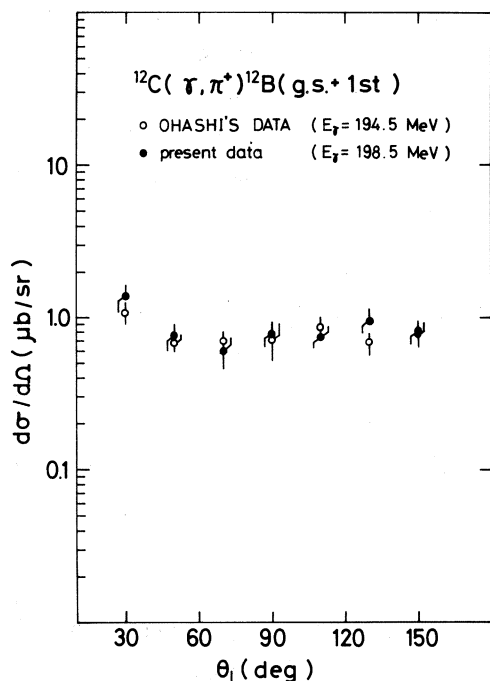
(e, π^+) スペクトルから (r, π^+) 反応微分断面積を得る方法に就いては他の文献¹⁾ を参照されたい。

第 2 図に ^{12}B の基底状態と第一励起状態に関する両断面積を加え合わせた角分布を以前のデータ³⁾ と比較して示す。 $\theta_L = 130^\circ$ を除いて全角度で両データは誤差の範囲内で一致している。 ^{12}B の 4.5 MeV の角分布でも同様の比較をした所、 $\theta_L = 110^\circ, 150^\circ$ で以前⁴⁾ のデータと今回の結果に多少ばらつきが見られた。これは統計精度の不足によると見られる。

第 1 図(a)の実線は、強い共鳴状態が ^{12}B の基底、励起エネルギー 4.5 MeV 及び 7 MeV に存在すると仮定し、その強度を自由パラメータにして最小 χ^2 法を用いて、 $^{12}\text{C}(e, \pi^+)$ のエネルギースペクトルに、仮想光子数スペクトルをフィットした結果である。比較のために強い共鳴状態



第 1 図(a) $^{12}\text{C}(e, \pi^+)^{12}\text{B}^*$ の $\theta_L = 30^\circ$ でのエネルギースペクトルを示す。図中の縦の点線は強く励起された共鳴状態の位置を示す。実線に就いては本文参照。
(b) (a)に同じ。ここでは、強く励起される共鳴状態は、基底状態及び励起エネルギー 4.5 MeV の共鳴だけとした。



第2図 ^{12}B の基底及び第一励起状態の (γ, π^+) 断面積の和の, Shodaら³⁾の結果と本実験で得られた結果との比較。互に矛盾はないと考えられる。

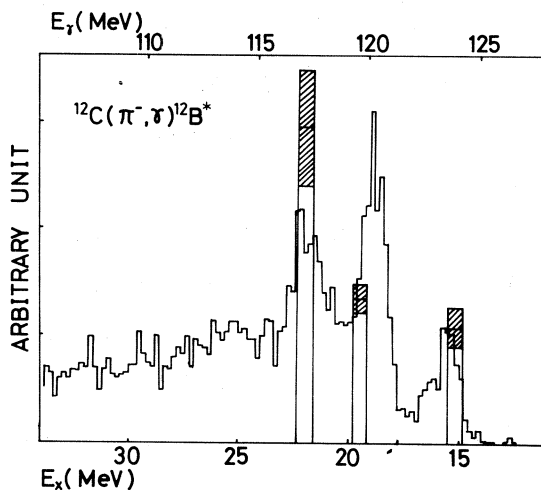
は ^{12}B の基底及び4.5MeVの2つとした時のフィットの結果を第1図(b)に示す。 χ^2_ν の値は前者(3-パラメータフィット)は1.114, 後者(2-パラメータフィット)では3.287であり, 7MeVに強い共鳴状態があるとした方がより自然である事が分る。他の角度に就いてもそれぞれ3-パラメータフィット及び2-パラメータフィットを行った。その時の

第1表 $^{12}\text{C}(e, \pi^+)$ エネルギースペクトルへの3-パラメータフィット及び2-パラメータフィットの χ^2_ν 値。

θ_L	χ^2_ν 値	
	3-パラメータフィット	2-パラメータフィット
30°	1.11	3.29
50°	2.38	4.35
70°	1.62	2.77
90°	1.69	2.40
110°	1.05	1.55
130°	1.41	1.44
150°	0.91	1.11

χ^2_ν の値を第1表に示す。

本実験で目的とした ^{12}B の励起エネルギー7MeVの共鳴と, 以前までの実験で見い出された, 強く励起される共鳴の位置を, $^{12}\text{C}(\pi^-, \gamma)^{12}\text{B}^*$ の γ -線エネルギースペクトルの図中に書き込み, 両反応で励起される共鳴の位置の対応を見る。その様子を第3図に示す。縦棒の高さは, (π^-, γ) 反応で核に与える運動量移行(以下簡単に q と書く)と同じ q を与える角度での, 各共鳴に対する (γ, π^+) の



第3図 $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}^*$ と $^{12}\text{C}(\pi^-, \gamma)^{12}\text{B}^*$ で夫々強く励起される共鳴の位置と, その励起強度の比較。図中の3本の縦棒が (γ, π^+) による共鳴の位置及び強度を表わす。又その斜線は誤差の範囲を示す。縦棒に就いては本文参照。

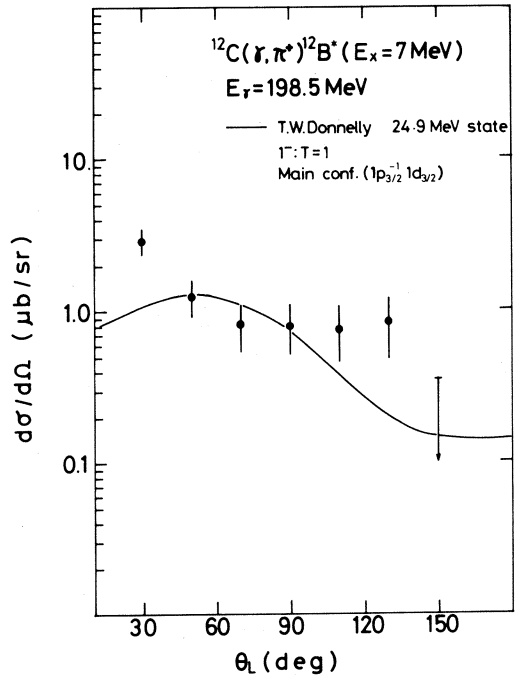
反応微分断面積の大きさを表わす。但し基底状態に対する (π^-, r) のピークの高さと、 (r, π^+) の反応微分断面積の大きさが一致する様に、他の縦棒の高さは規格化されている。この図より分る様に、強い共鳴の現われる位置は、 (r, π^+) 及び (π^-, r) でよく一致しており、互いの反応の類似性が反映されている。又この両反応によるピークの対応から、今回新たに7MeVに共鳴状態があるとした事の正当性が結論付けられる。

目的とする7MeVの共鳴状態の (r, π^+) 反応微分断面積の角分布を第4図に示す。角分布は前方で大きく、後方で比較的平坦な分布を示す。 $\theta_L = 150^\circ$ での値は断面積の上限で与えられている。

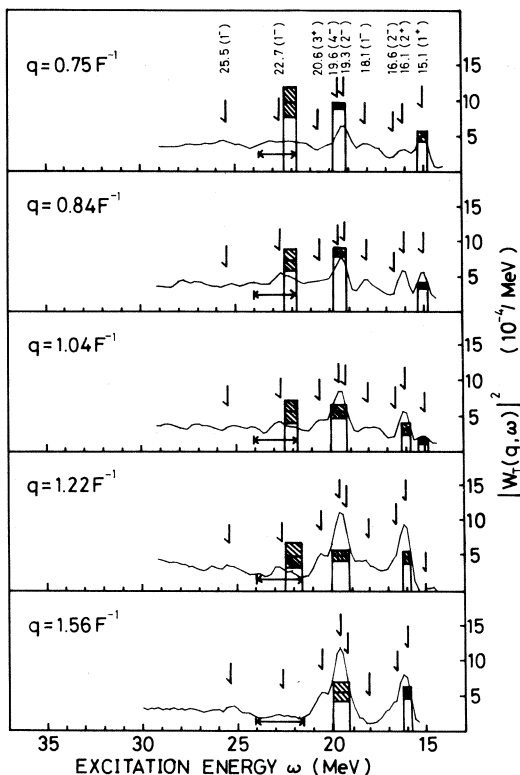
§ 3. 考察及びまとめ

ここで報告したい ^{12}B の励起エネルギー7MeVの共鳴状態のアイソバリックアナログ状態は、 ^{12}C の励起エネルギー約22MeVに見られると考えられる。山口等⁶⁾は、核理研で行なった $^{12}\text{C}(e, e')$ の実験から、励起エネルギー22.7MeVに、 $\sigma-\tau$ mode E 1 共鳴が存在すると報告した。第5図に、山口等により測定された $^{12}\text{C}(e, e')$ の横成分形状因子のエネルギースペクトルを示す。 q の値は0.75, 0.84, 1.04, 1.22及び1.56 fm^{-1} の5点である。図中の縦棒は、 $^{12}\text{C}(r, \pi^+)^{12}\text{B}^*$ 反応で強く励起される共鳴の位置と断面積の大きさを表わす。本実験では、上記の5点の q は、それぞれ角分布の $48^\circ, 64^\circ, 76^\circ, 96^\circ$ 及び 150° に対応する。このため、それぞれの角度での断面積は、 150° を除いて実験値に内挿して求めた。断面積の大きさは縦棒の高さで表わす。その際、 (r, π^+) 断面積の強度分布と、電子散乱の形状因子の強度分布とを比較しやすくする目的で、図中では、 $q=0.75 \text{ fm}^{-1}$ での ^{12}B の基底状態の (r, π^+) 断面積の大きさを示す縦棒の高さが、同じ q での電子散乱の15.11MeVのピークの高さに等しくなる様に規格化した。

^{12}B の励起エネルギー7MeVの共鳴は、 ^{12}C の励起エネルギー22.7MeVの共鳴とエネルギー的に近



第5図 $^{12}\text{C}(r, \pi^+)^{12}\text{B}^*(7\text{MeV})$ の角分布の実験値と理論解析結果との比較。理論解析では、Donnellyのp-h modelの波動関数を用い、DWIA計算を行った。



第4図 $^{12}\text{C}(e, e')$ の形状因子と、 $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)$ で強く励起される共鳴の位置と強度の比較。図中の実線が電子散乱形状因子を表わす。励起エネルギー 15.1 MeV, 16.1 MeV, 19.5 MeV及び22 MeVにある縦棒は、 (γ, π^+) による共鳴を表わす。その説明は本文参照。図中の横棒は、 $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12}\text{B}^*(7\text{MeV})$ の断面積を求めめるためにとった積分領域を示す。

比較的良好に再現されている。しかし前方及び後方はE1転移だけでは十分説明出来ず、他の多重極度をもつ転移が含まれている可能性が考えられる。

大坪等¹²⁾は Continuum-Shell-Model を用いて $^{12}\text{C}(\pi^-, \gamma)^{12}\text{B}^*$ の γ -線エネルギースペクトルを計算し、7 MeVの共鳴は主にM2, E1によるものである事を示した。 $^{12}\text{C}(\pi^-, \gamma)$ 反応では $q = 0.60 \text{ fm}^{-1}$ であり、この値は $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)$ では約 30° に対応する。従って7 MeVの共鳴の角分布が特に前方で、E1で予想される値より大きな値になっていることは、大坪等の計算結果、即ちE1以外の寄与の存在という事と矛盾はしない。

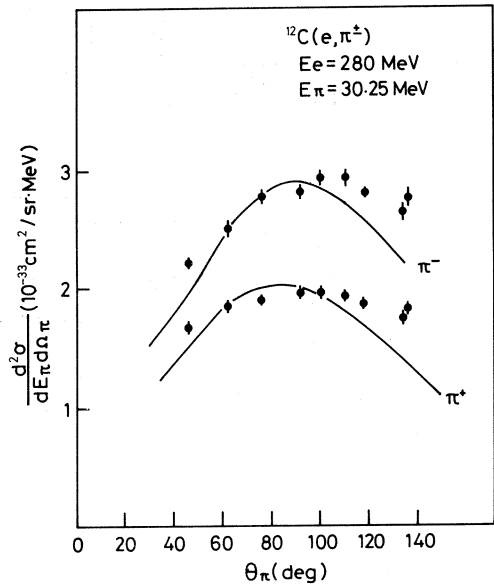
く、また図から分る様に、22.7 MeV付近では、そのピーク以外に強く励起される共鳴状態はない。更に22.7 MeVの共鳴は、山口等の報告に依れば、スピン反転型の転移によるものであり(γ, π^+)反応でも、そのアナログ状態は強く励起されると期待出来る。これらの事から ^{12}B の励起エネルギー7 MeVに見られた共鳴状態と、 ^{12}C の22.7 MeVに見られる共鳴状態は、互いにアイソバリックアナログな状態と考えられる。そこで山口等が22.7 MeVの共鳴に関する横成分形状因子を理論的に説明するために用いた、粒子-空孔模型による波動函数を用いて、 ^{12}B の7 MeVの共鳴の角分布の理論的な説明を試みる。

第4図の実線は、核の波動函数として Donnelly⁹⁾の $J^\pi=1^-, T=1, E_x=24.9\text{MeV}$ のものを用いた(γ, π^+)のE1転移の角分布のDWIA計算結果である。生成振幅はCGLN¹⁰⁾を用いた。 π^+ 中間子に対する核の光学ポテンシャルにはSMC^{2¹¹⁾}を使った。角分布全体の形状は比較

今回の解析では準自由過程からの寄与 ($\gamma + {}_Z A_N \rightarrow \pi^+ + n + {}_{Z-1} A_N$) は考慮されていない。この過程による π^+ 中間子は, ${}^{12}\text{B}$ の中性子放出の閾値 (3.4 MeV) からはじまる, 折れ曲りを持たない連続のスペクトルを持つと思われる。従って測定されるスペクトルにも, この連続スペクトルの影響が現われる筈である。しかし, 現段階では, その影響の実験的な評価はむづかしい。Min 等⁴⁾ は, フェルミガスモデルを用いて, 荒い評価をしているが, それによれば, ${}^{12}\text{B}$ の 4.5 MeV の断面積を求める際に含まれる準自由過程からの寄与は, 約 10% と報告している。準自由過程による π^+ 中間子発生の断面積を, その立ち上がり近傍で直線で近似すると, 寄与の大きさは, 7 MeV の断面積を求める場合は, 4.5 MeV の場合の約 2 倍となる。従って Min 等の値を仮定すれば, 7 MeV の断面積を求める際に含まれる準自由過程からの寄与は約 20% となる。又その寄与の角度依存性は, 他の実験を引用する限り, 小さいと思われる。第 6 図は Mainz で行なわれた実験結果¹³⁾ である。実験は 280 MeV の電子線を用いた ${}^{12}\text{C}(e, \pi^\pm)$ 実験で, この反応で得られる運動エネルギー 30.25 MeV の低エネルギー π 中間子を捕え, その角分布を測定している。入射電子エネルギー

280 MeV に対し, 運動エネルギー 30.25 MeV の π 中間子は, その大部分が準自由過程に依ると考えられる。従って第 6 図によれば, 準自由過程からの寄与は, 大きな角度依存性は持たないと思われる。

以上をまとめる。 ${}^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+){}^{12}\text{B}^*$ 実験で ${}^{12}\text{B}$ の励起エネルギー 7 MeV 付近に見られる共鳴状態は, ${}^{12}\text{C}$ の 22.7 MeV にある Γ の共鳴のアイソバリックアナログ状態と思われる。しかし ${}^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+){}^{12}\text{B}^*(7\text{MeV})$ の角分布は E 1 転移だけでは説明出来ず, 他の転移が混っている可能性がある。更に詳しい理論解析, 他の実験との比較が必要である。又, 7 MeV の断面積への準自由過程による π^+ 中間子の寄与は, 20% 程度と考えられるが, 詳しい値は, 今後の検討課題である。



第 6 図 入射電子エネルギー 280 MeV に於ける, 運動エネルギー 30.25 MeV の荷電 π 中間子の生成微断面積角分布。この程度の運動エネルギーの π 中間子は, 大部分準自由過程からのものと考えられる。図中の実線は, フェルミガスモデルによる計算結果である。参考文献 11) より転載。

参 考 文 献

- 1) 山崎正晴 : 博士学位論文 (1981).
- 2) 取越正己 : 修士論文 (1979).
- 3) K. Shoda, H. Ohashi and K. Nakahara : Nucl. Phys. **A 350** (1980) 377.
- 4) K. Min *et al.* : Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 1384.
- 5) P. Truöl : Nucl. Phys. **A 335** (1980) 55.
- 6) A. Yamaguchi *et al.* : Phys. Rev. **C3** (1971) 1750.
- 7) J. Ahrens *et al.* : Nucl. Phys. **A 251** (1975) 479.
- 8) M. Kamimura, K. Ikeda and A. Arima : Nucl. Phys. **A 95** (1967) 129.
- 9) T. W. Donnelly : Phys. Rev. **C1** (1970) 833.
- 10) G. F. Chew *et al.* : Phys. Rev. **106** (1957) 1345.
- 11) K. Stricker, H. McManus and J. A. Carr : Phys. Rev. **C22** (1980) 2043.
- 12) N. Ohtsuka and H. Ohtsubo : Prog. Theo. Phys. **64** (1980) 2128.
- 13) P. Jennewein and B. Schoch : Z. Phys. **A 292** (1979) 27.

巨大共鳴領域における $^{45}\text{Sc}(e, p_0)$ 反応

核理研, 教養部*, 情教センター**

理学部物理***

田中 陽・菅原真澄・玉江忠明

広岡 恵・日野 威・宮瀬晴久*

坪田博明*・川添良幸**・塚本龍男***

§ 1. 序

(e, p_0) 反応の機構に簡単なモデルを採用することによって各多重極遷移に対する反応の角度分布を計算することができる。このことを利用して、 $^{14}\text{N}(e, d_0)$, $^{63}\text{Cu}(e, p_0)$ 反応より E 1 遷移成分, E 2 遷移成分あるいは E 0 遷移成分が求められている。^{1,2)}

ここでは、最近行った $^{45}\text{Sc}(e, p_0)$ 反応角度分布測定実験から E 1 遷移成分, E 2 遷移成分を求めたので報告する。

§ 2. 実験条件

実験はすべて第 1 実験室で行い、焦点面上に 100 個のリチウムドリフト型シリコン半導体検出器が並べられた広帯域スペクトロメーターを使って陽子のエネルギースペクトラムを測定した。

照射電子は、エネルギー分解能 1.5%, 照射エネルギー 14 MeV から 28 MeV まで 1 MeV 毎とし、また陽子測定角度は前方 45° より 138° まで 12° 毎とした。

ターゲットは厚さ 10.0 mg/cm^2 , 純度 99.9% の ^{45}Sc 金属箔を用い、放出陽子測定角度が前方の場合は入射電子に対しターゲット角 30° , 後方の場合は 120° とした。

§ 3. (e, p_0) 反応断面積の導出

残留核を第 i 励起状態に残す (e, p) 反応を (e, p_i) 反応と表わす。(e, p_0) 反応より放出される陽子の最大エネルギーを $E_{p_0}^{\max}(e, p_1)$ 反応より放出される陽子の最大エネルギーを $E_{p_1}^{\max}$ とすると、 $E_{p_0}^{\max} \geq E_p > E_{p_1}^{\max}$ の関係にあるエネルギー E_p を持つ放出陽子はすべて (e, p_0) 反応より放出された陽子である。

このことより、ここで議論する (e, p_c) 反応微分断面積 $d\sigma/d\Omega$ は $E_{p_0}^{\max} - E_{p_1}^{\max} > \Delta E$ の関

係にあるエネルギー巾 ΔE を用い次のように定めることにする。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \int_{E'-\Delta E}^{E'} \frac{d\sigma}{d\Omega dE_p} dE_p$$

$$E' = E_e - E_{th}$$

$$E_e = \text{入射電子エネルギー}$$

$$E_{th} = (e, p_0) \text{ 反応しきい値}$$

$$\frac{d\sigma}{d\Omega dE_p} = (e, p) \text{ 反応微分断面積}$$

$$E_p = \text{放出陽子エネルギー}$$

但し、それぞれの値は実験室系のものであり、 ΔE は 0.98MeV とした。

§ 4. 解析方法および結果

^{45}Sc は陽子に関して閉殻の ^{44}Ca 核に陽子がひとつ付いた核であり、 (e, p_0) 反応を巨大共鳴を考慮した電子による陽子の簡単なたたき出し反応と見ることが出来る。 (e, p_0) 反応をこのように見ることより反応の E 1 遷移成分、E 2 遷移成分は陽子放出角度に対し簡単な型となり、反応のそれぞれの成分への分離は簡単になる。

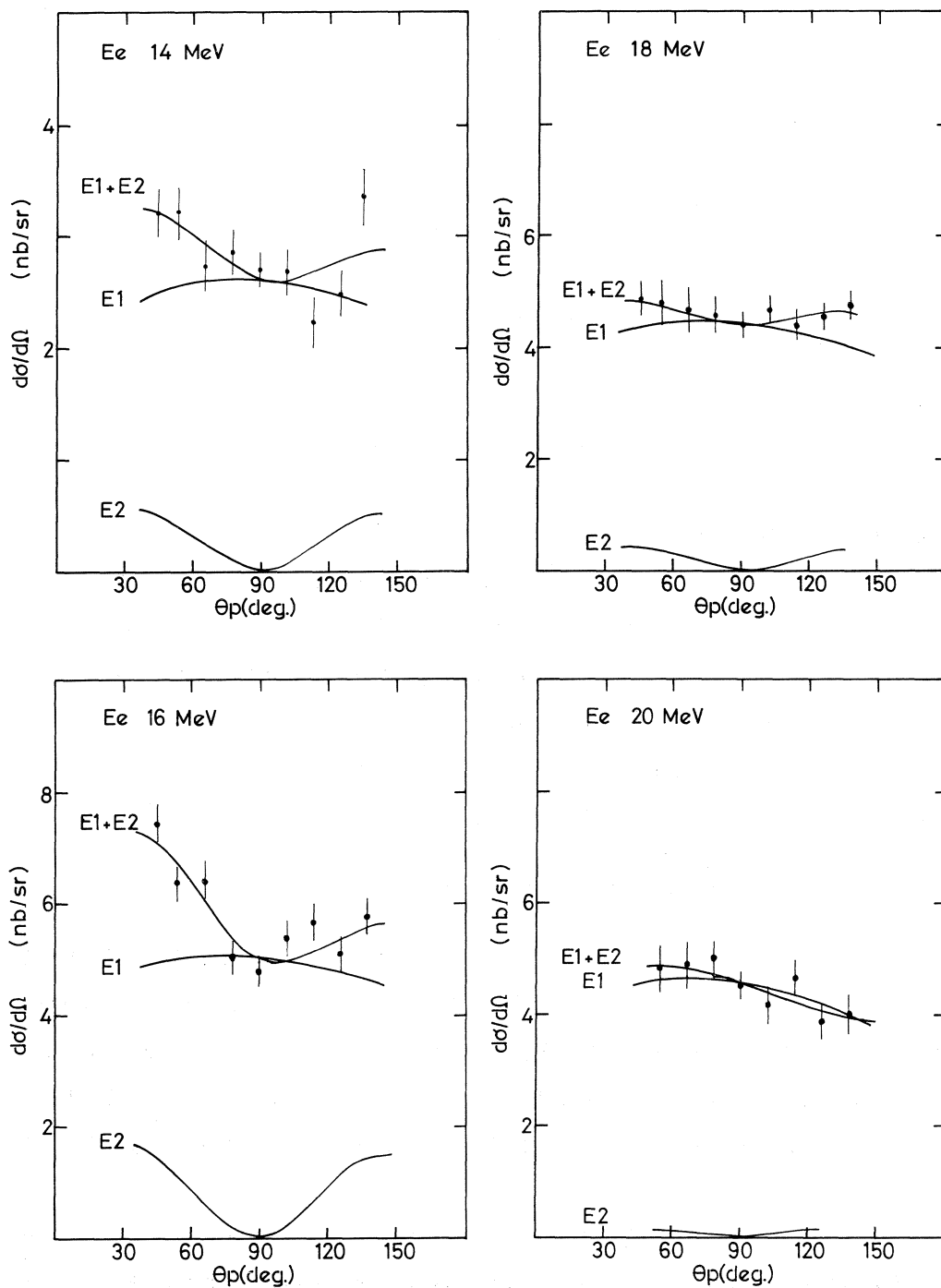
E 1 遷移、E 2 遷移成分の具体的な求め方は文献 3) に従った。

微分断面積 $d\sigma/d\Omega$ は次のように書き下せる。

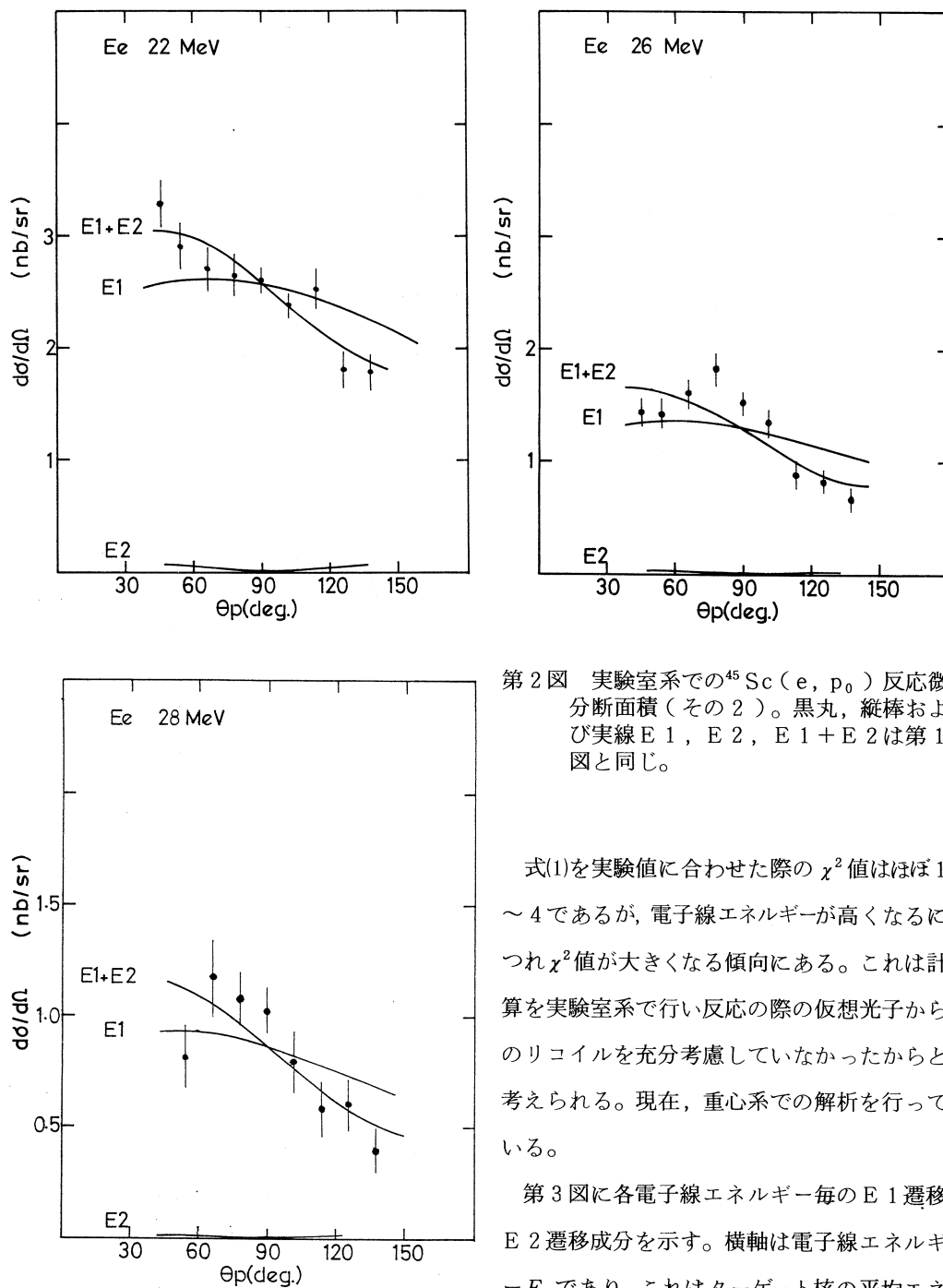
$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \sigma_1 W_1(\theta) + \sigma_2 W_2(\theta) + c \sqrt{\sigma_1 \sigma_2} W_{12}(\theta) \quad (1)$$

第 1 項、第 2 項は E 1 遷移、E 2 遷移による寄与、第 3 項は E 1、E 2 遷移間の干渉による寄与を示している。但し、 σ_1 、 σ_2 はそれぞれ E 1 遷移、E 2 遷移のみが存在する時の全断面積を、 c は干渉の際の位相差を示している。また、 W_1 、 W_2 、 W_{12} はそれぞれの成分の角度部分にあたり数値計算によって求められる。よって、 σ_1 、 σ_2 、 c をパラメータとした(1)式を実験値に合わせることにより、 (e, p_0) 反応断面積を E 1 遷移成分、E 2 遷移成分に分けることができる。

第 1 図、第 2 図に $d\sigma/d\Omega$ の電子線エネルギー毎の角度分布を示す。縦軸は $d\sigma/d\Omega$ を、横軸は実験室系陽子放出角度を示す。また、黒丸は今回得られた実験値を、縦棒は統計誤差を示している。実線 E 1 + E 2、E 1、E 2 は式(1)を実験値に合わせた際の式(1)、およびその第 1 項、第 2 項の値を示している。



第1図 実験室系での $^{45}\text{Sc}(e, p_0)$ 反応微分断面積(その1)。黒丸が今回得られた実験点、縦棒は統計誤差。実線E1+E2は実験値に合わせた式(1)。実線E1, E2はその際の式(1)の第1項, 第2項。



第2図 実験室系での $^{45}\text{Sc}(e, p_0)$ 反応微分断面積(その2)。黒丸、縦棒および実線E1, E2, E1+E2は第1図と同じ。

式(1)を実験値に合わせた際の χ^2 値はほぼ1~4であるが、電子線エネルギーが高くなるにつれ χ^2 値が大きくなる傾向にある。これは計算を実験室系で行い反応の際の仮想光子からのリコイルを充分考慮していなかったからと考えられる。現在、重心系での解析を行っている。

第3図に各電子線エネルギー毎のE1遷移、E2遷移成分を示す。横軸は電子線エネルギー E_e であり、これはターゲット核の平均エネルギー E_x に相当し、放出陽子の先端エネルギー付近の仮想光子の型より $E_x \approx E_e - \Delta E \times 2/3$

なる関係にある。縦軸は全断面積である。黒丸は解析より得られた値、太線はそれに合わせた

ローレンツ曲線 $a(E\Gamma)^2 / \{(E^2 - E_R^2)^2 + (E\Gamma)^2\}$ である。但し、 a は共鳴の大きさを表わすパラメータ、 E_R は共鳴の位置を表わすパラメータで E は電子線エネルギーである。

第3図より次のことがわかる。

1) 得られたローレンツ曲線より、全断面積を電子線エネルギーで積分した値は E 1 成分、E 2 成分それぞれ $0.533 \mu\text{b} \cdot \text{MeV}$ 、 $0.034 \mu\text{b} \cdot \text{MeV}$ である。

2) E 1 成分は約 16 MeV と約 20 MeV にピークを持ち、E 2 成分は約 16 MeV にピークを持つ。

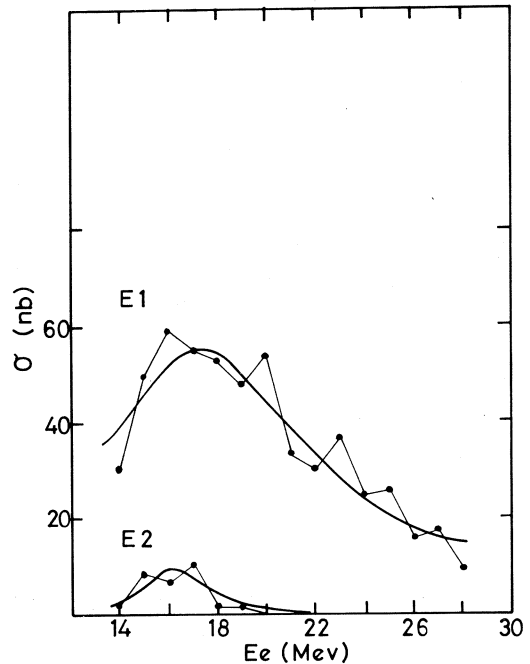
3) 得られたローレンツ曲線より、共鳴の巾 Γ は E 1 成分、E 2 成分それぞれ約 10 MeV、約 3 MeV である。

4) E 2 成分はそのピークの位置からイソスカラー型と考えられる。

$^{45}\text{Sc}(e, e')$ あるいは (p, p') の実験がないため、 $^{45}\text{Sc}(e, p_0)$ 反応の残留核である

^{44}Ca の電子散乱実験結果⁴⁾と比較すると、ピークの位置は E 1, E 2 とともによく一致する。

しかし、共鳴の巾は (e, p_0) 反応実験の結果の方がかなり狭い。



第3図 $^{45}\text{Sc}(e, p_0)$ 反応における E 1 遷移成分、E 2 遷移成分。黒丸は解析より得られた入射電子線当たりの E 1 遷移、E 2 遷移全断面積。折れ線はそれを結んだもの。実線 E 1, E 2 は得られた全断面積値に合わせたローレンツ曲線。

参 考 文 献

- 1) 宮瀬晴久, 坪田博明, 川添良幸, 塚本龍男: 核理研研究報告 **15** (1982) 50.
- 2) 種市 宏, 上野博昭, 加藤静吾, 庄田勝房, 川添良幸, 塚本龍男: 核理研研究報告 **14** (1981) 28.
- 3) H. Taneichi, H. Ueno, K. Shoda, Y. Kawazoe and T. Tsukamoto: Nucl. Phys. **A350** (1980) 157.
- 4) 鳥塚賀治他: 核理研研究報告 **6** (1973) 1.

$^{65}\text{Cu}(e, p_0)$ 角度依存性に依る E 2 成分の検証

教養部, 情教センター*

理学部物理**

宮瀬晴久・坪田博明

川添良幸*・塚本龍男**

§ 1. 要 旨

前回¹⁾に引き続いて (e, p_0) 反応に於ける角度依存性を ^{65}Cu について調べ, E 1, E 2 成分の分離を行った。その結果, E 1 成分は $E_x = 16.4\text{MeV}$ に幅 7.4MeV 及び $E_x = 20.4\text{MeV}$ に幅 1.1MeV , E 2 成分は $E_x = 14.7\text{MeV}$ に幅 2.8MeV を持ち, E 1 総和則値の 0.92% , アイソスカラー E 2 総和則値の 8.9% を占めることがわかった。

§ 2. 実験及び結果

標的核は厚さ $9.6\text{mg}/\text{cm}^2$, 純度 98% 以上の ^{65}Cu で東北大核理研の電子ライナックより得られたエネルギー $13.0\text{MeV} \sim 28.0\text{MeV}$ の電子ビームを 1MeV おきに直接標的核に照射し, 放出された陽子を広帯域磁気スペクトロメータの焦点面上に並べられた 100 個の $\text{Si}(\text{Li})$ 検出器を用いて測定した。測定角度は 42 度から 138 度まで 11 点で行った。娘核の ^{64}Ni の第 1 励起準位は 1.344MeV なので, 放出陽子の最高エネルギーより 1.344MeV 低いエネルギー範囲に放出される陽子は ^{64}Ni の基底準位への陽子とみることが出来る。

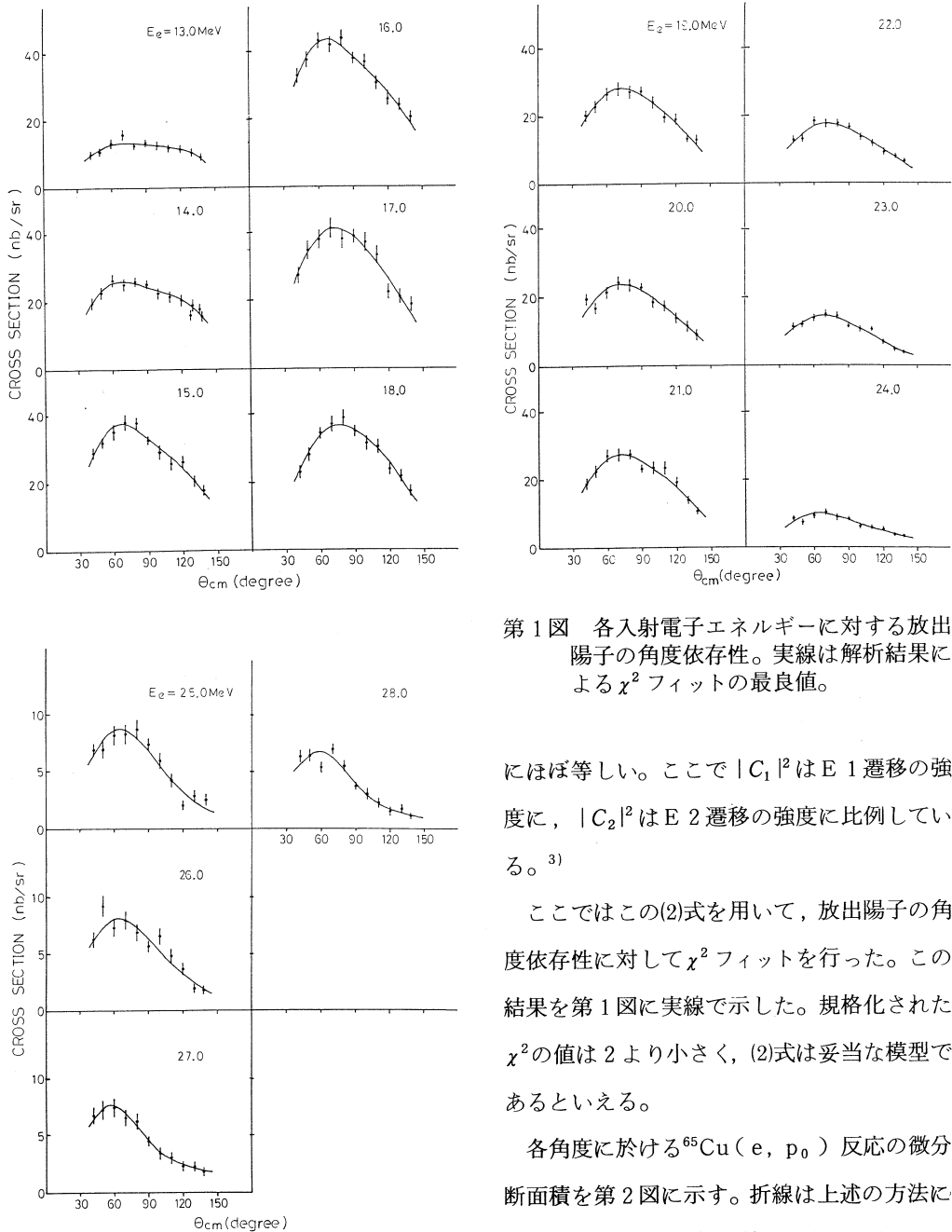
第 1 図に, こうして得られた各電子のエネルギーに対する放出陽子の角度依存性の実験結果を示す。ここでは

$$T_{\text{c.m.}} = T_{\text{lab}} \left[1 - \frac{V_{\text{c.m.}}}{V_{\text{lab}}} \cos \theta \right] \quad (1)$$

の関係式を用いて, 実験室系から重心系に変換し, 標的核内に於けるエネルギー損失の補正もほどこされている。

放出粒子がスピン 0 の場合の電子線による粒子放出の断面積の表式は文献 2 に記述されており, それによると角度依存性は

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \sin^2 \theta_{\text{c.m.}} | C_1 + C_2 \cos \theta_{\text{c.m.}} |^2 \quad (2)$$



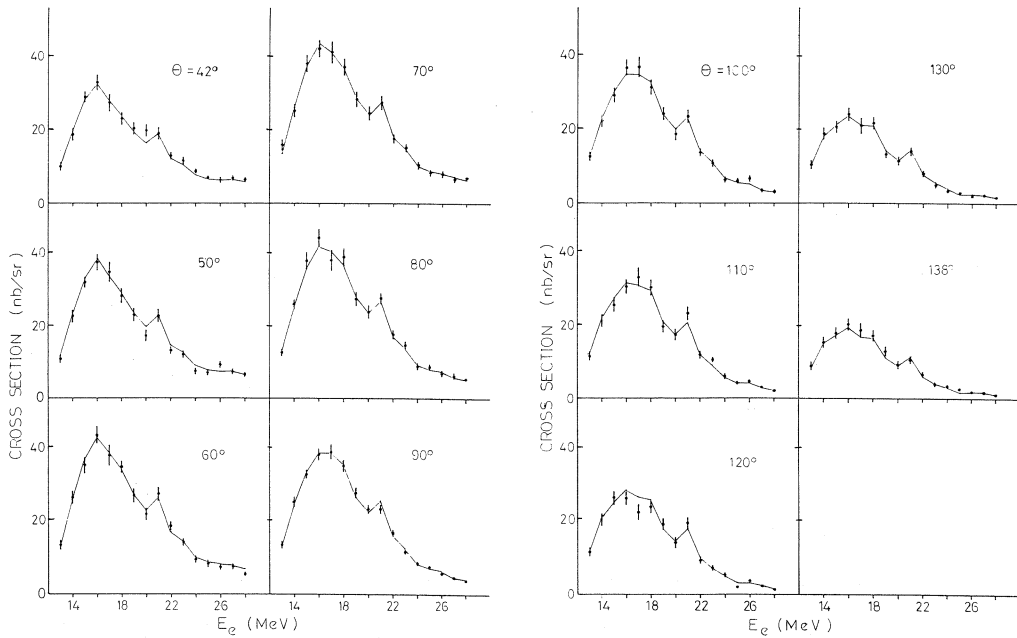
第1図 各入射電子エネルギーに対する放出陽子の角度依存性。実線は解析結果による χ^2 フィットの最良値。

にはほぼ等しい。ここで $|C_1|^2$ はE 1遷移の強度に、 $|C_2|^2$ はE 2遷移の強度に比例している。³⁾

ここではこの(2)式を用いて、放出陽子の角度依存性に対して χ^2 フィットを行った。この結果を第1図に実線で示した。規格化された χ^2 の値は2より小さく、(2)式は妥当な模型であるといえる。

各角度に於ける $^{65}\text{Cu}(e, p_0)$ 反応の微分断面積を第2図に示す。折線は上述の方法に依って得られた最良値を結んだものである。

90度に於いては、E 2の寄与がなく、E 1励起とみることが出来る。前方及び後方の角度に於いては、E 2の寄与が大きくなるために、微分断面積のピークの位置がそれぞれ90度の時よ



第2図 各角度に於ける (e, p_0) 反応の微分断面積。折線は解析結果の最良値を結んだもの。

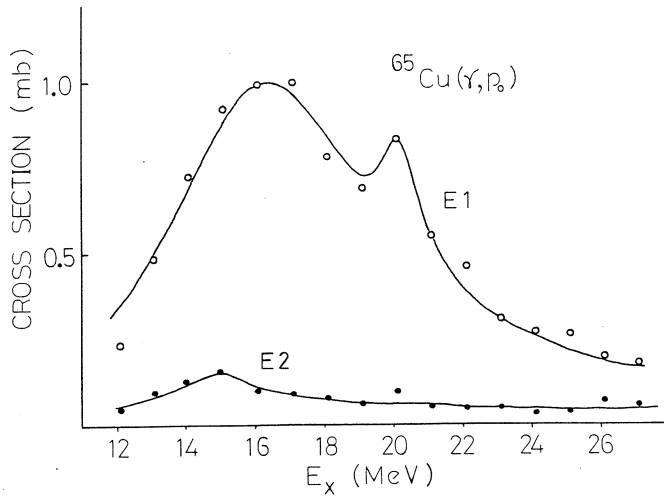
りもエネルギーの低い方へ移動していることがわかる。これは、E 1 励起のピークより低いエネルギーの所に E 2 励起のピークがあるためである。

第1図に示した解析結果を E 1 励起及び E 2 励起に分けて角度について積分し、E 1 及び E 2 の励起に参与する仮想光子数で割った結果を第3図に示す。励起エネルギー E_X は積分したエネルギー領域の平均値として、 $E_X = E_\theta - 0.9$ (MeV) とした。

これらの断面積に対して

$$\sigma_L = \frac{(E_X \Gamma_1)^2}{(E_X^2 - E_{R1}^2)^2 + (E_X \Gamma_1)^2} \sigma_1 + \frac{(E_X \Gamma_2)^2}{(E_X^2 - E_{R2}^2)^2 + (E_X \Gamma_2)^2} \sigma_2 \quad (2)$$

というローレンツ曲線にフィットした結果を実線で示した。E 1 励起に依る断面積は $E_{R1} = 16.4$ MeV に幅 $\Gamma_1 = 7.4$ MeV、 $E_{R2} = 20.4$ MeV に幅 $\Gamma_2 = 1.1$ MeV を持つ。 E_{R1} 、 E_{R2} はそれぞれアイソスピンの違いによる $T_<$ 、 $T_>$ の巨大共鳴に対応し、そのエネルギー差 $\Delta E = 4.0$ MeV は Fallieros ら⁴⁾ による計算値 $\Delta E = 60(T_0 + 1)/A = 4.2$ MeV と良い一致をみている。また、 E_{R1} 及び Γ_1 の値は Fultz ら⁵⁾ による (γ, n) 反応の結果 ($E = 16.7$ MeV、 $\Gamma = 6.9$ MeV) とも良い一致をみている。E 2 励起に依る断面積は幅の広いすそ野の上に $E_R = 14.7$ MeV、 $\Gamma = 2.8$



第3図

仮想光子の概念を導入して得られた (r, p_0) 反応断面積。実線は(3)式を用いてフィットした結果。

MeVを持っている。これは $E_x = 60A^{-\frac{1}{3}} = 14.9 \text{ MeV}$ にあるとされるアイソスカラーE2巨大共鳴に対応している。 $E_x = 130A^{-\frac{1}{3}} = 32 \text{ MeV}$ にあるとされるアイソベクターE2巨大共鳴については、今回の実験の範囲外にあり、良くわからない。またE1及びE2励起に依る積分断面積は

$$\int_{12.1}^{27.1} \sigma(E1) dE = 8.9 (\text{mb} \cdot \text{MeV})$$

$$\int_{12.1}^{27.1} \frac{\sigma(E2)}{E^2} dE = 4.1 (\mu\text{b}/\text{MeV})$$

で、これはE1励起の総和則値 $60 \times \frac{N \cdot Z}{A} = 965 (\text{MeV})$ の0.9%にあたり、E2励起の総和則値 $0.22 \times Z^2 \cdot A^{-\frac{1}{3}} = 46 (\mu\text{b}/\text{MeV})$ の9%にあたる。

この様にして、 (e, p_0) 反応に於ける角度依存性を測定し、解析することによって、E1及びE2励起の分離が可能となり、残留核を基底状態へ残す陽子放出反応に、E2励起の成分が明らかな形で示されることを検証することが出来た。

参 考 文 献

- 1) 宮瀬晴久他：核理研研究報告 **15** (1982) 50.
- 2) H. Taneichi *et al.* : Nucl. Phys. **A350** (1980) 157.
- 3) D. M. Skopik *et al.* : Phys. Rev. **C21** (1980) 1746.
- 4) S. Fallieros *et al.* : Phys. Lett. **19** (1965) 398.
- 5) S. C. Fultz *et al.* : Phys. Rev. **133** (1964) B1149.

Ⅱ. 放 射 化 学

β -ジケトン-中性二座配位子による ツリウム(III)の協同効果抽出

理学部化学

中村重人・井村久則・鈴木信男

§ 1. 緒 言

酸性キレート試薬(HA)と中性配位子(S)を用いた金属の協同効果抽出については、現在まで多くの研究がなされてきた¹⁾。しかし、中性配位子として二座配位子を用いた研究はいまだ少なく、これからの研究が待たれている。

希土類元素については、Kassiererら²⁾、およびBhattiら³⁾が、2-テノイルトリフルオロアセトン(Htta)-中性二座配位子系における協同効果抽出について報告している。Kassiererらは、金属キレートと二座配位子が1:2で反応しているとして付加錯体生成定数を報告しているが、Bhattiらは1:1で反応するとしている。また、報告された付加錯体生成定数を溶媒間で比較すると、研究例の多い単座配位子、トリオクチルフォスフィンオキシド(TOPO)などの系で観察される順とは著しく異なっている。

以上のように、中性二座配位子を用いた協同効果に対する親頼性のあるデータは少なく、その特長も明確にはなっていない。本研究では、希土類元素としてツリウムを選択し、酸性キレート剤として、アセチルアセトン(Hacac)、Htta、中性二座配位子として、1,10-フェナントロリン(phen)、2,9-ジメチル-1,10-フェナントロリン(dmp)、2,2'-ビピリジン(bpy)、比較のため単座配位子としてピリジン(py)を用いて協同効果抽出を行ない、付加錯体生成定数を求めた。

§ 2. 実 験

2.1 試 薬

放射性トレーサー¹⁶⁸Tmは、99.99% Tm₂O₃ 約10mgを石英管に封じ、東北大学電子ライナックにおいて、30-60MeV 制動放射線を照射し、¹⁶⁹Tm(r, n)¹⁶⁸Tmにより製造した。Tm(III)放射性溶液は、照射したTm₂O₃を塩酸で溶解後、蒸発乾固し、10⁻²M過塩素酸溶液とした。Httaは、特級試薬を昇華法により精製した。Hacacは、特級試薬をアンモニア水で洗浄後水

洗いし、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、蒸留精製した。クロロホルムは、特級試薬を水で洗浄後使用し、他の有機溶媒は、常法により精製して使用した。pH調整用緩衝溶液として、スルファニル酸溶液、あるいは、PIPES（ピペラジン-N, N'-ビス（2-エタンスルホン酸））溶液と、水酸化ナトリウム溶液を適量ずつ混合して目的pHに調整し、スルファニル酸、あるいは、PIPES濃度が 10^{-3} – 10^{-2} Mとなるように水相に加えた。イオン強度は、過塩素酸ナトリウムにより、0.1にととのえた。その他の試薬は特級あるいは、精密分析用試薬を用いた。

2.2 操作

10^{-5} M放射性Tm(III)、0.1M過塩素酸ナトリウム、および 10^{-3} – 10^{-2} M pH調整用緩衝溶液を含む水相10mlと、適当な濃度の酸性キレート剤と中性配位子を含む有機相10mlを50ml遠心管中で1–3時間振とうし、遠心分離した後、両相から3mlずつ試験管にとり、NaI(Tl)井戸型シンチレーションカウンターで放射能を測定して分配比を求めた。なお、有機相中の試薬の水相への分配、酸解離ともなう水相中のpHの変動を少なくするため、Tm(III)溶液を加える前に、20分–1時間振とうを行ってからTm(III)溶液を加えた。また、phenは有機相に溶解しにくいため、水相に加えた。

pH調整用緩衝溶液の濃度は、 10^{-2} M以下では金属の抽出に影響しないことをたしかめた。また、抽出においては、数点で逆抽出を行ない、抽出平衡が成立していることをたしかめた。

§ 3. 抽出曲線の解析

3.1 酸性キレート剤単独による抽出

酸性キレート剤単独による M^{3+} の抽出における分配比 D_0 は以下の式により表わされる。

$$D_0 = \frac{K_{D,M}\beta_3 [A^-]^3}{1 + \sum \beta_n [A^-]^n} \quad (1)$$

ここで $K_{D,M}$ は MA_3 キレートの分配係数、 β_n は MA_n キレートの全安定度定数、 $[A^-]$ は水相中の酸性キレート剤の解離型の濃度である。

3.2 協同効果抽出

酸性キレート剤と中性配位子を用いた協同効果抽出における分配比 D は以下の式により表わされる。

$$D = \frac{K_{D,M}\beta_3 [A^-]^3 (1 + \sum \beta_{s,m} [S]_0^m)}{1 + \sum \beta_n [A^-]^n} \quad (2)$$

ここで、 $\beta_{s,m}$ は付加錯体生成定数、 $[S]_0$ は有機相中の中性配位子濃度である。

(1)、(2)式から $[A^-]$ の等しい点では以下の式が導かれる。

$$\frac{D}{D_0} = 1 + \sum \beta_{s,m} [S]_0^m \quad (3)$$

各係数の解析には、東京大学大型計算機センター、SALS研究会の開発した最小二乗法標準プログラムシステムSALSにより行なった。

§ 4. 結果と考察

4.1 Hacac による抽出

0.1MHacac を含む有機溶媒による Tm(III) の抽出曲線を第1図に示す。

$[A^-]$ は、Hacac の初濃度、各溶媒系における分配係数 $K_{D,HA}$ ^{4,5)}、および酸解離定数 $K_{a,HA}$ ^{6,7)} から計算により求めた。

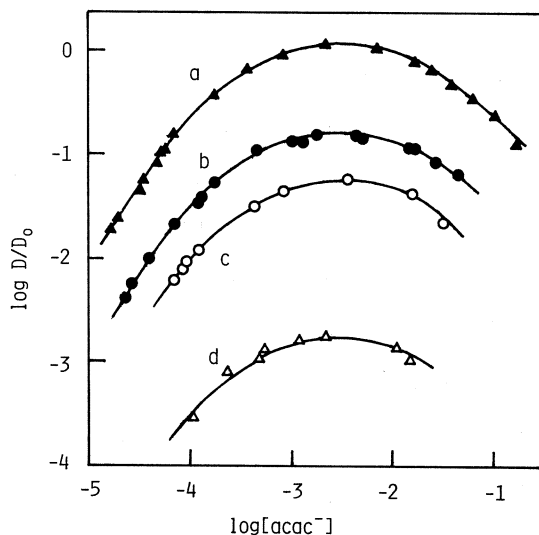
各溶媒系ともゆるやかな曲線となったが、これは水相中で Tm(III) と $acac^-$ が逐次錯形成しているためと考えられる。

$[A^-]$ の低い領域から高濃度になるにつれて $Tm(acac)_2^{2+}$ 、 $Tm(acac)_2^+$ 、 $Tm(acac)_3$ のキレートが生成し、さらに高濃度になると $Tm(acac)_4^-$ のキレートが生成して分配比が減少するものと考えられる。 $Tm(acac)_4^-$ の陰イオンキレートの存在については以下に述べるように、テトラフェニルアルソニウム(TPA)イオンによってイオン対抽出されることにより確認した。

0.1MHacac-クロロホルム系において、 $10^{-2}M$ TPA塩化物を加えて抽出を行なったところ、 $\log [A^-] = -1.8$ の領域で分配比が約 10^2 も増大し、イオン対抽出が起こることが確かめられた。

以上の考察から、キレートの安定度定数と分配係数を見つめるため、(1)式を以下のように書きなおした。

$$\begin{aligned} D_0 &= \frac{K_{D,M} \beta_3 [A^-]^3}{1 + \beta_1 [A^-] + \beta_2 [A^-]^2 + \beta_3 [A^-]^3 + \beta_4 [A^-]^4} \\ &= \frac{K_{D,M}}{1/k_1 k_2 k_3 [A^-]^3 + 1/k_2 k_3 [A^-]^2 + 1/k_3 [A^-] + 1 + k_4 [A^-]} \end{aligned} \quad (4)$$



第1図 Extraction of Tm(III) with 0.1M Hacac in various organic solvents. a: chloroform; b: benzene; c: carbon tetrachloride; d: cyclohexane.

ここで k_n は $Tm(acac)_n^{3-n}$ キレート の逐次安定度定数である。

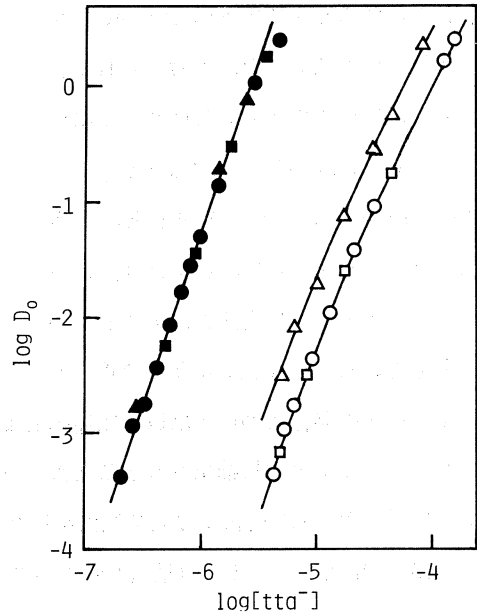
(4)式を用いて各係数を求めて得られた曲線が第1図の実線である。なお逐次安定度定数はクロロホルム系において算出し、その値を用いて他の系での分配係数を求めた。また、(4)式で k_1 を含む項は本実験領域ではきわめて小さな値となるため k_1 の値は正確には求められなかったが、 k_2 、 k_3 は文献値⁸⁾ とよく一致した。

得られた分配係数 $K_{D,M}$ の値を第1表に示した。これらの値は $Tm(III)$ と同様に $Hacac$ と 1 : 3 キレート を生成する 3 価の遷移金属 $Cr(III)$ 、 $Co(III)$ の $acac$ キレート の分配係数⁹⁾ と比べ、 $\frac{1}{400} - \frac{1}{1000}$ と非常に低い値となっている。これは中心金属の配位数の相違によるものと考えられる。 $Cr(III)$ 、 $Co(III)$ は通常その配位数は最大 6 であり、これらのトリスアセチルアセトナトキレートは配位飽和の八面体錯体であることが知られている^{10,11)}。一方希土類元素の場合はトリス β -ジケトナトキレートは通常 6, 7, 8 配位をとり、それぞれ無水、一水、二水和物キレートとして単離され X 線構造解析がなされている。したがって抽出されたキレートは 1 あるいは 2 分子の水が配位した水和キレートとなっていると思われる、そのために有機相への分配が低くなっていると考えられる。

4.2 Htta による抽出

Htta 単独による $Tm(III)$ の抽出を行ない $\log [A^-]$ に対して $\log D_0$ をプロットした(第2図)。

ベンゼン系では Htta 初濃度を $10^{-2}M$ から $10^{-1}M$ に変化してもこの図のプロットにはなんら影響を与えないが、シクロヘキサン系では Htta 初濃度が $10^{-1}M$ の方が $10^{-2}M$ より分配比が大きくなった。これは有機相中の Htta 濃度が増加することによって $Tm(tta)_3$ キレートに Htta が付加したいわゆる self adduct を形成するためであろうと考えられる。そこで Htta 初濃度を $10^{-3}M$ まで変化させて抽出を行なったところ、 $10^{-2}M$ の場合と同一の曲線上にプロットされたことから、Htta 初濃度 $10^{-2}M$ 以下では self adduct の影響がないことがわかり、この初濃



第2図 Extraction of $Tm(III)$ with Htta in cyclohexane and benzene. Cyclohexane system: open symbols; benzene system: closed symbols. Initial concentration of Htta; Δ : $10^{-1}M$; \circ : $10^{-2}M$; \square : $10^{-3}M$.

度におけるプロットを用いて解析を行なった。

またベンゼン系においては傾き 3 の直線となったが、シクロヘキサン系では接線の傾きが 3 - 2 の曲線となった。これは水相中で $Tm(III)$ と tta^- が反応し、 $Tm(tta)^{2+}$ 、 $Tm(tta)_2^+$ の化学種が形成されるためと考えられる。そこで(1)式を以下のように近似した。

$$D_0 = \frac{K_{D,M} \beta_3 [A^-]^3}{1 + \beta_1 [A^-] + \beta_2 [A^-]^2} \quad (5)$$

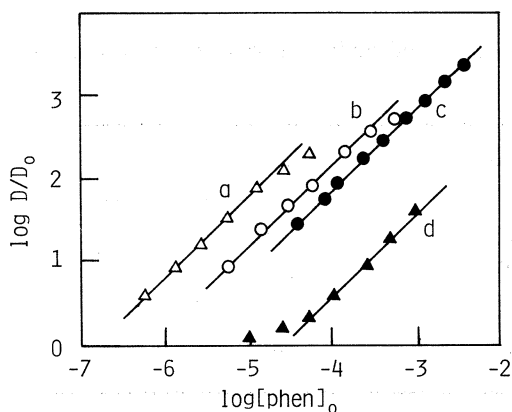
さらに抽出定数 K_{ex} は $K_{ex} = (K_{D,HA} / K_{a,HA})^3 K_{D,M} \beta_3$ であるから(5)式は以下ようになる。

$$D_0 = \frac{K_{ex} (K_{D,HA} / K_{a,HA})^3}{1 + \beta_1 [A^-] + \beta_2 [A^-]^2} \quad (6)$$

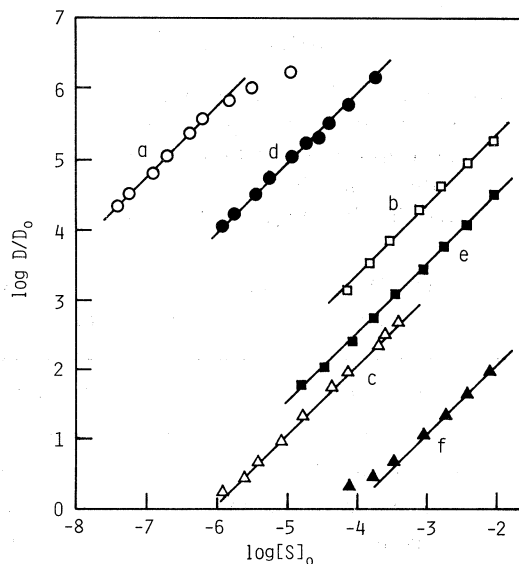
(6)式を用いて抽出定数を求めその値を第 2 表に示した。

4.3 協同効果抽出

Hacac - phen 系の協同効果抽出曲線を第 3 図、Htta - 二座配位子系を第 4 図、Htta - py 系を第 5 図に示す。

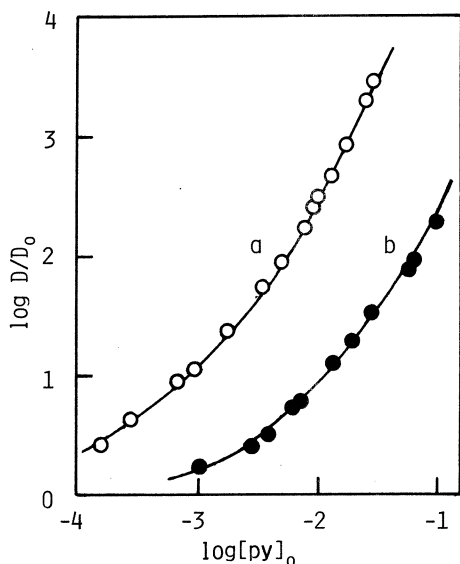


第 3 図 Effect of the concentration of phen in the organic phase on the synergistic extraction of $Tm(III)$ with 0.1 M Hacac. a : cyclohexane, pH 6.9 ; b : carbon tetrachloride, pH 6.5 ; c : benzene, pH 6.1 ; d : chloroform, pH 6.3.



第 4 図 Effect of the concentration of neutral bidentate ligands in the organic phase on the synergistic extraction of $Tm(III)$ with $10^{-3}M$ Htta. Cyclohexane systems ; a : phen, pH 3.8 ; b : bpy, pH 3.9 ; c : dmp, pH 4.9. Benzene systems ; d : phen, pH 3.5 ; e : bpy, pH 3.2 ; f : dmp, pH 4.5.

有機相中の中性配位子濃度 $[S]_0$ はそれぞれの分配係数と酸解離定数を用いて算出した¹²⁾。二座配位子を用いた場合はどちらの系でも傾き 1 の直線となり、有機相中の付加錯体は二座



第5図 Effect of the concentration of py in the organic phase on the synergistic extraction of Tm(III) with 10^{-3} M Htta. a: cyclohexane, pH 5.3; b: benzene, pH 5.1.

配位子が1個付加した $Tm A_3 S$ であることがわかる。単座配位子 py 系では $[S]_0$ の高い領域では傾き2の直線となり低濃度領域では曲線となっており、pyが2個付加した $Tm(tta)_3(py)_2$ と1個付加した $Tm(tta)_3(py)$ が生成していると考えられる。

前に述べたように、 $Tm A_3$ キレートは配位水を有すると考えられ、中性配位子はこの水分子と交換して8配位飽和の付加錯体となるため分配比が著しく向上すると思われる。

各付加錯体生成定数を第1表、第2表に示す。

Hacac系では、Htta系より β_s は小さくなり dmp系および bpy系では協同効果は小さ

第1表 Distribution constants of $Tm(acac)_3$ and adduct formation constants in Tm(III)-Hacac-phen system.

Solvent	$\log K_{D,M}$	$\log \beta_{s,1}$
Cyclohexane	-2.63	6.80
Carbon tetrachloride	-1.07	6.19
Benzene	-0.62	5.87
Chloroform	0.24	4.60

第2表 Extraction constants and adduct formation constants in Tm(III)-Htta system.

Solvent	$\log K_{ex}$	$\log \beta_{s,1}$				
		phen	dmp	bpy	py	py
Cyclohexane	-7.49	11.77	6.00	7.42	3.70	6.11
Benzene	-6.78	9.92	4.14	6.52	3.30	4.30

く正確な値は得られなかった。

TOPOなど通常よく用いられる単座の中性配位子による協同効果抽出において観察されたように¹⁾, β_s は溶媒間ではシクロヘキサン>四塩化炭素>ベンゼン>クロロホルム (Hacac-phen系) となった。Akibaら¹³⁾はEu(III)-Htta-リン酸トリブチル系などにおいて溶解パラメーターを用いて付加錯体生成定数に対する溶媒効果を説明しているが、本研究で得られた値はその順序と一致する。

中性二座配位子間ではphen > bpy > dmpの順となった。 β_s の大きさは中性配位子の塩基性の大きいものほど大きくなると考えられるが、dmpは塩基性の尺度となる pK_a がphenより大きいにもかかわらずbpyよりも小さくなっている。これはdmpの2, 9位のメチル基の立体障害と考えられる。Mn(II)-Htta系¹²⁾ではphen > dmp > bpyの順となったが、Mn(II)の場合Httaは2個結合しているのに対しTm(III)では3個結合しているため、配位子が混んでいて立体障害が大きくなったのではないかと思われる。

また、単座配位子pyの $\beta_{s,2}$ と比べbpyの $\beta_{s,1}$ の方が大きくなっている。これは協同効果抽出においてもキレート効果が起こり、抽出を増大させていることを示している。

§ 5. 結 語

本研究では、Tm(III)-Hacac, Htta系において中性二座配位子を用いた協同効果抽出を行ない、その付加錯体生成定数を求めた。各値は通常の単座配位子の場合に観察された結果とほぼ同様の傾向を示したが、単座配位子pyの場合との比較から二座配位子の方が協同効果が大きいことがわかった。

本研究にあたり、御助力を賜りました東北大学理学部核理学研究施設の八木益男助教授、榎本和義助手、マシングループの皆様、またコンピュータプログラミングに際し御協力いただいた上野光明氏に感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) Y. Marcus and A. S. Kertes: *Ion Exchange and Solvent Extraction of Metal Complexes* (Wiley-Interscience, London, 1969) p.815.
- 2) E. F. Kassierer and A. S. Kertes: *J. Inorg. Nucl. Chem.* **34** (1972) 3221.
- 3) M. S. Bhatti, J. F. Desreux and G. Duyckaerts: *J. Inorg. Nucl. Chem.* **42**

- (1980) 762.
- 4) T. Wakabayashi, S. Oki, T. Omori and N. Suzuki : J. Inorg. Nucl. Chem. **26** (1964) 2255.
 - 5) K. Akiba, N. Suzuki and T. Kanno : Bull. Chem. Soc. Jpn. **42** (1969) 2537.
 - 6) J. C. Reid and M. Calvin : J. Amer. Chem. Soc. **72** (1950) 2948.
 - 7) S. Oki : Bull. Chem. Soc. Jpn. **38** (1965) 522.
 - 8) I. Grenthe and W. C. Fernelius : J. Amer. Chem. Soc. **82** (1960) 6258.
 - 9) P. D. Hopkins and B. E. Douglas : Inorg. Chem. **3** (1964) 357.
 - 10) B. Morosin : Acta Cryst. **19** (1965) 131.
 - 11) G. J. Kruger and E. C. Reynhardt : Acta Cryst. **B30** (1974) 822.
 - 12) 中村重人, 井村久則, 鈴木信男 : 第12回中部化学関係学協会支部連合秋季大会 講演予稿集 (1981) p. 362.
 - 13) K. Akiba, M. Wada and T. Kanno : J. Inorg. Nucl. Chem. **43** (1981) 1031.

Extraction of Uranium by Emulsion Type of Liquid Membrane

Kenichi Akiba, Toshihiko Takahashi and Takuji Kanno

Research Institute of Mineral Dressing and Metallurgy

Tohoku University, Sendai 980, Japan

The extraction of uranium(VI) from dilute acidic solution has been studied by means of a liquid membrane emulsion containing LIX 63 as a mobile carrier. The rates of extraction increased with increase in carrier concentrations and the external pH values, while they were slightly dependent on the internal acid concentrations. Uranium was effectively concentrated in the small encapsulated phase of emulsion. The final concentration of uranium in the external phase dropped to almost 10^{-3} of the initial value.

§ 1. Introduction

Separations of metals in liquid-liquid extraction can be achieved through processes of extraction into the organic phase and stripping into the aqueous phase. Considerable attention has been given to a new method of separation by means of liquid membranes.¹⁻³⁾ The (W/O/W) type emulsion system consists of droplets of the stripping solution enclosed in a thin film of an extractant and a dispersed aqueous solution. A metal ion in the external solution is expected to be selectively concentrated into the internal solution across the liquid membrane.

The present paper deals with the extraction of uranium(VI) from a dilute acidic solution by means of a liquid membrane emulsion containing LIX 63 as a mobile carrier.

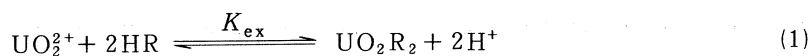
§ 2. Experimental

The membrane solution was composed of LIX 63 (Henkel) in kerosene

and 2% (w/v) non-ionic surfactant, Span 80. It was vigorously stirred at 20,000 rpm by a homogenizer, with an equal volume of stripping solution of sulfuric acid in a centrifuge tube. Five cubic centimeters of this (W/O) emulsion were mixed with 50 cm³ of the uranium solution (pH = 3–5) containing ²³⁷U as a tracer. The initial concentration of uranium was 10⁻⁵ mol dm⁻³. After stirring at 300 rpm, an aliquot of the external solution was pipetted off for analysis at selected time intervals. The uranium concentration was determined by measuring the γ -radioactivity of ²³⁷U with a NaI scintillation counter.

§ 3. Results and Discussion

The extraction equilibrium of uranium(VI) with LIX 63 (HR) is represented by ⁴⁾



The extraction constants were obtained as $\log K_{\text{ex}} = -2.11$ and -3.32 for 0.1 mol dm⁻³ perchlorate and sulfate media, respectively. From these results in the liquid-liquid extraction system, it is possible to predict experimental conditions for the liquid membrane method.

Figure 1 shows the plots of logarithm of $[\text{U}]_t / [\text{U}]_0$, the ratio of uranium concentration at time t to the initial value in the external aqueous phase. These plots yielded a series of straight lines for different carrier concentrations indicating first order dependence of uranium concentration,

$$\ln \frac{[\text{U}]_t}{[\text{U}]_0} = -k_{\text{obs}} t \quad (2)$$

The slopes of lines give the apparent rate constants, k_{obs} . Rapid decreases in uranium concentrations correspond to effective extraction of uranium into the internal aqueous phase of emulsion.

The $\log k_{\text{obs}}$ values obtained from Fig. 1 were plotted against $\log ([\text{LIX 63}] / \text{mol dm}^{-3})$ in the liquid membrane; they were linear and exhibited a slope of 0.6 as can be seen in Fig. 2.

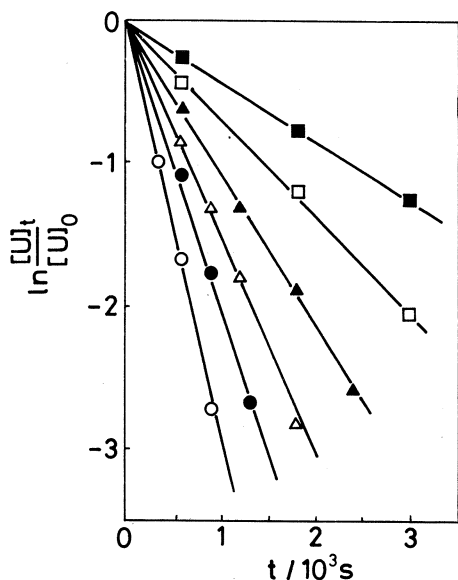


Fig. 1. Rate of uranium extraction by liquid membrane containing various concentrations of LIX 63.

$[\text{LIX 63}] / \text{mol dm}^{-3} = 2 \times 10^{-2}$ (\circ), 10^{-2} (\bullet), 5×10^{-3} (\triangle), 2.5×10^{-3} (\blacktriangle), 1.25×10^{-3} (\square) and 6.25×10^{-4} (\blacksquare); $\text{pH}_{\text{ext, aq}} = 4.25$; $\text{pH}_{\text{int, aq}} = 2.48$.

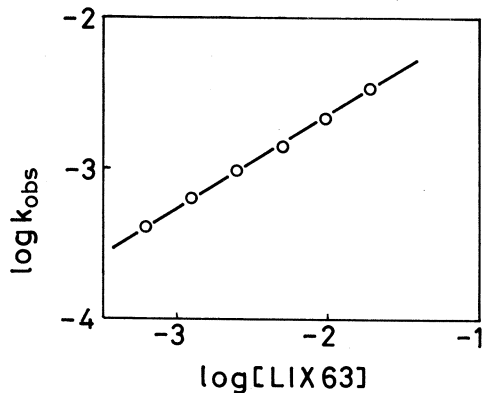


Fig. 2. Effect of LIX 63 concentration on the apparent rate constant of uranium extraction.

Figure 3 shows the effect of external pH values on the extraction rate. Straight lines with slopes of about 1.3 were obtained at different acid concentrations in the emulsion phase. As long as the internal acid concentrations are high enough to strip uranium, it is evident that the extraction rates increase with the external pH values.

Analogous plots of $\log k_{\text{obs}}$ vs. pH of the internal solution were linear with small negative slopes around -0.2 as shown in Fig. 4.

The rates of extraction thus increased with increase in carrier concentrations and external pH values, while the variation in internal acid concentrations had a little effect on the k_{obs} values, and uranium could be effectively concentrated in the small encapsulated phase in emulsion. The concentration ratio, $[U]_t / [U]_0$, was

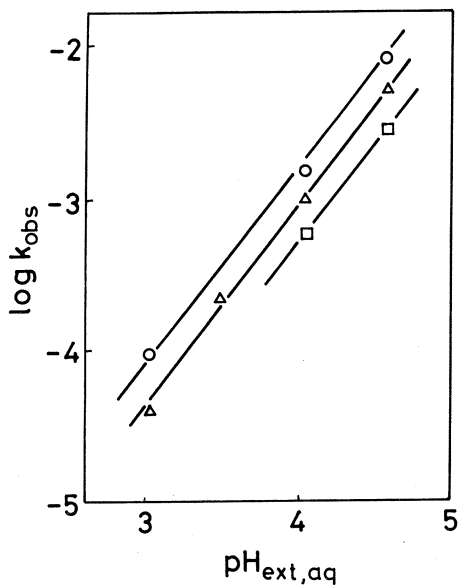


Fig. 3. Effect of pH of the external aqueous solution on the apparent rate constant.

$\text{pH}_{\text{int,aq}} = 0.93$ (○), 2.38 (△)
and 3.52 (□).

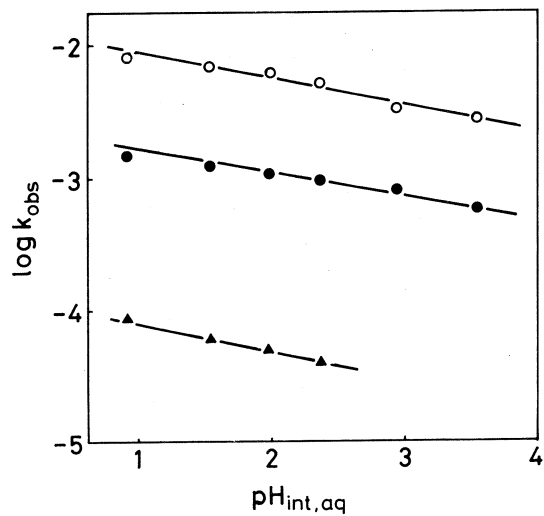


Fig. 4. Effect of pH of the internal aqueous solution on the apparent rate constant.

$\text{pH}_{\text{ext,aq}} = 4.58$ (○), 4.05 (●) and
3.03 (▲).

reduced to almost 10^{-3} .

References

- 1) K. H. Lee, D. F. Evans and E. L. Cussler : AICH J. **24** (1978) 860.
- 2) J. W. Frankenfeld, R. P. Cahn and N. N. Li : Sepn. Sci. Tech. **16** (1981) 385.
- 3) J. Strzelbicki and W. Charewicz : J. Inorg. Nucl. Chem. **40** (1978) 1415.
- 4) K. Akiba and T. Kanno : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku University, **15** (1982) 103.

LINACにおける低温照射装置を用 いる反跳インプランテーション

理学部化学, 核理研*

関根勉・吉原賢二

八木益男*・榎本和義*

§ 1. 序

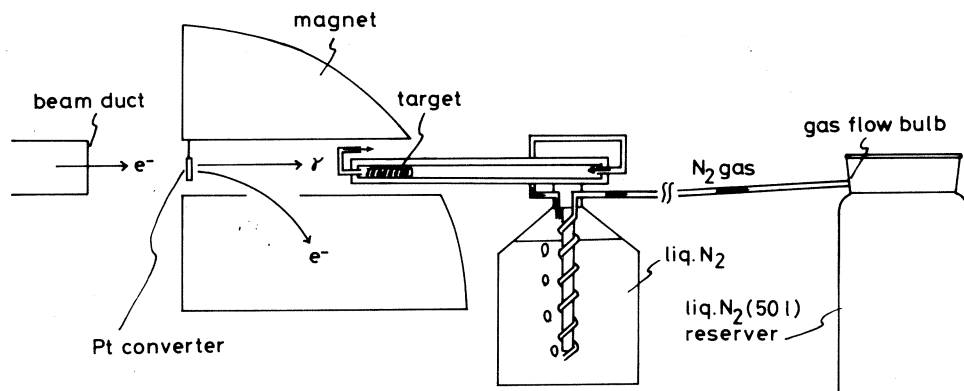
反跳インプランテーションによって化合物合成が実行できることは西ドイツの Baumgärtner¹⁾ によってはじめて示された。その後この種の研究はほとんどおこなわれていなかったが、最近になってこの方法はふたたび注目されるようになり、西ドイツと日本において多くの報告がなされている。Tc や Pm の錯体の簡易な合成法はわれわれのグループで取上げられ²⁻⁵⁾、とくに低原子価 Tc 錯体の合成ではこの方法の独自の価値が再評価され多くの反響を生んだ。また反跳インプランテーションによって従来よくわかっていなかった反跳反応の機構の解析がおこなわれるようになった。西ドイツの Rössler^{6, 7)} は反跳置換反応の特異性や、反跳引抜反応の様相を明らかにし、われわれの研究室でも格子間 Tc 原子の酸化機構における電荷の関与⁸⁾、混晶系における反跳置換反応と反跳引抜反応の優劣の比較⁹⁾ などがおこなわれ、反跳インプランテーションが従来の固相ホットアトム化学の解明し得ない点を明らかにする手段でありうる事が知られて来た。

固相の反跳原子の反応の機構を研究するには低温度で照射する必要がある。しかし LINAC の RI 製造で従来おこなわれて来た照射のやり方ではドライアイス温度までであり、それ以下の照射はおこなわれなかった。本報告では液体窒素冷却によってターゲット系を -130°C 程度の低温度に保つ照射装置を使用し、これによって反跳原子の反応の種々の様相を明らかにした。

§ 2. 実験

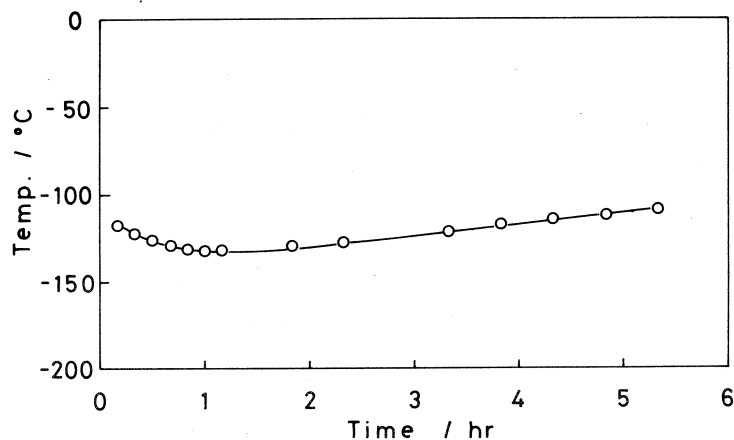
2.1 照射装置

r 線の照射は第 1 図に示すような装置によっておこなった。アルミニウム箔に包んだ試料はパネの巻線ピッチの間にはさみこまれ、また必要に応じて各ピッチに試料を挿入し同時に多数の試料を照射することができる。



第1図 Low temperature irradiation assembly for γ -beam.

液体窒素タンクから蒸発した窒素ガスは第2番目の液体窒素タンクに導かれ、ここで再び冷却されたのちに、試料冷却照射部に導かれる。試料はこの窒素ガス冷却剤の流れによって冷却される。ガス冷却は照射前より始めて照射中を通して約7時間程度おこなわれる。冷却温度は -130°C 程度に達するが、長い時間経過では -110°C くらいの冷却が保証される。第2図に時間経過と温度との関係を示した。

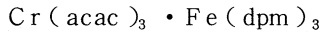


第2図 Temperature vs time for the irradiation assembly.

2.2 試料および照射

試料はクロムおよび鉄のアセチルアセトンおよびジピバロイルメタン錯体を混晶の形に作った。混晶は2つの系を混合して昇華精製用カラムに入れ、注意して昇華をおこない、zone のもっとも濃い部分をとった。この方法が十分混合状態のよい混晶を与えることはすでにおこなわれた研究でもわかっている⁹⁾。

本実験では



の2種の混晶系を用いた。

照射は東北大学原子核理学研究施設 300 MeV 電子ライナックによっておこなった。電子線エネルギーは 60 MeV, 電子線は白金コンバーターによって γ 線にかえた。 γ 線照射にあたってはスウィープ・マグネットを使用して混入する電子を除いた。照射は上記照射装置を用い約 7 時間を目途におこなった。

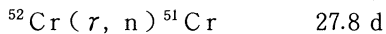
2.3 化学分離法

照射した試料はベンゼンに溶解したのち、アルミナカラム (10mm ϕ \times 350 mm) に通してベンゼンおよびクロロホルムにより溶離をおこなった⁹⁾。

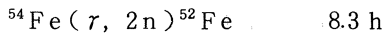
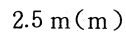
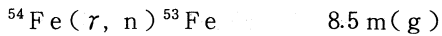
2.4 測定

放射能の測定は NaI (Tl) シンチレーターとシングルチャンネル波高分析器によっておこなった。

対象核種と生成核反応はつぎのとおりである。



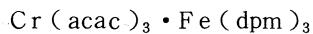
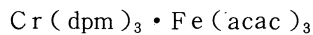
このほかに



等も生じるが、短寿命のため ^{51}Cr の測定に妨害を与えることはなかった。

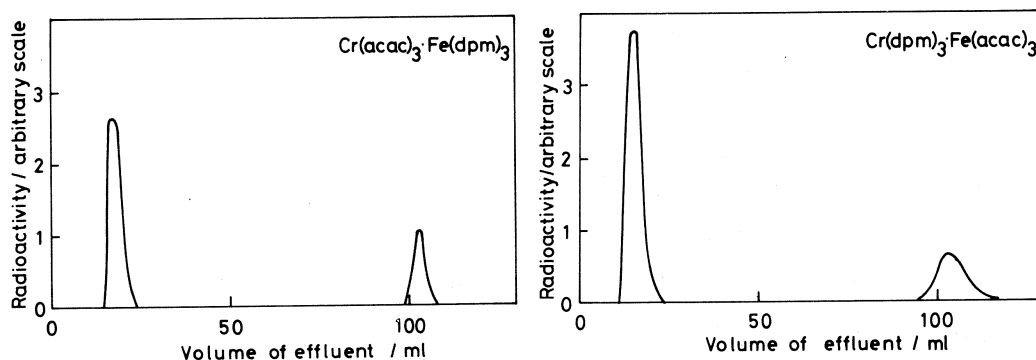
§ 3. 結果と考察

前に記した2種の混晶系



を γ 線照射後、アルミナカラムによりとくに parent type の化合物を主な対象として分離した結果を第3図に示す。溶離曲線のはじめのピークは $\text{Cr}(\text{dpm})_3$, のちのピークは $\text{Cr}(\text{acac})_3$ によるもので、前者の溶離にはベンゼン、後者の溶離にはクロロホルムを用いている。両者の中間には混合配位子錯体があらわれる⁹⁾はずだが、その位置には放射能はみとめられなかった。

上の結果は第1表にまとめられている。2種のターゲットはいずれの場合も反跳 Cr 原子が



第3図 Elution curves for r -irradiated mixed crystals $\text{Cr}(\text{acac})_3 \cdot \text{Fe}(\text{dpm})_3$ and $\text{Cr}(\text{dpm})_3 \cdot \text{Fe}(\text{acac})_3$.

第1表 Percent yields of the products produced by the $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$ reaction

Target	Products		
	$\text{Cr}(\text{dpm})_3$	$\text{Cr}(\text{acac})_3$	Column
$\text{Cr}(\text{dpm})_3 \cdot \text{Fe}(\text{acac})_3$	4.95 ± 0.14	1.95 ± 0.13	93.00 ± 1.72
$\text{Cr}(\text{acac})_3 \cdot \text{Fe}(\text{dpm})_3$	3.85 ± 0.24	1.25 ± 0.19	94.90 ± 3.43

相手錯体の中心金属(Fe)置換をおこなっていることがわかる。

対照実験として同じ試料を立教大学原子力研究所原子炉の熱中性子($5 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$)でドライアイス温度で照射し、分離した結果を第2表に示す。(n, r)反応では(r , n)反応の場合とことなり相手錯体の中心金属置換はまったくおこなわれない。

第2表 Percent yields of the products produced by the $^{50}\text{Cr}(n, r)^{51}\text{Cr}$ reaction.

Target	Products		
	$\text{Cr}(\text{dpm})_3$	$\text{Cr}(\text{acac})_3$	Column
$\text{Cr}(\text{dpm})_3 \cdot \text{Fe}(\text{acac})_3$	1.96 ± 0.17	0	98.04 ± 5.82
$\text{Cr}(\text{acac})_3 \cdot \text{Fe}(\text{dpm})_3$	0	1.25 ± 0.21	98.75 ± 6.94

これらの結果はきわめて興味ある事実を示唆している。

すなわち反跳Cr原子が相手錯体の中心金属(Fe)原子を置換することは、反跳エネルギー300 eV程度の(n, r)反応では不可能であるが、反跳エネルギー数十KeVの(r , n)反応では可能であるということである。混晶はよく混っていると考えられるから、反跳原子が相手錯体と置換反応をおこなうためにはあるエネルギーのしきい値を必要とすることが示唆される。

吉原と工藤¹⁰⁾は反跳によりホットアトム効果が現れるためのエネルギーしきい値があることをつきとめ、これを出現エネルギー (appearance energy) と呼んだ。本研究で示唆されるエネルギーのしきい値はこれとはまた違ったものである。反跳置換のためのしきいエネルギーがかかわることは明らかである。もっとも反跳原子はまず化学結合を切り、出現エネルギーに相当するエネルギー以上のエネルギーをもって外へ飛出すことが最低限必要であるから、この分は勘定に入れなければならない。しかし本研究が示すところでは出現エネルギーとして与えられている数十 eV の値よりもずっと高いエネルギーが反跳置換のために必要である。少なくとも数百 eV が必要であると言える。

この種の研究は従来まったく未開拓の高エネルギー粒子反応の機構の解明に手がかりを与えるものとして重要であろう。しかし詳細は今後の研究にまきたい。

参 考 文 献

- 1) F. Baumgärtner and P. Reichold : *Chemical Effects of Nuclear Transformations* (IAEA, Vienna, 1961) Vol. 2, p. 319.
- 2) K. Yoshihara, T. Omori, T. Sekine and M. Saito : *Radiochim. Acta* **29** (1981) 131.
- 3) T. Sekine and K. Yoshihara : *ibid* **29** (1981) 139.
- 4) K. Yoshihara, M. Saito and T. Sekine : *ibid* **30** (1982) 25.
- 5) K. Yoshihara : *J. Labelled Compds. Radiopharmaceuticals* **18** (1981) 130.
- 6) K. Rössler and L. Pross : *Radiochem. Radioanal. Lett.* **18** (1974) 291.
- 7) K. Rössler and L. Pross : *Radiation Effects* **48** (1980) 207.
- 8) T. Sekine and K. Yoshihara : *Radiochem. Radioanal. Lett.* **52** (1982) 349.
- 9) T. Sekine and K. Yoshihara : *Radiochem. Radioanal. Lett.* **52** (1982) 311.
- 10) K. Yoshihara and H. Kudo : *J. Chem. Phys.* **52** (1970) 2950.

Nondestructive Multielement Photon- Activation Analysis of Rocks

Takeyoshi Yoshida, Hirokazu Fujimaki and Ken-ichiro Aoki
Institute of Mineralogy, Petrology and Economic Geology,
Tohoku University, Sendai 980, Japan

§ 1. Introduction

The determination of a number of constituents in rocks has been performed by various analytical methods. Activation analysis is now frequently used as a powerful tool for the determination of elements. The recent development of high-resolution solid-state detectors and of computerized spectrometer systems has facilitated the determination of a number of elements simultaneously without any chemical separations. Thus, instrumental neutron-activation analysis has successfully been applied to the measurement of the concentrations of many elements in geological materials.

In non-destructive thermal-neutron activation analysis, the number of the elements determinable is limited due to the high ^{24}Na activity induced in rock material and self-shielding is sometimes a serious problem. These difficulties, however, are not inherent in activation analysis by high-energy photons. Recently, Kato and his associates have presented the discussion of the principles and merits of nondestructive photon-activation analysis, together with the data of the analyses of various silicate rocks and several biological materials.¹⁻⁴⁾

For yttrium and zirconium, nondestructive analysis by thermal-neutron activation is generally not attainable, and is also not feasible for the determinations of titanium, nickel and strontium. These elements, however, can be measured non-destructively by photon activation analysis even at ppm levels²⁾ and the present method can be most advantageous.

Determinations of nine standard rocks (G-2, JG-1, SY-2, SY-3,

GSP - 1, AGV - 1, JB - 1, BCR - 1 and MRG - 1) for 19 elements (Na, Mg, Ca, Sc, Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Zn, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Cs, Ba and Ce) have been made non-destructively by photon-activation with 30 MeV bremsstrahlung and high-resolution gamma-ray spectrometry at the Institute of Petrology, Tohoku University.

§ 2. Experimental

2.1 *Samples and standards*

Rock samples were individually placed in small pieces of aluminium foil weighing 27–28 mg and made into discs 10 mm in diameter with a thickness of about 3 mm. The amount of the rock loaded varied in the range 350–400 mg. The comparative multi-element standard (MSTD) was prepared by adding the minor or trace elements to a basalt from Madara-shima, Saga Prefecture, which was dried at 110 °C. The analytical samples and the comparative standards were encapsulated into a silica tube and irradiated simultaneously. To assess the magnitude of interference nuclear reactions, some aluminum foil weighing 27–28 mg, pure iron and potassium iodide were irradiated together with the samples.

2.2 *Irradiation*

The linear electron accelerator of Tohoku University was used as the bremsstrahlung source. On the basis of the previous study regarding the sensitivity and interferences in photon-activation analysis^{5, 6)}, an electron energy of 30 MeV was selected in the present work. The electron beam produced bremsstrahlung in a platinum converter with a thickness of 2 mm located 10 cm from the beam exit window⁷⁾. The average beam current in a typical operating condition was 100 μ A at the position of the converter, measured by using a current monitor.

The silica tube containing the samples was placed in a water-cooled sample holder on the bremsstrahlung beam axis immediately behind the photon-producing converter for irradiation.

Irradiations were terminated in 2–3 hr.

2.3 *Counting and evaluation*

The counting equipment consisted of a hyperpure germanium detector with an active volume of 86 cm³, APTEC Model CS 20-B 31 R, and its associated electronics coupled to a 4096-channel pulse-height analyzer made by Nippon Atomic Industry Group Co., Ltd. (NAIG), Japan. The counting system had a resolution of 2.1 keV for the 1332 KeV gamma-line of ⁶⁰Co. After irradiation, the rock sample or the standard was mounted on the detector in a fixed position, and counting was performed continually for increasing intervals over a period of one month or longer.

All the counts recorded on the multi-channel pulse-height analyzer are transferred to a CLC-3 computer system (HP-45 B). The concentrations of each element in the samples subjected to analysis were calculated by means of the comparative method. A specific activity in terms of the peak areas for any specified gamma-rays from the comparative standards was used for calculating the abundance of an element in question. In obtaining the full-energy peak areas, the total peak counts were computed and the background contribution were subtracted by the GAMMA1 program made by NAIG. Nuclidic assignment of the gamma-rays was based on the list of the gamma-rays emitted by photon activation products under comparable conditions previously reported and the nuclear data listed in the Table of Isotopes⁸⁾. Decay curve analyses were made to check for interferences. The decay-corrected peak areas were then used to determine elemental abundances in the rocks as compared to the multi-element standards.

§ 3. **Results and discussion**

3.1 *Gamma-rays observed*

Gamma-rays observed in the irradiated multi-element standards and sample materials are listed in Table I in ascending order of their energies. Typical gamma-ray spectra of a comparative standard (MSTD) and JB-1 basalt measured at comparable decay time are shown in Figs 1-2. The shapes and decay properties of the gamma-ray spectra of both the samples and the comparative standard

Table I. List of the gamma-rays observed.

Nuclide	Gamma-ray KeV	Process	Nuclide	Gamma-ray KeV	Process
⁶⁷ Cu	93.3	⁶⁸ Zn (γ , p)	⁹⁵ Zr	724	⁹⁶ Zr (γ , n)
⁴⁸ Cr	116	⁵⁰ Cr (γ , 2n)	²²³ Th (²¹² Bi)	727	Bg
⁵⁷ Co	122	⁵⁸ Ni (γ , p)	⁵² Mn	744	⁵⁴ Fe (γ , pn)
		+ ⁵⁸ Ni (γ , n; β^+)	¹²⁶ I	754	¹²⁷ I (γ , n)
⁵⁷ Ni	127	⁵⁸ Ni (γ , n)	⁹⁵ Zr	757	⁹⁶ Zr (γ , n)
⁵⁷ Co	136	⁵⁸ Ni (γ , p)	²²⁸ Ac	795	Bg
		+ ⁵⁸ Ni (γ , n; β^+)	⁴⁷ Ca	808	⁴⁸ Ca (γ , n)
^{99m} Tc	142	¹⁰⁰ Mo (γ , n; β^-)	⁵⁸ Co	811	⁵⁹ Co (γ , n)
¹⁴¹ Ce	145	¹⁴² Ce (γ , n)	⁵⁴ Mn	835	⁵⁵ Mn (γ , n)
⁴⁷ Sc	159	⁴⁸ Ti (γ , p)	⁵⁶ Co	847	⁵⁸ Ni (γ , pn)
		+ ⁴⁸ Ca (γ , n; β^-)	⁵⁶ Mn	847	⁵⁷ Fe (γ , p)
¹³⁹ Ce	166	¹⁴⁰ Ce (γ , n)	²⁰⁸ Tl	860	Bg
⁵² Fe	169	⁵⁴ Fe (γ , 2n)	⁸⁴ Rb	882	⁸⁵ Rb (γ , n)
⁴⁸ Sc	175	⁴⁹ Ti (γ , p)	⁴⁶ Sc	889	⁴⁷ Ti (γ , p)
⁶⁷ Cu	185	⁶⁸ Zn (γ , p)	⁸⁸ Y	898	⁸⁹ Y (γ , n)
^{120m} Sb	197	¹²¹ Sb (γ , n)	⁸⁹ Zr	909	⁹⁰ Zr (γ , n)
²³⁷ U	208	²³⁸ U (γ , n)	²²⁸ Ac	911	Bg
⁴³ K	219	⁴⁴ Ca (γ , p)	^{92m} Nb	935	⁹³ Nb (γ , n)
^{85m} Sr	232	⁸⁶ Sr (γ , n)	⁵² Mn	935	⁵⁴ Fe (γ , pn)
²²⁸ Th (²¹² Pb)	239	Bg	²³² Th (²²⁸ Ac)	970	Bg
^{135m} Ba	268	¹³⁶ Ba (γ , n)	⁴⁸ Sc	984	⁴⁹ Ti (γ , p)
^{44m} Sc	271	⁴⁵ Sc (γ , n)	^{120m} Sb	1023	¹²¹ Sb (γ , n)
^{133m} Ba	276	¹³⁴ Ba (γ , n)	⁴⁸ Sc	1037	⁴⁹ Ti (γ , p)
²⁰³ Pb	279	²⁰⁴ Pb (γ , n)	⁸⁶ Rb	1077	⁸⁷ Rb (γ , n)
²²⁶ Ra (²¹⁴ Bi)	295	Bg	⁶⁵ Zn	1116	⁶⁶ Zn (γ , n)
⁵¹ Cr	320	⁵² Cr (γ , n)	⁴⁶ Sc	1121	⁴⁷ Ti (γ , p)
²²⁸ Ac	338	Bg	¹³² Cs	1136	¹³³ Cs (γ , n)
²²⁶ Ra (²¹⁴ Bi)	352	Bg	⁴⁴ Sc	1157	⁴⁵ Sc (γ , n)
⁴³ K	373	⁴⁴ Ca (γ , p)	²² Na	1275	²³ Na (γ , n)
^{87m} Sr	388	⁸⁸ Sr (γ , n)	⁴⁷ Ca	1297	⁴⁸ Ca (γ , n)
⁸⁷ Y	388	⁸⁹ Y (γ , 2n)	⁴⁸ Sc	1312	⁴⁹ Ti (γ , p)
¹²⁶ I	389	¹²⁷ I (γ , n)	¹³² Cs	1318	¹³³ Cs (γ , n)
⁴³ K	397	⁴⁴ Ca (γ , p)	⁸⁸ Y	1325	⁸⁹ Y (γ , n)
^{69m} Zn	439	⁷⁰ Zn (γ , n)	²⁴ Na	1369	²⁵ Mg (γ , p)
¹³² Cs	465	¹³³ Cs (γ , n)	⁵⁷ Ni	1378	⁵⁸ Ni (γ , n)
⁸⁷ Y	485	⁸⁹ Y (γ , 2n)	²¹⁴ Bi	1390	Bg
⁴⁷ Ca	489	⁴⁸ Ca (γ , n)	⁵² Mn	1434	⁵⁴ Fe (γ , pn)
Various	511	Annihilation	⁴⁰ K	1460	Bg
⁸³ Rb	520	⁸⁵ Rb (γ , 2n)	⁴² K	1525	⁴³ Ca (γ , p)
⁸³ Rb	530	⁸⁵ Rb (γ , 2n)	²²⁸ Th (²⁰⁸ Tl)	1593	Bg
⁶² Zn	548	⁶⁴ Zn (γ , 2n)	²⁴ Na	1732	²⁵ Mg (γ , p)
⁸³ Rb	553	⁸⁵ Rb (γ , 2n)	⁵⁷ Ni	1757	⁵⁸ Ni (γ , n)
¹²² Sb	564	¹²³ Sb (γ , n)	²²⁶ Ra (²¹⁴ Bi)	1765	Bg
²⁰⁸ Tl	583	Bg	²² Na	1786	²³ Na (γ , n)
⁴³ K	596	⁴⁴ Ca (γ , p)	⁵⁶ Mn	1811	⁵⁷ Fe (γ , p)
²²⁶ Ra (²¹⁴ Bi)	609	Bg	⁸⁸ Y	1836	⁸⁹ Y (γ , n)
⁴³ K	618	⁴⁴ Ca (γ , p)	²¹⁴ Bi	1847	Bg
⁷⁴ As	635	⁷⁵ As (γ , n)	⁸⁴ Rb	1897	⁸⁵ Rb (γ , n)
¹²⁶ I	666	¹²⁷ I (γ , n)	⁵⁷ Ni	1920	⁵⁸ Ni (γ , n)
¹³² Cs	668	¹³³ Cs (γ , n)			

Bg : Natural background

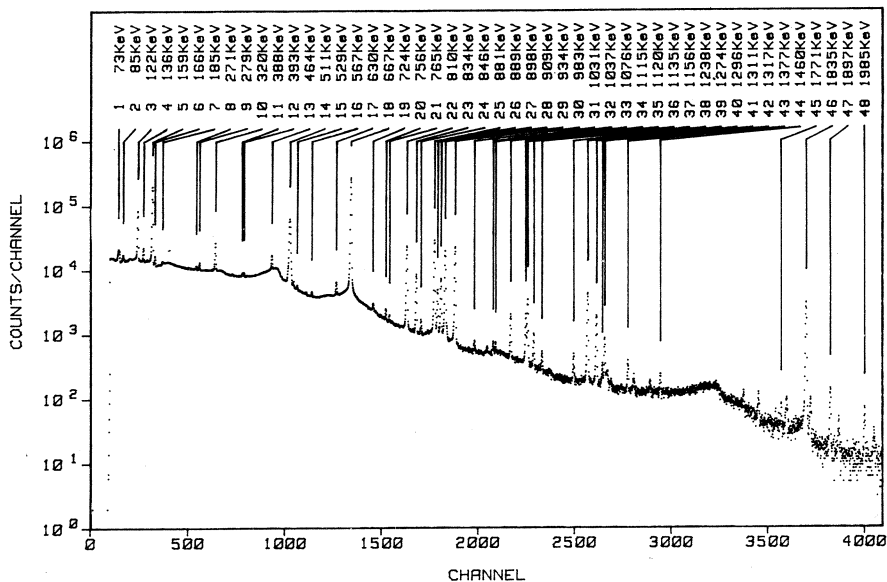


Fig. 1. Gamma-ray spectrum of the multi-element standard (MSTD) irradiated with 30 MeV bremsstrahlung obtained at 15 day after irradiation. Counting time is 5000 s.

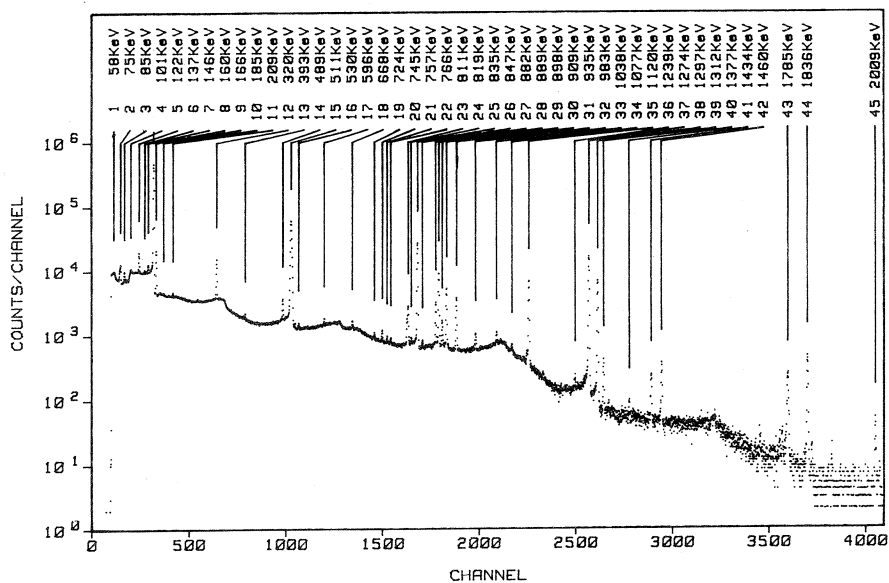


Fig. 2. Gamma ray spectrum of the JB-1 basalt irradiated with 30 MeV bremsstrahlung obtained at 15 day after irradiation. Counting time is 10000 s.

were essentially the same. In order to measure precisely photopeaks due to longer-lived nuclides, counting has been made consecutively for increasing intervals over

Table II. Pertinent nuclear data for photon-activation products and effects of interference with 30 MeV bremsstrahlung.

Element	Product	Half life	Gamma-ray used, keV	Suitable decay time for measurement	Competing reaction	Effect of interference
Ca	⁴³ K	22.3 h	373 618	1 - 2 d 1 - 2 d	⁴⁵ Sc (τ , 2p) ⁴³ K	Sc/Ca=7.2 · 10 ¹
Fe	⁴⁷ Ca	4.536 d	1297	10-15d		
	⁵⁶ Mn	2.579 h	847	2 - 5 h	⁵⁵ Mn (n, τ) ⁵⁶ Mn	Mn/Fe=2.8
Mg	²⁴ Na	15.02 h	1369	1 - 2 d	²⁷ Al (τ , ³ He) ²⁴ Na ²⁷ Al (n, α) ²⁴ Na ²³ Na (n, τ) ²⁴ Na	Al/Mg=2.1 · 10 ² Na/Mg=2.25 · 10 ²
Mn	⁵⁴ Mn	312 d	835	10d	⁵⁶ Fe (τ , pn) ⁵⁴ Mn ⁵⁴ Fe (n, p) ⁵⁴ Mn	Fe/Mn=1.2 · 10 ²
Na	²² Na	2.602 y	1275	10d	²⁴ Mg (τ , pn) ²² Na ²⁷ Al (τ , α n) ²² Na	Mg/Na=7.7 · 10 ¹ Al/Na=1.3 · 10 ³
Ti	⁴⁶ Sc	83.80 d	889 1121	10d 10d	⁵¹ V (τ , α n) ⁴⁶ Sc	V/Ti = 5.7 · 10 ²
	⁴⁷ Sc	3.42 d	159	2 - 5 h	⁴⁸ Ca (τ , n; β^-) ⁴⁷ Sc	Ca/Ti=68 (after 136h)
	⁴⁸ Sc	43.7 h	984	2 - 3 d	⁵¹ V (τ , α) ⁴⁷ Sc ⁵¹ V (τ , ³ He) ⁴⁸ Sc ⁵¹ V (τ , pd) ⁴⁸ Sc	V/Ti = 2.4 · 10 ¹ V/Ti = 1.7 · 10 ³
Ba	^{135m} Ba	28.7 h	268	1 - 2 d	¹⁴⁰ Ce (τ , α n) ^{135m} Ba	(Ce/Ba=9 · 10 ²)
Ce	¹³⁹ Ce	137.2 d	166	30-40d	¹⁴¹ Pr (τ , pn) ¹³⁹ Ce	(Pr/Ce=2 · 10 ³)
Co	⁵⁸ Co	70.8 d	811	30-40d	⁶⁰ Ni (τ , pn) ⁵⁸ Co	Ni/Co=7.2 · 10 ¹
Cr	⁵¹ Cr	27.70 d	320	10-15d	⁵⁶ Fe (τ , α n) ⁵¹ Cr	Fe/Cr=1.6 · 10 ⁴
Cs	¹³² Cs	6.47 d	668	10-15d		
Nb	^{92m} Nb	10.15 d	935	10-15d	⁹⁴ Mo (τ , pn) ^{92m} Nb ⁹⁵ Mo (τ , p2n) ^{92m} Nb	Mo/Nb=1.7 · 10 ³
Ni	⁵⁷ Ni	36.0 h	1378	2 - 3 d		
Rb	⁸⁴ Rb	32.9 d	882	10-15d	⁸⁶ Sr (τ , pn) ⁸⁴ Rb	Sr/Rb=1.1 · 10 ⁴
Sc	^{44m} Sc	2.44 d	271	2 - 3 d	⁴⁶ Ti (τ , pn) ^{44m} Sc	Ti/Sc=1 · 10 ⁴
	⁴⁴ Sc	3.93 h	1157	2 - 5 h	⁴⁶ Ti (τ , pn) ⁴⁴ Sc	Ti/Sc=2 · 10 ⁴
Sr	^{87m} Sr	2.80 h	388	2 - 5 h	⁸⁹ Y (τ , pn) ^{87m} Sr	Y/Sr=5.9 · 10 ²
Y	⁸⁸ Y	106.6 d	898	10d	⁹⁰ Zr (τ , pn) ⁸⁸ Y	Zr/Y=4.3 · 10 ²
Zn	⁶⁵ Zn	244.1 d	1116	10d		
Zr	⁸⁹ Zr	78.4 h	909	10-15d	⁹⁴ Mo (τ , α n) ⁸⁹ Zr ⁹² Mo (τ , 2pn) ⁸⁹ Zr	Mo/Zr=2.3 · 10 ⁴

m : minutes, h : hours, d : days, y : years.

The data of effects of interference are from Kato et al.⁶⁾ and Segebade et al.⁹⁾.

a period of one month or longer. The elements identifiable in both the sample and standard have been determined quantitatively. In selecting the peaks used for quantitative measurement, the intensities, spectral interferences and peak-to-background ratios were taken into account. The other peaks from the same element were normally used for confirmation. In Table II, the elements determinable by this method are given together with the pertinent nuclear data, suitable decay times for measurements and potential sources of interferences.

3.2 *Interference problem*

When the simultaneous determination of the elements in Table II are undertaken, a number of competing reactions can also take place, and, even in the energy region of 30 MeV bremsstrahlung, some of these contributions are serious depending on the matrix of the sample. These inter-element interference problems are demonstrated in Table II in which major competing reactions yielding the nuclides identical to those used for abundance determinations are listed. In some cases, neutron-induced reactions other than the photonuclear processes are the major source of interferences. Corrections for the competing reactions, where necessary, were made on the basis of the results of the previous work on the magnitudes of potential interferences due to these reactions^{6,9)}. The degrees of their contributions were determined experimentally by irradiating each pure element with 30 MeV bremsstrahlung. These effects of interferences are given in the last column in Table II. They were expressed as a ratio of the weights of the elements to produce the same amounts of nuclides under consideration. The values in parentheses are not experimentally obtained, but are estimated from the yield data as a function of the atomic number⁶⁾.

The spectral interferences caused by overlapping gamma-rays have been studied with the aid of a list of prominent gamma-rays emitted by various products from irradiation of each pure element with 30 MeV bremsstrahlung⁵⁾. Most of these problems could be solved by decay analyses of the counting data, when the gamma-ray peaks given in Table II were selected. In certain instances, its contribution was calculated and subtracted from the photopeak under consideration.

Most of the interference due to overlapping gamma-rays could be minimized by choosing proper decay times. Apart from the gamma-rays listed in Table II, several gamma-rays from additional elements were also observed, including the 279 keV peak of ^{203}Pb , but these were not used for abundance determinations. The 279 keV peak of ^{203}Pb could be observed clearly in the spectra of the comparative standard at a decay time of 7 day; however, in the spectra of the standard rocks analyzed here at a comparable decay time, this peak was obscured, so that lead could not be determined in any sample studied. It is difficult to define the detection limits since they depend on experimental conditions and the nature of the matrix.

3.3 Multielement determination

Some comments on the individual determinations are given below.

Ca : Calcium was determined either by the $^{44}\text{Ca}(\gamma, p)^{43}\text{K}$ or by the $^{48}\text{Ca}(\gamma, n)^{47}\text{Ca}$ reaction. As reported by Kato *et al.*¹⁾, any of the 374 and 617 keV peaks of ^{43}K and the 1298 keV peak of ^{47}Ca provided reliable calcium values. Calcium results in this work (Tables III–IV) are the average values obtained from these three different peaks. The values obtained from these peaks fell within the range from the mean of $\pm 3\%$ for all of the samples studied. For calcium, the agreement of the results obtained from the separate peaks is satisfactory. Since calcium is present at major levels in many of the igneous rocks, interferences from trace species listed in Table II were negligibly small.

Fe : Iron was determined by the $^{57}\text{Fe}(\gamma, p)^{56}\text{Mn}$ reaction. The 847 keV peak of ^{56}Mn was used to determine the iron concentration, and the 1811 and 2114 keV peaks were used for confirmation. For iron, manganese interferes through $^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$ reaction derived by neutrons produced in the target assembly. A ratio of ^{56}Mn specific activities of 2.8 : 1 has been obtained by irradiating known amounts of iron and manganese. Since manganese is present at minor levels in most of the samples, the $^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$ contributions to the total ^{56}Mn activities were found to be negligible.

Mg : The 1369 keV peak of ^{24}Na was used for the magnesium determination.

Table III Results of photon-activation analyses of standard rock samples.

		G-2	JG-1	SY-2	SY-3	GSP-1	AGV-1	JB-1	BCR-1	MRG-1
wt, %										
CaO	This work	2.02	2.24	7.95	7.90	2.02	4.94	9.37	6.62	14.55
	Literature	1.94	2.17	8.00	8.26	2.02	4.91	9.33	6.98	14.72
Fe ₂ O ₃ *	This work	2.94	2.30	6.44	7.39	4.17	6.68	8.62	12.59	17.33
	Literature	2.69	2.20	6.29	6.44	4.34	6.80	9.09	13.57	17.79
MgO	This work	0.69	0.72	2.42	2.04	1.04	1.59	8.07	3.34	14.19
	Literature	0.76	0.73	2.69	2.64	0.96	1.53	7.82	3.49	13.51
MnO	This work	0.03	0.06	0.30	0.29	0.04	0.10	0.15	0.18	0.17
	Literature	0.034	0.061	0.32	0.33	0.042	0.097	0.15	0.18	0.17
Na ₂ O	This work	4.28	3.42	4.21	3.95	2.82	4.40	2.75	3.23	0.63
	Literature	4.07	3.38	4.35	4.15	2.80	4.27	2.83	3.30	0.71
TiO ₂	This work	0.50	0.27	0.12	0.13	0.66	1.05	1.31	2.13	3.71
	Literature	0.50	0.27	0.15	0.15	0.66	1.04	1.35	2.22	3.75
ppm										
Ba	This work	1676	435	—	—	1233	1357	—	770	—
	Literature	1950	462	460	440	1360	1410	490	790	55
Ce	This work	155	39	161	2134	423	68	64	49	25
	Literature	150	43.2	210	2000	394	63	67.3	53.9	25
Co	This work	5	4	10	11	7	16	41	37	91
	Literature	5.5	6.4	10	12	6.4	14.1	39.1	38	87
Cr	This work	9	53	—	—	16	13	424	17	411
	Literature	7	52.7	10	8	12.5	12.2	405	17.6	420
Cs	This work	1.6	8.4	5.0	5.1	1.2	0.9	1.1	0.9	0.2
	Literature	1.4	10.1	2.5	2.5	1.0	1.4	1.1	0.95	0.5
Nb	This work	14	12	34	232	29	16	39	13	22
	Literature	13.5	12	25	145	29	15	39.7	13.5	20
Ni	This work	5	8	13	14	7	12	137	13	170
	Literature	5.1	8.2	10	11	12.5	18.5	135	15.8	200
Rb	This work	175	180	214	218	253	69	41	45	8
	Literature	168	181.3	220	210	254	67	41.2	46.6	8
Sc	This work	4	7	—	—	9	12	31	37	49
	Literature	3.7	7.0	7	11	7.1	13.4	28	33	48
Sr	This work	460	173	291	294	236	655	430	325	261
	Literature	479	184.1	270	300	233	657	435.2	330	260
Y	This work	11	33	140	710	30	23	24	39	13
	Literature	12	30.8	130	740	30.4	21.3	21.9	37.1	20
Zn	This work	72	42	203	256	90	104	89	—	223
	Literature	85	40	250	250	98	84	84	120	185
Zr	This work	361	152	297	340	607	234	133	186	103
	Literature	300	111	270	340	500	225	153	190	100

— = not determined. Fe₂O₃ * is total iron as Fe₂O₃.

Literature data from Flanagan¹⁰⁾ for USGS rocks, Abbey¹¹⁾ for SY-2, SY-3, and MRG-1, and Ando *et al.*¹²⁾ for JG-1 and JB-1.

Table IV Results of duplicate analyses of JB-1.

	A				B	Average	Lit.
	A-1	A-2	A-3	Average			
wt. %							
CaO	9.47	8.99	9.20	9.22 ± 0.24	9.51	9.37 ± 0.15	9.33
Fe ₂ O ₃ *	8.81	8.57	8.61	8.66 ± 0.12	8.57	8.62 ± 0.05	9.09
MgO	8.29	7.73	7.49	7.84 ± 0.40	8.29	8.07 ± 0.23	7.82
MnO	0.14	0.14	0.14	0.14 ± 0.00	0.15	0.15 ± 0.01	0.15
Na ₂ O	2.77	2.72	2.74	2.74 ± 0.03	2.76	2.75 ± 0.01	2.83
TiO ₂	1.32	1.33	1.30	1.32 ± 0.02	1.29	1.31 ± 0.02	1.35
ppm							
Ce	60	69	67	65 ± 5	63	64 ± 1	67.3
Co	37	45	41	41 ± 4	41	41 ± 0	39.1
Cr	427	434	426	429 ± 4	419	424 ± 5	405
Cs	1.1	1.2	1.0	1.1 ± 0.1	1.5	1.3 ± 0.2	1.1
Nb	39	38	39	39 ± 1	39	39 ± 0	39.7
Ni	132	147	141	140 ± 8	133	137 ± 4	135
Rb	39	38	40	39 ± 1	42	41 ± 2	41.2
Sc	27	29	29	28 ± 1	34	31 ± 3	28
Sr	435	427	436	433 ± 5	427	430 ± 3	435.2
Y	23	23	23	23 ± 0	24	24 ± 1	21.9
Zn	78	87	92	86 ± 7	91	89 ± 3	84
Zr	130	127	128	128 ± 2	138	133 ± 5	153

A-1 to A-3 are data from the samples for simultaneous irradiation.
 Fe₂O₃ * is total iron as Fe₂O₃. Literature data from Ando *et al.*¹²⁾.

In this determination utilizing the $^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$ reaction, aluminum interferes through the reaction $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$. A separate irradiation of equal quantities of magnesium and aluminium under identical conditions produced a ratio of ^{24}Na specific activities of 206 : 1⁶⁾. This interference is particularly serious for rocks with a high Al/Mg ratio (granitic rocks). The ^{24}Na activity produced by the $^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$ reaction also contributes to the total ^{24}Na activity. The effects of these interferences were corrected by using the value in Table II and the literature values for aluminium or aluminium contents determined gravimetrically.

Mn: The 835 keV peak of ^{54}Mn was used for the manganese determination. In the determination of manganese by using this $^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$ reaction, the major source of interference is from iron by the $^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$ reaction. The experimental results⁶⁾ showed that 1 mg of manganese corresponds to 120 mg of

iron in terms of the production rate of ^{54}Mn under the present experimental conditions. The manganese abundances were corrected for this contribution.

Na : Sodium can be determined by the $^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$ reaction. The 1275 keV peak of ^{22}Na could be accurately measured after longer decay times. In determinations of sodium, severe interference was from magnesium through the $^{24}\text{Mg}(\gamma, pn)^{22}\text{Na}$ reaction. The $^{27}\text{Al}(\gamma, \alpha n)^{22}\text{Na}$ contributions to the total ^{22}Na activity were very small.

Ti : For titanium, three different scandium isotopes, ^{47}Sc , ^{48}Sc and ^{46}Sc , produced by (γ, p) reactions could be used for quantifications. The 160 keV gamma-ray of ^{47}Sc gives the highest full-energy photo-peak. In the titanium determination using ^{47}Sc , the $^{51}\text{V}(\gamma, \alpha)^{47}\text{Sc}$ reaction is a possible source of interference. From the value in Table II and the literature data for the content of vanadium, interference from vanadium is negligible. Although ^{47}Sc can also be produced by the β^- decay of ^{47}Ca , interferences from its decay are not significant at short decay times⁴⁾. The three peaks of ^{48}Sc were also used for determinations. At longer decay times, the 889 and 1121 keV peaks of ^{46}Sc can also be used (Table II).

For titanium, the agreement of the results obtained from the separate peaks is satisfactory. Any peak listed in Table II appears to be of reliable use for this element.

Ba : Barium can be determined by measuring the 268 keV peak of $^{135\text{m}}\text{Ba}$. The highest S/N ratio was obtained from the spectra 1 day after irradiation. The practical sensitivity limit at $\pm 10\%$ relative accuracy under the present experimental conditions can be set at 1000 ppm Ba²⁾.

Ce : Cerium was determined from the 166 keV peak of ^{139}Ce . To rule out the 160 keV peak of ^{47}Sc , measurements were made 30 days or longer after irradiation.

Co : To eliminate the contribution by the 808 keV peak of ^{47}Ca , measurements of cobalt by the 811 keV peak were made 30–40 days after irradiation.

Cr : Chromium could be measured from 320 keV ^{51}Cr peak produced by

(γ, n) reaction. Iron interferes through the $^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha n)^{51}\text{Cr}$ reaction, but this contribution to the total ^{51}Cr activity was corrected by using the value in Table II.

Cs : The 667 keV peak of ^{132}Cs was used for the cesium determination. In this determination, iodine interferes through the spectral overlapping with the 667 keV peak of ^{126}I produced by the reaction $^{127}\text{I}(\gamma, n)^{126}\text{I}$. The effect of this interference could be estimated and subtracted from the combined photopeak by using the ratio of the area under the 667 keV peak to that under the 389 keV peak of ^{126}I which was obtained on irradiation of potassium iodide.

Nb : Niobium can be determined by measuring the 934 keV peak of $^{92\text{m}}\text{Nb}$, but the spectral overlapping with the 934 keV peak of ^{52}Mn produced by the reaction $^{54}\text{Fe}(\gamma, pn)^{52}\text{Mn}$ required a correction. The effect of this interference could be estimated and subtracted from the combined photopeak by using the ratio of the area under the 935 keV peak to that under the 1434 keV peak of ^{52}Mn which was obtained on irradiation of pure iron foil. The $^{94}\text{Mo}(\gamma, pn)^{92\text{m}}\text{Nb}$ reaction is a possible source of interference in the determination of niobium by using the 934 keV $^{92\text{m}}\text{Nb}$ peak. However, this interfering contribution was negligible in view of the ratio of $^{92\text{m}}\text{Nb}$ specific activities from niobium and molybdenum.

Ni : Nickel was determined from the 1378 keV peak of ^{57}Ni . The 127 or 1918 keV peak of ^{57}Ni was used only for confirmation. For nickel, competing reactions cannot occur energetically with 30 MeV bremsstrahlung activation.

Rb : Rubidium was determined by the 882 keV peak produced by the $^{85}\text{Rb}(\gamma, n)^{84}\text{Rb}$ reaction. In this determination of rubidium, the major source of interference is from strontium by the $^{86}\text{Sr}(\gamma, pn)^{84}\text{Rb}$ reaction. The effects of this interference, however, were very small in view of the ratio of ^{84}Rb specific activities from rubidium and strontium.

Sc : Scandium can be determined quantitatively either by measuring the 271 keV $^{44\text{m}}\text{Sc}$ peak or by the 1157 keV ^{44}Sc peak. The $^{44\text{m}}\text{Sc}$ activity coming from titanium through the $^{46}\text{Ti}(\gamma, pn)^{44\text{m}}\text{Sc}$ reaction and the ^{44}Sc activity from the $^{46}\text{Ti}(\gamma, pn)^{44}\text{Sc}$ reaction cause interferences in the scandium determination⁹⁾.

The agreement of the two results corrected for these contributions is satisfactory.

Sr : Strontium can be determined by the $^{88}\text{Sr}(\tau, n)^{87\text{m}}\text{Sr}$ reaction. The 388 keV peak of $^{87\text{m}}\text{Sr}$ could be measured accurately after a decay time of 2–5 hour. The $^{89}\text{Y}(\tau, pn)^{87\text{m}}\text{Sr}$ contributions to the total $^{87\text{m}}\text{Sr}$ activities were relatively small. The $^{91}\text{Zr}(\tau, \alpha)^{87\text{m}}\text{Sr}$ reaction is a possible source of interference. Based on the experimental yield data for the (τ, n) and (τ, α) reactions with 30 MeV bremsstrahlung, however, this contribution to the total $^{87\text{m}}\text{Sr}$ activity was estimated to be less than 0.01%²⁾.

Y : In the yttrium determination utilizing the $^{89}\text{Y}(\tau, n)^{88}\text{Y}$ reaction, zirconium interferes through the reaction $^{90}\text{Zr}(\tau, pn)^{88}\text{Y}$. The zirconium contribution to the total ^{88}Y activity was corrected by using the value in Table II and the content of zirconium. Both the 898 KeV and 1836 keV peaks of ^{88}Y were found to produce precise values of yttrium concentration.

Zn : Zinc was measured at long decay times by the 1115 keV ^{65}Zn peak rather than by the 185 keV ^{67}Cu peak, because of the higher peak-to-background ratio. The spectral interference by the 1121 keV peak of ^{46}Sc to 1115 keV ^{65}Zn peak was not severe in our counting system.

Zr : In the determination of zirconium by using the 909 keV peak of ^{89}Zr , interferences arising from both spectral overlapping and competing reactions were negligible.

3.4 Reliability

The results obtained for the standard rocks are listed in Table III together with the data recommended by Flanagan¹⁰⁾ for USGS G-2 granite, GSP-1 granodiorite, AGV-1 andesite and BCR-1 basalt, by Abbey¹¹⁾ for GSC SY-2 syenite, SY-3 syenite and MRG-1 gabbro, by Ando *et al.*¹²⁾ for GSJ JG-1 granodiorite and JB-1 basalt. Nineteen elements were determined in the standard rocks. As shown in Table IV, when the results from the duplicate analyses for JB-1 basalt were averaged and compared to the recommended values of Ando *et al.*¹²⁾, the relative deviation from the mean based on 13 out of 19 elements was within $\pm 4\%$. Therefore, duplicate analysis provided a reasonable reproducibility

for the most of the elements. Our values are also quite compatible with the values recommended by Flanagan¹⁰⁾ and others except for barium. For niobium in JB-1 our result (39 p.p.m.) is higher than that reported by Ando *et al.*¹²⁾, but rather similar to the recent value of 39.7 p.p.m.¹³⁾.

§ 4. Conclusion

Nondestructive multielement photon-activation analysis with high-resolution gamma-spectrometry has been used to determine 6 major and 13 minor elements in nine standard rocks. Rock samples and multi-element standards were irradiated simultaneously with 30 MeV bremsstrahlung and the (γ , n) and (γ , p) reaction products were measured with a pure germanium detector. Elements found suitable for determination by this method include sodium, magnesium, calcium, titanium, manganese, iron, scandium, chromium, cobalt, nickel, zinc, rubidium, strontium, yttrium, zirconium, niobium, cesium, barium and cerium. The abundance values obtained for the standards are in good agreement with published data, and reproducibility of the results is satisfactory for each of the elements analyzed.

Acknowledgement

The authors thank Prof. M. Yagi and Dr. K. Masumoto, Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, for great cooperation and kind advices during all the stages of this study. The authors also would like to express their thanks to the members of the linac machine group at the Laboratory of Nuclear Science, and the staffs of Radioisotope Center of Tohoku University, for their help with the irradiation and counting. The authors are grateful to Prof. A. M. Kudo of New Mexico University, Prof. T. Kato and Dr. K. Masumoto of Tohoku University for critical reading of the manuscript and for useful suggestions.

References

- 1) T. Kato *et al.* : J. Radioanal. Chem. **18** (1973) 97.
- 2) N. Sato *et al.* : Radiochem. Acta **21** (1974) 63.

- 3) N. Sato *et al.* : J. Radioanal. Chem. **36** (1977) 221.
- 4) T. Kato *et al.* : Anal. Chem. Acta **81** (1976 b) 337.
- 5) T. Kato : J. Radioanal. Chem. **16** (1973) 307.
- 6) T. Kato *et al.* : J. Radioanal. Chem. **32** (1976 a) 51.
- 7) M. Yagi and K. Kondo : J. Radioanal. Chem. **36** (1977) 247.
- 8) E. Browne *et al.* : *Table of Isotopes*, ed. C. M. Lederer and V. S. Shirley
(John Wiley & Sons, New York, 1978) 7th ed.
- 9) C. Segebade *et al.* : *Proc. Int. Conf. of Modern Trends in Act. Anal.* **C-113** (1976) 1239.
- 10) F. J. Flanagan : *Geochim. Cosmochim. Acta*, **37** (1973) 1189.
- 11) S. Abbey : CANMET report **76-36** (1976) 27.
- 12) A. Ando *et al.* : *Geochem. Jour.* **8** (1974) 175.
- 13) T. Kato and K. Masumoto : *Geostandards Newsletter* **5** (1981) 167.

Elemental Abundances in Some Basaltic Rocks from the Japan Arc and Adjacent Area

Takeyoshi Yoshida, Ken-ichiro Aoki, Moon Won Lee

Ken-ichi Ishikawa and Nobuyuki Kaneko

Institute of Mineralogy, Petrology and Economic Geology,

Tohoku University, Sendai 980, Japan

§ 1. Introduction

The Japan Islands are at the northwestern corner of the Pacific and form a festoon of island arcs occupying a part of the Circum-Pacific Volcanic Belts. They face deep trenches on the oceanic side, while on the continental side they are surrounded by marginal seas such as the Sea of Japan. The Islands have the general characteristics of an arc-trench system and roughly show a zonal arrangement of various geological and geophysical features from the oceanic to the continental side¹⁾. A zonal distribution of Quaternary volcanoes is noticed in the Japan Islands²⁾. Roughly, it is divided into the East Japan Volcanic Belt and the West Japan Volcanic Belt. At the eastern edge of these two belts, a sharp boundary line can be drawn and no volcanoes exist to the east of it. This oceanward boundary is called the volcanic front. The front runs parallel with the general trend of the island arcs.

A remarkable characteristic of volcanic rocks from island arcs is the consistent variation in the concentrations of some elements, especially their K_2O contents, away from the volcanic front³⁾. Many explanations of these variations have been proposed, including the following sorts of regular differences in magma genesis with increased distance from the volcanic front: increased crustal thickness and resulting contamination or crystal fractionation at greater depth; increased wall-rock reaction or zone refining within the mantle wedge due to longer magma ascent paths; the effect of pressure on distribution coefficients; horizontal or vertical heterogeneities in the composition of the mantle wedge; changes in refractory

phases during fusion ; or decreasing percent fusion plus increasing depth of liquid segregation in the mantle wedge⁴⁾.

To clarify the origin of the lateral variation in volcanic arcs, more thorough investigation for elemental abundances together with geological and mineralogical data of volcanic rocks is required. In this paper, it is intended to elucidate the spatial variations in basaltic magma composition across Japanese volcanic arcs.

§ 2. Locality and nature of analyzed basaltic rocks

Nine basic volcanic rocks from the Japan arc and adjacent area were analyzed. Fig. 1 shows the localities of the analyzed samples.

They are as follows.

- A. IW-35 : Quaternary olivine basalt, Yakushidake cone, Iwate volcano, NE Japan.
- B. IW-40 : Quaternary hypersthene olivine basalt, Myokodake cone, Iwate volcano, NE Japan.
- C. RI-1 : Quaternary alkali olivine basalt (CHO), Rishiri volcano, Hokkaido, Japan⁵⁾.
- D. RI-2 : Aphyric segregation layer (L 2 A) of mugearitic composition in RI-1⁵⁾.
- E. JJ-NW : Quaternary olivine basalt, Jeju volcanic Island, Korea⁶⁾.
- F. JJ-KY : Quaternary aphyric hawaiite (KY-13), Jeju volcanic Island, Korea⁶⁾.
- G. JB-1 : Pliocene Titanaugite olivine trachybasalt, Myokanji-toge, 7 km NNW of Sasebo City, Kyushu⁷⁾.
- H. ODZ-1 : Pliocene alkali olivine basalt, Oki-Dozen Islands, SW Japan.
- I. ODZ-2 : Pliocene trachyandesite, Oki-Dozen Islands, SW Japan.

More than half of the volcanic rocks from Miocene to Recent time distributed throughout the Japanese Islands belong to the calc-alkali rock series, and the remainder are of the tholeiite and alkali rock series⁸⁾. Having a close relationship to the structure of the island arcs, the types of volcanic rocks have a tendency to show a zonal distribution parallel to the island arcs. Westward, the sequence of volcanic rocks encountered is (1) tholeiitic and calc-alkali rocks, (2) calc-alkali rocks, (3) calc-alkali and sodic-alkali rocks, and (4) sodic-alkali

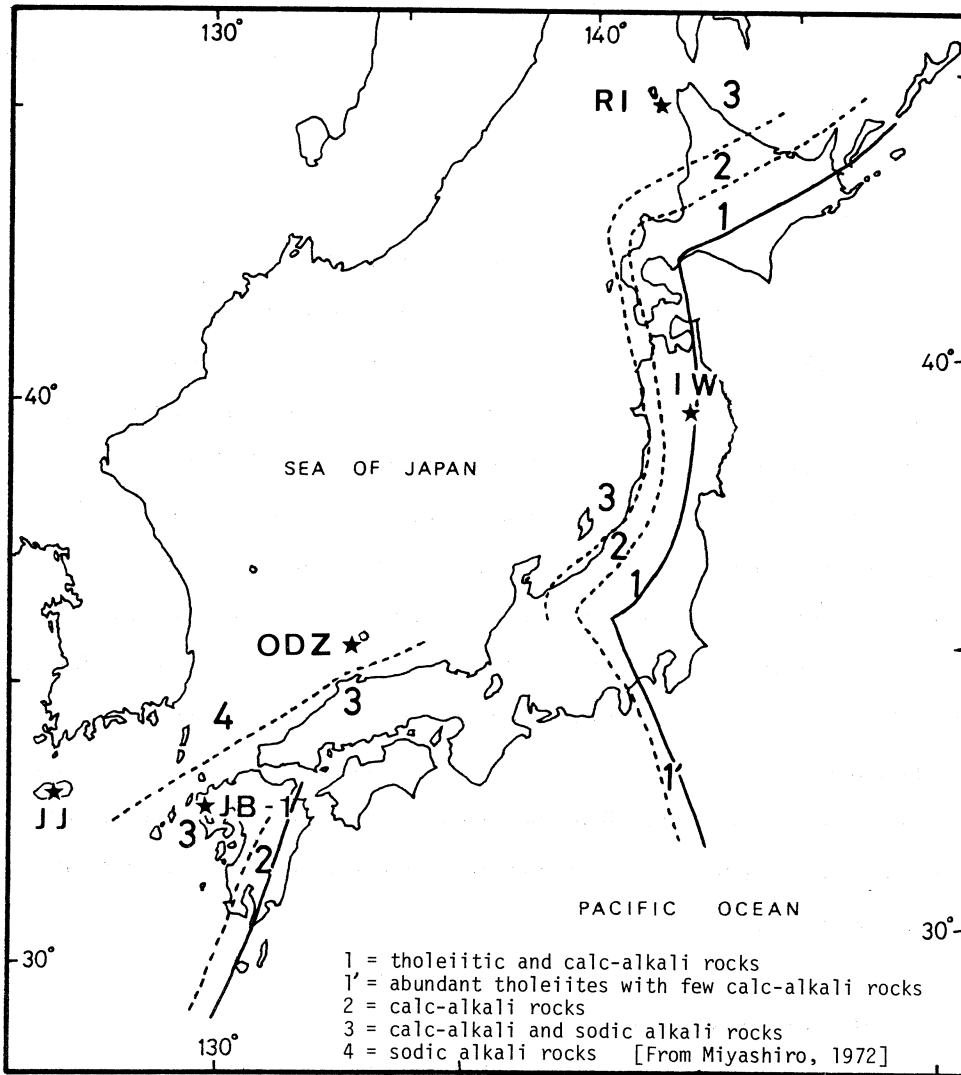


Fig. 1. Map showing sample localities of basaltic rocks analyzed and petrographic provinces for the Quaternary volcanic rocks of Japan. The solid lines show the volcanic fronts.

rocks⁹⁾(Fig. 1). Among the rocks analyzed, IW-35 and IW-40 belong to the tholeiite zone (zone 1) and the others belong to alkali basalt zone (zone 3 and 4). In Quaternary alkali basalts, RI occurs on the trench-side (zone 3) and JJ occurs on the continental-side (zone 4). JB-1 and ODZ are Pliocene alkali basalts

from SW Japan. JB-1 belongs to the province of calc-alkali and sodic-alkali rocks (zone 3). ODZ-1 and ODZ-2 were collected from the province of sodic-alkali rocks (zone 4).

§ 3. Analytical methods

11 trace elements (Sc, Cr, Co, Ni, Zn, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, and Ce) in the basaltic rocks were determined by a method of nondestructive photon-activation with 30 MeV bremsstrahlung and high-resolution gamma-ray spectrometry. Rock samples were individually placed in small pieces of aluminium foil weighing 27–28 mg and made into discs 10 mm in diameter with a thickness of about 3 mm. The comparative standards were the Japanese standard rocks, JB-1, JG-1 and multi-element standard (MSTD). The analytical samples and the comparative standards were encapsulated into a silica tube and irradiated simultaneously.

A linear electron accelerator of Tohoku University was the bremsstrahlung source. The irradiation was performed with a 100 μ A beam of 30 MeV electrons over a period of 2 hr. The gamma rays were measured with a 86 cm³ pure germanium detector coupled to a 4096-channel pulse-height analyzer. The details of the counting and data treatments for quantifications were the same as those described in our another paper.

§ 4. Results and discussion

Elemental abundances and its normative mineral compositions of analyzed basaltic rocks of Pliocene to Quaternary age are shown in Table I. All the data are normalized to chondrite-values given in Table I^{10,11)} and their chondrite-normalized patterns are shown in Fig. 2. Tholeiite (IW-35) – normalized patterns of these basaltic volcanic rocks are also shown in Fig. 3.

The Japan arc is a typical island arc. Lateral variations in the chemistry of volcanic rocks across island arcs have been recognized by Tomita³⁾, Kuno²⁾, Jakšs and White¹²⁾ and others. According to their data, the concentrations of large-ion-lithophile (LIL) and alkali elements show a regular increase toward the continent.

Table I. Elemental abundances and normative mineral compositions of basaltic rocks

	IW-35	IW-40	RI-1	RI-2	JB-1	ODZ-1	ODZ-2	JJ-NW	JJ-KY	Chondrite**
wt, %										ppm
S ₄ O ₂	51.09	50.19	51.27	53.28	52.18	44.77	51.37	49.13	39.45	
TiO ₂	0.78	0.80	1.34	2.55	1.34	2.52	2.35	2.38	2.70	Ti 720
Al ₂ O ₃	18.23	19.33	18.42	13.39	14.53	16.88	17.01	14.58	16.93	
Fe ₂ O ₃	2.22	2.64	3.36	3.39	2.31	2.78	3.84	1.98	4.77	
FeO	7.55	7.09	4.76	9.60	6.02	6.58	4.84	8.89	6.76	
MnO	0.16	0.19	0.14	0.21	0.15	0.14	0.16	0.15	0.17	Mn 2590
MgO	6.91	6.17	5.52	3.07	7.74	8.81	2.96	8.43	4.90	
CaO	10.68	10.57	9.40	6.03	9.24	8.50	5.93	8.89	7.67	
Na ₂ O	1.96	2.14	4.14	5.23	2.80	3.45	4.19	3.31	3.60	
K ₂ O	0.15	0.19	0.60	1.55	1.44	1.77	3.63	1.38	1.48	K 480
H ₂ O+	0.30	0.45	0.15	0.46	0.97	2.31	1.05	0.23	0.26	
H ₂ O-	0.04	0.46	0.09	0.19	0.97	0.65	1.48	0.15	0.15	
P ₂ O ₅	0.09	0.07	0.34	0.88	0.26	0.63	0.93	0.48	0.67	
Total	100.16	100.29	99.53	99.83	99.95	99.79	99.74	99.98	99.51	
Data from recalculated analyses										
SI	37.21	34.34	30.59	13.64	38.55	38.12	15.51	35.43	23.30	
FeO*	9.57	9.53	7.84	12.76	8.26	9.38	8.54	10.71	11.15	Fe 219000
FeO*/MgO	1.38	1.53	1.41	4.12	1.05	1.03	2.81	1.27	2.26	
Na ₂ O+K ₂ O	2.11	2.34	4.77	6.84	4.33	5.40	8.04	4.71	5.13	
Na ₂ O/K ₂ O	13.07	11.26	6.90	3.37	1.94	1.94	1.15	2.40	2.43	
CIPW norms from recalculated analyses										
Q	3.73	2.92	-	0.29	1.12	-	-	-	0.76	
or	0.89	1.13	3.57	9.24	8.68	10.83	22.04	8.19	8.83	
ab	16.61	18.22	35.28	44.62	24.17	18.77	36.44	28.12	30.74	
an	40.57	42.84	30.12	8.55	23.29	26.17	17.40	20.93	25.90	
ne	-	-	-	-	-	6.16	-	-	-	
diwo	4.98	3.95	6.10	6.60	9.08	5.46	2.76	8.43	3.37	
dien	2.89	2.29	4.31	2.72	6.11	3.92	1.96	5.21	2.30	
difs	1.85	1.47	1.26	3.92	2.29	1.05	0.57	2.74	0.81	
hyen	14.35	13.17	6.19	4.99	13.56	-	3.00	0.66	10.02	
hyfs	9.21	8.46	1.81	7.18	5.07	-	0.87	0.35	3.55	
fo	-	-	2.34	-	-	13.14	1.84	10.66	-	
fa	-	-	0.75	-	-	3.89	0.59	6.18	-	
mt	3.22	3.85	4.91	4.96	3.42	4.16	5.73	2.88	6.98	
il	1.48	1.53	2.56	4.88	2.60	4.94	4.59	4.54	5.17	
ap	0.21	0.16	0.79	2.06	0.61	1.52	2.22	1.12	1.57	
norm Px	33.28	29.34	19.67	25.41	36.11	10.43	9.16	17.39	20.05	
norm Pl	57.18	61.06	65.40	53.17	47.46	44.94	53.84	49.05	56.64	
Px/Pl ratio	0.58	0.48	0.30	0.48	0.76	0.23	0.17	0.35	0.35	
Al ₂ O ₃ /TiO ₂	23.41	24.31	13.74	5.25	10.82	6.70	7.23	6.13	6.28	
CaO/Al ₂ O ₃	0.59	0.55	0.51	0.45	0.64	0.50	0.35	0.61	0.45	
ppm										
Ce	5	5	22	82	64	73	186	61	53	0.976
Co	36	30	33	31	41	43	13	38	46	550
Cr	138	73	152	23	424	275	34	254	43	3460
Nb	1	2	7	18	39	53	89	40	43	0.44
Ni	79	51	64	14	137	219	5	70	64	12100
Rb	5	2	9	28	41	57	85	22	27	1.94
Sc	27	26	27	43	31	35	30	26	49	8.5
Sr	281	276	409	233	430	691	757	396	514	14
Y	13	15	27	72	24	28	41	26	27	2.6
Zn	80	91	109	146	89	-	124	-	170	460
Zr	25	27	126	497	133	208	406	203	205	6.7
Rb/Sr	0.018	0.007	0.022	0.120	0.095	0.082	0.112	0.056	0.053	0.139
K/Rb	249	789	553	463	298	267	364	525	458	247
Zr/Nb	25.00	13.50	18.00	27.61	3.41	3.92	4.56	5.08	4.77	15.23
Y/Nb	13.00	7.50	3.86	4.00	0.62	0.53	0.46	0.65	0.63	5.91
Zr/Y	1.92	1.80	4.67	6.90	5.54	7.43	9.90	7.81	7.59	2.58
Ti/Zr	187	178	64	31	62	75	36	71	80	107
Sc/Zr	1.08	0.96	0.21	0.09	0.23	0.17	0.07	0.13	0.24	1.27
Ti/Sc	173	184	300	358	265	445	484	551	333	85

Analyst for wet analysis; IW: K. Ishikawa, RI: T. Yamaguchi, ODZ: N. Kaneko, and JJ: M.W. Lee.

* FeO* is total iron as FeO.

** Abundance in chondrite is based on CI abundances of Wänke et al. (1974) scaled up to fit REE abundance of Leedy chondrite by Masuda et al. (1973) (Kay and Hubbard, 1978).

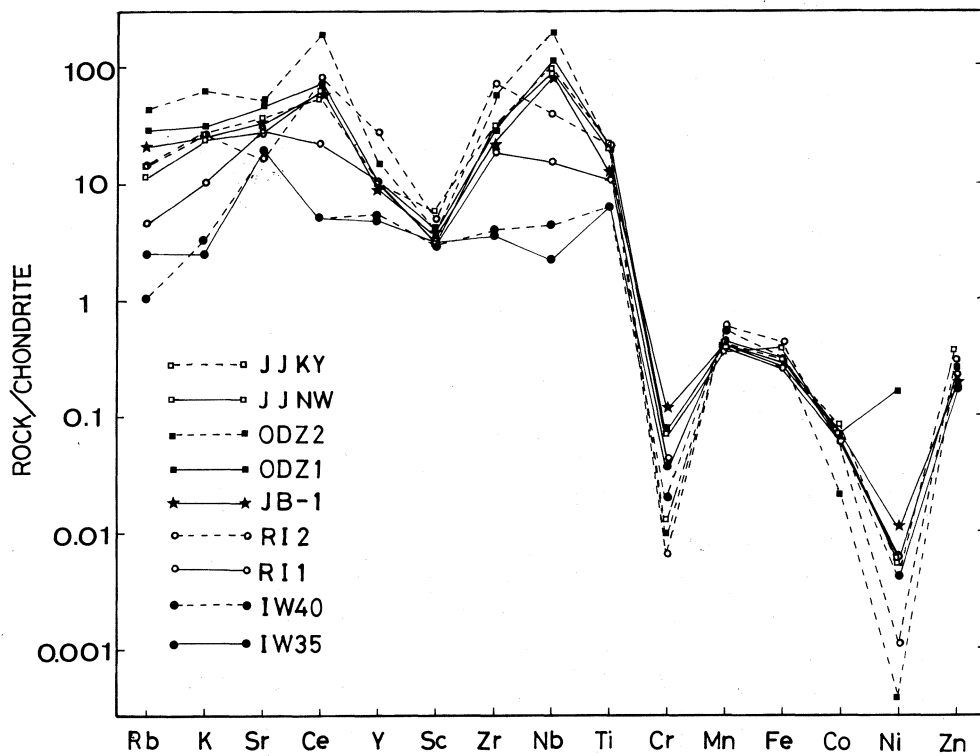


Fig. 2. Chondrite-normalized element patterns for the basaltic rocks analyzed.

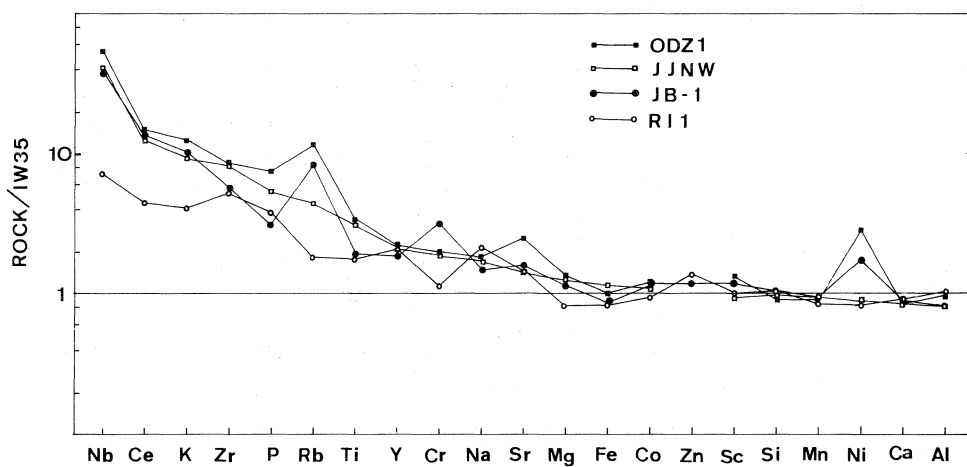


Fig. 3. Tholeiite (IW-35) - normalized element patterns for basalts analyzed.

Miyashiro⁸⁾ published a map showing the petrographic provinces for the Quaternary volcanic rocks of Japan Islands and neighboring continent. IW-35, RI-1 and JJ-NW are the representative basalts from each Quaternary volcano which belong to the zone 1, 3, and 4 of Miyashiro's figure respectively, and have similar SiO₂ contents near 50 wt. %. In these rocks, K, Ce and LIL element (Rb, Zr and Nb) contents and Rb/Sr, Zr/Y and Ti/Sc ratios increase gradually with increasing distance from the volcanic front; Ti, P, Ni and Cr contents also increase; CaO contents and Y/Nb, Zr/Nb, Sc/Zr, Na/K and Al/Ti ratios decrease; and Sc contents not change significantly from IW-35 to JJ-NW. Normative mineral compositions also varies. Normative olivine, diopside, orthoclase, ilmenite and apatite contents, all increase and normative total pyroxenes, hypersthene and anorthite contents decrease away from the volcanic front.

JB-1 and ODZ-1 are Pliocene alkali basalts from SW Japan. JB-1 and RI basalts are belong to zone 3, on the other hand ODZ and JJ are belong to zone 4. Although Y, Zr and Ti contents in Pliocene basalts are similar to those in Quaternary basalts from the same zone, Rb, Nb, Ce and K contents in Pliocene basalts are greater than those of Quaternary basalts. And, Pliocene basalts from SW Japan have higher Ni and Cr contents than the Quaternary basalts analyzed. Ni and Cr contents are significantly different between tholeiitic and associated calc-alkali rock series in northeastern Japan^{13,14)}. At a given SiO₂ content, the concentrations of compatible elements (Ni and Cr) and also LIL elements (K₂O, Hf, Th and U) are higher in calc-alkali rock series than in associated tholeiitic rock series. Uchimizu¹⁵⁾ plotted in a MFA diagram available analyses of alkali rocks from several volcanic provinces. The results show that the differentiation trends of the Scottish Tertiary alkali rocks, the Hawaiian alkali basalt-trachyte association and the alkali rocks of Mauritius, all of which produce mugearite as an intermediate member (alkali basalt - mugearite association), are different from those of the alkali rocks of Iki, Gough and Oga which produce trachyandesite (trachybasalt - trachyte association). The alkali basalt - mugearite association represented by RI and JJ shows relative iron enrichment in the middle stage of differentiation^{5, 6)}

whereas the trachybasalt – trachyte association represented by JB-1 and ODZ do not. No iron enrichment and higher concentrations in LIL-elements together with compatible elements (Ni and Cr) are representative indicator of calcalkalinity of magmas. At present-day East Japan Volcanic Belt, the calcalkalinity increases with increasing distance from the volcanic front. However, the Pliocene alkali basalts JB-1 and ODZ when compared to the present-day distance to the volcanic front for RI and JJ lies closer than the latter two, are higher in the calcalkalinity than the latter two.

K, Rb, Ce, Nb, Zr, Zn and Ti are higher in the aphyric mugearite layer segregated from the RI-1 alkali olivine basalt lava after extrusion, but Cr, Ni, Co, Sr and Sc are depleted in the segregation layer RI-2 in contrast to the host lava RI-1. The more differentiated alkaline lavas represented by ODZ-2 and JJ-KY have higher K, Rb, Ce, Nb, Zr, Na and Mn contents and lower Mg, Cr, Ni and Ca contents than the more primitive one from the same volcano. Sr, Co, Sc and Ti behave as incompatible elements in some case, but in the other case they act as compatible elements.

§ 5. Conclusion

Nondestructive multi-element photon activation analysis with high-resolution gamma-spectrometry has been used to determine 11 trace elements; Sc, Cr, Co, Ni, Zn, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, and Ce in eight basaltic rocks from the Japan arc and adjacent areas. Rock samples and multi-element standards were irradiated simultaneously with 30 MeV bremsstrahlung and the (γ, n) and (γ, p) reaction products were measured with a pure germanium detector.

In Quaternary basaltic rocks from the Japan arc, K, Ce and LIL element (Rb, Zr and Nb) contents and Rb/Sr, Zr/Y and Ti/Sc ratios increase gradually with increasing distance from the volcanic front; Ti, P, Ni and Cr contents also increase; and CaO contents and Y/Nb, Zr/Nb, Sc/Zr, Na/K and Al/Ti ratios decrease from the oceanic to the continental side. The abundances of these elements will allow a comparison of basaltic rocks from different areas or ages

and to test genetic or differentiation hypotheses.

Acknowledgement

The authors thank Prof. M. Yagi and Dr. K. Masumoto, Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, for great cooperation and kind advices during all the stages of this study. The authors also would like to express their thanks to the members of the linac machine group at the Laboratory of Nuclear Science, and the staffs of Radioisotope Center of Tohoku University, for their help with the irradiation and counting. Mr. S. Hayashi, H. Miyajima, H. Shimotori and A. Sakayori also assisted in the laboratory.

References

- 1) A. Sugimura and S. Uyeda : *Island Arcs* (Elsevier , Amsterdam, 1973).
- 2) H. Kuno : Jour. Petrol. **1** (1960) 121.
- 3) T. Tomita : J. Shanghai Sci. Inst., Sect II, **1** (1935) 227.
- 4) J. B. Gill : *Orogenic Andesites and Plate Tectonics* (Springer-Verlag, Berlin, 1981).
- 5) T. Yoshida, T. Yamaguchi and Y. Kawasaki : J. Japan. Assoc. Mineral. Petrol. Econ. Geol. **76** (1981) 181.
- 6) M. W. Lee : J. Japan. Assoc. Mineral. Petrol. Econ. Geol. **77** (1982) 203.
- 7) H. Kurasawa : Geochem. J. **2** (1968) 185.
- 8) N. Isshiki : *Geology and Mineral Resources of Japan*, ed. K. Tanaka and T. Nozawa (Geological Survey of Japan, Kawasaki, 1977)
- 9) A. Miyashiro : Am. Jour. Sci. **272** (1972) 629.
- 10) A. Masuda, N. Nakamura and T. Tanaka : Geochim. Cosmochim. Acta **37** (1973) 239.
- 11) R. W. Kay and N. J. Hubbard : Earth Planet. Sci. Lett. **38** (1978) 95.
- 12) P. Jakšes and A. J. R. White : Tectonophysics **8** (1969) 223.
- 13) Y. Katsui, Y. Oba, S. Ando, S. Nishimura, Y. Masuda, H. Kurasawa and H. Fujimaki : Jour. Fac. Sci. Hokkaido Univ., Ser IV, **18** (1978) 449.

- 14) Y. Masuda and K. Aoki : Earth Planet. Sci. Lett. **44** (1979) 139.
- 15) M. Uchimizu : Univ. Tokyo J. Fac. Sci., Sec. II. **16** (1966) 85.

Trace Element Behavior in Fractional Crystallization of Jeju Alkaline Lavas, Korea

Moon Won Lee, Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki

*Institute of Mineralogy, Petrology and Economic Geology,
Tohoku University, Sendai 980, Japan*

§ 1. Introduction

Jeju Island is situated about 90 km south of the Korean Peninsula (Fig. 1). It has an area 80×40 square kilometers and a relief of 2000 meters. It belongs to the Circum Japan Sea Alkali Rock Province, and consists of an alkali basalt-trachyte association. The volcanism can be classified into three main cyclic eruptions: 1) from alkali basalt through hawaiite to trachyte 2) from hawaiite to mugearite or hawaiite to trachyte 3) basaltic scoria cones. About 95 percents of the volume of rock types on the island is alkali basalt plus hawaiite with the remainder being mugearite plus trachyte.

The study by Lee^{1, 2)} illustrated that the petrography and bulk-rock compositional variations of Jeju alkaline lavas were qualitatively in accord with a simple fractional crystallization scheme of alkali olivine basalt magma.

Trace element data are useful because trace elements in volcanic rocks are

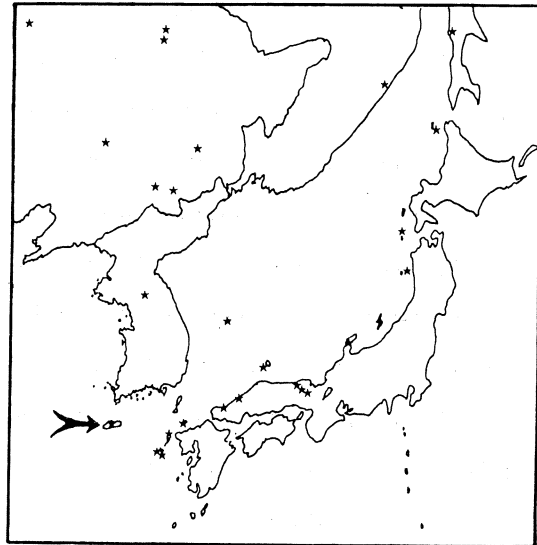


Fig. 1 Map showing the localities of the Circum Japan Sea Alkali Rock Province.

An arrow and stars indicate Jeju Island and localities of alkali rocks, respectively.

dispersed in habit and occur highly variable concentrations within the fractionating minerals. The concentrations of trace elements in fractionating magma depend critically on their partitioning between the crystallizing phases and its coexisting liquids. The volcanic rocks of Jeju Island has not been analyzed for the trace element composition. The aim of this paper is to present the trace element data and to relate them to the petrogenesis of the Jeju alkali rock series.

§ 2. Sample description

Typical analyzed specimens for this research are described below.

Alkali basalt (44, NW) : in hand specimen, these are moderately porphyritic with 10 to 15 percent phenocrysts and only a few vesicles. The phenocrysts consist of euhedral to subhedral olivine, a few percent of augite crystals, and plagioclase set in a fine-grained groundmass.

Aphyric hawaiite (SG, CC, 46-1) : these are aphyric with less than 3 percent olivine, augite and plagioclase phenocrysts. It shows trachytic texture. In some thin sections, magnetite also occurs in close association with apatite.

Olivine-pyroxene porphyritic hawaiite (SC, HM) : these are porphyritic and consist of 15 to 25 percent euhedral to subhedral augite phenocrysts and a few olivine and plagioclase phenocrysts.

Olivine-pyroxene-plagioclase porphyritic hawaiite (15-1, 18-1) : these show strongly porphyritic texture, often with a few vesicles. The phenocrysts include anhedral to subhedral plagioclase (20 to 30%), augite (10%) and olivine (5%).

Mugearite (7-4, BJ, 1-1, 6-1, 16-1, 13-1) : these contain a small amount of olivine, plagioclase and pyroxene. Magnetite phenocrysts often associated with subhedral phenocrysts of apatite occur as grains.

Aphyric trachyte (SH, SB) : it is a green-grey or light purple compact rock. It has an intersertal texture with oligoclase and alkali feldspar, accompanied by minor ferrosalite.

Porphyritic trachyte (77, 11-1, 29, JS) : it is a white gray or green-grey

porphyritic rock. The phenocrysts consist of anorthoclase, oligoclase, olivine, magnetite, ferroaugite, hedenbergite and apatite.

§ 3. Analytical methods

Analyses of 13 trace elements were performed on representative samples of rocks. Cr, Co, Rb, Ba, Nb, Y, Zr, Ce and Sc were determined using photon activation analyses. Sr, Ni and V were done by atomic absorption spectrophotometry and spectro-colorimetric techniques, respectively. The fluorine content was determined using a selective ion-electrode method described by Kanisawa³⁾. The procedures and accuracy of photon-activation analyses are described in detail by Yoshida *et al*⁴⁾. Analytical errors were checked by use of geochemical standards (JG-1, JB-1 and AGV-1).

§ 4. Results and discussion

The trace element contents of the various rock types are given in Table I together with their bulk chemical composition. The behaviors of individual trace element in fractional crystallization of Jeju alkaline lavas are described in the following.

Nickel : Since Ni ion has essentially the same radius (0.68 Å) and the same charge as magnesium. It should be camouflaged in magnesium minerals. The content of K₂O is one of the representative fractionation indices in the alkaline magmas. With increasing K₂O the concentration of Ni decreases sharply from alkali basalt to hawaiiite in the range from 180 ppm to 50 ppm to about 2 percent K₂O. The Ni content has a good correlation with the MgO content.

Chromium : The radius (0.63 Å) of Cr ion is very close to that of Fe³⁺ (0.66 Å). Cr is contained in chromian spinel which is an inclusion mineral of olivine, and it is located in early augite and magnetite. It decreases rapidly dropping from 260 ppm to 40 ppm with a small increase in K₂O content. No significant amount of Cr has been found in mugearite and trachyte.

Cobalt : The bivalent Co ion is practically the same size (0.72 Å) as the

Table I Major (wt. %) and trace (ppm) element abundances in Jeju

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
	44	NW	SG	CC	46-1	SC	HN	15-1	18-1	7-4
SiO ₂	50.70	49.13	49.17	49.09	49.45	47.94	50.01	48.88	50.41	50.26
TiO ₂	1.93	2.38	3.50	3.51	2.70	2.67	2.26	2.56	2.28	2.69
Al ₂ O ₃	16.06	14.58	16.39	15.86	16.93	15.78	17.16	17.23	14.68	17.91
Fe ₂ O ₃	1.36	1.98	2.74	4.39	4.77	7.88	3.15	2.18	2.60	2.86
FeO	9.23	8.89	8.97	8.60	6.76	3.24	6.83	8.50	9.49	7.16
MnO	0.14	0.15	0.16	0.19	0.17	0.14	0.16	0.15	0.17	0.12
MgO	7.11	8.43	4.69	4.09	4.90	7.70	5.62	5.62	5.83	3.64
CaO	8.28	8.89	8.01	7.63	7.67	8.64	7.90	7.43	8.27	7.87
Na ₂ O	3.23	3.31	3.34	3.92	3.60	3.49	3.91	3.69	3.94	4.13
K ₂ O	0.88	1.38	1.46	1.58	1.48	1.26	1.88	1.42	1.73	1.84
H ₂ O+	0.47	0.23	0.45	0.23	0.26	0.42	0.44	0.95	0.27	0.16
H ₂ O-	0.18	0.15	0.22	0.13	0.15	0.23	0.36	0.73	0.01	0.21
P ₂ O ₅	0.29	0.48	0.48	0.64	0.67	0.40	0.66	0.60	0.55	0.66
Total	99.86	99.98	99.58	99.86	99.51	99.79	100.34	99.94	100.23	99.51
Ni	127	70	52	19			86		77	
Cr	215	254	43	58		213	106	86	103	59
Co		38		40				48		30
Sc		26		36				28		29
Sr	263	396	421	459	490	427	611	473	634	646
V	43	185	150	154	139	112	134	130	149	124
F	547	860	1050	1082	960	739	1060	890	998	1014
Ba				349						
Y		26		32				25		23
Zr		203		248				208		224
Rb		22		30				30		46
Nb		40		46				37		46
Ce		61		68				52		65

ferrous ion (0.74 Å), and Co should thus be camouflaged in ferrous compounds. Alkali basalt and hawaiite have about 47 to 40 ppm Co but mugearite has only 15 ppm.

Scandium : Sc has a radius (0.81 Å) close to that of ferrous iron (0.74 Å). But in view of its higher charge, Sc would be expected to be captured by ferromagnesian minerals. This is true for pyroxene, which generally shows a relatively higher concentration of Sc. There is about 35 to 37 ppm Sc in alkali basalt and hawaiite, but only 20 ppm in mugearite.

Strontium : The size of the Sr ion indicates that it can proxy for either cal-

alkaline lavas.

11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21
BJ	1-1	6-1	16-1	13-1	SH	SB	77	11-1	29	JS
50.93	52.03	54.57	54.50	54.66	57.99	62.38	59.51	61.98	62.84	65.54
2.40	2.11	1.67	1.66	1.56	0.97	0.50	0.94	0.64	0.46	0.28
18.09	16.96	18.51	17.81	17.79	18.56	17.73	17.82	17.51	17.84	16.73
8.50	3.80	2.30	6.36	2.38	4.80	1.89	4.19	5.67	1.90	2.50
2.36	7.14	6.72	3.47	6.60	2.03	1.98	2.76	0.93	2.75	0.94
0.15	0.14	0.15	0.14	0.16	0.24	0.25	0.13	0.12	0.14	0.12
3.21	3.75	2.25	1.82	2.02	0.46	0.19	0.86	0.62	0.28	0.13
6.41	5.60	5.52	5.05	5.22	3.24	2.69	2.55	1.57	1.78	1.07
4.61	4.34	5.05	4.95	5.03	5.94	6.39	5.41	5.51	5.98	6.04
2.11	2.25	2.62	2.92	2.88	4.18	4.26	3.91	4.47	5.03	5.63
0.31	0.41	0.12	0.23	0.44	0.26	1.48	0.50	0.45	0.29	0.54
0.17	0.21	0.14	0.40	0.22	0.30	0.17	0.34	0.35	0.32	0.08
0.73	0.92	0.83	0.93	0.83	0.52	0.25	0.48	0.47	0.22	0.03
99.98	99.66	100.45	100.24	99.79	99.50	100.16	99.40	100.29	99.83	99.63
25	31			9		6	4	7		4
39		24		23	10	6			8	6
		15		13	3					
		17		21	4	2			10	7
380	433	513		484	650	620	287	221	218	18
	41	44	41	21	12	8	54	10	42	10
1366	1433	1498	1678	1280	793	285	806	1415	351	290
		572		1334	1539	1246			1533	
		32		28	32	41			29	31
		338		409	524	713			768	718
		59		71	86	106			96	123
		66		75	85	118			91	100
		101		109	134	170			126	125

cium or potassium. The data shows that admittance in place of calcium is the dominant process of removal of Sr from the magma. The Sr content increase steadily from 270 ppm to 650 ppm with increasing K_2O . In this case Sr behaves incompatibly. Above about 2.5 percent K_2O , however, Sr decreases rapidly toward trachyte, resulting from removal of Sr in plagioclase from the magma.

Vanadium : V is largely removed in magnetite. Its ionic radius (0.74 Å) is greater than ferric ion (0.64 Å), but its electronegativity is much less. The latter factor evidently is responsible for the enrichment of V in early-formed magnetite. The behavior of V is very similar to that of titanium throughout the series.

The V contents increase rapidly with rising K_2O values before decreasing rapidly from a maximum value of about 240 ppm.

Fluorine : The F anion has nearly the same ionic radius (1.33 Å) as that of the (OH) anion, minor amounts of F are considered to be stored in the (OH) sites of hydrous minerals such as amphibole, mica and apatite. Aoki *et al*⁵⁾ pointed out that F distribution has a correlation only with K_2O in several types of basalts. F also has a good correlation with P_2O_5 below about 3 percent K_2O . The F content increases rapidly from alkali basalt to mugearite, ranging from 550 ppm to 1600 ppm. Above 3 percent K_2O , F decreases rapidly to about 300 ppm.

Barium : Ba ion (1.34 Å) is too large, and the only major element of comparable ionic size is potassium (1.33 Å) ; hence Ba appears in potash feldspar. The Ba content shows a steady increase from 350 ppm to 1300 ppm with increasing K_2O . At about 5 percent K_2O , alkali feldspar must crystallize since Ba is removed from the trachyte which contains high K_2O .

Yttrium : Y ion has a comparatively large radius (0.92 Å). It shows relatively little tendency to replace the major elements during magmatic crystallization. The Y content shows a lot of scatter compared with other trace elements, but a slight increase from 23 ppm to 41 ppm from basic to salic ends of the series is suggested.

Zirconium : The combination of high charge (4+) and comparatively high radius (0.79 Å) sets Zr apart from any of the major elements. Because of this Zr does not enter into any of the common minerals but always appears in a specific phase like zircon. The concentration of Zr increases steadily throughout the series, ranging from 200 ppm at low K_2O to 750 ppm at high K_2O values.

Rubidium : The only major element Rb can replace should be K, because both elements have very similar ion radii (1.47 to 1.33 Å , respectively) and charges. The concentration of Rb increases in proportion to the K_2O content toward the acidic end of the series from 20 ppm to 120 ppm.

Niobium and Cerium : The Nb and Ce do not substitute for major elements because of the differences in ionic radius and ionic charge. They remain in solu-

tion and are enriched in the residual liquid during magmatic crystallization. The concentrations of Nb and Ce increase in proportion to the K_2O content with a range from 40 to 100 ppm, and from 50 to 150 ppm respectively.

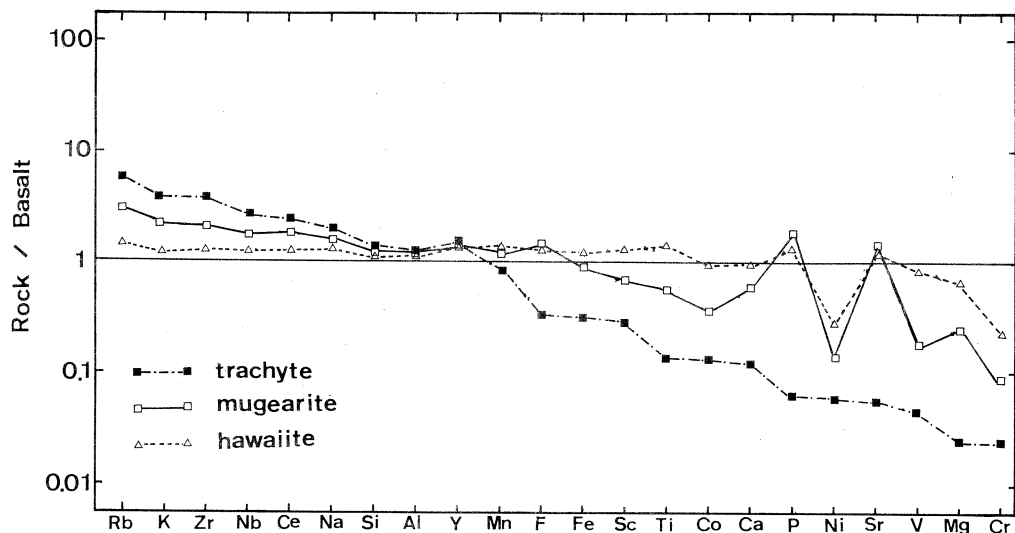


Fig. 2 Basalt-normalized element patterns of averaged hawaiite, mugearite and trachyte from Jeju Island.

The alkali basalt-normalized patterns of volcanic rocks are shown in Figure 2. Figure 2 illustrates a progressive trace element variation in a group of cogenetic volcanic rocks from Jeju Island. SiO_2 , Na_2O , K_2O , Y, Zr, Rb, Nb, Ce and Ba show progressive increase whereas MgO , CaO , Ni, Cr, Sc and Co contents show decrease with advancing fractionation. Sr, P_2O_5 , V, F, TiO_2 , FeO and MnO show a maximum at the middle stage of progressive fractionation and decrease toward the felsic end of the series. Al_2O_3 shows a maximum at the middle stage and remains fairly constant through the rest of the series.

§ 5. Conclusion

Cr, Co, Rb, Ba, Nb, Y, Zr, Ce and Sc in Jeju alkaline lavas were determined using photon activation analysis ; Sr was analyzed by atomic absorption ;

Ni, V, and Cr by spectrophotometry and F by selective ion-electrode method.

Concentration of Cr, Co, Ni and Sc show progressive decrease with advancing fractionation of the alkaline magma. Sr content shows a gradual enrichment through hawaiiite and sharp depletion in the latter rocks. The concentration of Ba, Rb, Zr, Y, Nb and Ce increase steadily toward the felsic end of the series. The V and F contents have a good correlation with TiO_2 and P_2O_5 , respectively.

The compositional variations in Jeju alkaline lavas are consistent with removal of Ni, Cr, Co, Sc, Sr, F and V into the fractionating minerals; olivine, pyroxene, plagioclase, apatite and magnetite, and Ba, Rb, Zr, Y, Nb and Ce are concentrated in the residual magma with progressive fractionation of magma. All of these trends are predicted by the fractional crystallization model and these are consistent with the major element data and petrographically observed crystallization sequence of minerals.

Acknowledgement

The authors would like to acknowledge Prof. M. Yagi and Dr. K. Masumoto, Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, for great cooperation and kind advices during this study. They also would like to express their thanks to the members of the linac machine group at the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, for their help with the irradiation. They are grateful also to Prof. A. M. Kudo of New Mexico University, Dr. H. Fujimaki and Dr. K. Ishikawa of Tohoku University who provided them many valuable suggestions and Prof. Kanisawa of Tohoku University for determination of fluorine through the study.

References

- 1) M. W. Lee : J. Jap. Assoc. Mineral. Petrol. and Econ. Geol. **77** (1982 a) 55.
- 2) M. W. Lee : J. Jap. Assoc. Mineral. Petrol. and Econ. Geol. **77** (1982 b) 203.
- 3) S. Kanisawa : J. Jap. Assoc. Mineral. Petrol. and Econ. Geol. **73** (1978) 26.
- 4) T. Yoshida *et al.* : Tohoku Univ. Sci. Rep. 3. **19** (1981) 101.
- 5) K. Aoki *et al.* : Cont. Mineral. Petrol. **76** (1981) 53.

岩手火山の地球化学的研究

理学部岩鉱

石川賢一[†]・吉田武義・青木謙一郎

§ 1. はじめに

岩手火山は、東北日本弧、那須火山帯北帯¹⁾に属する第四紀の複合成層火山であり、しかも火山フロントに最も近いところに位置している。

岩手火山を構成する噴出物は、その大部分がソレイト系列の玄武岩ないし安山岩質のものであり、他に少量のカルク・アルカリ系列の安山岩質噴出物を伴なう。

本研究では、このような岩手火山の岩石試料について、ライナックによる光量子放射化分析等を用いて、系統的に主成分元素、微量元素の分析定量を行ない、島弧の最も火山フロント寄りに出現するソレイト系列火山岩の化学組成上の特徴を明確にし、さらに相伴なって産するカルク・アルカリ系列の岩石と比較しながら、ソレイト質マグマの分化過程について検討した。

§ 2. 分析試料記載

分析した試料は、玄武岩類、玄武岩質安山岩類、安山岩類の各種岩石から作製したものである。

玄武岩類は、カンラン石玄武岩と古銅輝石—カンラン石玄武岩である。斑晶鉱物は、それぞれ、カンラン石玄武岩では、斜長石とカンラン石、又、古銅輝石—カンラン石玄武岩では、斜長石、カンラン石、古銅輝石である。これら玄武岩類はすべてピジオン輝石質岩系に属する。

玄武岩質安山岩類は、カンラン石—普通輝石—古銅輝石安山岩ないし含カンラン石—普通輝石古銅輝石安山岩である。その斑晶鉱物は、斜長石、カンラン石、古銅輝石、普通輝石であり、すべてピジオン輝石質岩系に属する。

安山岩類は、ピジオン輝石質岩系安山岩と紫蘇輝石質岩系安山岩について分析した。ピジオン輝石質岩系安山岩は、含カンラン石普通輝石—紫蘇輝石安山岩ないし普通輝石—紫蘇輝石安山岩であり、紫蘇輝石質岩系安山岩は、カンラン石—普通輝石—紫蘇輝石安山岩である。両者の間には、斑晶鉱物組み合わせでは、カンラン石の有無を除いて、大きな差はみられないが、石基輝石組み合わせが異なっている。

[†] 現在 東北大教養部

§ 3. 分析方法

Ce, Cs, Nb, Rb, Sc, Sr, Y, Zn, Zr については, 東北大学核理研の電子ライナックを利用し, 30MeV 加速電子を用いて光量子放射化分析法により定量した。その他, 主成分元素は,

第1表 Chemical compositions of rocks from Iwate volcano.

Sp. No. Rock series	1 TH	2 TH	3 TH	4 TH	5 TH	6 TH	7 TH	8 TH	9 CA	10 CA	11 CA	12 CA
wt. %												
SiO ₂	52.38	52.84	53.15	53.42	53.68	51.21	54.11	54.71	58.00	59.60	60.58	62.71
TiO ₂	0.98	0.83	0.86	0.80	0.88	0.84	0.86	0.86	0.83	0.84	0.82	0.79
Al ₂ O ₃	18.42	18.40	18.24	18.21	19.96	17.93	17.84	18.16	16.10	16.00	15.73	14.80
Fe ₂ O ₃	4.89	3.27	2.55	3.52	2.72	3.88	2.40	2.46	2.00	2.60	2.60	2.78
FeO	5.02	6.24	7.02	5.76	5.63	6.17	6.93	6.93	6.60	5.36	4.79	4.30
MnO	0.16	0.15	0.16	0.16	0.14	0.20	0.16	0.15	0.14	0.13	0.12	0.12
MgO	4.48	4.38	4.79	5.23	3.00	5.94	3.94	4.09	4.58	3.88	4.06	3.12
CaO	9.64	9.87	9.74	9.90	9.98	10.45	8.96	9.18	7.72	6.96	6.93	6.31
Na ₂ O	2.37	2.35	2.34	2.15	2.59	1.97	3.04	2.38	2.87	2.64	2.90	3.04
K ₂ O	0.32	0.39	0.50	0.37	0.51	0.18	0.63	0.66	0.99	1.13	1.21	1.30
H ₂ O+	0.47	0.53	0.36	0.33	0.71	0.75	0.41	0.30	0.76	0.44	0.41	0.33
H ₂ O-	0.52	0.20	0.21	0.14	0.30	0.91	0.22	0.29	0.15	0.24	0.19	0.14
P ₂ O ₅	0.09	0.11	0.11	0.11	0.09	0.09	0.11	0.13	0.12	0.10	0.09	0.16
Total	99.74	99.56	100.03	100.10	100.19	100.52	99.61	100.30	100.86	99.92	100.43	99.90
ppm												
Ce		11		11			16		19	19		21
Co	28	29	24	29	21		26		26	21	21	18
Cr		20		42	14		18		148	71	69	30
Cs		1.3					2.2		2.3			
Cu	34	43	37	33	35		35		45	34	24	11
F	145		136	128			174	135	209	223	339	359
Nb		3.1		4.1			4.4		4.4	6.0		7.4
Ni	27	18	18	18	12		14		40	25	35	18
Pb	tr	3	8	2	1		2		5	7	5	5
Rb		9		13			18		29	38		41
Sc		27		30			39		28	21		28
Sr		277		296			250		224	236		251
V		223		254	203		213		216	181	186	161
Y		17		20			18		26	32		35
Zn		77		86			93		94			94
Zr		52		51			64		100	107		125

tr : trace, TH : Tholeiitic rock series, CA : Calc-alkali rock series

1. Bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Byobuone) 1720m.
2. Augite-bearing olivine-bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Onigajo) 1715m.
3. Augite-olivine-bearing bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Onigajo) 1770m.
4. Olivine-bearing augite-bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Onigajo) 1725m.
5. Augite-bearing bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Onigajo) 1655m.
6. Bronzite-olivine basalt, lava of Kurokura 1330m.
7. Olivine-augite-bearing hypersthene andesite, radial dyke of the older Iwate volcano.
8. Olivine-augite-bearing hypersthene andesite, radial dyke of the older Iwate volcano.
9. Olivine-augite-hypersthene andesite, lava of Onashiro cone(the older Iwate volcano).
10. Olivine-bearing augite-hypersthene andesite, lava of Onashiro cone(the older Iwate volcano).
11. Olivine-hypersthene-augite andesite, lava of Onashiro cone(the older Iwate volcano) 1230m.
12. Olivine-bearing hypersthene-augite andesite, lava of Onashiro cone(the older Iwate volcano) 1320m.

湿式分析法により, Co, Ni, Cu, Pbは有機抽出分離後, 原子吸光分析法により定量した。

又, V, Crは比色分析法(Vは, 有機抽出分離後)により, Fはイオン電極法によって, それぞれ定量した。

Sp. No. Rock series	13 TH	14 TH	15 TH	16 TH	17 TH	18 TH	19 TH	20 TH	21 TH	22 TH	23 TH	24 TH	25 TH
wt. %													
SiO ₂	59.11	59.82	60.17	60.45	53.01	53.86	51.09	51.29	51.77	51.83	50.19	50.39	53.22
TiO ₂	1.04	0.99	0.99	1.02	0.82	0.82	0.78	0.95	0.88	0.79	0.80	0.84	0.88
Al ₂ O ₃	15.94	16.02	15.71	15.30	19.72	19.30	18.23	19.91	19.68	17.57	19.33	19.66	17.18
Fe ₂ O ₃	3.29	2.63	2.55	2.57	1.75	2.46	2.22	2.16	2.65	2.39	2.64	2.44	2.34
FeO	6.24	6.24	5.95	6.51	7.16	6.21	7.55	6.85	6.21	6.97	7.09	7.30	7.28
MnO	0.17	0.16	0.17	0.16	0.16	0.15	0.16	0.16	0.15	0.16	0.19	0.18	0.18
MgO	2.72	2.55	2.54	2.59	4.19	3.93	6.91	4.34	4.32	7.19	6.17	5.97	6.09
CaO	6.69	6.56	6.50	6.59	9.71	9.65	10.68	11.20	11.20	10.26	10.57	10.69	9.74
Na ₂ O	3.49	3.52	3.52	3.53	2.56	2.65	1.96	2.30	2.34	1.96	2.14	2.23	2.50
K ₂ O	0.73	0.96	0.73	0.75	0.42	0.49	0.15	0.21	0.24	0.20	0.19	0.16	0.28
H ₂ O+	0.32	0.43	0.92	0.35	0.51	0.59	0.30	0.16	0.30	0.19	0.45	0.16	0.10
H ₂ O-	0.19	0.11	0.15	0.05	0.18	0.30	0.04	0.05	0.05	0.03	0.46	0.07	0.12
P ₂ O ₅	0.12	0.17	0.18	0.17	0.09	0.12	0.09	0.09	0.10	0.08	0.07	0.06	0.11
Total	100.05	100.16	100.08	100.04	100.28	100.53	100.16	99.67	99.89	99.62	100.29	100.15	100.02
ppm													
Ce			16	14			5		11		5		
Co	20	19	18	19			36	25	27	29	30	29	31
Cr	6	4	15	4			138	98	42	243	73	125	145
Cs			1.6				1.2				0.0		
Cu	31	30	30	30			34	65	58	20	45	37	49
F	246	283	257	247			95		101	111	62		125
Nb			2.3	3.7			1.0		2.7		2.0		
Ni	8	10	5	5			79	48	33	70	51	68	61
Pb	2	4	2	4			2	6	2	7	4	4	3
Rb			18	22			5		6		2		
Sc			32	28			27		30		26		
Sr			245	286			281		357		276		
V	161	163		151			245		256	220	211		222
Y			31	33			13		16		15		
Zn			130	112			80		86		91		
Zr			87	82			25		25		27		

TH : Tholeiitic rock series, CA : Calc-alkali rock series

13. Olivine-augite-hypersthene andesite, lava of Okama dome(the older Iwate volcano) 1430m.
14. Augite-bearing hypersthene andesite, lava of Okama dome(the older Iwate volcano) 1420m.
15. Augite-hypersthene andesite, lava of Okama dome(the older Iwate volcano) 1435m.
16. Olivine-bearing augite-hypersthene andesite, lava of Okama dome(the older Iwate volcano) 1430m.
17. Olivine-augite-bearing bronzite andesite, somma lava of the younger Iwate volcano, 1890m.
18. Olivine-bearing augite-bronzite andesite, block in pyroclastic flow of the younger Iwate somma, 1780m.
19. Olivine basalt, lava of Yakushidake cone(the younger Iwate volcano) 1450m.
20. Olivine basalt, lava of Yakushidake cone(the younger Iwate volcano) 1930m.
21. Bronzite-bearing olivine basalt, lava of Yakushidake cone(the younger Iwate volcano) 1950m.
22. Olivine basalt, lava of Yakushidake cone(the younger Iwate volcano) 2000m.
23. Bronzite-olivine basalt, lava of Myokodake cone(the younger Iwate volcano) 1950m.
24. Bronzite-olivine basalt, lava of Myokodake cone(the younger Iwate volcano) 1965m.
25. Olivine-bearing augite-bronzite andesite, lava of Yakehashiri(the younger Iwate volcano).

§ 4. 分析結果および考察

岩手火山の噴出物のうち代表的な試料について、主成分元素、微量成分元素を定量した結果を第1表に示した。

4.1 玄武岩類および玄武岩質安山岩類

岩手火山は、東北日本弧では量的に少ないソレイト系列の玄武岩ないし玄武岩質安山岩を大量に産する。これらは、主成分元素のアルカリに特に乏しい低アルカリソレイトである。そのNi, Cr, Coの含有量は、他の東北日本弧産のソレイト系列玄武岩類のNi, Cr, Coの含有量²⁾とはほぼ同程度である。これを他のテクトニック場に産するソレイトと比較した場合、深海底ソレイトや海洋島産のソレイトは特にNi, Crに富んでいるのに対して、岩手火山のソレイト系列玄武岩は明らかにNi, Cr, Coに乏しい島弧産ソレイト系列玄武岩の特徴を示す。玄武岩質安山岩はこれらの玄武岩よりさらにNi, Cr, Co含有量は低くなっている。

又、 $Ti/100-Zr-Y \cdot 3$ 図、 $Ti/100-Zr-Sr/2$ 図³⁾では、岩手火山の玄武岩及び玄武岩質安山岩は、低カリウムソレイトの領域に点示される。

4.2 安山岩類

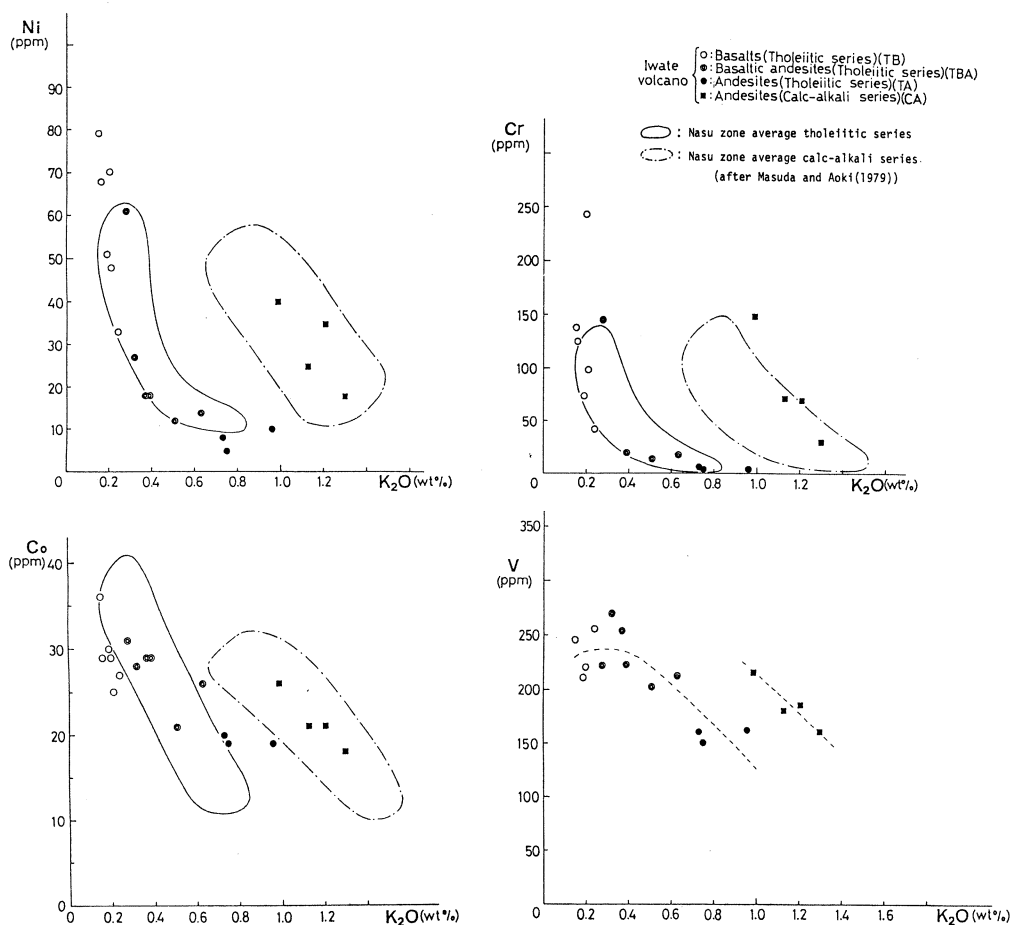
岩手火山のうち旧岩手火山に少量産する安山岩類は、主成分元素のFeに濃集するもの(ソレイト系列安山岩)とそうでないもの(カルク・アルカリ系列安山岩)とに分けられる。

4.2.1 Ni, Cr, Co, V

岩手火山のソレイト系列の玄武岩-玄武岩質安山岩-安山岩系列及び、カルク・アルカリ系列安山岩の双方ともその斑晶鉱物のうち K_2O を含みうる鉱物は斜長石だけであり、しかもその K_2O 含有量は十分に低い。したがってマグマの分別結晶作用によって K_2O はほぼマグマ残液に濃集すると考えられる。このことは、 K_2O 含有量がマグマの分化の尺度として使えることを意味する。

そこで、横軸に K_2O をとって、Ni, Cr, Co, V含有量の変化を示したのが第1図である。ソレイト系列の岩石では、玄武岩から玄武岩質安山岩にかけて K_2O の増加とともに急速にNi, Crが減少し、安山岩では、その含有量は非常に少なくなる。これは玄武岩から玄武岩質安山岩にかけてピコタイト包有物を含むカンラン石斑晶(玄武岩ないし玄武岩質安山岩組成で $D_{OILi}^{Ni} = 15 \sim 25$ ⁴⁾)が早期から結晶分別されて、選択的にNi, Crがマグマから取り去られたためと解釈される。

Coも玄武岩から安山岩にかけて K_2O の増加とともに減少するが、その傾向はNi, Crほど



第1図 Trace elements variation diagram (Ni, Cr, Co and V).

顕著ではない。Coの挙動にはカンラン石と斜方輝石が最も大きな影響を与えると考えられる。しかしその分配係数はそれぞれ、 $D_{01/Li}^{Co} = 2.5 \sim 6.5$ ⁴⁾、 $D_{0px/Li}^{Co} = 1.4 \sim 5$ ⁴⁾であり、あまり大きくないので、これらの鉱物の晶出分別によってもCoは著しい減少は示さなかったと考えられる。

一方、Vは玄武岩から玄武岩質安山岩にかけてやや増加し、その後は安山岩にかけて単調に減少する。Vは特に磁鉄鉱($D_{M/Li}^V = 30 \sim 40$ ⁴⁾)に濃集するので、玄武岩質安山岩から安山岩にかけての段階ではじめて磁鉄鉱がマグマから晶出分別されるようになったため分化の途中で極大値をもつに至ったと考えられる。

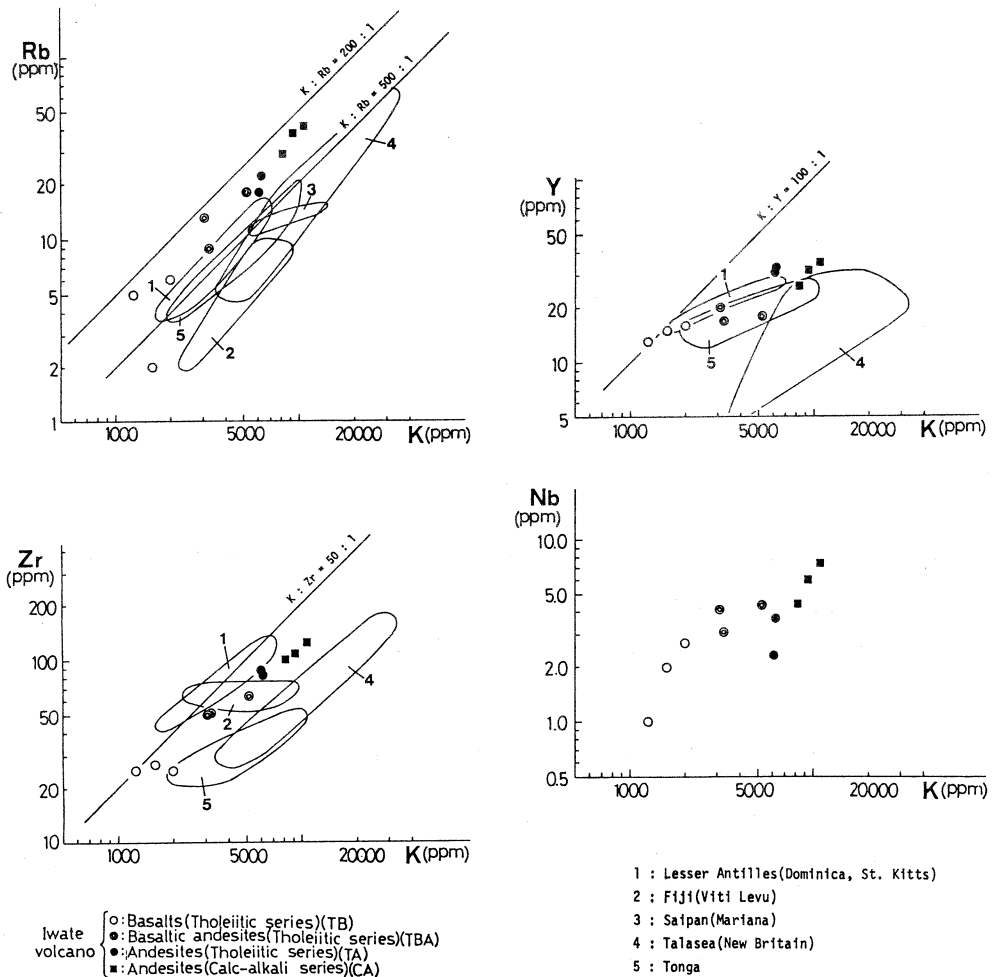
同程度のSiO₂含有量をもつカルク・アルカリ系列安山岩とソレライト系列安山岩を比べるとNi, Cr, Co, V, K₂Oはすべて前者において多く、又、カルク・アルカリ系列安山岩とソ

レアイト系列安山岩とは明瞭に異なるトレンドをとる。そしてカルク・アルカリ系列ではソレアイト系列に比べて、Ni, Cr の減少の程度は全体としてゆるやかであり、又、Vは K_2O の増加に対して単調に減少する。

以上のように、特定の鉱物に選択的に濃集する微量元素では、その含有量や分化中の元素の挙動においてソレアイト系列とカルク・アルカリ系列では大きな差異が認められる。

4.2.2 Sr, Sc

ソレアイト系列の玄武岩から安山岩にかけて、 K_2O の増加とともにSrが漸減する傾向がある。これは斜長石の晶出分別を反映しているとみられる。Scは K_2O に対して明瞭な変化は示さない。



第2図 Trace elements variation diagram (Rb, Zr, Y and Nb).

4.2.3 Rb, Zr, Y, Nb

これらの元素については、横軸にKをとって両対数表示で示した(第2図)。

Pb-K図では、岩手火山のソレイト系列およびカルク・アルカリ系列ともにK:Rb = 200:1と500:1の線の間点示され、ソレイト系列の玄武岩-安山岩およびカルク・アルカリ系列安山岩ともにはほぼ一定のK:Rb比でKが増加するにつれてRbも増加する。すなわち、RbもKとともにマグマ残液にはほぼ完全に濃集していく。

これに対して、Y, Zrは玄武岩においてそれぞれK:Y = 100:1, K:Zr = 50:1の線上に点示されるのに対し、分化が進んでKが増加するにつれてK側にずれる傾向がある。これらはおそらく輝石、特に単斜輝石(玄武岩から安山岩組成で $D_{C_{px/Li}}^Y = 0.6 \sim 1.0^4$), $D_{C_{px/Li}}^{Zr} = 0.1 \sim 0.25^4$)に少量分配されて、分別される可能性を示す。

この岩手火山についての結果を他の島弧産のソレイト系列の結果と比較した場合、島弧間でいくつかの差が認められる。たとえばRb-K図では、他の島弧産のソレイト系列はそのほとんどがK:Rb = 500:1の線のK側であるのに対して、岩手火山のソレイト系列はこの線のRb側に点示される。このようなことは、すでにそれぞれの島弧下で発生する初生的なマグマにおいてその化学組成にちがいがあったことを示唆するものである。

4.2.4 F

FはK₂Oの増加とともにほぼ直線的に増加し、ソレイト系列およびカルク・アルカリ系列ともに一連のトレンド上にある。Fはイオン半径などから鉱物中では含水鉱物中のOH⁻の位置に入る。ところが岩手火山では、斑晶鉱物として無水鉱物のみを晶出分別したため、FはK₂Oと同様にはほぼ完全にマグマ残液に濃集したと考えられる。

§ 5. 結 論

岩手火山からの火山岩を光量子放射化分析法等を用いて定量した結果、以下のことが明らかになった。

- (1) 岩手火山のソレイト系列玄武岩は、深海底ソレイトや海洋島産のソレイトより、Ni, Cr, Coに乏しく、島弧産ソレイト系列玄武岩の特徴を示す。
- (2) 岩手火山のソレイト系列玄武岩および玄武岩質安山岩は、Ti, Zr, Y, Srの量比からPearce and Cann³⁾の低カリウムソレイトのグループに入る。
- (3) 岩手火山のソレイト系列及びカルク・アルカリ系列の岩石は、Ni, Cr, Co, Vの含有量や分化過程における挙動はこれらが異なる系列に属することを示しているが、分化過程でよ

り液相に濃集する傾向の強い元素 (incompatible elements) では、両系列は同じトレンド上にのり、これらが成因的に密接な関係にあることを示している。

本研究にあたり、御助力を賜った東北大核理研、八木益男先生、榎本和義先生ならびにマシングループの皆様、東北大サイクロトロンRIセンターの藤田稔先生・山寺亮先生ならびに他の職員の方々に厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) Y. Kawano, K. Yagi and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Uni. ser. III **7** (1961) 1.
- 2) Y. Masuda and K. Aoki : Earth Planet. Sci. Letter **44** (1979) 139.
- 3) J. A. Pearce and J. R. Cann : Earth Planet. Sci. Letter **19** (1973) 290.
- 4) T. J. Bornhorst : Ph. D. dissertation New Mexico Univ. (1980).

アルミニウム中でのSnの不純物拡散

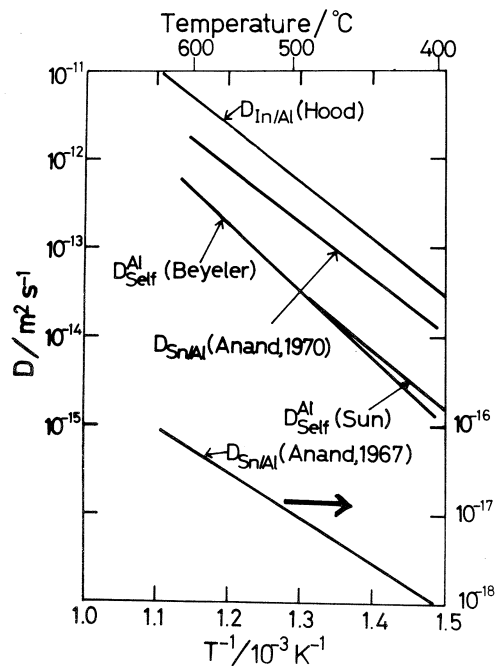
工学部金属材料

藤川 辰一郎

Impurity diffusion coefficient of Sn in aluminum at 893 K was determined by serial-sectioning method using ^{117m}Sn prepared by the photonuclear reaction $^{118}\text{Sn}(\gamma, n)$. The diffusivity is found to be extremely larger than the self-diffusivity of aluminum.

§ 1. はじめに

Snはその微量添加でAl-Cu合金のG. P.ゾーンおよび析出相の形成に著しく影響を与える元素としてよく知られているが、しかし、その機構は今なお、十分に解明されていない。その解明にとって必要なAl中のSnの不純物拡散については、従来、Anandらによって2つの結果^{1,2)}が報告されている。第1図は、それらの結果を、Alの自己拡散³⁾およびAl中のInの不純物拡散⁴⁾のそれとを比較して示している。第1図から、2つの結果は互いに著しく異なり、さらにAl中のSnの不純物拡散係数はAl中のInのそれよりも小さいことがわかる。さらに、第2図は、Al-Mn合金のコア材に100 μm の厚さのAl-Sn合金またはAl-In合金をクラッドした後、863 Kまで真空中で焼なました場合のSnおよびInの濃度分布を示している。⁵⁾第2図から、SnはInよりもコア材により深く拡散浸透し、その濃度こう配もゆるやかなことがわかる。いいかえれば、この結果はAl中のSnの拡散速度がInの



第1図 Temperature dependence of self-diffusion coefficients of Al and impurity diffusion coefficients in aluminum.

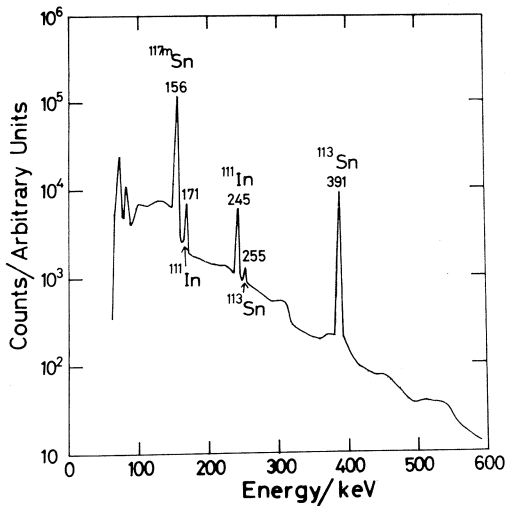
それよりもかなり大きいことを示し、第1図中のAl中のSnおよびInの不純物拡散係数の大小関係と矛盾している。したがって、Al中のSnの不純物拡散係数を再測定する必要があると思われる。

本研究では、電子ライナックで調製した ^{117m}Sn を用い、拡散条件に注意を払って、Alの融点近くの温度である893KでのAl中のSnの不純物拡散係数を決定した。

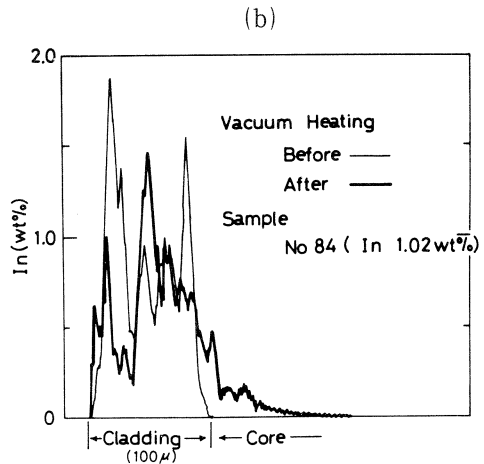
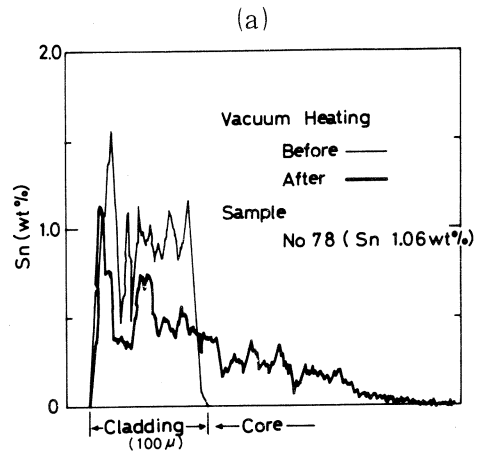
§ 2. 実験結果

2.1 ^{117m}Sn の調製

ターゲット物質としては、99.999%の純度のnatural Sn metalを用いた。その小片0.2gの石英管中に封入して、核理研LINAC RIコースの水冷プールのPtコンバーターの直後において照射した。無担体ではないので、50~60MeVの制動輻射でく



第3図 γ -ray spectrum of the mixture ($^{117m}\text{Sn} + ^{111}\text{In} + ^{113}\text{Sn}$).



第2図 Concentration profiles of Sn in Al-Sn alloy/Al-Mn alloy composite (a) and In in Al-In alloy/Al-Mn alloy composite (b) after continuous heating up to 863 K.⁵⁾

りかえし照射し、比放射能を高めた。この照射によって生成する比較的長寿命のRIとしては、 $^{118}\text{Sn}(\gamma, n)$ 反応による ^{117m}Sn ($t_{1/2} = 14\text{d}$)、 $^{114}\text{Sn}(\gamma, n)$ 反応による ^{113}Sn ($t_{1/2} = 115\text{d}$)および $^{112}\text{Sn}(\gamma, p)$ 反応による ^{111}In がある。第3図は、

ORTEC社製 80 cm³ Ge(Li) 検出器 (Al 303 型) およびキャンベラ社製マルチチャンネル・アナライザー (8100 MCA 型) で測定した, 照射後約 10 日間経過した Sn ターゲットの γ -線スペクトルである。

2.2 拡散方法および解析方法

2.2.1 試料の作製

試料の形状は直径 13 mm, 高さ 13 mm の円柱状である。粒界拡散および転位網拡散の寄与を少なくするために, 約 873 K で 2 カ月間の予備焼なましを行った。その処理によって, 試料表面に 2 つまたは 3 つの結晶粒がみえるような粗大結晶粒の試料が得られた。試料表面を耐水性研磨紙および電解研磨の順序で研磨し, 平らで清浄な面にした。照射した Sn を (HNO₃ + HCl) で溶解後, dry up し, 塩化物にした。Na₄P₂O₇ (120 g/dm³) および Na₂HPO₄ (60 g/dm³) から成るメッキ液に, その塩化物を添加し, 約 333 K でメッキした。比較的密着性のよい Sn メッキ膜が得られた。塩化物で付着させる方法, SnSO₄ 液でのメッキ, およびあらかじめ Cu メッキした後 Sn メッキなども試みたが, 密着性のよい Sn 膜を得ることは困難であった。みかけ上 Sn 膜がよく密着している場合でも, 拡散焼なまし後セクションニングしてみると大部分の Sn トレーサーが表面近傍に残存し, 試料内部に拡散しない現象がしばしばみられた。これは, Al 中の Sn の小さな固溶度, 酸化されやすい Sn の性質および Al 表面の酸化膜の存在と関係があると思われる。

2.2.2 拡散焼なましおよび拡散係数の測定

^{117m}Sn が付着した試料および Sn 膜の蒸発を抑制するための Sn 小片を石英管に入れ, 約 10⁻² pa の真空にした後, He ガス (純度 99.9999% 以上) で数回置換した後, 最終的に約 30 Kpa の He ガスを入れて封入した。893 K で 1.08 × 10⁴ s の拡散焼なましを行った。なお, 拡散焼なましに用いた電気炉の温度は, 千野製作所製 SCR 電力調製器付電流出力形方式自動温度調節計によって ± 0.5 K の精度で制御した。切削法 (serial-sectioning method) で拡散係数を決定する場合, セクションニングは, 金属用の大型マイクロームを用いて行い, 約 5 μm の厚さのなめらかな表面の薄片を連続的に切り出した。その場合, 薄片の回収率は 100% に近かった。削りとった層の厚さは, 精密天秤を用いて, 薄片の質量を測定し, さらに試料の直径をソニー・マグネスケール社製のデジタル精密マイクロメーターで数回測定して, その平均値から直径を決定し, それらの結果を用いて計算した。

薄片の γ -線の強度は, 第 3 図に示した ¹¹¹In の 171 keV の放射能強度が ^{117m}Sn の 156 keV のそれに比較して無視できる程度に十分に減衰した時点で, ^{117m}Sn の放射能強度を NaI

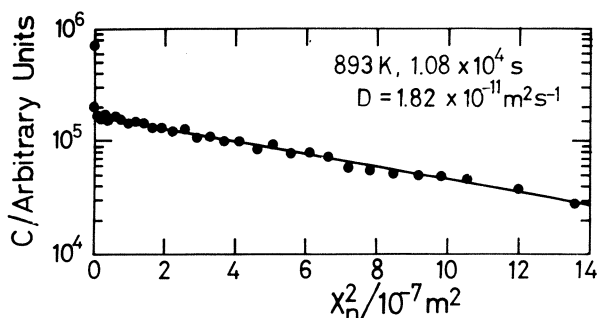
(T1)型検出器で測定した。切削法で拡散係数を決定する場合の Fick の拡散の第2方程式の解は次式で与えられる。

$$C = C_0 \exp(-X_n^2 / 4Dt) \quad (1)$$

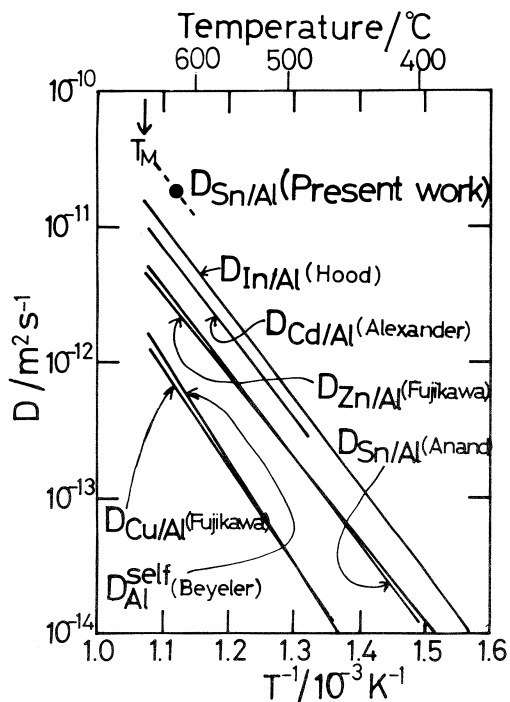
ここで、 C は削りとった薄片中に含まれるトレーサの濃度、 C_0 は最初のトレーサの濃度、 X_n は薄片の中心から最初の面までの距離 D は拡散係数、そして t は拡散時間である。

§ 3. 実験結果

第4図は切削法によって求めた 893 K での Al 中の ^{117m}Sn の拡散に対する拡散浸透曲線である。拡散時間が短いにもかかわらず、その拡散距離は、Al 中の ^{67}Cu ⁶⁾ および ^{54}Mn ⁷⁾ の拡散の場合に比較してかなり大きく、Al 中では Sn 原子は早く拡散することがわかった。浸透曲線は、測定点に(1)式をあてはめて、最小2乗法によって決定した。実験データは一つの直線によくのっていることがわかる。その直線のこう配から、拡散係数を求め、第4図中に示した。第5図は、本研究で決定した Al 中の ^{117m}Sn の不純物拡散係数を Al 中の Sn ²⁾、 In ⁴⁾、 Cd ⁸⁾、 Zn ⁹⁾ および Cu ⁶⁾ の不純物拡散係数ならびに Al の自己拡散係数^{3,10)} の温度依存性と比較して示したものである。本研究で決定した Al 中の Sn の不純物拡散係数は Anand らによる値²⁾ および Al 中の In の不純物拡散係数⁴⁾ よりも大きく、第2図に示した川瀬らの結果⁵⁾ が示唆する



第4図 Log specific activity vs X_n^2 plot for diffusion of ^{117m}Sn in aluminum at 893 K.

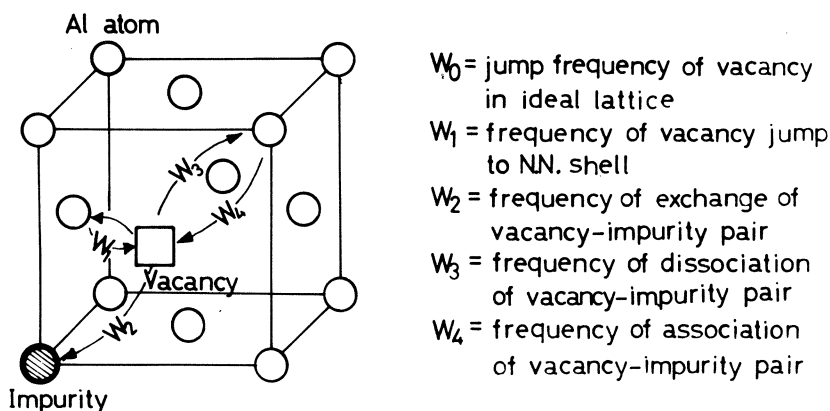


第5図 Comparison of impurity diffusivity of ^{117m}Sn in aluminum with other impurity diffusivities and self-diffusivities in aluminum.

Al 中の Sn および In の拡散速度の大小関係ともよく一致する。

§ 4. 考 察

本研究から、Al 中の Sn の不純物拡散係数が Al の自己拡散係数よりも約 1 桁以上も大きく、Al 中の他の元素の不純物拡散係数よりもかなり大きいことがわかった。ここでは、いわゆる不純物拡散の five-frequency モデルによって、Al 中の Sn の不純物拡散が何故早いかを簡単に検討する。第 6 図は単空孔機構によって不純物が拡散する場合の面心立方格子における空



第 6 図 Vacancy jump frequencies for a vacancy neighboring on an impurity in a face-centered cubic crystal.

孔とそれに最隣接する不純物および周辺の溶媒原子（ここでは Al 原子）との間で位置交換する場合の各種の空孔のジャンプ頻度を示している。矢印は空孔の移動方向を示す。各ジャンプ頻度の意味は第 6 図中に示されている。自己拡散に対する不純物拡散の大小関係は、第 6 図中に示した $W_1 \sim W_4$ の値のみならず、次式で与えられる不純物拡散の相関係数 (f_i) の値によっても支配される。¹¹⁾

$$f_i = \frac{W_1 + 3.5 W_3 F \{W_4 / W_0\}}{W_2 + W_1 + 3.5 W_3 F \{W_4 / W_0\}} \quad (2)$$

ここで、 F は W_4 / W_0 の関数であり、 $2/7$ から 1 までゆるやかに変化する。すなわち、 $W_4 / W_0 = \infty$ の時には $F = 2/7$ であり、 $W_4 / W_0 = 0$ の時は $F = 1$ となる。不純物と空孔との結合が弱い場合には、 $F = 1$ と近似できる。 f_i は温度によって変化するが、 $0 < f_i < 1$ の範囲にある。

Al 中の Sn の不純物拡散に対する $W_1 \sim W_4$ および f_i の値は、現在、知られていないので、Al 中の他の元素の結果から、それらの値を推察してみる。自己拡散よりも遅い不純物に対して

は、当然、 W_2 は W_0 よりも小さくなり、その場合、 $f_0 < f_i < 1$ の関係が成立する。ここで、 f_0 は面心立方格子中で単空孔機構による自己拡散に対する相関係数であり、 f_0 は 0.781 に等しい。逆に、自己拡散よりも早い不純物に対しては、 W_2 は W_0 よりも大きくなり、 $0 < f_i < f_0$ となることが予想される。 f_i は、通常、不純物拡散の同位体効果の実験から求められる。その場合、 f_i は一般には次式で与えられる同位体効果係数 (E) から決定される。

$$E = \frac{D_\alpha/D_\beta - 1}{(m_\alpha/m_\beta)^{-1/2} - 1} = f \Delta K \quad (3)$$

ここで、 D および m は、それぞれ、拡散係数および質量である。添字 (α および β) は、異なる同位体に対応する。 f は自己拡散または不純物拡散の相関係数である。 ΔK は、拡散原子が拡散ジャンプの途中のサドル・ポイントにおける多体相互作用を考慮した補正項である。 E を実験的に決定し、 ΔK に適当な値を仮定してやれば (通常 fcc 金属では、 $\Delta K \approx 0.9$)、 f が求められる。従来、Al 中の不純物拡散の同位体効果の実験から E が決定されているのは Ag¹²⁾、Cu¹³⁾ および Zn¹³⁾ だけである。その結果から本研究で見積った Al 中の Ag、Cu および Zn の f_i の最大値が第 1 表に示されている。Al の自己拡散よりも早い Al 中の Ag および Zn の f_i は f_0 よりも小さいことがわかる。 $W_1 \sim W_4$ は自己拡散の促進効果に対する不純物添加の影響の研究などから見積ることができる。しかし、²⁶Al の比放射能が極めて小さいために、Al の自己拡散の研究が困難で、そのような研究は行われていない。したがって、従来、Al 中の不純物拡散に対する $W_1 \sim W_4$ の値は見積られていなかった。最近、Montl らは Al 中での拡散速度が著しく遅い Fe の微視的拡散機構を Mössbauer 効果スペクトルの line broadening の結晶学的異方性および温度依存性を詳しく研究し、 W_4/W_0 、 W_3/W_0 、 W_2/W_0 、 W_1/W_0 、 W_2/W_1 、 W_1/W_3 、 f_i および B_{vi} (空孔と不純物原子の結合エネルギー) を決定した。¹⁴⁾ それらの結果を第 1 表に示した。この結果から、前述のように W_2 が小さいほかに、 W_3 も小さいことおよび W_1 および B_{vi} が大きいことがわかる。Al 中の Fe のように極めて拡散速度が遅い不純物の場合には、空孔は、不純物のまわりで "rolling cage" のようにくるくるまわるジャンプのみが著しく起こり、不純物は遠くまで早く拡散できないことがよく理解できる。Al 中の Fe の不純物拡散に関する結果および Cu 中でやはり著しく早い拡散速度を示す Sn、In および Cd に関する W_2/W_1 、 W_3/W_1 、 W_4/W_0 および W_4/W_3 の値¹⁵⁾ に基づいて、Al 中の各種の元素の不純物拡散に対してまだ決定されていない f_i 、 B_{vi} および各ジャンプ頻度の値を推定し、第 1 表中に示した。第 1 表に示した結果から、Al 中の Sn の不純物拡散の速度が Al の自己拡散のそれよりも大きいのは、 W_2 がかなり大きい以外に、 W_1 、 W_3 および W_4 のジャンプが平均的に起こり、

第1表 Ratio between impurity diffusivity and self-diffusivity ($D_{\text{imp}}/D_{\text{Al}}^{\text{self}}$), correlation factor(f_i), various jump frequency ratio and binding energy of vacancy-impurity atom(B_{vi}) in aluminum.

Impurity	$D_{\text{imp}}/D_{\text{Al}}^{\text{self}}$	f_i	W_4/W_0	W_3/W_0	W_2/W_0	W_1/W_0	W_2/W_1	W_1/W_3	B_{vi} (eV)
Cd, In, Sn	>10	<0.5*	3*				>10*	~2*	rather* strong (≥ 0.1)
Ag, Zn (Mg, Si, Au)	4-6	~0.6#	>1*				>3*	~2*	weak* (< 0.05)
Cu	≤ 1	~0.8#	>0.5*				>0.1*	~10*	weak* (< 0.05)
Fe (Mn, Cr, Zr)	$< 10^{-2}$	0.93 ⁺	$2 \times 10^{-2+}$	10^{-4+}	10^{-3+}	1.5 $\times 10^{-2+}$	10^{-2+}	10^{2+}	0.4 ⁺

*the assumed value in the present work, #the estimated value in the present work from the experimental value of E and ⁺the determined in the work of Montl et al.¹⁴⁾

Sn不純物が空孔と次々と容易に位置交換できるためと予想される。その場合、 B_{vi} の値も、当然ながら、いくぶんか大きいと思われる。

§ 5. 結 論

Al中のSnの不純物拡散の速度がAlの自己拡散に比較して極めて早いことを、893Kでの不純物拡散係数の測定から示した。今後、Al中のSnの不純物拡散係数を広い温度範囲で測定し、拡散のパラメーター(D_0 および Q)を決定する必要があるだろう。さらに、Al-Sn合金におけるAlの自己拡散の促進効果の実験を、Alの自己拡散係数がAl中のCuの不純物拡散係数にはほぼ等しいことに注目して、²⁶Alのかわりに⁶⁷Cuを用いて行えば、 $W_1 \sim W_4$ ジャンプ頻度について、より正確な知見が得られるであろう。

参 考 文 献

- 1) M. S. Anand and R. P. Agarwala: Trans. AIME, **239** (1967) 1848.
- 2) M. S. Anand and R. P. Agarwala: Phys. Stat. Sol. (a) **1** (1970) 1241.
- 3) M. Beyeler and Y. Adda: J. Physique. **29** (1968) 345.
- 4) G. M. Hood and R. J. Schultz: Phys. Rev. **B** . **15** (1971) 2339.
- 5) 川瀬 寛, 山口元由, 石川和徳: 軽金属 **29** (1979) 505.
- 6) 藤川辰一郎: 核理研研究報告 **12** (1979) 229.
- 7) 藤川辰一郎: 核理研研究報告 **14** (1981) 97.
- 8) W. B. Alexander and L. M. Slifkin: Phys. Rev. **B** **1** (1970) 3264.
- 9) S. Fujikawa and K. Hirano: Trans. JIM. **17** (1976) 809.
- 10) C. Y. Sun: Ph. D. Thesis, Uni. of Illinois at Urbana-Champaign, 1971.
- 11) J. R. Manning: Phys. Rev. **B** **6** (1964) A 1758.
- 12) D. Bartdorf and P. Reimers: Phys. Stat. Sol. (a) **28** (1975) 433.
- 13) N. L. Peterson and S. J. Rothman: Phys. Rev. **17** (1978) 4666.
- 14) S. Montl, W. Petry, K. Schroeder and G. Vogl: *Proc. Yamada Conference V, Point Defects and Point Defect Interactions in Metals*, 1981, Kyoto (Tokyo University Press).
- 15) H. Dirkes and Th. Heumann: J. Phys. F: Met. Phys. **12** (1982) L 67.

銅の自己拡散における同位体効果

工学部金属材料

藤川辰一郎

The isotope effect for the self-diffusion in copper at 1350 K was investigated using the carrier-free ^{61}Cu and ^{67}Cu prepared by the photonuclear reaction $^{64}\text{Zn}(r, p2n)$ and $^{68}\text{Zn}(r, p)$, respectively.

The isotope effect factor (E) is 0.746 at 1350 K, indicating that the mono-vacancy mechanism is predominant in the self-diffusion of copper at even the temperature sufficiently near the melting point of copper.

§ 1. はじめに

立方晶の結晶において、ランダム・ウォークによって拡散が起こる場合、拡散係数 (D) は一般に次式で与えられる。

$$D = \frac{1}{6} \Gamma r^2 \quad (1)$$

ここで、 Γ は原子のジャンプ頻度そして r はジャンプ距離である。今注目している原子のジャンプ方向が以前のジャンプ方向に依存している時には、いわゆる拡散の相関効果のために、(1) 式は次のように修正される。

$$D = \frac{1}{6} \Gamma r^2 f \quad (2)$$

ここで、 f は相関係数と呼ばれ、結晶構造および拡散機構で決まる。したがって、 f を実験的に求めることは、拡散機構の解明にとって極めて重要である。

固体での放射性トレーサーによる拡散実験の場合、 f は、同一元素の2種類の異なる同位体の相対的な拡散速度を同時に正確に測定し、次式から求められる。

$$\left(\frac{D_\alpha}{D_\beta} \right) - 1 = \left[\left(\frac{\Gamma_\alpha}{\Gamma_\beta} \right) - 1 \right] f_\alpha \quad (3)$$

ここで、添字 α および β をつけた記号は質量 m_α および m_β を有し、1%以内で $f_\alpha = f$ が成立する2種類の同位体の既述のパラメーターに相当する。原子の移動の活性化エンタルピーが同

位体の質量に依存しないと仮定し、古典的調和振動子の関係を用いると $\Gamma_\alpha/\Gamma_\beta = (m_\beta/m_\alpha)^{1/2}$ と近似することができるので、(3)式より相関係数は2種類の同位体の拡散係数および質量で表わすことができる。しかし、拡散している原子のサドル・ポイントでの隣接する原子間の多体問題的相互作用のために、厳密には、(3)式は適用できなくなり、次のような同位体効果係数 (E) が導入される。

$$E \equiv [(D_\alpha/D_\beta) - 1] / [(m_\beta/m_\alpha)^{-1/2} - 1] = f_\alpha \Delta K \quad (4)$$

ここで、補正項 (ΔK) は拡散ジャンプ途中のサドル・ポイントにおいて、ジャンプ方向の運動に伴う運動エネルギーのどれだけの割合が拡散原子に属しているかを表わす係数であり、 $0 < \Delta K \leq 1$ の範囲にある。

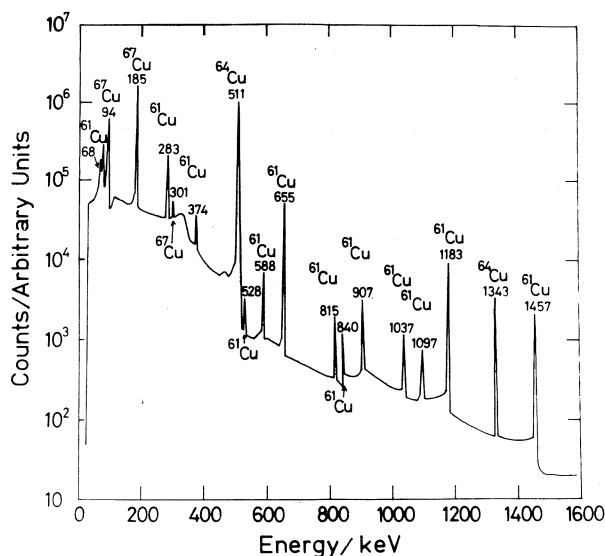
純金属の自己拡散係数を広い温度範囲でアレニウス・プロットした場合、直線性からずれることがしばしば報告されている。その機構の解明にとって、拡散の同位体効果の実験は重要視されている。本研究では、光核反応によって、質量差がかなりある銅の同位体、 ^{61}Cu ($t_{1/2} = 3.408 \text{ h}$) および ^{67}Cu ($t_{1/2} = 62.01 \text{ h}$) が無担体で容易に得られることに注目して、その2種類の同位体を用いて、銅の融点近傍の温度での自己拡散の同位体効果を研究した。従来、Cu の自己拡散の同位体効果を調べた研究としては、Rothman らの研究¹⁾ が唯一のものである。しかしながら、彼らは質量差の小さい $^{64}\text{Cu}/^{67}\text{Cu}$ 対を用いて、精度が悪い半減期分離法で相対的な拡散速度を測定している。したがって、彼らが行った上限の温度 (1333 K) よりも高い拡散温度での同位体効果を、より精度の高い方法で再測定することが切望されている。

§ 2. 実験方法

2.1 ^{61}Cu および ^{67}Cu の調製

^{67}Cu の調製法は、すでに発表されている方法^{2,3)} と類似しているが、 ^{61}Cu の半減期が短いために、照射終了後ただちに敏速に処理する必要があった。ターゲット物質としては、99.999 wt-%純度の natural Zn metal を用いた。その小片 1 g を石英管に封入して、核理研 LINAC RI コース水冷プールの白金コンバーターの直後に置いて照射した。50 MeV の制動放射で約 8 時間照射した。この照射によって生ずる Cu の同位体およびその生成核反応は、 $^{64}\text{Zn}(\gamma, p2n)^{61}\text{Cu}$, $^{67}\text{Zn}(\gamma, p2n)^{64}\text{Cu}$, $^{66}\text{Zn}(\gamma, pn)^{64}\text{Cu}$, $^{68}\text{Zn}(\gamma, p3n)^{64}\text{Cu}$, $^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$ および $^{70}\text{Zn}(\gamma, p2n)^{67}\text{Cu}$ である。照射した Zn を HCl で溶解後、2N HCl 溶液として、あらかじめ過剰の Zn を TBP (リン酸トリブチル) で抽出分離し、水相を陰イオン

交換樹脂 (Dowex 1X-8) のカラムに流し、2N HCl で Cu を無担体分離した。第 1 図は、ORTEC 社 80 cm³ Ge (Li) 検出器 (効率 12.3%, 分解能 1.9 keV) と日本原子力事業製コンピュータ付マルチチャンネルアナライザーシステムで測定した、溶離した溶液の γ -線スペクトルである。⁶⁵Zn の混入がなく、3 種類の Cu の同位体が共存していることがわかる。なお分離精製には、分析用の超高純度の HCl を用いた。



第 1 図 γ -ray spectrum of the mixture (⁶¹Cu + ⁶⁴Cu + ⁶⁷Cu).

2.2 拡散方法および解析方法

2.2.1 試料の作製

試料の形状は、直径 10 mm、高さ 10 mm の円柱状である。粒界拡散および転位網拡散の寄与を少なくするために、約 1273 K で 1 カ月以上の予備焼なましを行った。その処理によって試料表面に 2 つまたは 3 つの結晶粒がみえるような粗大結晶粒の試料が得られた。試料表面を耐水性研磨紙および電解研磨の順序で研磨し、平らで清浄な面にした。H₂SO₄ を含む水溶液に、調製した Cu のトレーサーの塩化物だけを添加したメッキ液で、無担体の Cu メッキを行った。試料の最初の γ -線強度は 1 μ Ci 以上であり、メッキ膜の厚さは 10 nm 以下であった。なお、拡散焼なまし中にトレーサーが表面拡散によって試料側面に移動するのを抑制するため、試料端から 1 mm の範囲にはメッキをしなかった。

2.2.2 拡散焼なましおよび拡散係数の測定

Cu のトレーサーを付着した試料を石英管に入れ、約 10⁻² pa の真空にした後、高純度 (> 99.9999%) の He ガスで数回置換した後、最終的に 20 kpa の He ガスを入れて封入した。Cu の融点近くの温度の 1350 K で、57 分間の拡散焼なましを行った。拡散焼なまし後、試料側面を約 1 mm 削りとった。セクションングは、金属用の大型マイクロトームを用いて行った。その際、速硬化型エポキシ系接着剤で試料を固定し、セクションング中の試料の変形を防止し

た。削りとった層の厚さは、精密天秤を用いて、薄片の質量を測定し、さらに試料の直径をデジタル式精密マイクロメーターで数回測定して、その平均をとることによって直径を決定し、それらの結果を用いて計算した。

r -線の強度は井戸型 NaI (Tl) 検出器および Ge (Li) 検出器によって測定した。切削法での Fick の拡散の第 2 方程式の解は、次式で与えられる。

$$C = \text{const} \cdot \exp(-X_n^2/4Dt) \quad (5)$$

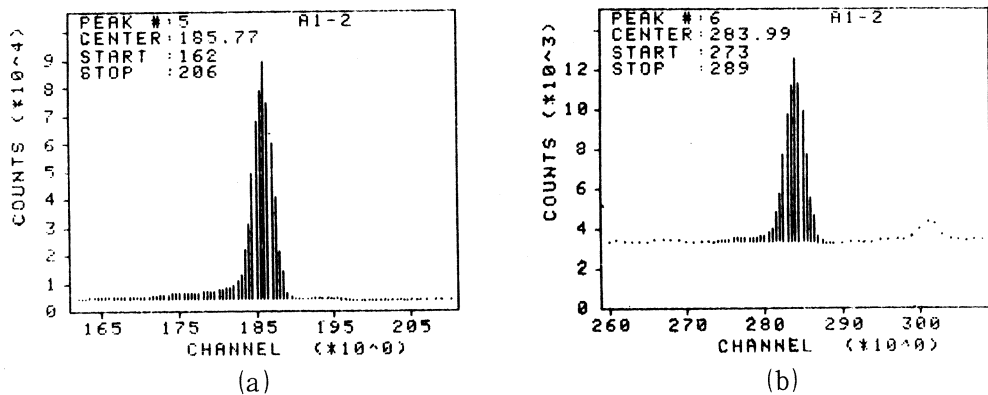
ここで、 C は削りとった薄片の比放射能、 X_n は薄片の中心から最初の面までの距離、 D は拡散係数そして t は拡散時間である。

2.2.3 同位体効果の測定

同一元素の 2 種類の同位体 (α および β) を同時に拡散させた場合、(5)式から容易に次式が導かれる。

$$\ln\left(\frac{C_\alpha}{C_\beta}\right) = \text{const} \cdot -\ln C_\alpha \left[\left(\frac{D_\alpha}{D_\beta}\right) - 1 \right] \quad (6)$$

したがって、(6)式から、 $(1 - D_\alpha/D_\beta)$ は、 $\ln C_\alpha$ 対 $\ln(C_\alpha/C_\beta)$ プロットのこう配から求められることがわかる。本研究では、 C_α および C_β は、Ge (Li) 検出器で測定した r -線スペクトルのピーク面積から求めた。その場合、ピーク面積はベースラインを一次式と仮定するプログラムによって計算した。 ^{67}Cu および ^{61}Cu に対する (5) 式の C を、それぞれ、 C_{67} および C_{61} とすると、 C_{67} の計算には 185 keV のピークそして C_{61} のそれには 283 keV のピークを用いた。第 2 図は、 ^{67}Cu および ^{61}Cu のピーク面積の計算の仕方の一例を示している。なお、各薄片の r -線スペクトルを測定する場合、約 3 mm × 3 mm の点線源にして、Ge (Li) 検出器の中



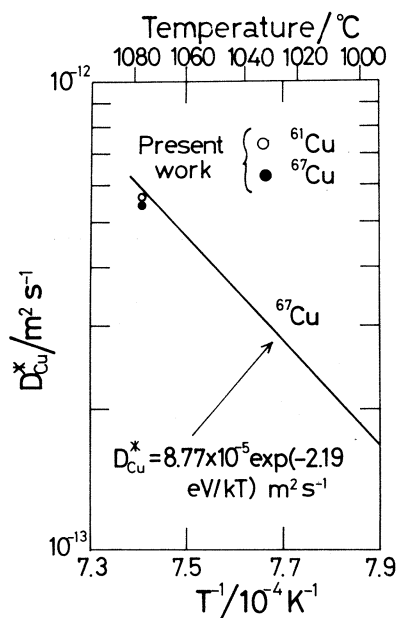
第 2 図 Typical spectrum of the net peak area (a) 185 keV (^{67}Cu) and (b) 283 keV (^{61}Cu).

心部に 2 mm 厚の亚克力板を介して、セロテープで固定し、測定の幾何学的条件を同一にした。

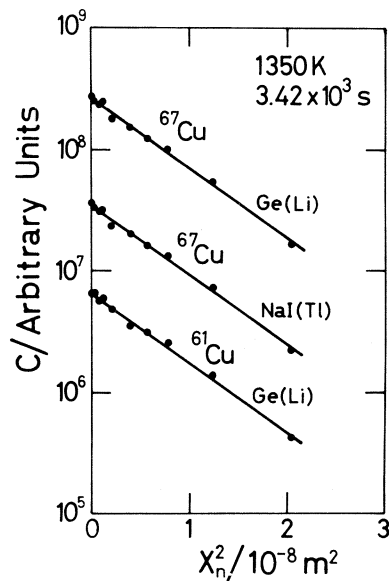
§ 3. 実験結果および考察

3.1 自己拡散係数

第3図は、後述の同位体効果実験に用いた同じ薄片から求めた 1350 K での Cu の自己拡散の拡散浸透曲線である。Ge (Li) 検出器で測定した ^{61}Cu および ^{67}Cu のピーク面積から求めた拡散浸透曲線、ならびに ^{61}Cu および ^{64}Cu が十分に減衰した後、NaI (Tl) 検出器で測定した ^{67}Cu の拡散浸透曲線を比較して示している。それら直線のこう配に (5) 式を適用して計算した拡散係数を第1表に示した。 ^{61}Cu の拡散速度が ^{67}Cu のそれよりも大きいことおよび両検出器による ^{67}Cu の拡散係数がほぼ一致し



第4図 Comparison of the self-diffusion coefficients in the present work with the previous work.



第3図 Concentration profiles for the diffusion of ^{61}Cu and ^{67}Cu in copper at 1350 K.

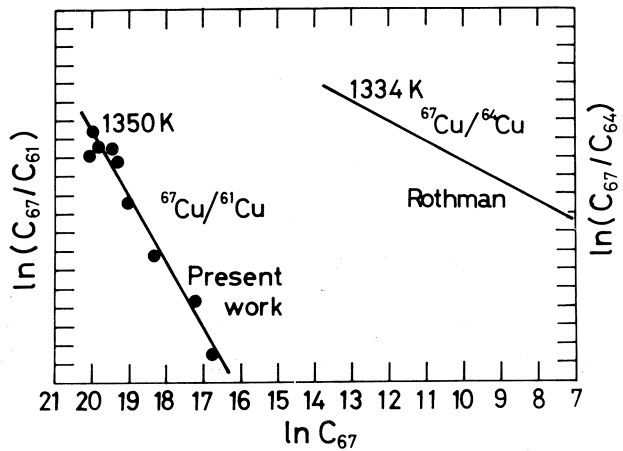
第1表 Self-diffusion coefficients of copper at 1350 K.

Tracer	Diffusivity ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)	Detector
^{61}Cu	5.65×10^{-13}	Ge (Li)
^{67}Cu	5.46×10^{-13}	Ge (Li)
^{67}Cu	5.50×10^{-13}	NaI (Tl)

ていることがわかる。第4図は、本研究でGe(Li)検出器によって、 γ -線スペクトルのピーク面積から決定したCuの自己拡散係数と、高温側の温度範囲での詳細な測定から決定したそのアレニウスプロット^{4, 5)}とを比較して示している。本研究の結果は、後者とほぼ一致していることがわかる。ただし、直線から予想されるよりもいくぶん小さめになっているのは、拡散時間が短かったことと関係があるかもしれない。

3.2 同位体効果係数

第5図は、⁶¹Cuおよび⁶⁷Cuのピーク面積の測定結果を(6)式にあてはめたものである。ほぼ一つの直線上にデータがのっている。比較のために、⁶⁷Cu/⁶⁴Cu対を用いたRothmanらの結果も示されている。両者の比較から、⁶⁷Cu/⁶¹Cu対を用いた実験結果の方が、より明白な同位体効果を示していることがわかる。(6)式によって計算した $1 - D_{67}/D_{61}$ および E の値を



第5図 Log ratio plots for the isotope effect of the self-diffusion in copper. Each division on the ordinate is 0.01.

第2表 Isotope effect for self-diffusion in copper.

Temperature (K)	$1 - D_{67}/D_{64}$	$1 - D_{67}/D_{61}$	E	Worker
1350		0.0342 ^{a)}	0.746	present work
1350		0.0336 ^{b)}	0.734	present work
1333	0.0151		0.668	Rothman ¹⁾
1271	0.0157		0.695	
1219	0.0156		0.690	
1218	0.0157		0.695	
1167	0.0152		0.673	

a) calculated using eq. (6) and b) calculated directly from the experimental values of D_{67} and D_{61} .

Rothman らの結果と比較して、第2表に示した。さらに、第1表にすでに示した ^{61}Cu および ^{67}Cu の拡散係数を直接に比較して計算した値も示されている。本研究での E の値は Rothman らの値よりもわずかながら大きくなった。fcc 格子において、単空孔機構によって自己拡散が起こる場合の相関係数の理論値は 0.78146 ⁶⁾ である。さらに、 $0 < 4K \leq 1$ を考慮すると、本研究で決定された 0.746 という E の値はその理論値とよく一致しているといえよう。銅の融点近傍の 1350 K は複空孔濃度が高いと考えられる温度であるが、それにもかかわらず E が単空孔機構の理論値に近くなったのは、銅の自己拡散においては複空孔機構による拡散の寄与はほとんど無視できることを示している。その予想は、銅の自己拡散係数のアレニウスプロットに関する考察の結果^{4, 5)} と一致する。

§ 4. 結 論

無担体の Cu の放射性トレーサー (^{61}Cu および ^{67}Cu) および Ge (Li) 検出器を用いれば、従来、測定が困難であった銅の自己拡散の同位体効果を精度よく研究できることがわかった。今後、その同位体効果係数の温度依存性を詳しく測定する必要がある。

本研究を示唆され、 ^{61}Cu および ^{67}Cu の分離精製に御協力頂いた東北大学理学部原子核理学研究施設榎本和義氏に厚く感謝する。

参 考 文 献

- 1) S. J. Rothman and N. L. Peterson: Phys. Stat. Sol. **35** (1969) 305.
- 2) 藤川辰一郎: 核理研研究報告 **12** (1979) 229.
- 3) M. Yagi and K. Kondo: Int. J. Appl. Radiat Isotopes **29** (1978) 756.
- 4) S. Fujikawa and K. Hirano: Proc. Yamada Conference V, *Point Defects and Point Defect Interactions in Metals, 1981, Kyoto* (Tokyo University Press).
- 5) S. Fujikawa and K. Hirano: 核理研研究報告 **15** (1982) 127.
- 6) J. R. Manning: *Diffusion Kinetics for Atoms in Crystals* (D. Van Nostrand, Princeton, 1968) p. 95.

Ⅲ. 加速器・測定器

150 MeV 電子パルスビーム・ストレッチャー (SSTR) 基本設計及び性能

核理研, 教養部*, 情報センター**

玉江忠明・今野 収・武藤正勝・田中俊成†
吉田克久・広岡 恵・笹沼東一†† 柴崎義信
浦澤茂一・寺沢辰生・山田和芳・栗原 亮
一戸 隆・高橋重伸・宮瀬晴久*・川添良幸**
鳥塚賀治・菅原真澄

150 MeV 電子パルスビーム・ストレッチャー(以下SSTRと略)は現在, 基本的な諸性能の測定を進めると同時に, 光子標識装置や電子・陽子同時計測装置のテスト実験にもビームを供給している。SSTRの基本設計については以前に報告¹⁾²⁾が出されているが, その後, 変更された部分もあるので, ここに少し詳しい報告を行う事にする。又, 併せてSSTRから取り出されたビームの性質についても報告する。

§ 1 概 要

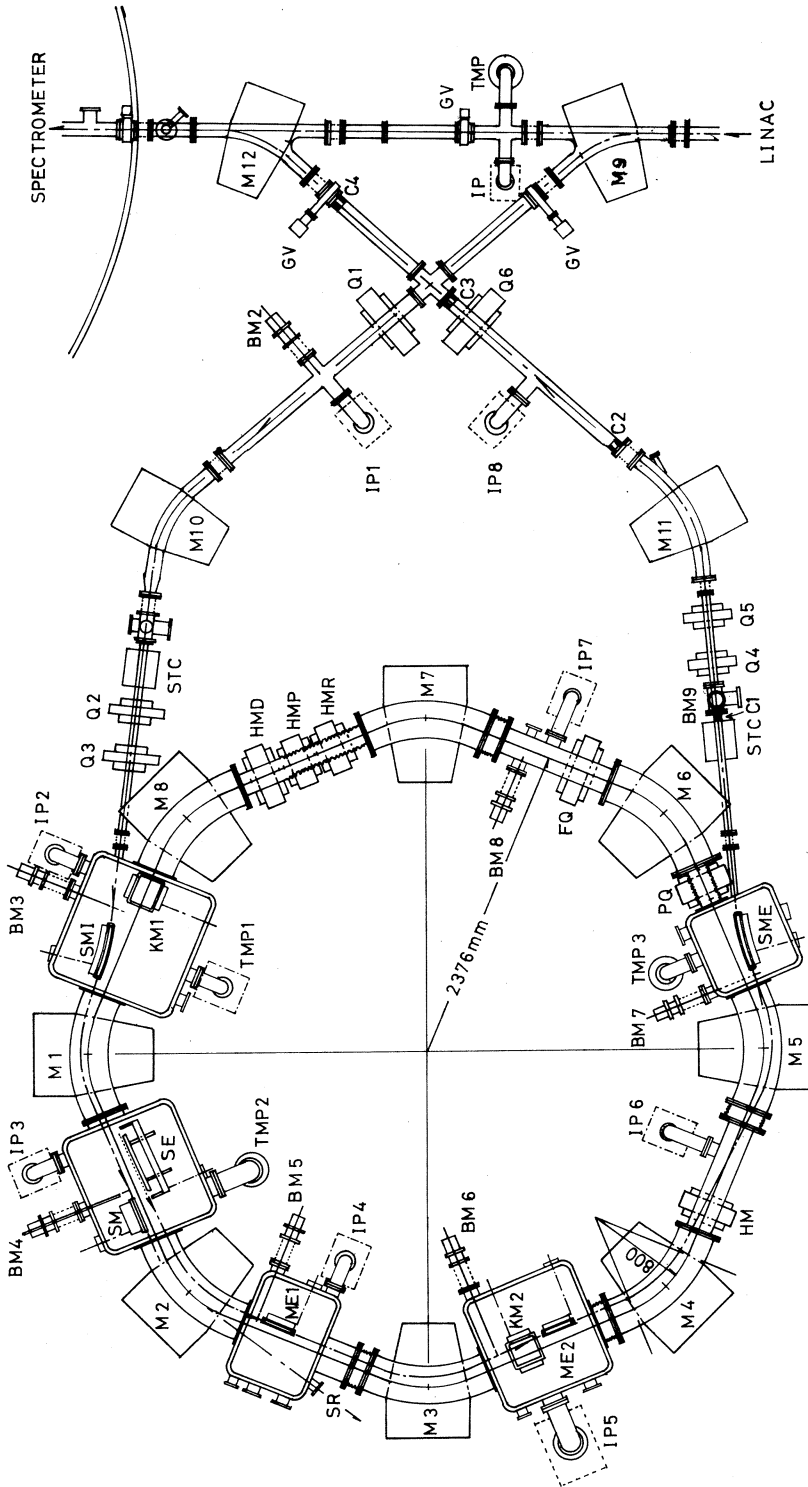
SSTRはリニアックからのパルス状の電子ビームを, 一時的に蓄積し, 次のパルスが来るまでの間, 少しずつ引き出す事によって直流ビームを作る一種の蓄積リングであるが, 一般の蓄積リングと違ってSSTRにはRF加速装置が備えられていない。リングを周回する電子はシンクロトロン放射により, エネルギーを失うが, SSTRはこのエネルギー損失を積極的に利用した単一エネルギー取り出し(monochromatic extraction)を採用している。³⁾

リングの形状は設計段階では円型及びレース・トラック型について検討したが, 第2実験室の広さ等の問題から最終的には円型を採用した。更に入射及び取り出しの為の機器を設置するスペースをとれる様に蓄積ビームの集束はすべて偏向電磁石によるエッチ集束ですませることにした。

第1図にSSTRの機器構成を示した。各機器の規格等については前号に詳しい報告がある⁴⁾。SSTRリングは8台の偏向電磁石(M1~M8)及び各種電磁石によって構成されている。

† 現在 日本大学

†† 現在 ソニー株式会社



第1図 SSTRの機器構成図。

M : 偏向電磁石,
 Q, FQ : 四極電磁石,
 PQ : パルス四極電磁石,
 HMD, HM : 六極電磁石,
 HMP : パルス六極電磁石,

HMR : 調節用六極電磁石,
 KM : キックカー電磁石,
 SM, SMI : 入射用セプトラム電磁石,
 ME, SME : 取り出し用セプトラム電磁石,
 SE : セプトラム電極,
 BM : ビーム位置モニター,

SR : シンクロトロロン放射光モニター,
 STC : ステアリングコイル,
 TMP : ターボ分子ポンプ,
 IP : イオンポンプ,
 GV : ゲート・バルブ,
 C : コリメーター。

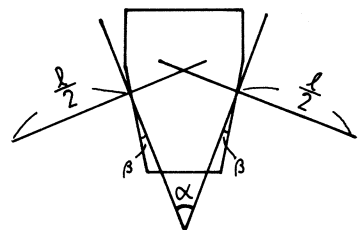
2台のキッカー電磁石(KM1, KM2)はビーム入射時に平衡軌道を変化させる為に用いられ, パルス四極電磁石(PQ)はベータトロン振動数及びエネルギー分散関数(η 関数)を変化させるのに使用される。又, 微調用に直流の四極電磁石(FQ)が用意されている。六極電磁石は全部で4台あり, そのうちの1台, 直流六極電磁石(HM)は偏向電磁石の六極成分を打ち消すのに用いられる。他の3台(HMD, HMP, HMR)は当初1台のパルス六極電磁石を考えていたが, 電源の関係上3台に分けられた。HMD(直流)は三分整数共鳴を利用してビームを取り出す為のものであるが, 入射時にこれを励磁したままにしておくと, ビームはセプタム電磁石に衝突して失われる事になる。入射時にHMDを打ち消す為に用いられるのがHMPで, 入射時だけ正弦波的な電流が流される。又HMRは取り出し時に, ビームの様度を改善するのに用いられる。入射系は偏向角 41.25° の偏向電磁石2台(M9, M10), 四極電磁石5台(Q19, Q20, Q1, Q2, Q3), セプタム電磁石2台(SMI, SM)から成る。又, 取り出しビームはセプタム電極(SE)によって切り取られた後, 3台のセプタム電磁石(ME1, ME2, SME)によってリングから取り出され, 2台の偏向電磁石(M11, M12)と3台の四極電磁石(Q4, Q5, Q6)で電子散乱用スペクトロメーター(LDM)に戻される。

§ 2. 基本設計

以下にSSTRの基本設計のうち重要と思われるものについて述べる事にする。

2.1 偏向電磁石の特性及びリングの大きさ

SSTRのリング部は偏向角 45° , 曲率半径0.8mの8台の偏向電磁石によって構成されている。今, 8台の偏向電磁石とそれをつなぐ自由空間のみによって構成されている正八角形のリングを考える。この様なリングでは, 偏向電磁石内での粒子の軌道半径(ρ), 偏向電磁石間の自由空間長(l), 偏向電磁石の入出射角(β)の3つの量がリングの常数となる。従って, 条件として水平方向及び鉛直方向のベータトロン振動数(ν_x, ν_y)を与え, 更に ρ, l, β のうち1つを決めれば他の2つの量は一義的に決定される。(ただし, 電磁石に漏洩磁場がある場合には, その影響も考慮に入れる必要がある。) SSTRからのビームの取り出しには $\nu_x = 4/3$ の三分整数共鳴を利用するので, 8台の偏向電磁石のみによる水平方向のベータトロン数はそれに十分近い値の



第2図 偏向電磁石の形状。
 α : 偏向角($=45^\circ$),
 β : 入出射角,
 l : 自由空間長。

$\nu_x = 1.30$ とする。(ビーム取り出し時には六極電磁石の働きで、取り出しエネルギーに達した電子のベータトロン振動数は $\nu_x = 4/3$ となる。) 又、鉛直方向のベータトロン振動数は $\nu_y = 1.20$ として設計を行った。 $\rho = 0.8\text{m}$ とし、電磁石の磁場が sharp cut off 近似に従うと仮定して1次の行列計算を行うと、偏向電磁石の入出射角 $\beta = 10.631^\circ$ 、電磁石間の自由空間長 $l = 1.218\text{m}$ が得られる。又、漏洩磁場の程度を表わす常数 K_1 として典型的な電磁石で用いられる値 ($K_1 = 0.45$) を使用すると $\beta = 11.565^\circ$ 、 $l = 1.358\text{m}$ となる(附録1)。電磁石の発注はこの時点で行われたが、 K_1 の正確な値は最終的には実際の電磁石の磁場分布の測定を待って決められなければならないので、後で修正が可能な様に電磁石の磁極端部分約38cmは取りはずしが出来る様になっている(以下この部分をポール・チップと呼ぶ)。次に製造に入った電磁石の形状を基にし、プログラム TRIM を用いて磁場分布の計算が行なわれた。こうして求めた磁場分布を使って軌道追跡法による軌道計算を行った結果、電磁石の磁極端から実効磁場端までの距離 $\delta = 21.5\text{mm}$ 、 $K_1 = 0.355$ 、 $\beta = 11.32^\circ$ が得られた。附録1に述べた行列計算の結果でも、ほぼ同様な値が得られたので、8台のうち1台分のポール・チップを上値に添って加工し、出来上がった電磁石の磁場分布の測定を行った。磁場測定については以前に詳しい報告⁴⁾があるのでそれを参照していただきたい。こうして得られた磁場分布を基にして、軌道追跡法による再計算が行われ、最終的な結果として $\delta = 22.5\text{cm}$ 、 $K_1 = 0.2969$ 、 $\beta = 11.215^\circ$ 、 $l = 1.3057\text{m}$ が得られた。プログラム TRANSPORT による行列計算に於てもほぼ等しい値が得られたので、8台の電磁石のポール・チップを上値に添って加工した。

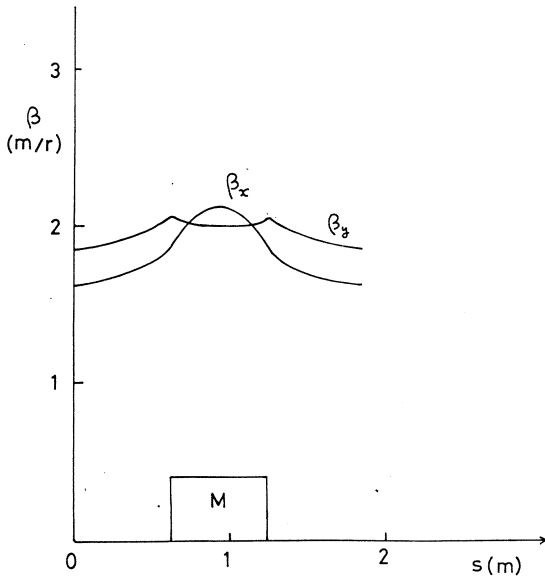
以上の結果、SSTRの1周の長さは $L = 15.472\text{m}$ となった。最終的な偏向電磁石の配置を第3図に示す。入射系・取り出し系の偏向電磁石の偏向角は 41.25° 、入出射角は 11.381° である。

又、リングの1単位(2つの電磁石の中間点から次の中間点まで)のベータ関数を第4図に示した。(求め方については附録1参照)

2.1 パルス四極電磁石(PQ)

SSTR へのビームの入射時には、ビームはセプタム電磁石(SM)の非常に近くを通るので、ビームが広がってSMに衝突する事の無い様にしなければならない。SM付近で、エネルギーの違うビームが広がらない様にするのがパルス四極電磁石(PQ)である。

運動量が $\delta \left(\delta = \frac{p - p_0}{p_0} \right)$ 違う粒子の平衡軌道の偏位は $x(s) = \eta(s)\delta$ と表わされる。 η はエネルギー分散関数と呼ばれる量で、 δ の違いによってビームがSM付近で広がらない様にす



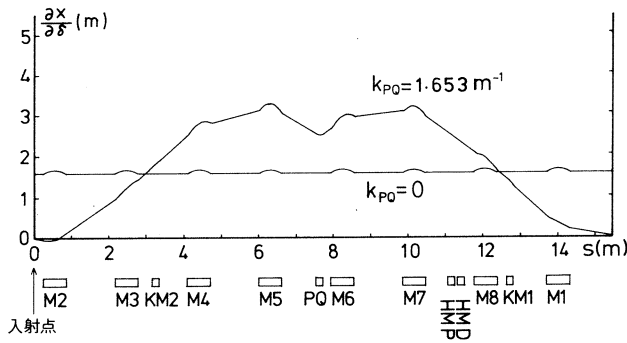
第4図 SSTRの八分の一に対するベータ関数。

る為には、その点で η を零にする必要がある。上の条件を満たす為には偏向電磁石M5とM6の中間点に四極電磁石(PQ)を置くのが最良である。この時にはPQの強さを適当に選ぶ事により、M1とM2の間の自由空間全域にわたって $\eta=0$ かつ、その傾き η' も零にする事が出来る。

ところがM5とM6の間の区間は、ビーム取り出しライン上に位置するので、PQをM5とM6の中間点に配置するのは難しく、PQをM6に寄せて設置しなければならない。現在の配置

ではPQの中央がM6の実効磁場端の0.3m上流になる様に置かれている。(M5とM6の中央からは0.3528mずれている。)この様な配置ではSMの位置で $\eta=0$ かつ $\eta'=0$ とする事は不可能で、 η 関数はSM付近のある一点でのみ零とする事が出来るが、その傾きは零とはならない。現在の設計ではSMの5cm後方(この点を入射点と呼ぶ)で η 関数が零になる様にしてある。上の様な条件で、行列法による計算を行うと(附録2参照)、PQの強度として

$$k = 1.6533 \text{ m}^{-1} \text{ が得られる。ただし、} k \text{ は } k^2 = \frac{1}{B\rho_0} \frac{\partial B_y}{\partial x} \text{ 定義される量である。}$$

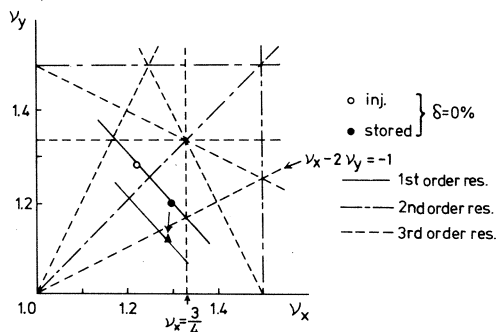


第5図 入射時及び取り出し時のエネルギー分散関数。
ビーム入射時にPQを励磁すれば入射点で $\eta=0$ となる。

ここで B_{ρ_0} は磁氣的固さで、

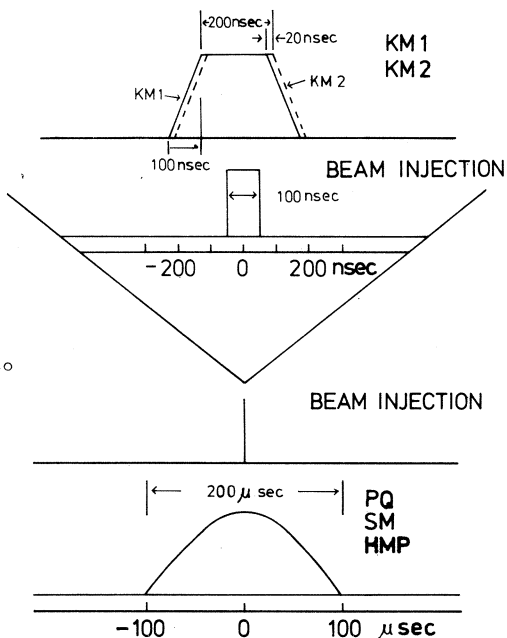
$$B_{\rho_0} = \frac{pc \text{ (GeV)}}{0.2998} \quad (\text{T} \cdot \text{m}) \quad (1)$$

によって与えられる。



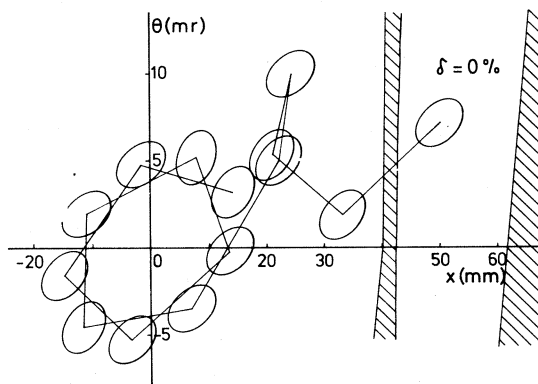
第 6 図 SSTR のベータatron振動数と共鳴線。

- inj. } $\delta=0\%$
- stored }
- (ν_x, ν_y) : 8 台の偏向電磁石のみによる
- (ν_x, ν_y) : PQ を設定値まで励磁した時の
- △ (ν_x, ν_y) : 偏向電磁石のフィールド・クラ
ンプを取り除いた時の



第 7 図 パルス電磁の電流波形。

この時のリング一周の η 関数を第 5 図に示した。この図には PQ を励磁しない時の η 関数も同時に示されている。又、PQ を励磁した時のベータatron振動数は、附録 1 で説明した方法で計算する事が出来て $\nu_x = 1.223$, $\nu_y = 1.286$ と求まる。第 6 図に PQ を励磁した時と切った時のベータatron振動数の変化の様子を 3 次までの共鳴線と共に示した。PQ の電流波形は第 7 図から分かる様に、幅 $200 \mu\text{sec}$ の正弦波形をしておりビーム入射後 $100 \mu\text{sec}$



第 8 図 入射ビームの位相空間に於ける動き。斜線部分は位相空間への SM の写影。

経過して、PQが完全に切れた後でビームの取り出しが始まる。

2.3 キッカー電磁石 (KM1, KM2)

リニアックからの電子ビームは2台の偏向電磁石 (M9, M10) 及びセプタム電磁石 (SMI) を通過し、セプタム電磁石 (SM) の所でリングに入射される。この時の平衡軌道からの偏位を x_0 とする。入射されたビームは平衡軌道に沿って振動しながら周回する事になり、 n 回転後の SM の位置での粒子の偏位は

$$x = x_0 \cos(2\pi n \nu_x + \varphi) / \cos \varphi \quad (2)$$

で与えられる。数回転後 $2\pi \nu_x$ が整数に近い値を取ると、粒子の偏位は x_0 に近い値となるから、その時電子は SM に衝突して失われる事になる。キッカー電磁石は、ビームの入射時に平衡軌道を一時的に SM に近づける働きをするパルス電磁石で、ビームの入射が終了すると粒子が SM に衝突する前に切られる。キッカー電磁石の働きによって入射時に平衡軌道が SM に近づいている時、振動の振幅 $x_0 / \cos \varphi$ はキッカー電磁石の無い場合に比べて平衡軌道が SM に近づいた分だけ小さくなる。そしてキッカー電磁石が切られた後では平衡軌道は SM から離れ、それにともなってビームもリングの中心方向に引き戻されるので、その後、ビームは SM に衝突する事なく安定に回る事になる。この時の位相空間に於けるビームの動きを第8図に示した。キッカー電磁石は2回転目と3回転目の間で切れ始め、5回転目には完全に切れている。SSTRでは2台のキッカー電磁石 (KM1, KM2) が使用されている。これは KM1 → SM → KM2 の部分だけで平衡軌道を変化させ、パルス四極電磁石 (PQ) のある側では平衡軌道に変化を与えない様にした為である。この様な条件を満足させる為には、KM1 から KM2 までの位相の進みを π とすれば良い。そして KM1 と KM2 の中点付近に SM を配置すれば良い事が分かる。リング1周の位相進みは $1.3 \times 2\pi = 2.6\pi$ で、その長さが 15.472 m であるから、KM1 中心と SM 中心との距離を $\frac{0.5\pi}{2.6\pi} \times 15.472 = 2.975$ m とすれば良い。ただし、他の機器の配置の関係から、丁度その位置に KM1 を置く事は出来ないので、KM1 と SM の中心間距離は 2.5497 m とする事にした。KM2 の位置及び KM1, KM2 の強度は以下の様にして決める。まず KM1, KM2 の偏向角をそれぞれ θ_1, θ_2 、M3 の実効磁極端から KM2 中央までの距離を L として KM1 入口から KM2 出口までの行列を求める。次にその行列を使って KM1 の入口で ($x_1 = 0, \theta_1 = 0$) とした時に KM2 出口でも ($x_2 = 0, \theta_2 = 0$) となる様な θ_1, θ_2, L の値を求める。この計算を実行する事によって $L = 0.4601$ m, $\theta_2 = 1.0122 \theta_1$ が得られた。ただし、この時の計算では KM1, KM2 の有効長として 0.2 m を

仮定した。又、入射点（SMの後方5cm）での平衡軌道の移動距離 $X(\text{mm})$ 及び角度 θ と θ_1 （radian）の関係は行列計算により簡単に求める事が出来て、

$$\begin{aligned} X &= 1796.4 \theta_1 \\ \theta &= -0.3613 \theta_1 - 0.178 \delta \end{aligned} \quad (3)$$

となる。

キッカー電磁石の強度はビームの入射時に平衡軌道をどれだけSMに近づけるかという事に関係している。(3)式によれば、KM1の偏向角 θ_1 を0.01 radianとした時、平衡軌道が約18mm移動する事が分かる。この値はビーム入射時の事だけを考えた場合には十分であるが、PQが切れた後の事まで考えると不十分である。ビーム入射時には、PQの働きによってSM付近では η 関数が零に近い値をとるが、PQが切れた後では η 関数はリング全体にわたって約1.6mになる(第5図)。SSTRには最大 $\delta=0.01$ のエネルギーのビームまで入射されるが、PQが切れた後には $\delta=0.01$ に対応する平衡軌道は約16mm外側に寄る事になる。キッカー電磁石による平衡軌道の移動はこの16mmより十分に大きく取る必要があるので、KM1の偏向角として $\theta_1=0.02$ radianを採用した。この時、PQが切れた後のビームとSMは少なくとも20mm程度離れている事になる。KM2の偏向角は $\theta_2=1.0122 \theta_1 \doteq 0.0202$ （radian）となる。又、キッカー電磁石が励磁されている時、入射点での平衡軌道は中心軌道に対して

$$\begin{aligned} X &= 35.9 \text{ mm} \\ \theta &= -0.00723 - 0.178 \delta \end{aligned} \quad (4)$$

の関係にある。

KM1とKM2の働きが調和する為には、KM2の動作は粒子がKM1からKM2まで飛行するのに要する時間だけKM1より遅れていなければならない。KM1とKM2の距離は5.9422mであるから、この動作時間差は19.8 nsecとなる。キッカー電磁石の電流波形の概念図は第7図に示してある。又、電流波形の実測値については別に詳しい報告がある⁵⁾。

2.4 六極電磁石（HMD, HMP, HMR）

六極電磁石（HMD）は、取り出しエネルギーに達したビームに三分整数共鳴を起し、リングからビームを取り出す役割を持っている。SSTRは、リングを周回する電子がシンクロトロン放射によってエネルギーを失い、中心エネルギーより1%小さなエネルギーに達した時にリングから取り出される設計になっている。その為には、まず、このエネルギーに達した粒子が $\nu_x=4/3$ の共鳴をおこす様にしておく必要がある。エネルギーによってベータトロン振動数がどの様になるかを表わす量 $\frac{\partial \nu_x}{\partial \delta}$ をクロマティック係数と云うが、 $\delta=0$ の時のベ

ータロン振動数は $\nu_x = 1.30$ だから、 $\delta = -0.01$ の時に $\nu_x = 4/3$ となる為にはクロマテ

ィック係数として $\frac{\partial \nu_x}{\partial \delta} = -\frac{\frac{4}{3} - 1.3}{0.01} = -3.33$ 程度の値が必要となる。偏向電磁石のみ

によるクロマティック係数は附録 2 に示した様にこの必要な値より 1 桁以上も小さいので、他の電磁石を用いて、クロマティック係数（の絶対値）を積極的に大きくしてやる必要がある。この役割を担うのが六極電磁石（HMD）であり、HMDの強さを $g = 6.5 \text{ m}^{-2}$ とした時に必要な条件が満たされる。 g と云う量は六極電磁石内の粒子の運動方程式

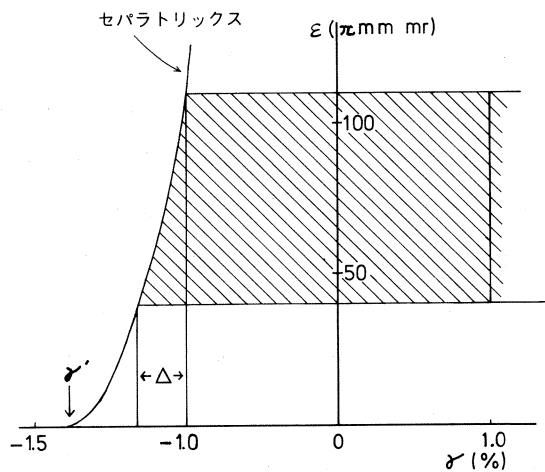
$$\frac{d^2 x}{ds^2} + k_s^3 x^2 = 0 \tag{5}$$

の係数 k_s^3 と $g = k_s^3 l$ (l は六極電磁石の有効長) の関係にあり、磁極表面での磁束密度 B_0 (T)、磁極内接円半径 a (m) との間には

$$g = \frac{B_0 l}{a^2 B_{\rho_0}} \tag{6}$$

の関係がある。ただし、 B_{ρ_0} は(1)式で与えた粒子の磁氣的固さである。

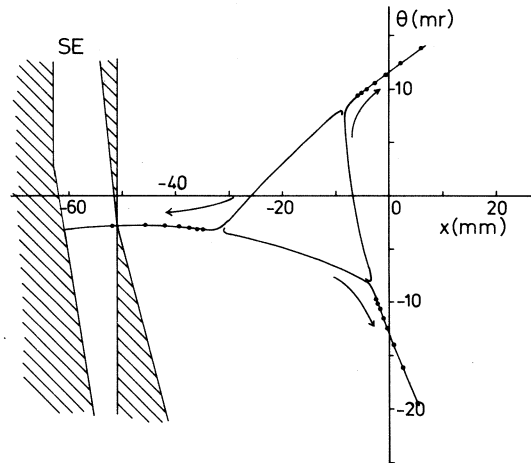
第 8 図に示した様に、周回している電子ビームを位相空間 (x, θ) で眺めると、ビームはある楕円に乗っているが、この楕円の面積 (ϵ) も取り出しビームのエネルギーに関係している。その様子を第 9 図に示した。縦軸が楕円の面積、横軸がビームのエネルギーである。リニアックからのビームがエミッタンスを持っている場合、リングに入射されたビームは位相空間で幅を持つ事になる。この図では、ビームのエミッタンスとして $5 \pi \text{ mm} \cdot \text{mr}$ を仮定し、このビームが面積 $75 \pi \text{ mm} \cdot \text{mr}$ の楕円に乗る様にした。この時ビームは位相空間で $40 \pi \text{ mm} \cdot \text{mr}$ から $110 \pi \text{ mm} \cdot \text{mr}$ までの幅を持っている。図の左側の放物線が安定領域と不安定領域の境界のセパトリックスであるが、楕円の面積が大きい時には取り出しビームのエネルギーが高く、楕円の面積が小さい時には低いエネルギーで、ビームが取り出される事



第 9 図 SSTRのセパトリックスと蓄積ビームの位相空間に於ける面積。

が分かる。従って、取り出しビームの幅 Δ を小さくする為には位相空間に占めるビームの幅を出来るだけ小さくする必要がある。

第10図に取り出し点に於ける取り出しビームの移動の様子を示した。この図から分かる様にビームが中心軌道から離れる程、進み幅は大きくなる。SSTR からの取り出しの制約から、取り出し用のセプタム電極 (SE) の wire 面を中心軌道から 5 cm 離しておいた時に、進み幅が約 1 cm になる様



第10図 取り出し点に於ける代表点の動き。
斜線はSEの位相空間への斜影。

に位相空間での楕円の面積を決定した。計算機によるシュミレーションの結果、楕円面積が $\epsilon = 75 \pi \text{ mm} \cdot \text{mr}$ の時、上記の条件が満たされる事が分かった。

取り出し電極 (SE) 及び六極電磁石の位置は次の様にして決められた。SSTR からのビームの取り出しは普通 $\delta = -0.01$ の所で行われる。この時、平衡軌道はリングの内側に寄っており、ビームはこの平衡軌道のまわりを振動しながら周回している。従って、ビームの取り出しはリングの内側で行うのが自然である。一方、リングからビームを偏向系に導く取出用セプタム電磁石 (SME) はリングの外側にあるので、SE は位相 π だけ SME の上流に置くのが良い。又、SE 付近でビームが取り出しに適した位置に来る様にする為には、位相 $\frac{\pi}{2}$ 上流に HMD を置く必要がある。各機器の最終的な配置は第3図にまとめてある。

§ 3. SSTRの改造

前回述べた様に、初期の運転に於いて、SSTR からのビームが上下に分裂するのが観測された。この現象の原因が $\nu_x - 2\nu_y = -1$ の3次の結合共鳴である事が分かったので、M1 ~ M8 の偏向電磁石のフィールド・クランプを取り除き、ベータートロン振動数を変化させる事によって、結合共鳴を回逃した (詳しくは前回の報告を参照)。

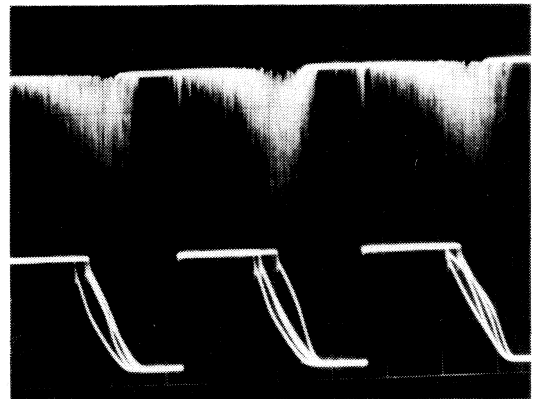
ここでは、フィールド・クランプを外した時のベータートロン振動数の計算を紹介しておく。§ 2.1 で述べた様に、SSTR の電磁石はあらかじめ、フィールドクランプを着けた状態と外した状態の各々について磁場分布の測定を行ってあった。その結果、フィールドクランプを外

した時の K_1 は $K_1 = 0.4745$ となる事が分かっていた。又、電磁石からの漏洩磁場が大きくなる為有効磁場端の位置が 10.8 mm 外に伸びている事が分かった。この為、電磁石間の自由空間長は $l = 1.2841$ m になり、その分だけ電磁石の長さが伸びる事になる。ただし、電磁石の偏向角度は 45° でなければならないから曲率半径を $\rho = \rho_0 + \frac{0.0108}{\tan 22.5^\circ} = 0.82607$ m にする必要がある。従って、附録の(1-4)式を用いると、(ただし、この式を用いる時 $l = 0.6421$ m とする。)水平方向のベータトロン振動数として $\nu_x = 1.278$ が得られる。又、鉛直方向のベータトロン振動数は(1-4)式と(3-2)式を用いて、 $\nu_y = 1.137$ となる。又、この時の実効的な磁場端角度は $\beta_y = 9.464^\circ$ になる事が分かる。これらの値がフィールドクランプを外した時のベータトロン振動数で、第6図にこの値も示してある。 (ν_x, ν_y) の実測結果については、次の「150 MeV 電子パルスビーム・ストレッチャー(SSTR)の動作試験」で紹介されている。

§ 4. SSTRの性能

4.1 ビーム強度

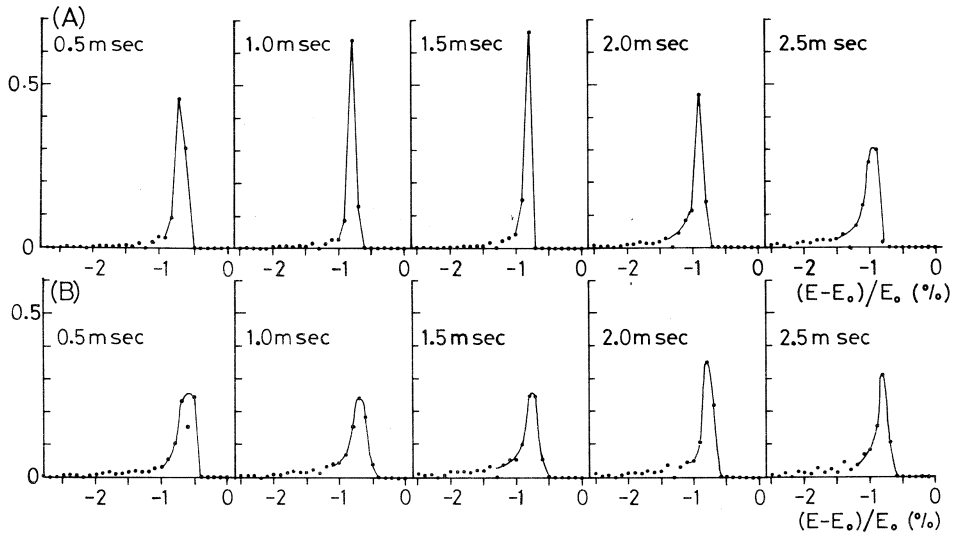
SSTRの初期の試験結果については前回報告した³⁾。入射ビームのパルス幅10 n secの運転時には300 pps 運転でも最高取り出し電流は200 nAであったが、その後パルス幅を広げる事により取り出し電流を $1 \mu\text{A}$ まで上げる事が出来た。ただし、パルス幅が 50 n sec ~ 200 n sec の時リニアックを安定に保って運転する事は難しく、100 n sec 以上のビームのジッターや、エネルギーの変動も観測された。又、エネルギー幅 1.5% にわたって一様なビームを出す事も難しく、その為に SSTR からのビームの一樣度も悪くなっている(第11図)。今のところ、パルス幅を広げて行った実験は1シフトのみであり、今後、さらに詳しい試験が必要である。



第11図 (上) 取り出しビーム強度 $1 \mu\text{A}$ の時の時間スペクトル。取り出しビームに構造が見られる。(横軸 1 m sec/div.)
(下) リング内を周回するシンクロトロン放射光の強度。光度が大きい為増幅器が飽和している。

4.2 エネルギースペクトル

SSTR からの取り出しビームのエネルギースペクトルを調べる為に、LDM を用いて、弾性電子散乱スペクトルを測定した。SSTR からのビームのエネルギースペクトルの時間変化を見る為に、マシン・トリガー信号を遅延回路付きパルス発生器で遅らせてから検出系の起動信号



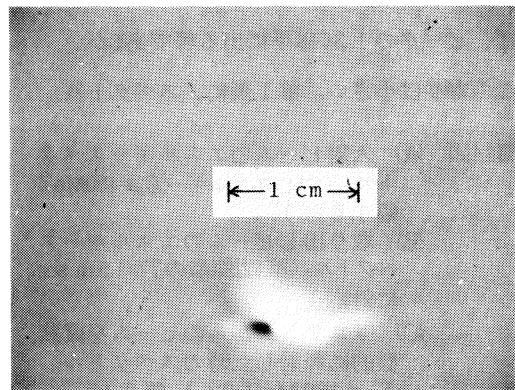
第12図 取り出しビームエネルギースペクトルの時間変化

(A) 比較的良く調節された時。PQ: 0A, NMD: 44.4A, HMP: 2321A, FQ: 12.7A。

(B) ハローの大きい時。PQ: 0A, HMD: 44.6A, HMP: 2545A, FQ: 25.2A。

カウントの合計が1になる様に規格化されている。 $E_0 = 130 \text{ MeV}$

とし、この遅延時間を変化させながらスペクトルを測定した。なおLDM 検出系のゲート幅は $10 \mu\text{sec}$ である。得られたスペクトルの代表例を第12図に示す。この測定の場合には、散乱標的として厚さ 49.97 mg/cm^2 の ^{90}Zr を用い、LDM は角度 30° に固定した。なお、このエネルギースペクトルは、見易さを考えて、全チャンネルにわたってのカウント数の合計が1になる様に規格化してある。(A) のスペクトルは SSTR を比較的良く調

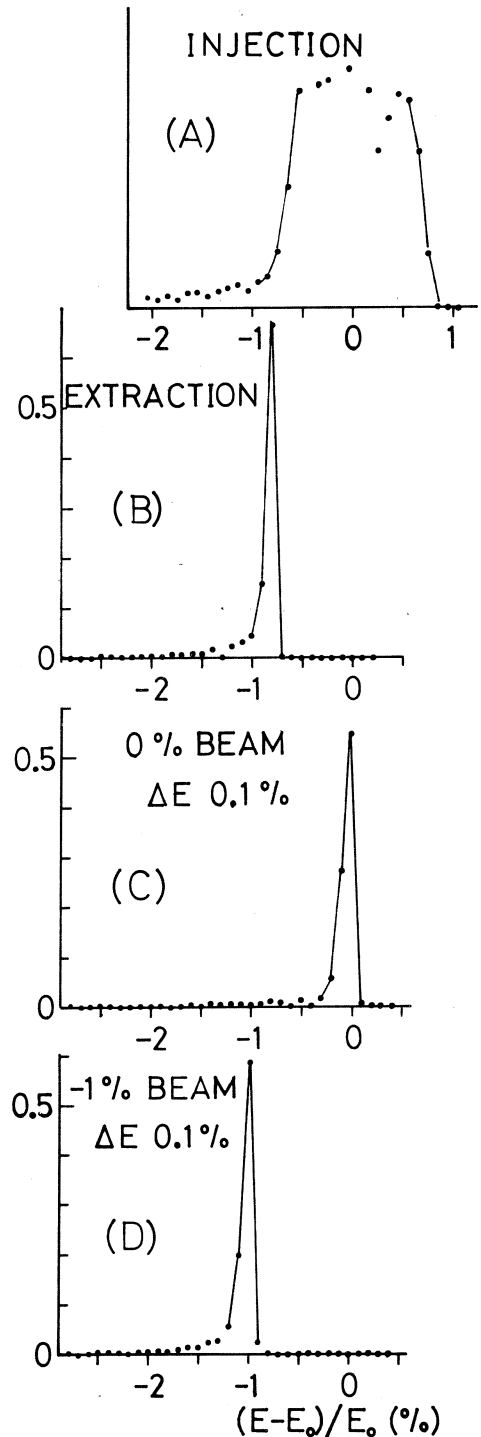


第13図 第12図の(B)の場合のビーム形状。大きなハローが見られる。(A)の場合にはこの様なハローは無い。

整した時のもの、(B)は、ハローが大きい時のものである。(B)を測定した時のビームの形状を散乱槽内の ZnS で見たのが第13図である。(A)の場合には半値幅が0.1~0.2%程度でピーク部分に全カウント数の90%以上が集中している。又、ピーク部分より高いエネルギー領域には全くカウントが見られないのは注目し値する。取り出しビームに大きなハローが見える場合(B)には、エネルギースペクトルも崩れているのが分かる。第14図に SSTR への入射粒子のスペクトル(A)、取り出しビームのスペクトルを示した。又、較正の為にリニアックからのビーム(エネルギー幅0.1%)を直接標的に照射した時のスペクトルも示した。これらのエネルギースペクトルは低エネルギー方向に僅かではあるが裾をひいている。この部分には、 ^{90}Zr 標的での制動放射によってエネルギーを損失した電子の寄与が大きい。又、 ^{90}Zr の第1励起準位(1.752MeV)は、ピークの1.35%下に出る筈であるが、この寄与は小さい。第1表に、スペクトル

第14図 (A) 入射ビームのエネルギースペクトル。(中心エネルギー $E_0=130\text{MeV}$ 幅1.5%)
 (B) 取り出しビームのエネルギースペクトル。(第12図(A)の $T=1.5\text{m sec}$ に対応)
 (C) リニアックからのビームを直接標的に照射した時のスペクトル。 $E_0=130\text{MeV}$ (0%), 幅0.1%。
 (D) $E_0=128.7\text{MeV}$ (-1%), 幅0.1%。

(B)(C)(D)はカウントの合計が1になる様に規格化されている。



第1表 取り出しビームの低エネルギー成分の割合。

	$0.90E_p \sim 0.95E_p$	$0.85E_p \sim 0.90E_p$	標 的
○ リニアックからのビーム			
(A) $\delta=0\%$ ($\frac{\Delta E}{E}=0.1\%$)	4.32%	2.85%	^{90}Zr ($\frac{49.97}{\text{mg}/\text{cm}^2}$)
(B) $\delta=-1\%$ ($\frac{\Delta E}{E}=0.1\%$)	5.45%	3.00%	"
○ SSTRからのビーム			
(C) PQ: 0 A, HMD: 44.4 A, HMP: 2321 A, FQ: 12.7 A	6.41%	2.73%	"
(D) PQ: 0 A, HMD: 44.6 A, HMP: 2545 A, FQ: 25.2 A	11.19%	6.49%	" ハロー大きい。
(E) PQ: 0 A, HMD: 29.4 A, HMP: 2712 A, FQ: 28.1 A	7.34%	3.97%	"
○ ニリアックからのビーム			
(F) $\delta=0\%$ ($\frac{\Delta E}{E}=0.2\%$)	10.68%		^{51}V
○ SSTRからのビーム			
(G) PQ: 0 A, HMD: 15.2 A, HMP: 2222 A, FQ: 21.99 A	8.11%		"
(H) PQ: 1670 A, HMD: 12.6 A, HMP: 2225 A, FQ: 33.21 A	11.36%		"

の低エネルギー部分のカウント数の全カウント数に対する割合を示した。比較として、リニアックからのビームを $\frac{\Delta E}{E}=0.1\%$ にコリメートして直接 ^{90}Zr の標的に照射した場合の割合も示した。SSTRからのビームとリニアックからのビームの間の差は、ハローの大きな場合を除いて小さく、 $E=0.90E_p \sim 0.95E_p$ の領域で3%以下、 $E=0.85E_p \sim 0.90E_p$ の領域では1%以下である。ただし、 E_p はピークのエネルギー。又、表には標的として ^{51}V を用いた場合も示したが、リニアックのビームと、SSTRのビームの間に有意の差は見られなかった。(この場合には低励起準位の影響の為に低エネルギー成分の割合は増加している。)

現在、SSTRからのビームを用いて光子標識化装置のテスト実験が行われている。この実験では、制動放射によって γ 線を放出した後の $E=0.2E_0 \sim 0.8E_0$ 領域の電子を測定しているが、SSTRのビームにそのような低エネルギー領域の電子が混っていれば、それはバックグラウンドとなる。初期の実験で、制動放射用標的として 10^{-3} 輻射距離の ^{197}Au を用いた時に計測される数倍の低エネルギー電子がSSTRからのビームに混入している事が分かった。SSTRのビーム取り出し系は最大でも $\pm 2\%$ 程度の電子を輸送する事が出来るだけなので、これらの低エネルギー成分は、SSTRからの直接ビームではなく、一次ビームが、ビームダ

クトや電磁石磁極等によって散乱されてエネルギーを失ったものと考えられた。そこで、ビーム輸送系に4つのコリメーター（C1～穴直径2 cm，C2～穴直径3 cm，C3，C4～穴縦径3 cm，横径4 cm）を第1図に示した位置に挿入した。この結果，SSTRからのビームに含まれる低エネルギー成分は2桁以上減少し，バックグランドは 10^{-3} 輻射距離の ^{197}Au の標的を用いた場合の $\frac{1}{20} \sim \frac{1}{50}$ 程度となり，実験には全く支障がなくなった。

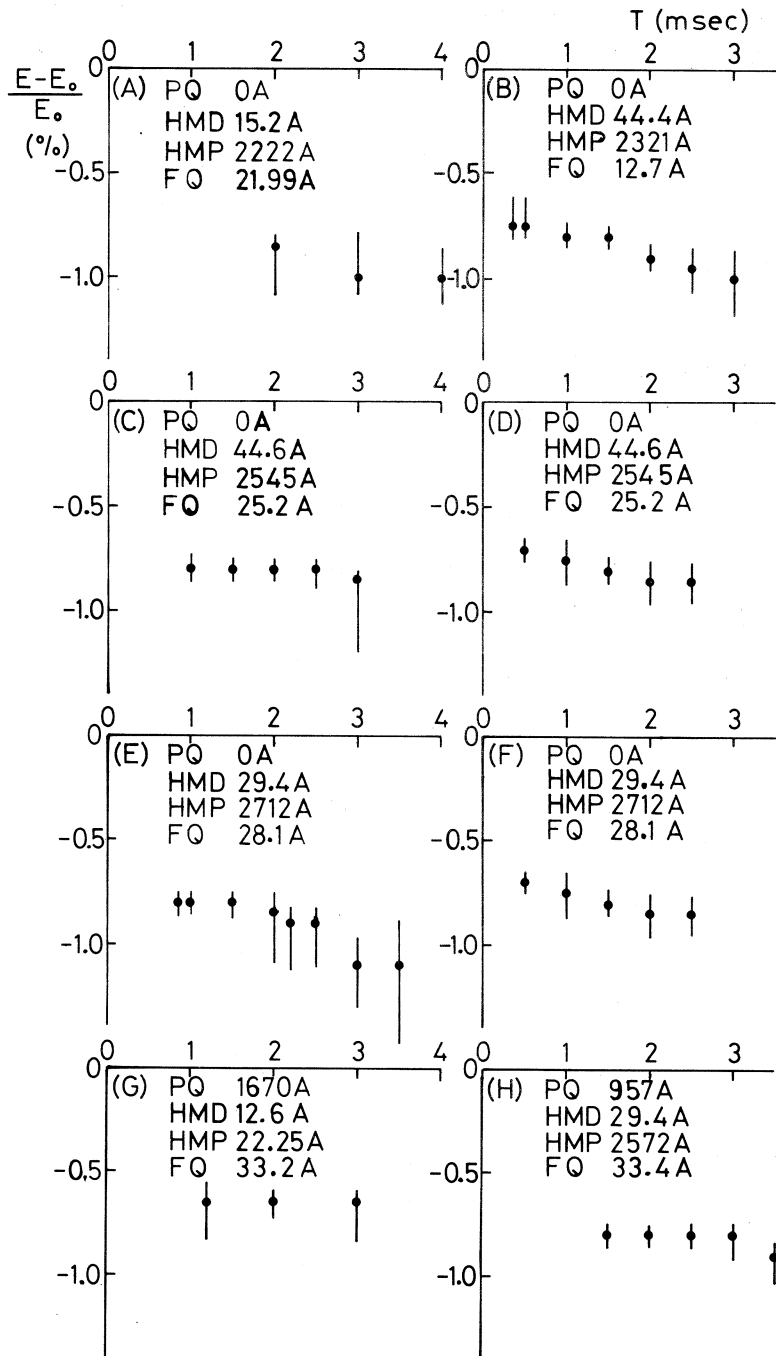
次に，SSTRからのビームのエネルギースペクトルの時間変化について述べる。前回³⁾詳しく説明した様に，ビーム入射時にパルス四極電磁石を励磁させると， $\nu_x - 2\nu_y = -1$ の結合共鳴の為にビームは上下に拡がる。従って現在のところ，ほとんどの場合PQは使わずに運転を行っている。PQを用いずにビームを入射させた場合には，エネルギーの低い入射ビームは位相空間で大きな面積を持ち，入射ビームのエネルギーが高い場合には位相空間での面積は小さくなる。従って，この場合には§3.4で説明した様に初めは高いエネルギーでビームが取り出され，時間が進むに従って取り出しエネルギーは低くなる。第15図に取り出しビームのエネルギー変化の実測例を示した。縦棒は半値幅に対応する。これらの結果は概ね上に述べた傾向を示しているが同一の実験条件でも結果に違いが見られる例もあり，今後，系統的な実験が必要である。ただし，取り出しエネルギーの変動は0.2%程度であり，ほとんどの実験では問題にならないと考えられる。第15図にはPQを励磁した場合の結果も同時に示した。実験例はまだ少ないが，この場合には，取り出しエネルギーの時間変動は見られない。

4.3 エミッタンス

ビームのエミッタンス（ (x, θ) 位相空間に於けるビームの大きさ）はビームの性能に關しての重要な量である。現在のところSSTRはエミッタンス・モニターを備えていないので精度の良い測定は行われていない。SSTR内のMgO製のビーム・モニターで測定したビームの大きさから概算した結果では，PQを励磁しない時で $5\pi \text{ mm} \cdot \text{mr}$ 程度と考えられるが，実験の精度が悪く，詳しい事は今後の測定を待たなければならない。

§ 5. ま と め

以上，SSTRの基本設計並びに取り出されたビームの性質について説明した。本文で述べた様に，SSTRは現在，当初の設計条件とは違う条件で運転を行っている為に，必ずしも最適条件で運転しているとは限らない。しかしながら，取り出しビームの性質は一応満足の出来るものであり，又，現在リングの諸特性のデータ集積も進んでいるので，今後の性能改善も期待出来る。



第15図 取り出しビームのエネルギー及びエネルギー幅の時間変化。($E_0 = 130\text{MeV}$) 縦棒は半値幅を示す。PQ を励磁しない時は、時間と共に取り出しエネルギーが下がるが、PQ を励磁した場合は、取り出しビームのエネルギーは変動しない。

SSTR の設計の段階で、種々御指導を頂き、貴重なプログラム等を提供して頂いた高エネルギー物理学研究所加速器系の方々、それらのプログラムの整備を担当していただいた中田章氏（現在関商事株式会社）に厚く感謝致します。SSTR は三菱電機株式会社を始めとする多くの方々の協力を得て完成させる事が出来ました。ここに深く感謝致します。又、エネルギースペクトの測定の際に協力していただいた電子散乱グループ、光子標識化装置グループの皆様にお礼申し上げます。

附録 1. ベータトロン振動数の計算方法

中心軌道に添った 2 点 s_0, s_1 における粒子軌道の偏位 $x(s_0), x(s_1)$, 偏角 $\theta(s_0), \theta(s_1)$, エネルギー偏差 δ の間には 1 次近似の範囲では

$$\begin{pmatrix} x(s_1) \\ \theta(s_1) \\ \delta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (x|x) & (x|\theta) & (x|\delta) \\ (\theta|x) & (\theta|\theta) & (\theta|\delta) \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x(s_0) \\ \theta(s_0) \\ \delta \end{pmatrix} \quad (1-1)$$

の関係がある。以後の計算に必要な行列要素を以下に示す。

- 自由空間（長さ l ）

$$\begin{pmatrix} 1, & l, & 0 \\ 0, & 1, & 0 \\ 0, & 0, & 1 \end{pmatrix} \quad \text{水平方向}(x), \text{鉛直方向}(y) \text{共同じ。}$$

- 扇形電磁石（偏向角 α ラジアン，曲率半径 ρ ）

$$\begin{array}{cc} x \text{ 方向} & y \text{ 方向} \\ \begin{pmatrix} \cos \alpha & , & \rho \sin \alpha, & \rho(1 - \cos \alpha) \\ -\frac{1}{\rho} \sin \alpha, & \cos \alpha, & \sin \alpha \\ 0 & , & 0, & 1 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 1, & \rho \alpha, & 0 \\ 0, & 1, & 0 \\ 0, & 0, & 1 \end{pmatrix} \end{array}$$

- 磁場端（入射（又は出射）角 β ラジアン，電磁石の曲率半径 ρ ）

$$\begin{array}{cc} x \text{ 方向} & y \text{ 方向} \\ \begin{pmatrix} 1 & , & 0, & 0 \\ \frac{1}{\rho} \tan \beta, & 1, & 0 \\ 0 & , & 0, & 1 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 1 & , & 0, & 0 \\ -\frac{1}{\rho} \tan \beta, & 1, & 0 \\ 0 & , & 0, & 1 \end{pmatrix} \end{array}$$

中心エネルギーに等しいエネルギー（ $\delta=0$ ）の粒子を考える場合には δ に関する部分は計算する必要がない。

今、2つの偏向電磁石の中間点から次の中間点までを1単位とすると、この1単位の行列要素は

$$\begin{aligned} (M_x)_1 &= \begin{pmatrix} 1 & l \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \frac{1}{\rho} \tan\beta & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos\alpha & \rho \sin\alpha \\ -\frac{1}{\rho} \sin\alpha & \cos\alpha \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \frac{1}{\rho} \tan\beta & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & l \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \\ (M_y)_1 &= \begin{pmatrix} 1 & l \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{\rho} \tan\beta & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & \rho\alpha \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{\rho} \tan\beta & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & l \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (1-2)$$

となる。SSTRリングは8回回転対称の形であるからリング1周のベータトロン振動数を水平方向 ν_x 、鉛直方向 ν_y とすれば、(1-2)式の行列要素と ν_x 、 ν_y の間には

$$\begin{aligned} (M_x)_1 &= \begin{pmatrix} \cos \frac{2\pi\nu_x}{8} & \beta_x \sin \frac{2\pi\nu_x}{8} \\ -\frac{1}{\beta_x} \sin \frac{2\pi\nu_x}{8} & \cos \frac{2\pi\nu_x}{8} \end{pmatrix} \\ (M_y)_1 &= \begin{pmatrix} \cos \frac{2\pi\nu_y}{8} & \beta_y \sin \frac{2\pi\nu_y}{8} \\ -\frac{1}{\beta_y} \sin \frac{2\pi\nu_y}{8} & \cos \frac{2\pi\nu_y}{8} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (1-3)$$

の関係がある。ただし、 β_x 、 β_y は1単位の始点(終点でも同じ)のベータ関数である。

(1-2)式と(1-3)式を等しいと置くと

$$\begin{aligned} \cos \frac{2\pi\nu_x}{8} &= \cos\alpha + \sin\alpha \tan\beta + \frac{l}{\rho} (-\sin\alpha + 2\cos\alpha \tan\beta + \sin\alpha \tan^2\beta) \\ \cos \frac{2\pi\nu_y}{8} &= (1 - \alpha \tan\beta) + \frac{l}{\rho} (\alpha \tan\beta - 2) \tan\beta \end{aligned} \quad (1-4)$$

が得られる。

ここで、 $\nu_x = 1.3$ 、 $\nu_y = 1.2$ として解けば

$$\beta = 0.185545 \quad (= 10.631^\circ)$$

$$\frac{l}{\rho} = 0.761475 \quad (\rho = 0.8 \text{ m とすれば } l = 0.6092 \text{ m})$$

となる。

上の計算では、電磁石の中では何処でも同じ磁場であり磁場端で急に磁場が零になる sharp cut off 近似を用いているが、実際の磁石の場合には磁石の外部にまで漏洩磁場が広がっている。この場合には、y方向の磁場端の行列が

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{\rho} \tan \beta + \frac{D(1 + \sin^2 \beta)}{\rho^2 \cos^3 \beta} K_1 & 1 \end{pmatrix} \quad (1-5)$$

となる。ただし、 D は電磁石の磁極間隔、 K_1 は漏洩磁場の広がり具合を表わす量で

$$K_1 = \int_{L_1}^{+\infty} \frac{B_y (B_0 - B_y)}{D B_0^2} ds \quad (1-6)$$

によって計算される。（ L_1 は磁場内の $B_y = B_0$ となる点）

漏洩磁場を考慮した磁場端の行列を使い、 $K_1 = 0.45$ として前と同様の計算を行うと、 $\beta = 11.565^\circ$ 、 $l = 0.679$ m が得られる。

軌道追跡法による計算では、電磁石の前方（磁場の値が充分零と見なせる点）から電磁石の後方まで、与えられた磁場分布の中を飛行する粒子の軌道を計算機で計算し、始点の (x_0, θ_0) と終点の (x_1, θ_1) を

$$\begin{pmatrix} x_1 \\ \theta_1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & l_1 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} (M_x)_{\text{magnet}} \begin{pmatrix} 1 & l_2 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_0 \\ \theta_0 \end{pmatrix} \quad (1-7)$$

に代入して、実効的な電磁石の行列要素 $(M_x)_{\text{magnet}}$ を求める。（ y 方向も同様）。ここで電磁石の入出射角 β を変化させると、電磁石の行列要素も変化するから、ベータトロン振動数 ν_x, ν_y が要求される値になる様な β と l を求めれば良い。

この様にして最終的な値 $\beta = 11.215^\circ$ 、 $l = 0.6529$ m が得られた。

さて、(1-3)式に現われたベーター関数 β_x, β_y は、リングの中でのビームの大きさを決める重要な量である。つまり、ある点 s における粒子の平衡軌道からの偏位は

$$x(s) = \sqrt{\beta_x(s) \varepsilon_x} \cos(2\pi n \nu_x + \varphi(s)) \quad (1-8)$$

となる（ y 方向も同様）。ここで ε_x はエミッタンスと呼ばれる量で第8図の大きな楕円の面積に対応する。2つの偏向電磁石の中間点に於ける β_x, β_y は(1-3)式から偏向電磁石への入出射角 β と自由空間長 l を求める際に同時に求める事が出来る。この値を $\beta_x(s_0)$ 、 $\beta_y(s_0)$ とする。又、この $\beta_x(s_0)$ は $\alpha_x(s_0)$ 、 $r_x(s_0)$ と共に Twiss 係数という名で呼ばれ、それらの間には $r_x = \frac{1 + \alpha_x^2}{\beta_x}$ の関係がある。（ y 方向に対しても同様の関係が

成り立つ。）ここで、リングの対称点では $\alpha = 0$ となるので、 $r_x(s_0) = \frac{1}{\beta_x(s_0)}$ が成立

し、 $\beta_x(s_0)$ 、 $\beta_y(s_0)$ が求めれば Twiss 係数は全て求まる事になる。任意の点 s_1 での

Twiss 係数は s_0 から s_1 までの行列要素を $\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} (x|x), (x|\theta) \\ (\theta|x), (\theta|\theta) \end{pmatrix}$ と書く

時

$$\begin{pmatrix} \beta(s_1) \\ \alpha(s_1) \\ r(s_1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A^2 & -2AB & B^2 \\ -AC & BC+AD & -BD \\ C^2 & -2CD & D^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \beta(s_0) \\ \alpha(s_0) \\ r(s_0) \end{pmatrix} \quad (1-9)$$

によって求める事が出来る。第4図に示したベータ関数の値はこの様にして求めたものである。

附録2. エネルギー分散関数 (η 関数) とパルス四極電磁石 (PQ) 強度

η 関数は、運動量が中心運動量 p_0 と $\delta \left(\delta = \frac{p-p_0}{p_0} \right)$ だけ違う時のS点における平衡軌道を $x(s)$ とした時、 $x(s) = \eta(s)\delta$ で与えられるから、次の様な計算方法によって求める事が出来る。まず、入射点から始めて、1周して入射点にもどる行列を附録1に示した方法で計算する。今の場合、計算に入ってくる構成要素は8台の電磁石とそれを結ぶ自由空間、それに PQ である。四極電磁石の行列要素は実効長を l 、四極電磁石の強度を $k \left(k^2 = \frac{1}{B_{\rho_0}} \frac{\partial B_y}{\partial x} \right)$ 、

B_{ρ_0} は磁氣的固さ) とすれば、

収束の時

$$\begin{pmatrix} \cos |k|l & , & \frac{1}{k} \sin |k|l & , & 0 \\ -|k| \sin |k|l & , & \cos |k|l & , & 0 \\ 0 & , & 0 & , & 1 \end{pmatrix} \quad (2-1)$$

発散の時

$$\begin{pmatrix} \cosh |k|l & , & \frac{1}{|k|} \sinh |k|l & , & 0 \\ |k| \sinh |k|l & , & \cosh |k|l & , & 0 \\ 0 & , & 0 & , & 1 \end{pmatrix} \quad (2-2)$$

で表わされる。この様にして計算した1周の行列を

$$\begin{pmatrix} (x|x), (x|\theta), (x|\delta) \\ (\theta|x), (\theta|\theta), (\theta|\delta) \\ 0, 0, 1 \end{pmatrix} \quad \text{とすれば}$$

入射点で $\eta=0$ とする為には平衡軌道を求める方程式

$$\begin{pmatrix} x \\ \theta \\ \delta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (x|x), (x|\theta), (x|\delta) \\ (\theta|x), (\theta|\theta), (\theta|\delta) \\ 0, 0, 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ \theta \\ \delta \end{pmatrix} \quad (2-3)$$

で $x=0$ とおき、これが δ の値によらず成立する様な k の値を求めれば良い。(k は行列要素の中に含まれている。) § 2.1 で求めたリングの定数を用いて (2-3) 式を解けば、 $k = 1.6533 \text{ m}^{-1}$ が得られ同時に入射点に於ける平衡軌道の傾きとして $\theta = -0.178 \delta$ の関係が求まる。任意の点 s に於ける η 関数は、入射点 s_0 で ($x=0, \theta = -0.178$) とした時の点 s に於ける偏位 $x(s)$ に等しいから、 s_0 から s までの行列要素を計算し、 $\eta(s) = -0.178(x|\theta) + (x|\delta)$ を求めればよい。

附録 3. クロマティック係数

まず、偏向電磁石 8 台のみによるリングのクロマティック係数を計算する。この場合のクロマティック係数は (1-4) 式を δ で偏微分する事によって簡単に計算出来て、

$$\begin{aligned} \frac{\partial \nu_x}{\partial \delta} &= \frac{4}{\pi} \frac{-\sin \alpha + 2 \cos \alpha \tan \beta + \sin \alpha \tan^2 \beta}{-\sin \left(\frac{2\pi}{8} \nu_x \right)} \frac{\partial \left(\frac{l}{\rho} \right)}{\partial \delta} \\ \frac{\partial \nu_y}{\partial \delta} &= \frac{4}{\pi} \frac{(\alpha \tan \beta - 2) \tan \beta}{-\sin \left(\frac{2\pi}{8} \nu_x \right)} \frac{\partial \left(\frac{l}{\rho} \right)}{\partial \delta} \end{aligned} \quad (3-1)$$

となる。ただし、磁場端に漏洩磁場がある時に $\frac{\partial \nu_y}{\partial \delta}$ を計算する時には (1-4) 式で

$$\tan \beta \longrightarrow \tan \beta - \frac{D(1 + \sin^2 \beta)}{\rho \cos^3 \beta} K_1 \quad (3-2)$$

と置きかえた後で、偏微分を行う必要がある。

ρ (曲率半径) と l (電磁石間距離の半分) は δ によって異なり、

$$\rho = \rho_0 (1 + \delta)$$

$$l = l_0 + \frac{\sin \frac{\alpha}{2} \sin \beta}{\sin \left(\frac{\alpha}{2} - \beta \right)} \rho_0 \delta \quad (3-3)$$

従って,

$$\begin{aligned} \frac{\partial \left(\frac{l}{\rho} \right)}{\partial \delta} &= \frac{1}{\rho} \frac{\partial l}{\partial \delta} - \frac{l}{\rho^2} \frac{\partial \rho}{\partial \delta} \\ &= \frac{\sin \frac{\alpha}{2} \sin \beta}{(1+\delta) \sin \left(\frac{\alpha}{2} - \beta \right)} - \frac{1}{\rho_0 (1+\delta)^2} \left(l_0 + \frac{\sin \frac{\alpha}{2} \sin \beta}{\sin \left(\frac{\alpha}{2} - \beta \right)} \rho_0 \delta \right) \end{aligned} \quad (3-4)$$

が得られ, $\alpha = 45^\circ$, $\beta = 11.215^\circ$, $\rho_0 = 0.8 \text{ m}$, $l_0 = \frac{1.3057}{2} = 0.6529 \text{ m}$, $\nu_x = 1.3$

を用いると, $\delta \approx -0.01$ 付近では

$$\frac{\partial \nu_x}{\partial \delta} = -0.2596$$

この値は SSTR からのビームの取り出しに必要な値の1割にも満たない。

次に四極電磁石のクロマティック係数について考える。thin lens 近似を用いると四極電磁石の中央から始る一周の行列は四極電磁石の焦点距離の逆数を h とすれば

x 方向

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \frac{h}{2} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} (x|x) & (x|\theta) \\ (\theta|x) & (\theta|\theta) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ \frac{h}{2} & 1 \end{pmatrix}$$

y 方向

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{h}{2} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} (y|y) & (y|\varphi) \\ (\varphi|y) & (\varphi|\varphi) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ -\frac{h}{2} & 1 \end{pmatrix}$$

(3-5)

と書ける。

(1-3)式と同様にして

$$\cos 2\pi\nu_x = (x|x) + \frac{h}{2} (x|\theta) = \cos 2\pi\nu_{x_0} + \frac{h\beta_x}{2} \sin 2\pi\nu_{x_0}$$

$$\cos 2\pi\nu_y = (y|y) - \frac{h}{2} (y|\varphi) = \cos 2\pi\nu_{y_0} - \frac{h\beta_y}{2} \sin 2\pi\nu_{y_0} \quad (3-6)$$

従って,

$$\begin{aligned}\frac{\partial \nu_x}{\partial \delta} &= \frac{1}{\sin 2\pi\nu_x} \frac{\partial \nu_{x_0}}{\partial \delta} \left(\sin 2\pi\nu_{x_0} - \frac{h\beta_x}{2} \cos 2\pi\nu_{x_0} \right) \\ \frac{\partial \nu_y}{\partial \delta} &= \frac{1}{\sin 2\pi\nu_y} \frac{\partial \nu_{y_0}}{\partial \delta} \left(\sin 2\pi\nu_{y_0} + \frac{h\beta_y}{2} \cos 2\pi\nu_{y_0} \right)\end{aligned}\quad (3-7)$$

ただし ν_{x_0} , $\frac{\partial \nu_{x_0}}{\partial \delta}$ は, それぞれ四極電磁石がない時のベータトロン振動数及びクロマティック係数 (y 方向についても同様) である。四極電磁石によるベータトロン振動数の変化の小さい ($\nu_x \doteq \nu_{x_0}$, $\nu_y \doteq \nu_{y_0}$) 時, (3-7) 式は

$$\begin{aligned}\frac{\partial \nu_x}{\partial \delta} &= \frac{\partial \nu_{x_0}}{\partial \delta} \left(1 - \frac{h\beta_x}{2} \cot 2\pi\nu_{x_0} \right) \\ \frac{\partial \nu_y}{\partial \delta} &= \frac{\partial \nu_{y_0}}{\partial \delta} \left(1 + \frac{h\beta_y}{2} \cot 2\pi\nu_{y_0} \right)\end{aligned}\quad (3-8)$$

と近似出来る。 h として PQ の値 $h \doteq k^2 l = 0.546 \text{ m}^{-1}$ を代入してみると, 右辺第 2 項目は第 1 項目より 1 桁小さい事が分かる。つまり, 四極電磁石はエネルギーによらずにベータトロン振動数を変化させるのに適しているが, そのクロマティック係数は小さい。

六極電磁石まで含めた詳しい計算は T. Suzuki⁶⁾ によって行われているが, SSTR では軌道追跡法による計算で六極電磁石の最終的な強さを決めた。この計算プログラムでは, 六極電磁石の部分以外は一次の行列で計算される。又, 六極電磁石内での粒子の運動方程式は

$$\begin{aligned}x'' + k_s^3 (x^2 - y^2) &= 0 \\ y'' - 2k_s^3 xy &= 0\end{aligned}\quad (3-9)$$

ただし

$$k_s^3 \equiv \frac{1}{2B\rho_0} \frac{\partial B_y}{\partial x^2} \quad x=y=0 \quad (3-10)$$

で与えられるので六極電磁石入口での (x , $\theta (=x')$), (y , $\varphi (=y')$) から始めて, 順次 (3-8) 式を解いて行けば六極電磁石内での粒子の軌跡が求まる。又, このプログラムでは, シンクロトロン放射によるエネルギー損失の為に, 電子が偏向電磁石を通過する毎に,

$$U = \frac{88.5}{8} E_e^4 (\text{GeV}) / \rho (\text{m}) \quad \text{keV} \quad (3-11)$$

だけエネルギーを失うとして計算している。

参 考 文 献

- 1) 次期加速器研究報告No.1 「150 MeV 電子パルスビームストレッチャー基本設計」
(1980年4月).
- 2) 原子核理学研究施設拡充計画(1981年6月).
- 3) 玉江忠明他:核理研研究報告 **15** (1982) 137.
- 4) 今野 收他:核理研研究報告 **15** (1982) 144.
- 5) 次期加速器研究報告No.5 「150 MeV パルスビームストレッチャー偏向電磁石磁場測定(1)」
(1980年7月).
- 6) T. Suzuki : KEK-74-6.

150 MeV 電子パルスビーム・ストレッチャー (SSTR) の動作試験結果

核理研

吉田克久・今野 収・玉江忠明

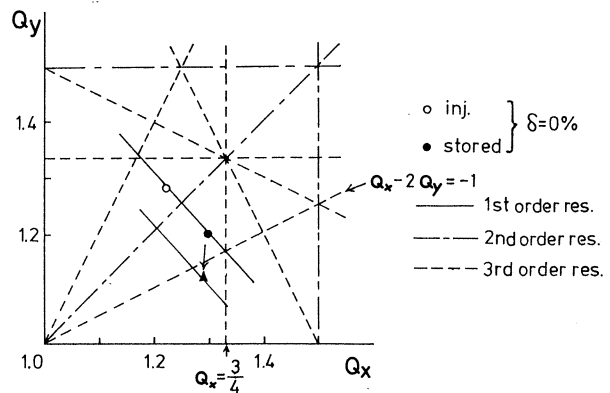
広岡 恵・武藤正勝・菅原真澄

§ 1. はじめに

150 MeV 電子パルスビーム・ストレッチャー (SSTR) の動作試験がリニアックからの $E_e = 130$ MeV, パルス幅 10 ns の電子ビームを用いて昨年末より続けられている (SSTR の機器構成¹⁾ 及び動作原理²⁾ に関しては別の報告を参照)。その結果, これまでに以下の様な事が明らかになった。

① SSTR リング (偏向電磁石にフィールドクランプを取り付けた状態) から取り出される電子ビームの大きさを取り出し用電極 (SEE) の下流のビーム位置測定器 BM 5 を用いて測定した結果, 垂直方向のビーム幅が約 15 mm である事がわかった。蓄積ビームの垂直方向の拡がり は 5 mm 程度であることから, 取り出しビームの幅のこのような増加はビームの水平方向の共鳴を用いた取り出しの時点で起きていると考えられた。垂直方向のビーム幅が拡がる原因としては, 水平方向と垂直方向のベータatron振動の結合共鳴が考えられるがビーム取り出し時に起こりうる結合共鳴としては, $2Q_y - Q_x = 1$ の 3 次の結合共鳴がある。ここで, Q_x, Q_y はそれぞれ水平方向(x)及び垂直方向(y)のベータatron数である。

リングのベータatron数の $Q_x - Q_y$ 平面上の点をリングの動作点と呼ぶ。SSTR の場合には, 動作点はパルス四極電磁石 (PQ) の磁場の時間的变化に従って移動する。また, 蓄積ビームがエネルギー幅を持つ場合には, 六極電磁石 (HMDC) の磁場の為に動作点はエネルギー



第1図 SSTRの動作点。フィールドクランプを取り除いた場合, 動作点が矢印の方向へ移動する。

ごとに異なる位置に移動する。六極電磁石を励磁していない時にもこの様な移動はあるが上で述べたものに比べて小さい²⁾。第1図にSSTRの動作点の計算値を示す。ビーム取り出し時に動作点が $2Q_y - Q_x = 1$ の共鳴線の近傍に来る事がわかる。

そこで我々は、リングの8台の偏向電磁石のフィールドクランプを取り除いて偏向電磁石間の自由空間長を長くする事によりビーム取り出し時の動作点が上に述べた結合共鳴線上から離れた位置に来る様にした。この場合の動作点の移動を計算した結果を第1図に示した。この計算に用いた偏向電磁石間の自由空間長は、電磁石据え付け前にフィールドクランプを取り付けないで測定した磁極端の磁場分布から求めた実効磁場端とフィールドクランプを取り付けた状態での実効磁場端との位置のずれから求めた。その後の動作試験において、取り出しビームの垂直方向の幅がほぼ5 mmまで減少した事が確認された。以上の事に関する詳しい報告はすでに行なわれている³⁾。

② SSTRリングへの電子ビームの入射には最大2%のエネルギー幅を持つビームを入射するために、入射時にPQを励磁してビームの入射効率を高める様に設計されている。この時必要なPQの励磁電流はピーク値で1600 A程度($E_e = 130$ MeV時)であるが、動作試験の結果この設定値まで電流を流すと入射効率がかえって低下する事がわかった。入射効率は、偏向電磁石(M2)により偏向された蓄積ビームからのシンクロトン放射光(SOR)の強度をフォト・センサー(浜松テレビS 1223)を用いて測定することにより相対的に調べた。この様にPQを励磁する事により入射効率が低下するのは、動作点がPQの磁場の減少に伴って2次及び3次の結合共鳴線を横切る際にビームが共鳴の為に垂直方向に拡がってリング内で失われることが原因であると考えられる(第1図参照)。

①, ②での議論は主に、リングの自由空間長などのパラメーターとして設計値を用いた計算に基づいているためそれらの正当性を確かめる必要がある。また、SSTRでは動作点が上に述べた共鳴線上を通過する事が避けられないので共鳴によるビーム幅の増加を小さく抑えるための条件を調べる必要がある。

このために我々はリングのベータatron数及び蓄積ビームの幅をPQの励磁電流を変化させて測定した。同時に、ベータatron数のエネルギー依存性及び四極電磁石(FQ)の励磁電流との関係も調べた。

本報告では、これらの測定結果について述べる。また、2台のキッカー電磁石(KM1, KM2)の磁場の時間的変化を電磁石を通る電子ビームの偏向角を測定して求めたのでその結果もあわせて報告する。

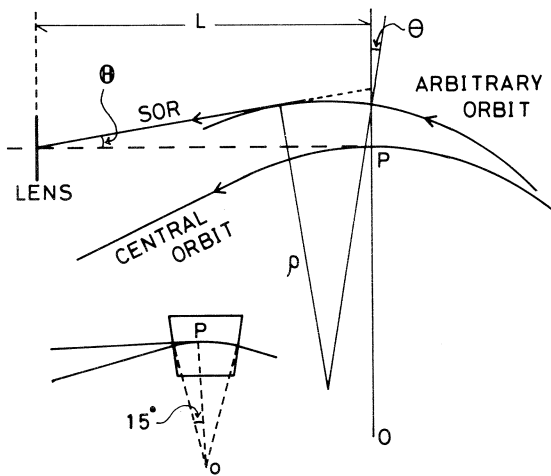
§ 2 ベータトロン数の測定

2.1 測定方法

リングのベータトロン数 (Q_x) は、リング上の一点(P)における各周回ごとの電子の座標 (x_i , ($i = 0, 1, 2, \dots$)) と次の関係がある。

$$x_i = a_x \cos(2\pi Q_x i + \phi_x) + X \quad (1)$$

ここで、 a_x , ϕ_x はそれぞれ P 点における電子のベータトロン振動の振幅及び初期位相で、 X はベータトロン振動の中心の座標である。垂直方向 (y) のベータトロン数 (Q_y) についても同様である。したがって、ベータトロン数を求めるためにはリング上の一点で各周回ごとの電子ビームの位置を測定すればよい。この位置 (x_i , y_i) の測定は各周回ごとのビームが偏向電磁石内で放射する SOR をテレビカメラ (レンズの有効径は 2.3 mm) で観測して行なった。この際、ビームはキッカー電磁石を用いないでリングに入射されるため水平方向のベータトロン振動の振幅 (a_x) は約 5 cm と非常に大きい。(キッカー電磁石を用いて入射した場合の振幅 (a_x) は約 1.5 cm である。) また垂直方向の振幅 (a_y) は、位置 (y_i) の測定を容易にするために約 0.6 cm にした。このためにスティアリングコイル (ST1) を用いて入射ビームに垂直方向の傾きを持たせてリングの水平面に斜めに入射した。(この方法では a_y の値をこれ以上大きくする事は出来なかった。) この様にベータトロン振動の振幅を大きくすると入射ビームはリング内を多くは周回できずに入射用セプタム電磁石 (SM) などに衝突して失われるためにベータトロン数の測定にはほぼ適当な数の SOR スポットが得られた。今回の測定では入射ビームの周回数は最大 8 回であった。(PQ の励磁電流値及びビームエネルギーにより異なる。) 各 SOR スポットの順番は、ビーム位置測定器 (BM4, BM5, BM8) を移動させて周回ビームを次々に遮ることにより調べた。更にこの測定値を設計値を用いた軌道計算と比較したが両者は一致しなかった。軌道計算は 2 次の行列要素までを考慮して行なった。リングのパラメーターを変化させて計算をくり返した結果、この不一致は偏向電磁石間の自由空間長として設計値と異なる値を用いるとかなり改善される事がわかった。現在、十分な一致を与えるパラメーターが求まっていないのでここでは正確な値を示すことは出来ないが偏向電磁石間の自由空間長は設計値 (フィールドクランプを取り除いた場合) より 1 cm 程度長くて、約 129 cm であると思われる。なお、計算の際に変化させたパラメーターは、①偏向電磁石間の自由空間長、②偏向電磁石の磁場端の入射角及び曲率、③電子の運動量偏位、④電子のリングへの入射角である。以上の事から SOR スポットの順番の取り違いのない事がわかったので、ベータトロン数の計算には測定値をそのまま用いた。第 2 図に測定の模式図を示した。SOR の発光位置を確定できないことによる x_i



第2図 電子ビームの位置の測定方法。

$$\theta_{x,y} \leq a_{x,y} / \beta_{x,y}$$

ここで、 a はベータトロン振動の振幅で、今回の測定では $a_x = 50$ mm, $a_y = 6$ mmであった。ベータトロン関数(β)を偏向電磁石のフィールドクランプを取り除いた状態について計算したものを第3図に示す。計算に用いた設計値の誤差による β の変化は、 β_x について0.1%, β_y について2%程度である(第1図参照)。

式(2), (3), (4)からSORスポットの位置の予想される測定誤差を求めると、 $\Delta x \sim 1$ mm, $\Delta y \sim 0.2$ mmとなる。なお、ブラウン管上でのスポットの位置の読み取り誤差は0.5 mm程度である。

2.2 解析方法

(1)式を用いて位置の測定値からベータトロン数(Q)を求めるために次の量を考えて未知数 a , X を消去する。

$$\left. \begin{aligned} \frac{x_i - x_0}{x_1 - x_0} &= \frac{\cos(2\pi Qi + \phi) - \cos(\phi)}{\cos(2\pi Q + \phi) - \cos(\phi)} \\ (i = 2, 3, \dots) \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

左辺を測定値から求めて(5)式を満たす Q , ϕ を計算すると i の値に対して(5)式を満たす ϕ が Q の関数 $f_i(Q)$ として求まる。そこで、異なる i に対する $f_i(Q)$ が1点で交わればその交点における Q の値が求めるベータトロン数、 ϕ が初期位相となる。更に得られた結果のチェックのために a , Q , ϕ , X をパラメーターとして

$$H = \sum_{i=0}^n (a \cos(2\pi Qi + \phi) + X - x_i)^2 \quad (6)$$

の最少2乗を求める方法でもベータトロン数を計算した。この計算例を第1表に示す。この2つの方法で求めた結果は一部を除いてほぼ一致していた(第5図参照)。

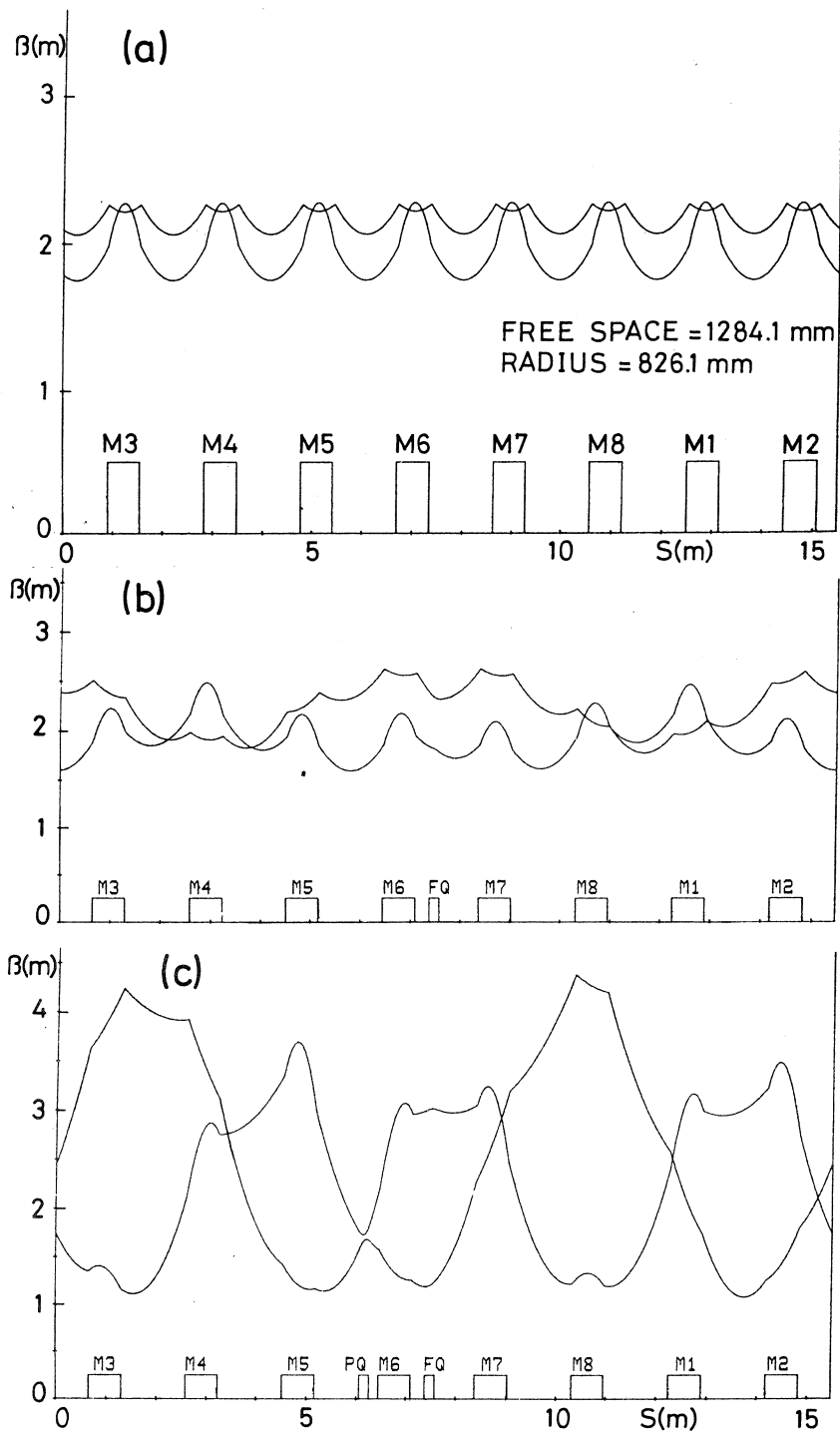
の測定誤差(Δx)は第2図の記号を用いて
 $\Delta x \sim \rho(1/\cos(\theta_x + \theta) - 1)$, $\theta \sim \frac{x}{L}$ (2)

と書ける。また、 y_i の測定誤差(Δy)は偏向電磁石内での垂直方向の軌道の傾きを θ_y とすると

$$\Delta y \sim \rho \cdot \tan(\theta_x + \theta) \cdot \theta_y \quad (3)$$

で表わされる。今回の測定では、 $L = 95$ cm, $\rho = 80$ cmであった。(2), (3)式の θ_x , θ_y の上限は、偏向電磁石(M2)におけるベータトロン関数(β)の値を用いて次の式から概算できる。

$$(4)$$



第3図 リングのベータトロン関数。

(a) 偏向電磁石のみ励磁, (b) FQを励磁 ($I_{FQ} = 18A$), (c) PQ及びFQを励磁 ($I_{FQ} = 18A$, I_{PQ} (ピーク値) = 3760 A)。

第1表 ベータatron数の解析結果。
 (1) $I_{PQ}=0A$, $I_{FQ}=0A$ の場合

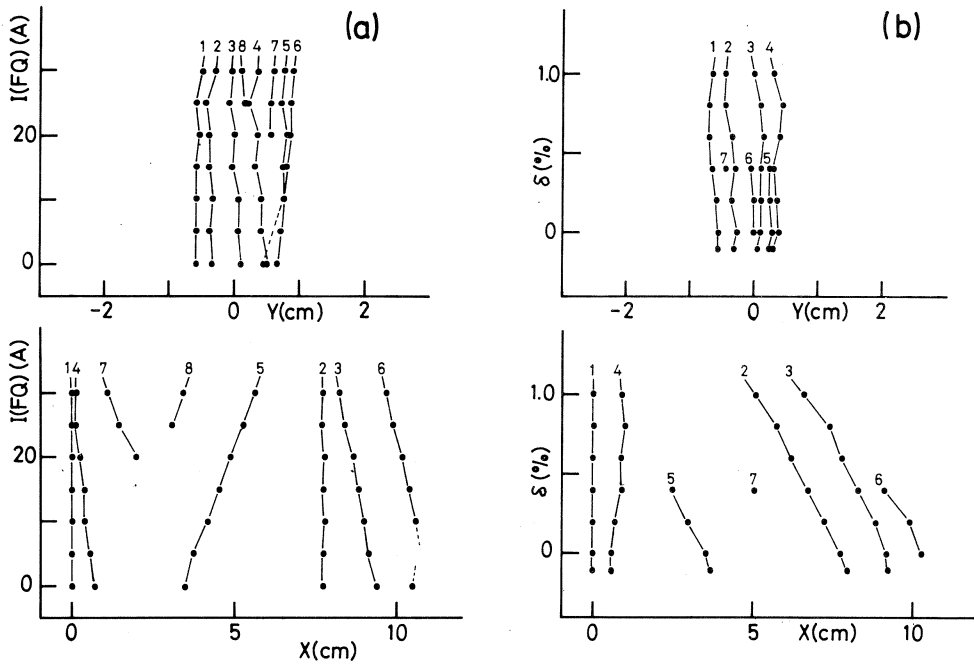
$\delta(\%)$	$a_x(\text{cm})$	Q_x	$\phi_x(\text{radian})$	$X(\text{cm})$	LEAST SQUARE VALUE (cm^2)
-0.1	5.5	1.290	3.403	5.3	0.0002
0.0	5.3	1.290	3.384	5.2	0.060
0.2	5.1	1.288	3.380	4.9	0.015
0.4	4.7	1.282	3.417	4.6	0.023
0.6	4.4	1.285	3.362	4.3	~ 0.0
0.8	4.1	1.282	3.369	4.0	~ 0.0
1.0	3.7	1.282	3.359	3.6	~ 0.0

$\delta(\%)$	$a_y(\text{cm})$	Q_y	$\phi_y(\text{radian})$	$Y(\text{cm})$	LEAST SQUARE VALUE (cm^2)
-0.1	0.4	1.134	3.465	-0.1	0.0001
0.0	0.5	1.131	3.535	-0.1	0.002
0.2	0.5	1.130	3.539	-0.1	0.004
0.6	0.6	1.148	3.446	-0.2	~ 0.0
0.8	0.6	1.158	3.114	-0.1	~ 0.0
1.0	0.5	1.156	3.107	-0.2	~ 0.0

(2) $I_{PQ}=0A$, $\delta=0\%$ の場合。

$I_{FQ}(A)$	$a_x(\text{cm})$	Q_x	$\phi_x(\text{radian})$	$X(\text{cm})$	LEAST SQUARE VALUE (cm^2)
0	5.4	1.290	3.361	5.3	0.037
5	5.4	1.293	3.364	5.2	0.005
10	5.4	1.297	3.352	5.2	0.005
15	5.3	1.300	3.326	5.2	~ 0.0
25	5.2	1.309	3.287	5.1	0.021
30	5.2	1.311	3.297	5.1	0.005

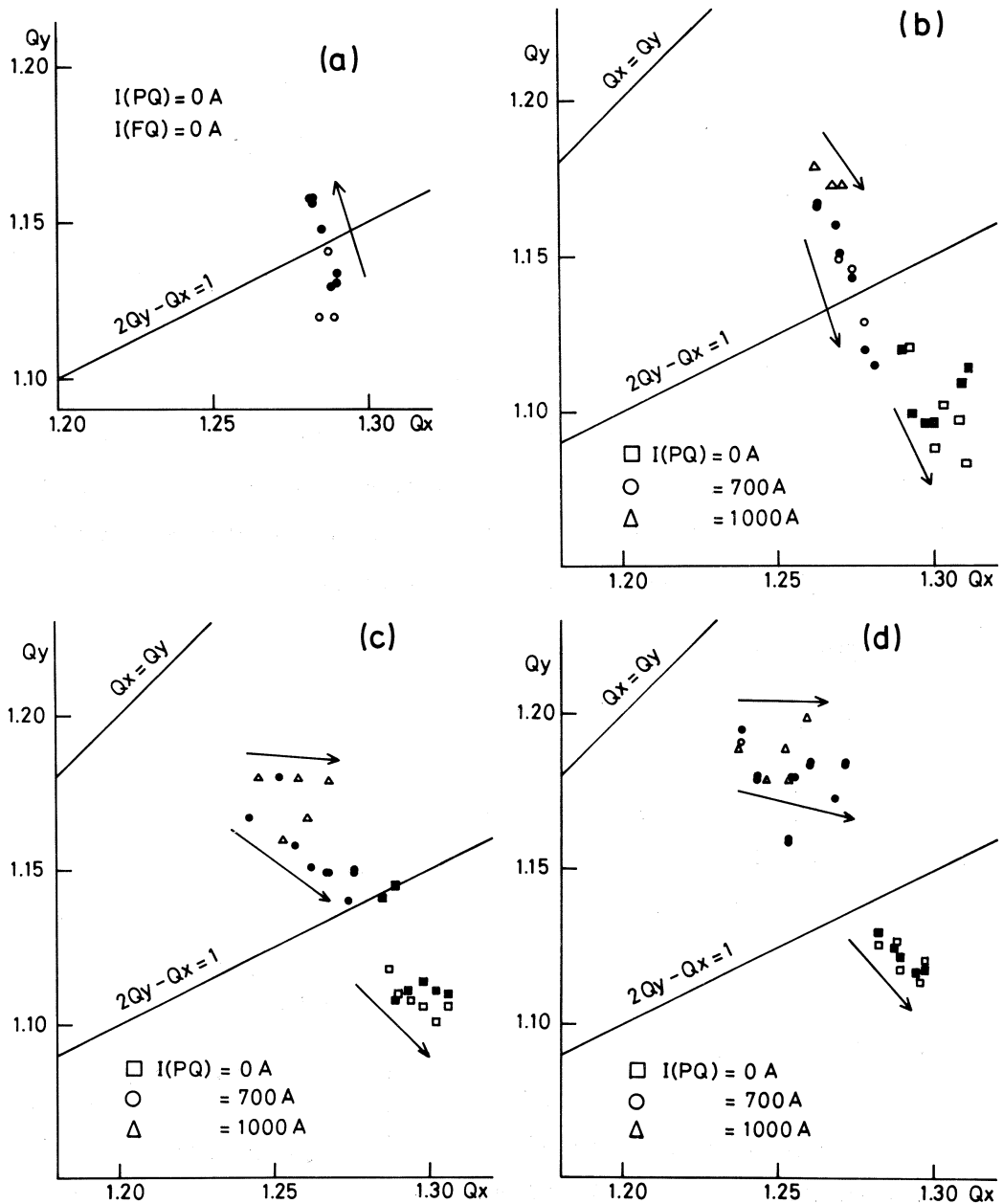
$I_{FQ}(A)$	$a_y(\text{cm})$	Q_y	$\phi_y(\text{radian})$	$Y(\text{cm})$	LEAST SQUARE VALUE (cm^2)
0	0.6	1.120	3.336	0.0	~ 0.0
5	0.7	1.099	3.410	0.1	0.002
10	0.7	1.096	3.457	0.1	0.003
15	0.7	1.096	3.256	0.1	0.008
25	0.7	1.109	2.966	0.1	0.024
30	0.7	1.114	2.926	0.2	0.022



第4図 電子ビームの位置の測定結果。水平方向の位置(x)は入射直後のビームの位置から測った。(a) I_{FQ} を5Aステップで変化させて測定。 $I_{PQ} = 0A$ 。(b)入射ビームのエネルギーを変化させて測定。 $I_{PQ} = 0A$, $I_{FQ} = 0A$ 。

2.3 測定結果

測定はPQ, FQの励磁電流値 I_{PQ} , I_{FQ} 及び入射ビームの運動量偏位(δ)を変化させて行なった。 I_{PQ} の値は最高2500Aまで変化させて測定を行なったが、1000A以上ではSORスポットの数が3個以下であったのでここには示していない。($\delta < -0.1$ の場合も同じ理由で示していない。) SORスポットの位置の測定結果を幾つかの場合について第4図に示す。ベータatron数の測定結果を第5図に示す。図には、 $2Q_y - Q_x = 1$ 及び $Q_x = Q_y$ の共鳴線も示した。測定値の Q_y 方向のばらつきはSORスポットの位置の測定誤差によるものと考えられる。偏向電磁石のみ励磁されている時のベータatron数のエネルギー依存性(クロマティック係数($\partial Q/\partial \delta$))は、 $\partial Q_x/\partial \delta \sim -0.3$, $\partial Q_y/\partial \delta \sim -0.2$ であるが、測定値から求めたクロマティック係数はそれらに較べて Q_x に関して3倍、 Q_y に関して15倍程度大きい。この原因としては、偏向電磁石の磁場端の影響が考えられる。フィールドクランプを取り除いた電磁石の実効磁場端は、その中央部が外側へ伸びていて曲率($1/R$)を持っている。この場合、磁場端は長さ(L)が非常に短い六極電磁石と同様な働きをする。その強さ($k^2 L$)は



第5図 ベータトロンの測定結果。

- (a) 入射ビームのエネルギーを変化させる。エネルギーの増加に伴って矢印の方向へ移動する。
- (b) $\delta = 0\%$ 。 I_{FQ} の変化に伴って矢印の方向へ移動する。
- (c) $\delta = 0.5\%$ ，(b)と同様。
- (d) $\delta = 1.0\%$ ，(b)と同様。
- 黒印は最小二乗法による解析。

$$k_s^2 L = -\frac{h}{2R} \sec^3 \beta \quad (7)$$

で表わされる。ここで h , β はそれぞれ、偏向電磁石の曲率及び入出角である⁴⁾。六極磁場はリングのクロマティック係数を変化させるので、得られた測定結果を磁極端の効果によりある程度説明できると思われる。

四極電磁石の焦点距離を f ($f_y = -f_x$) とすると四極電磁石によるベータトロン数 (Q_x, Q_y) の変化は

$$Q_{x,y} = \frac{1}{2\pi} \cos^{-1} \left[\cos(2\pi Q_{0,x,y}) - \frac{\beta_{0,x,y}}{2f_{x,y}} \sin(2\pi Q_{0,x,y}) \right] \quad (8)$$

で与えられる²⁾。ここで、 Q_0 , β_0 はそれぞれ電磁石を励磁する前のベータトロン数及び電磁石の位置におけるベータトロン関数である。FQは水平方向(x)に対して収束 ($f_x > 0$)、PQは発散 ($f_x < 0$) であるから、測定されたFQ及びPQによる動作点の移動方向と一致する。

四極電磁石が励磁されている時のリングのクロマティック係数は

$$\begin{aligned} \frac{\partial Q_x}{\partial \delta} &= -\frac{R\epsilon}{2} \langle (hB_y + g) \beta_x \rangle \\ \frac{\partial Q_y}{\partial \delta} &= \frac{R\epsilon}{2} \langle g \beta_y \rangle \end{aligned} \quad (9)$$

$$g = \frac{\partial B_y}{\partial x}, \quad \epsilon = \frac{e}{pc}, \quad R = \frac{L}{2\pi}$$

で表わされる⁵⁾。ここで、

B_y : リングの垂直方向の磁場分布

p : 電子の運動量

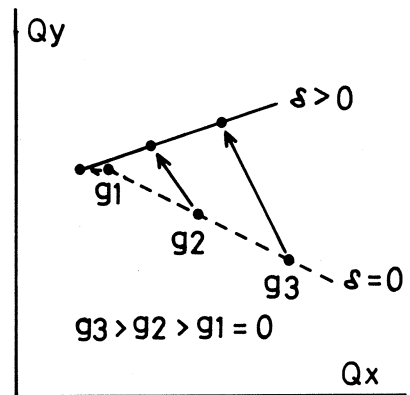
L : リングの周長

h : 中心軌道の曲率

である。また $\langle \rangle$ はリング一周にわたる平均値を表わす。四極電磁石の強さは g で表わされる。

(9)式より $\Delta Q_y / \Delta Q_x < 0$ であり、動作点の移動量は四極電磁石が強いほど大きいことがわかる。(第6図参照) 測定されたクロマティック係数と四極電磁石の励磁電流との関係は定性的に計算と一致している。

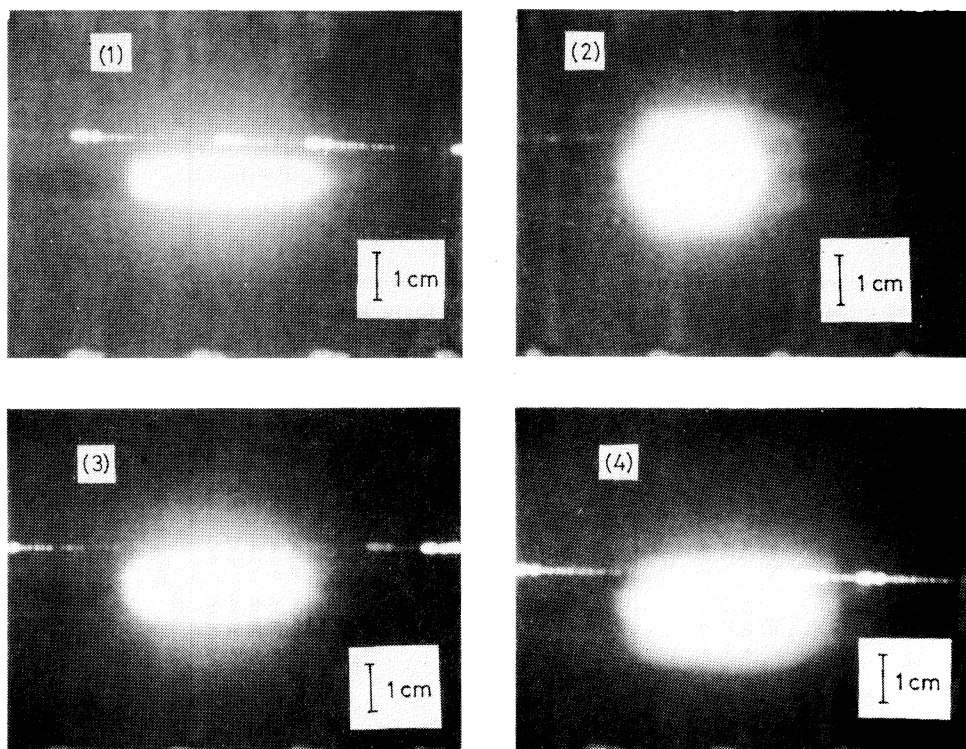
以上の事から、測定されたベータトロン数はリングの状態をある程度調べることの出来る精度で求められたと思われる。



第6図 四極電磁石によるクロマティック係数の変化。

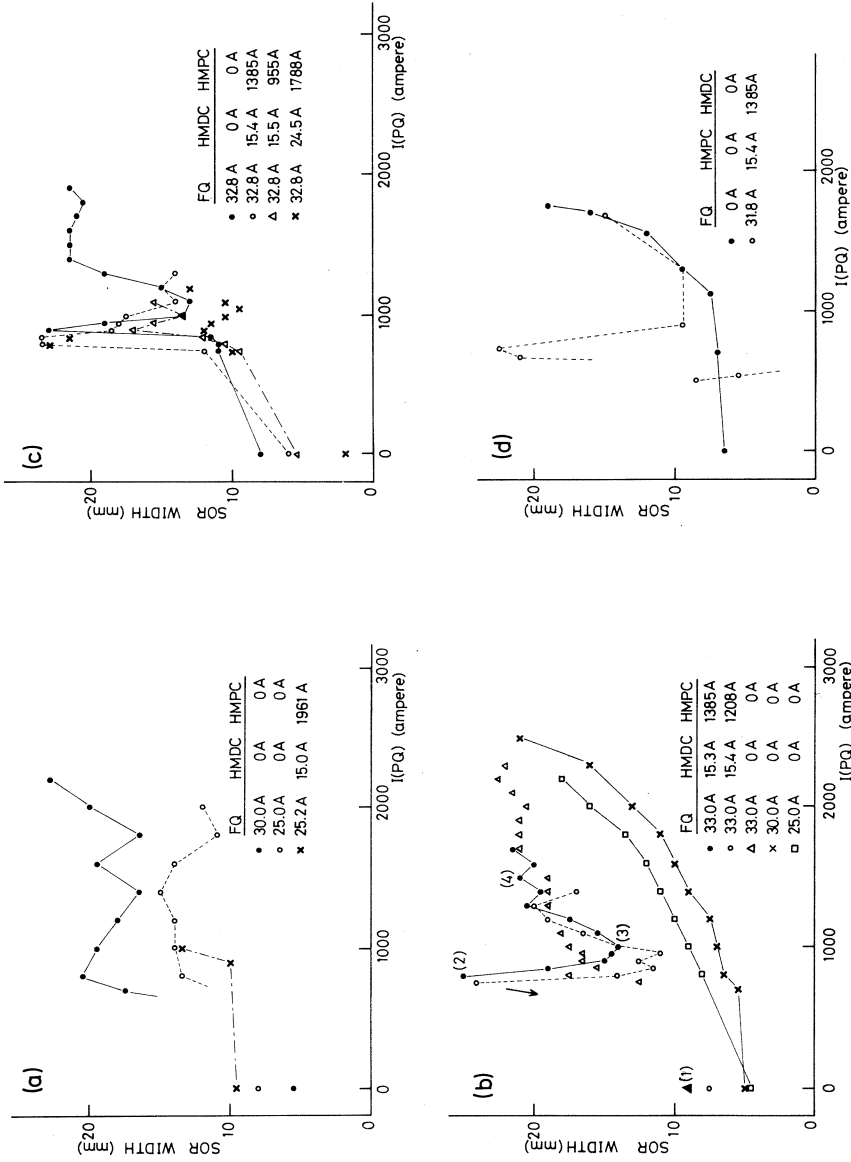
§ 3 蓄積ビームの垂直方向の幅の測定

蓄積ビームの垂直方向の幅の測定は § 2 で述べた SOR スポットの位置の測定と同様な方法で行なった。ただし、この測定の際には入射時に2台のキッカー電磁石 (KMI, KM2) を励磁してあるため電子ビームはリングをほぼ数万回周回する。このためビームからの各周回ごとの SOR が多数観測されるのでこれから蓄積ビームの大きさが測定できる。フォト・センサーによる SOR の強度の測定によると、テレビカメラには入射後約 2msec の間観測可能な強度の光が入っている。BM5 を用いて中心軌道より内側を周回する低いエネルギーのビームを遮って入射



第7図 観測されたSORの形状。第8図(b)参照。左側がリングの外側。

からあまり時間の経過していないビームのみを観測してSORの水平方向の幅がこの様な低いエネルギーのビームからのSORによりリング内側に広がっている事が確認された。したがって、入射直後のビームの垂直方向の幅の測定には、観測されたSORのうちリングの外側の部分を用いなければならない。観測されたSORの例を第7図に示す。第8図に蓄積ビームの垂直方向の幅とPQの励磁電流 (I_{PQ}) の関係を示す。ただし第8図に示した値はSORの最大幅である。また、図の(d)には(a)~(c)と異なる実験日に行なった測定の結果を示した。各測定時の電磁石の励磁電流値はある程度任意的な値である。 $I_{PQ} = 800$ A 附近で垂直方向のベータatron振動

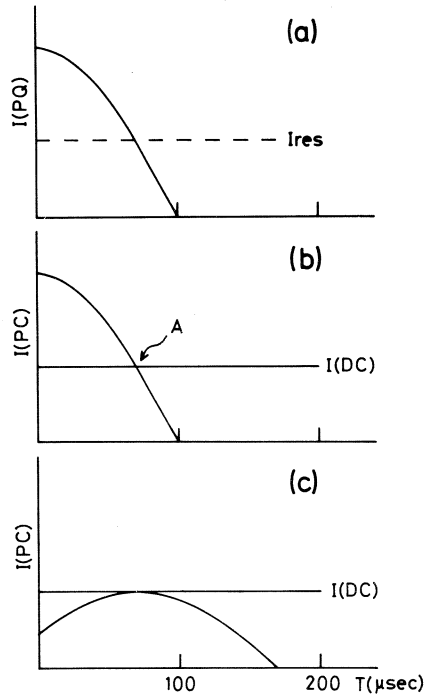


第8図 蓄積ビームの垂直方向の幅のPQによる変化。

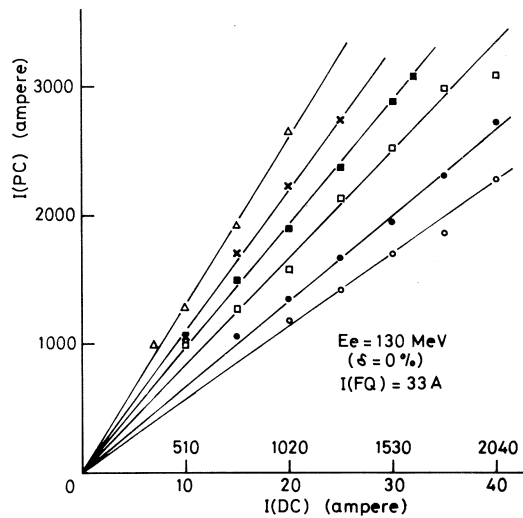
- (a) $\delta = 0.46\%$
- (b) $\delta = 0\%$, 番号を付した黒丸で示した状態が第7図に示されている。
- (c) $\delta = -0.54\%$
- (d) $\delta = 0\%$

に共鳴が起こって垂直方向のビーム幅が広がっている。この共鳴は、六極電磁石 (HMDC, HMPC) が励磁されている場合に強く起きていることがわかる。§2 で述べたベータトロンの測定から、 $I_{PQ} = 800$ A の時動作点が $2Q_y - Q_x = 1$ の 3 次の共鳴線の近傍にあることがわかる。したがって、この共鳴はリングの動作点が $2Q_y - Q_x = 1$ の共鳴線上にある時点で主に六極電磁石の非線型磁場により起こる結合共鳴であると考えられる。

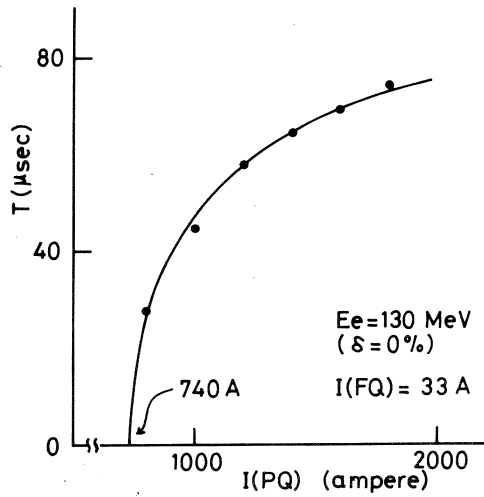
HMPC は入射から $100 \mu\text{sec}$ の間励磁されるパルス電磁石で励磁電流は余弦波的に減少する。SSTR はこの磁場により直流電磁石 HMDC の磁場を入射時のみ打ち消す様に設計されている。上で述べた様な共鳴が起こるのは、この磁場の打ち消しが動作点が共鳴線上にある時点で効果的に行われていないためであると考えられる。第 9 図に PQ 及び HMPC の励磁のタイミングを示す。PQ の励磁電流値 I_{PQ} が I_{RES} の時リングの動作点が共鳴線に来る。(第 9 図(a)) この時、六極電磁石の磁場の打ち消しが行なわれるためには第 9 図(b) の様に HMPC を励磁する必要がある。(HMPC の励磁のタイミングを PQ のタイミングとずらせることも考えられるが今回の測定では行なわなかった。) 動作点が 3 次の共鳴線上にある時に効果的な磁場の打ち消しが行なわれるために必要な HMDC 及び HMPC の電流値 I_{DC} , I_{PC} (ピーク値) の関係を調べるために蓄積ビームの垂直方向の幅が最小になる I_{DC} と I_{PC} の値を $\delta = 0\%$,



第 9 図 PQ 及び HMPC の励磁のタイミング



第 10 図 蓄積ビームの縦幅を最小にする HMDC と HMPC の励磁電流の関係。横軸の上段はアンペアターンの値を表わす。



第11図 動作点が3次の共鳴線を通過する時刻。

以上の結果から、 $I_{PQ} = 800$ A 附近で起こるビーム幅の垂直方向の増加は $2Q_y - Q_x = 1$ の3次の共鳴が(主に六極電磁石の)六極磁場により引き起こされるためであることが確かめられた。また、 $\delta = 0\%$ 、 $I_{FQ} = 33$ A の場合には $I_{PQ} = 740$ A の時に動作点が共鳴線上にある事がわかった。

SORの縦幅が I_{PQ} (ピーク値) が1000A附近において極少となるのはこの時六極電磁石の磁場の打ち消しが最も効果的に行なわれているためで、 I_{PQ} (ピーク値) が更に高くなると再び六極磁場の打ち消しが不完全になり共鳴が起きていると考えられる。(第8図参照)六極電磁石が励磁されていない場合にも I_{PQ} の増加に伴ってSOR縦幅が増加している事から、観測されたSORの縦幅の増加がすべて六極電磁石の磁場により引き起こされた3次の結合共鳴によるものではないことがわかる。他の原因としては、

- (1) 偏向電磁石及び四極電磁石の磁場の高次の成分による2次及び3次の結合共鳴が起きている。
- (2) 中心軌道とPQの軸が一致していないために入射ビームがセプタム電磁石(SM)で散乱されている。
- (3) PQの強さの変化に伴うリングのTwiss係数²⁾の変化により蓄積ビームのエミッタンスが大きくなっている。

などが考えられるが今回の測定ではそれらを確認することはできなかった。

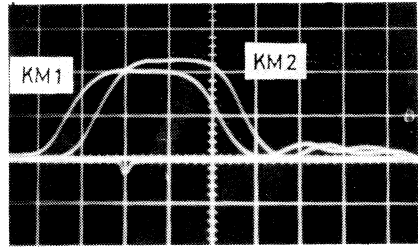
FQ = 33 Aの場合に幾つかの I_{PQ} について測定した。測定結果を第10図に示す。PQの励磁電流のピーク値を変化させると動作点が共鳴線を通過する時刻が変化するためにその時磁場が打ち消されるためにはHMP Cのピーク電流値も変化しなければならない(第9図a, b参照)。

第11図の直線の傾きから第9図bに示したA点の時刻を計算した結果を第11図に示す。実線は、 $I_{RES} = 740$ Aとした時にPQの励磁電流が I_{RES} まで低下する時間を計算したもので、両者は良く一致している。

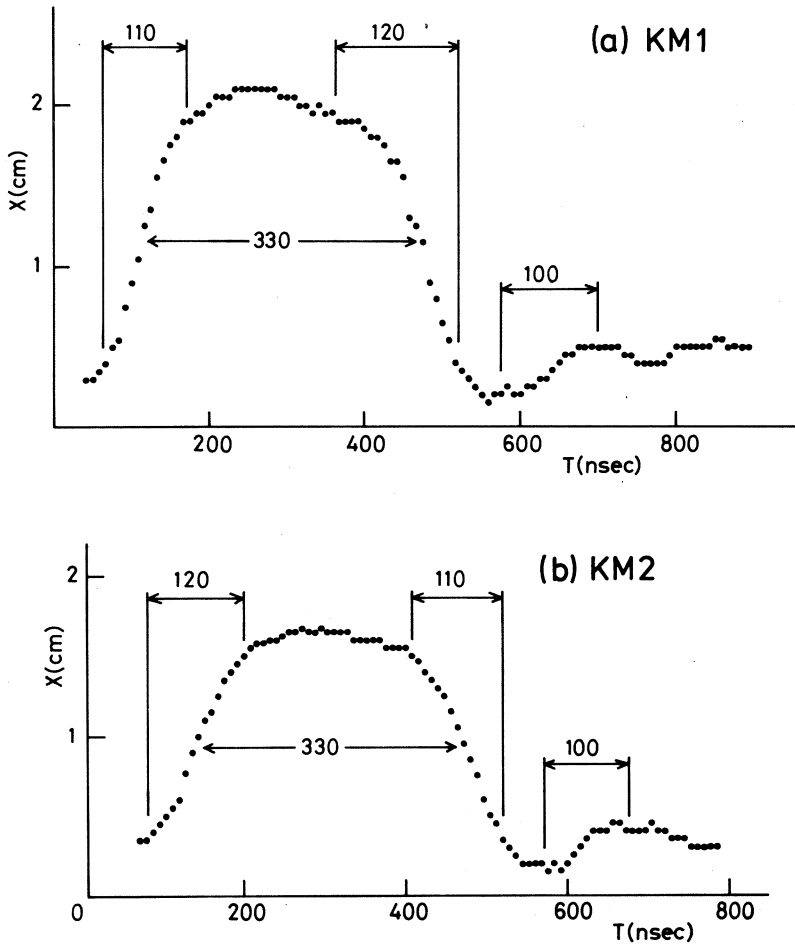
§ 4 キッカー電磁石の磁場の時間的変化の測定

4.1 測定の方法

キッカー電磁石 (KM1, KM2) は偏向角が約20 mr, 実長が20cmで入射の前後 100 nsec の間励磁されるパルス電磁石である。これまでこれらの電磁石の磁場の時間的変化は励磁電流の時間的変化をコアモニターで測定する事により調べていたが, 電磁石内に励磁されている磁場の時間的な変化が



第12図 キッカー電磁石の励磁電流の時間的変化。100 nsec/div。



第13図 キッカー電磁石の磁場の時間的変化。励磁電流の立ち上がり, 立ち下がり時間及びパルス幅 (nsec) を同時に示した。

この励磁電流の変化と一致しているかどうかは調べられていなかった。そこで入射ビームのキッカー電磁石による偏向角を測定する事により磁場の時間的変化を調べた。

4.2 測定方法及び結果

キッカー電磁石を通過する電子はその運動方向が $\Delta\theta$ ($\sim 20\text{mr}$) だけ変化するがその座標 x はほとんど変化しない。したがって、キッカー電磁石に座標 (x_0) 、傾き (θ_0) で入射した電子の電磁石通過後の座標 x は

$$x = (x|x)x_0 + (x|\theta)\theta_0 + (x|\theta)\Delta\theta \quad (10)$$

で表わされる。ここで $(x|x)$ 、 $(x|\theta)$ は電磁石出口から観測点までの転送行列要素である。あるエネルギーの電子に対する $\Delta\theta$ の値は電磁石の磁場に比例するから電磁石を通過後の電子の位置を測定すれば(10)式からその磁場の強さがわかる。位置の測定は BM5 を用いて行なった。また、電磁石を励磁するタイミングを約 8 nsec ずつずらせることにより電子が電磁石を通過する時刻における励磁電流値を変化させた。第12図にコアモニターからの電圧波形を示す。第13図に測定されたビームの位置の時間的変化を示す。励磁電流と磁場の時間的変化の割合はほぼ一致している事がわかる。

§ 5 ま と め

電子ビームからの SOR を用いて SSSTR の動作試験を行なった。その結果、 $2Q_y - Q_x = 1$ の 3 次の結合共鳴が主に六極電磁石の磁場により引き起こされている事が明らかになり、その磁場の打ち消しの為に必要な条件が運動量偏位が零の電子ビームに対して求められた。また、ビームの縦幅の増加の原因が上に述べたものだけではない事も明らかになったがそれ以上の事は今後の問題点として残っている。キッカー電磁石の磁場の時間的変化を測定した結果、励磁電流の時間的な変化と良く一致している事が確認された。

参 考 文 献

- (1) 今野 收他：核理研研究報告 **15** (1982) 144.
- (2) 玉江忠明他：核理研研究報告 **15** (1982)
- (3) 玉江忠明他：核理研研究報告 **15** (1982) 137.
- (4) SLAC REPORT No. 75 (1972).
- (5) T. SUZUKI : "Tune Shifts of Betatron Oscillation and Their Correction in the Synchrotron", KEK-74-6.

150 MeV 光子標識装置の製作

核理研, 教養部* ; メルボルン大**

藤井芳昭・守 和彦・寺沢辰生・

玉江忠明・斎藤二郎・小山田正幸

菅原真澄・庄田勝房・鳥塚賀治

前田茂和*・宮瀬晴久*

P. Harty** , M. N. Thompson**

§ 1. 序

我々は, 1981年夏より光子標識装置の製作を開始し, 本年2月よりその試験を開始した。その結果, 概要において期待した性能を示した。

ここでは, 光子標識装置及び検出器系についてその概略を示すとともに, 試験中に生じた問題点及びその対策について報告する。

§ 2. 原理

電子線を輻射ターゲットに入射させると, 電子は制動輻射により γ 線を放出し, 電子はその分エネルギーを失なう。この輻射は鋭く 0° 方向に放射される。このため, いろいろなエネルギーの電子及び γ 線がビームコース上を飛来する。これらを次段の分析電磁石で選別する。

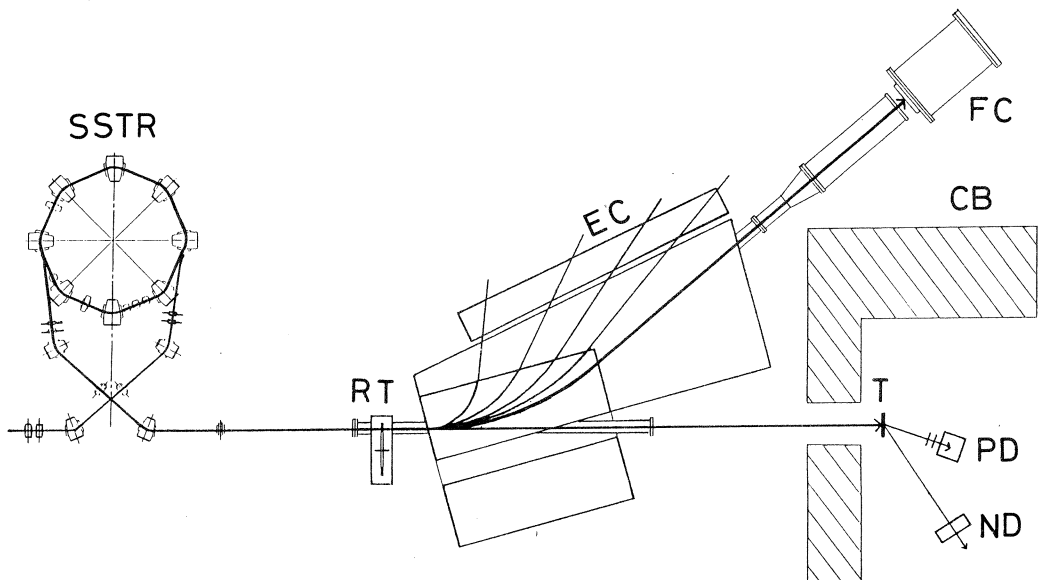
分析電磁石に入射した混合ビームのうち, 電子はその運動量によって振り分けられ, 隣接して置かれた電子検出器で検出されそのエネルギーが決定される。

γ 線は直進し, 電磁石の後方に置かれた反応ターゲットを照射する。反応により放出された荷電粒子や中性子は, 陽子検出器及び中性子検出器で測定される。

この際, 電子検出器と陽子(中性子)検出器とのあいだで同時計数をとることにより, どの電子が反応をひきおこした γ 線を輻射したのかを同定することができる。これにより, 反応をひきおこした γ 線のエネルギーが決定できる。これが γ 線の標識化である。

§ 3. 光子標識装置の概略

入射電子線は, パルスビームストレッチャー¹⁾からの連続ビームで, 最大エネルギーは150 MeVである。これまでの試験におけるビーム条件は, デューティファクター30%, 入射電子エ



第1図 光子標識装置の配置の全体図。寸法は再現していない。

SSTR：パルスビームストレッチャー， EC：電子検出器，
 FC：ファラデーカップ， PD：陽子検出器， ND：中性子検出器，
 RT：輻射ターゲット， T：反応ターゲット， CB：コンクリートブロック。

エネルギー130 MeV，電流 ~ 10 nAである。

以下，装置の各部について説明する。

3.1 標識電磁石

γ 線と電子の混合ビームを分析する電磁石で，真空箱と一体をなしている。その概略を第2図に，その主な仕様を第1表に示す。

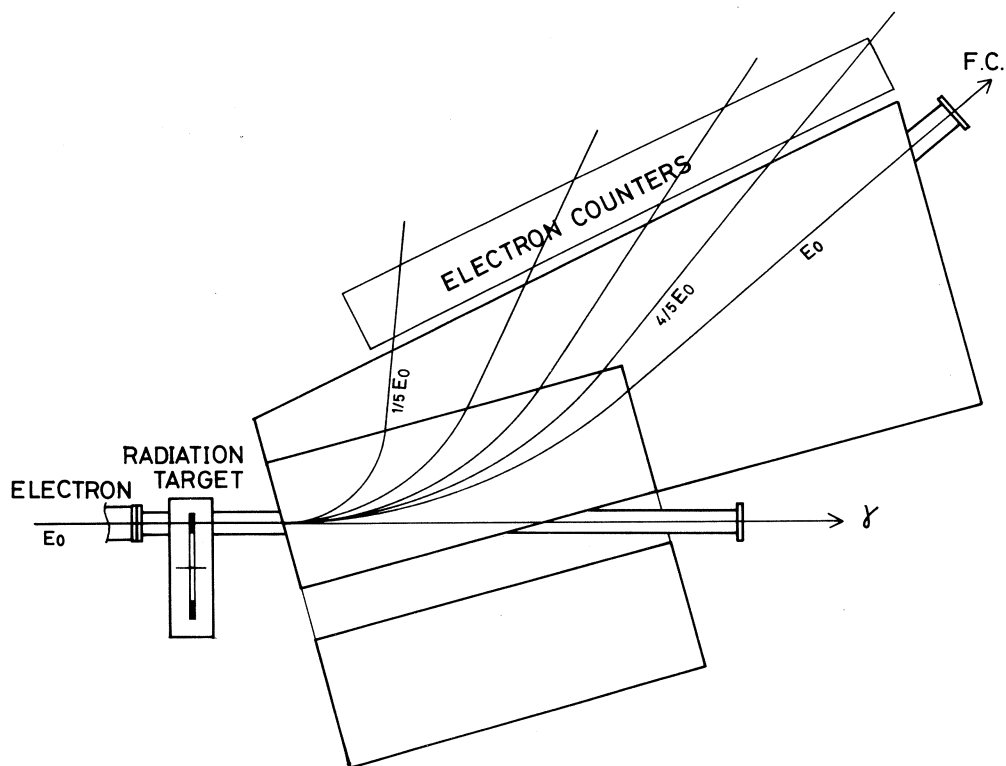
電子の運動量の分析範囲は，入射電子エネルギーの1/5から4/5までの60%である。通常は150 MeVの入射電子エネ

ルギーで実験を行なうから，30 MeVから120 MeVまでの電子が分析されて，後述の電子検出器に入射する。したがって，これらの電子の放出した，30 MeVから120 MeVまでの γ 線が標識化される。

大部分の，輻射を放出しなかった電子はダクトを通してファラデーカップに導びかれる。

第1表 光子標識電磁石の仕様。

形 状	コ の 字 型
磁 極 間 隔	50 mm
磁 極 幅	200 mm
磁 極 長	647 mm
最 大 磁 場	7 kG
最 大 電 流	140 A



第2図 光子標識電磁石の概略。

輻射ターゲットは1/1000 輻射距離の厚さの金箔である。駆動装置は回転式で、4枚のターゲットを装着できる。

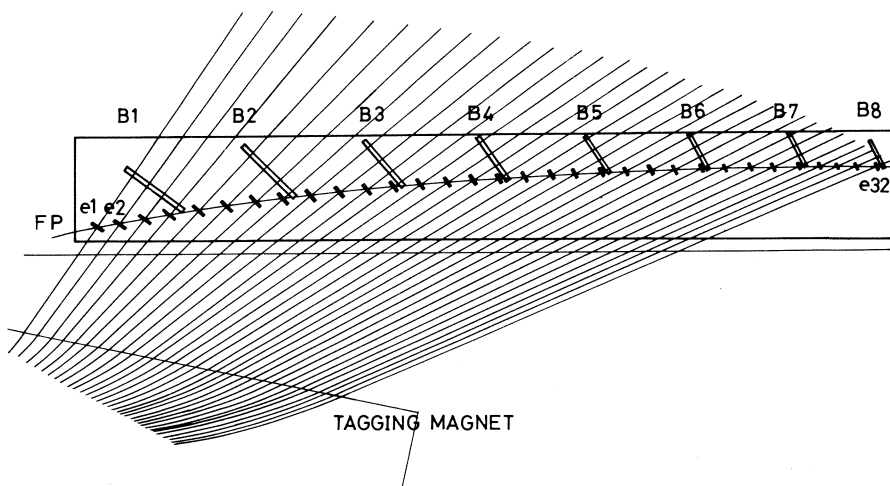
輻射された γ 線はダクトを通して電磁石外へ導びかれ、下流に置かれた反応ターゲットを照射する。

3.2 電子検出器系

電子検出器系は、標識電磁石の焦点面に配置された32個の電子検出器と、その後方に置かれた8個のバックアップ検出器から構成される。その配置を第3図に示す。

電子検出器は厚さ5mm、高さ100mmのプラスチックシンチレータで、その幅はチャンネルにより異なっている。これは、すべてのチャンネルが等しいエネルギー幅を覆うようにするためである。

バックアップ検出器は厚さ10mmのプラスチックシンチレータで、各々4チャンネルの電子検出器をカバーする。電子検出器とバックアップ検出器の同時計数をとることにより、 γ 線などのバックグラウンドを低減する。



第3図 検出器列の配置図。
e1～e32：電子検出器，B1～B8：バックアップ検出器，FP：焦点面。
実線は各電子検出器に入射する電子の軌道である。

3.3 反応粒子検出器

3.3.1 陽子検出器

陽子検出器は、2層の ΔE 検出器と1個の E 検出器から構成される。これが、第4図に示すように6台設置される。

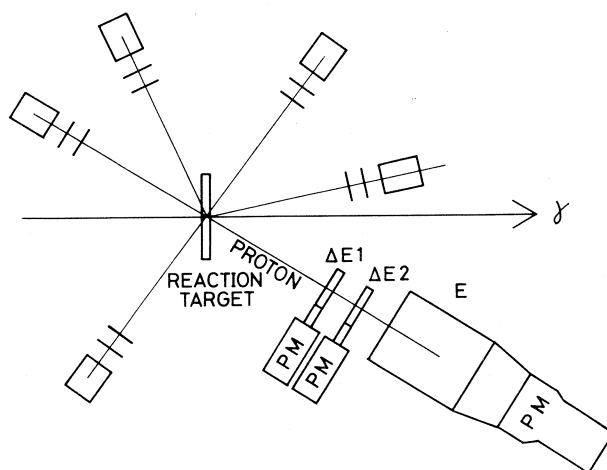
ΔE 検出器は、第一層、第二層ともにプラスチックシンチレータで、その大きさは $45\text{mm} \times 45\text{mm} \times 2\text{mm}$ である。

E 検出器はアクリルシンチレータで、その大きさは $80\text{mm} \times 80\text{mm} \times$ 奥行 120mm である。

これら3層の同時計数をとることにより陽子を検出し、そのエネルギーを測定する。測定可能な陽子の最大エネルギーは約120 MeVである。また、 ΔE 検出器と E 検出器の出力波高比から、粒子識別を行なう。

検出器は、反応ターゲットから30cmの距離に置かれ、立体角は23msrである。

我々は、陽子検出器の試験を理学部のサイクロトロンを用いて行なった。試験は35MeV陽子



第4図 反応ターゲットと陽子検出器の配置図。

線を用いて、散乱角90度における金の弾性散乱を測定することにより行なった。得られたスペクトルの例を第5図に示す。この試験から、

- 1) 三層の同時計数により、 γ 線などのバックグラウンドは十分取り除けること。
 - 2) 検出器のエネルギー分解能は約12%であること
- の結果が得られた。

3.3.2 中性子検出器

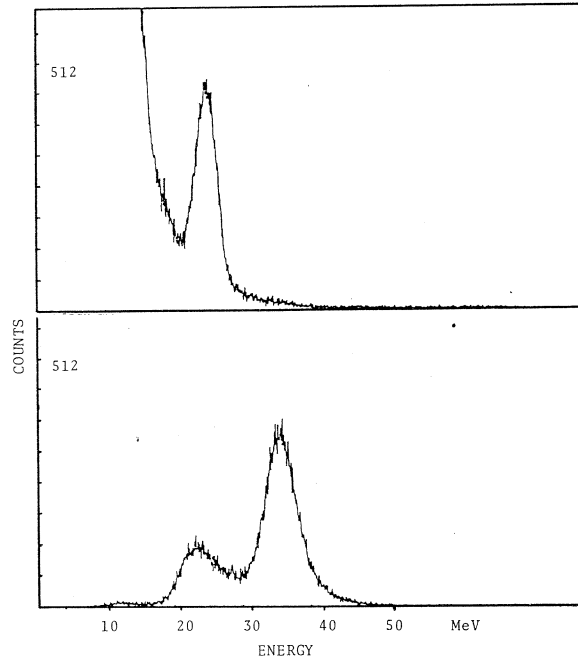
中性子検出器は、液体シンチレータNE 213を14ℓ封入した円筒形のタンクで、その外径は直径500mm、厚さ100mmである。容器の材質は10mmの厚さのアルミである。第6図に示すように、この容器の背面に4本の光電子増倍管を装着して集光する。

γ 線と中性子では、NE 213の発光波形が異なるので、出力を波形選別器で選別し、中性子と γ 線を分離することができる。中性子のエネルギーは、標識 γ 線を輻射した電子と中性子とのTOFにより測定される。検出器と反応ターゲットの間の距離は5mで、立体角は7msrである。

3.4 データ収集系

測定データは、CAMACシステムを通して計算機にとりこまれる。CAMACシステムの構成を第7図に示す。

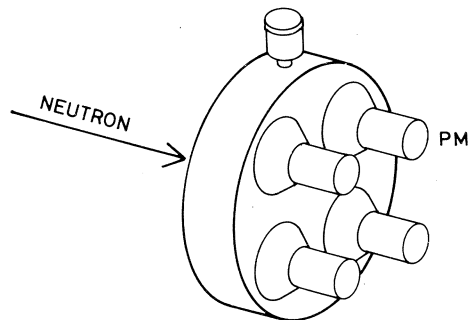
電子検出器と反応粒子検出器の同時計数によって作られたマスターゲートにより、検出器出力はCAMACモジュールにとりこまれる。



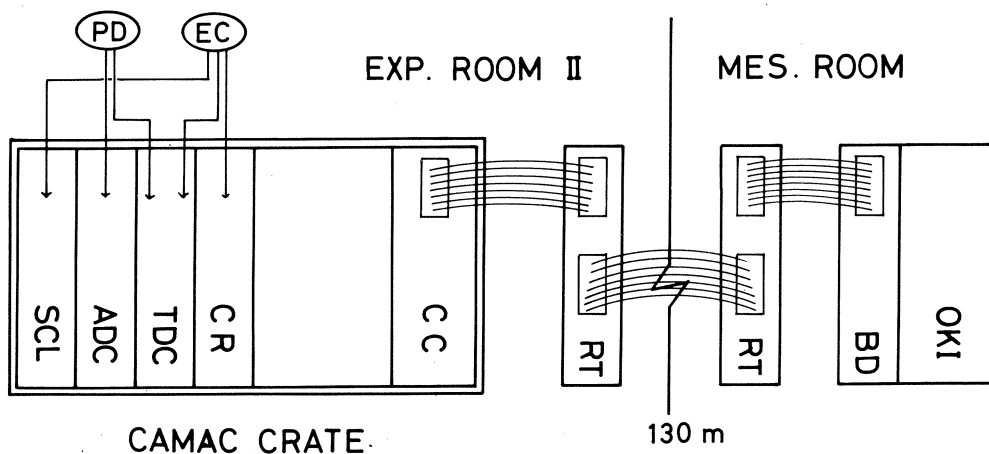
第5図 陽子検出器で測定した、陽子の弾性散乱のスペクトル。

上はE検出器のスペクトル。

下は3層の同時計数を取り、波高の和をとったエネルギースペクトル。



第6図 中性子検出器の外観。



第7図 CAMACシステムの構成。

CC：クレートコントローラー， CR：コインシデンスレジスター， SCL：スケーラー，
BD：ブランチドライバー， RT：レーザーパートランスミッター， EC：電子検出器，
PD：陽子検出器。

陽子検出器の出力はADCに入力され、その波高値が求められる。電子検出器の出力はコインシデンスレジスターに入力され、電子の入射したチャンネルが同定される。また、陽子（中性子）検出器の出力と電子検出器の出力はそれぞれTDCのスタートとストップに入力され、偶然同時計数の除去に用いられる。これらの、マスターゲートでとりこまれるデータとは別に、常時スケーラーが電子検出器の出力を計数し、反応ターゲットを照射した γ 線の数を測定している。

これらのデータは、パラレルブランチハイウェイケーブルを通して実験室から測定室に送られる。この際、実験室から測定室までのケーブルは130 mあるので、通常のパラレルハイウェイでは駆動できない。このため、我々はブランチハイウェイのレーザーパートランスミッターを用いて、TTLシグナルをバランスシグナルに変換して送受信を行なっている。

§ 4. 光子標識装置の性能

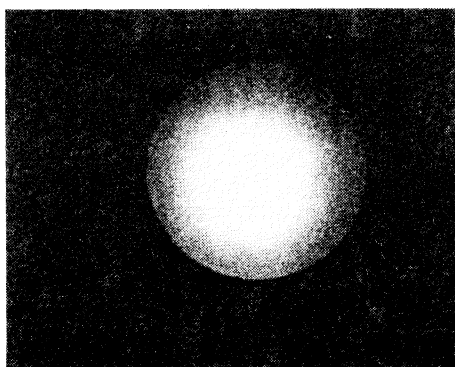
現在までの試験の結果、 γ 線のひろがり、電子検出器系の性能、入射電子ビームの性質等が調べられた。試験開始当初は、次のような問題点が見いだされた。

- ① 反応ターゲットの位置における γ 線のスポットが4～5 cmと大きい。
- ② 入射電子線にエネルギーの低い電子が混入している。このため、これらが電子検出器に入射してバックグラウンドをつくっている。

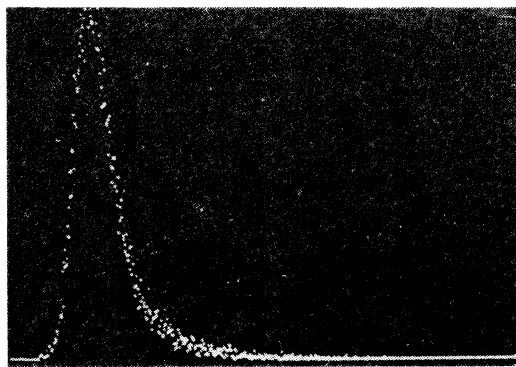
これらの問題に対する対策として、

- 輻射ターゲットと反応ターゲットのあいだにコリメータをいれる。
- Q-マグネット及びスリットをいれて、電子線輸送系を改善する。

の2点を行なった。その結果、上記の2つの問題点は大幅に改善された。得られた γ 線のスポ



第8図 反応ターゲットの位置における γ 線のスポット。円はコリメータによるもので、直径38mmである。



第9図 電子検出器での電子のエネルギー損失スペクトル。 γ 線によるバックグラウンドはほとんど見られない。

ットを第8図に、また、電子検出器の出力スペクトルを第9図に示す。

入射電子線に混入してくる低エネルギー電子及び実験室に充満するバックグラウンドは、輻射ターゲットを抜いた時の電子検出器の計数値と入れた時のそれとの比で示される。この値は、高エネルギー γ 線側で約8%で、低エネルギー γ 線側では約3%である。

電子検出器の計数値と反応ターゲットを照射する γ 線の数の比を標識化の効率という。この値は、どの電子検出器についてもほぼ一定で、約45%という値が得られた。

現在、この装置を用いて実験を行なっているところである。この結果については次回に報告する。

参 考 文 献

- 1) 玉江忠明他：核理研研究報告 **15** (1982) 137.

東北14cmフレオン泡箱のテスト

理学部泡箱, 東北学院大工学部*

北垣敏男・田中 昌・林野友紀

早野仁司・加賀広靖・高山知明

中嶋 隆・樋口正人*

§ 1. 序

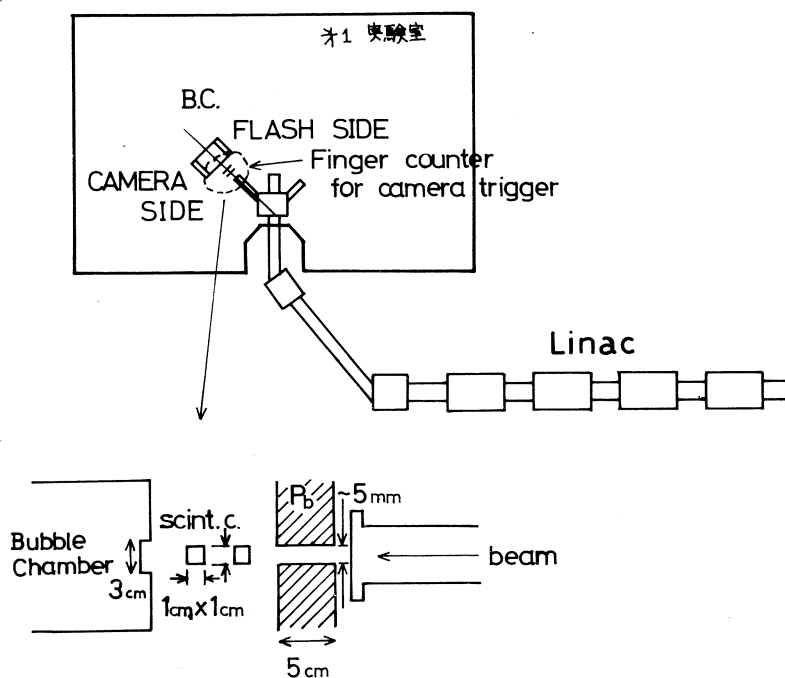
東北大学理学部泡箱物理学研究施設では, 米国フェルミ研究所で行なうビームダンプニュートリノ実験のために, 現在, 東北1m泡箱を製作中である。これは従来の泡箱とは異って, 高い空間分解能, 並びに高泡密度が要求されるので, 特殊な運転条件が必要である。このため, 小型の東北14cm泡箱を試作し, 米国フェルミ研究所でテスト実験を行なうことになったが, 今回の核理研実験は更にその予備実験である。

今回の東北14cmフレオン泡箱のテスト実験は, 核理研の56MeV電子ビームを用い, 1982年4月2日から14日にかけて行なわれた。テストは, 泡箱本体のフレオン(R115及びR13B1)に対する運転動特性, 即ち, 泡箱の温度, 圧力変化と泡密度, 及び泡のサイズ等の関係を調べることが主目的であったが, 同時に, 泡箱運転の総合的経験を得て, 引続く1982年5月の米国フェルミ研究所における, 東北14cm泡箱実験に対する貴重な準備となった。

§ 2. 実験配置

2.1 ビーム

泡箱実験では, 入射電子の数を加速パルス毎に10個以下に保つ, 非常に特殊なビーム運転が要求される。このため, 核理研スタッフにより, 特殊なライナックの加速モードが考案実行された。加速ラインとしては, 第一実験室までのラインを使用し, 暗電流加速モードで運転した。これは, 通常の電子源を用いず, 第1加速管中の浮遊電子を加速するモードで, ビーム調整の結果, 3~4個/pulse (50Hz, ビーム巾3 μ s)の56MeV電子ビームが得られ, 泡箱実験が可能なビーム強度にする事ができた。第1図にビームライン及び泡箱配置の概略図を示した。



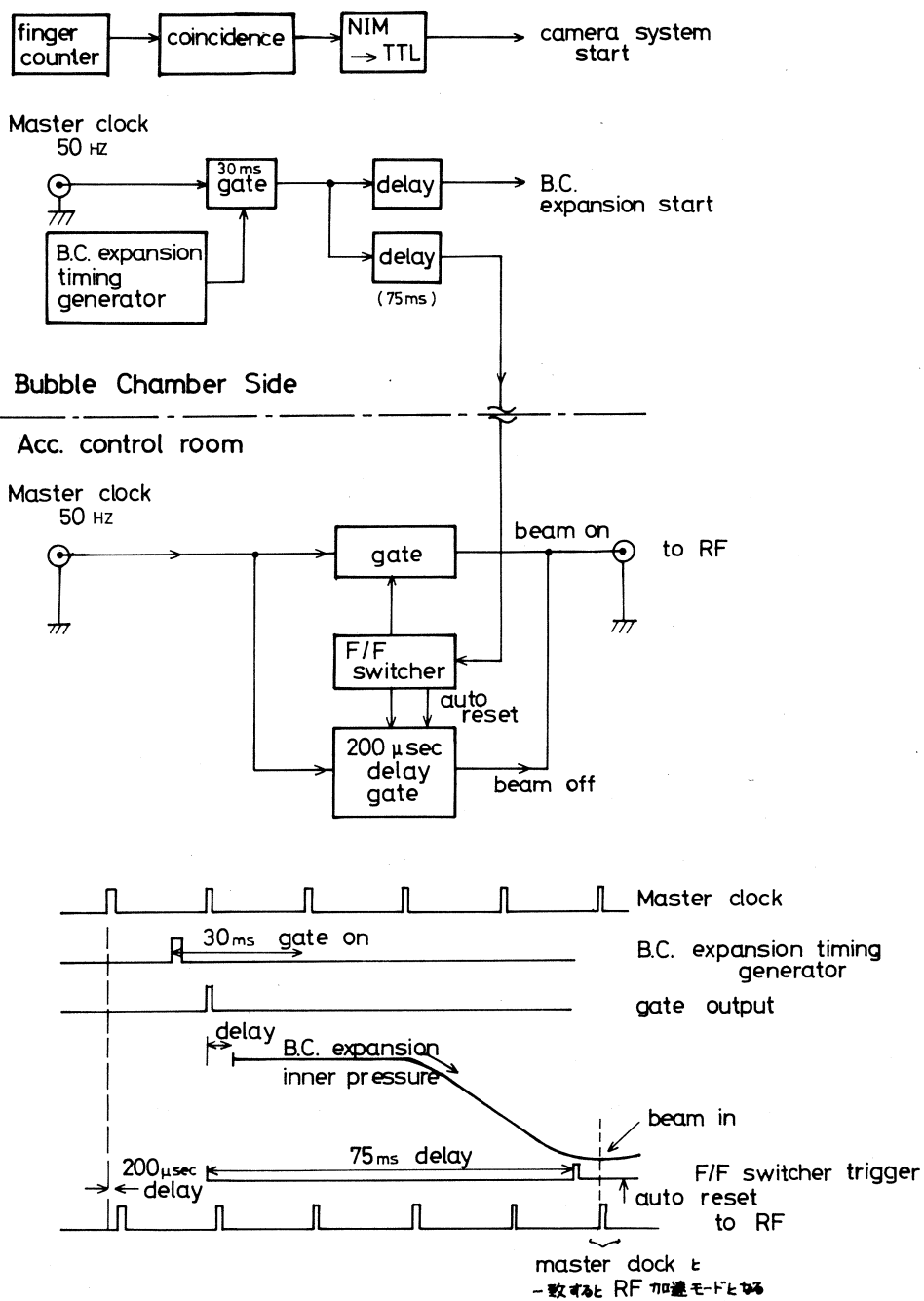
第1図 ビームラインと泡箱配置。

2.2 運転タイミング

運転タイミングとしては、ビームに対し、泡箱の膨張と写真撮影の2つの時間関係が重要である。タイミング回路のブロック図とタイミング・チャートを第2図に示す。

加速器は、50Hzのマスター・クロック毎に加速可能であるが、泡箱の膨張タイミングパルス発生器によりゲートをあけ、約2秒間隔で運転した。常時は、加速器のRFへのマスター・クロックに200 μ sの遅れを与えてtune outとしておき、ビームの必要な時には、まず、泡箱膨張タイミングパルス発生器からのパルスで、マスター・クロックに30msのゲートをかけ、その結果得られるマスタークロックパルス(ゲート内の第1パルス)から、適当な時間(6~12ms)遅らせて、泡箱の膨張を開始する。また、そのパルスから75ms遅らせてゲート・スイッチャーを働かせ、RFへクロックを遅れなしで送り、ビームの加速をする。このようにして、泡箱内圧波形の適当な時間位置で、ビームが泡箱に入るようにする。

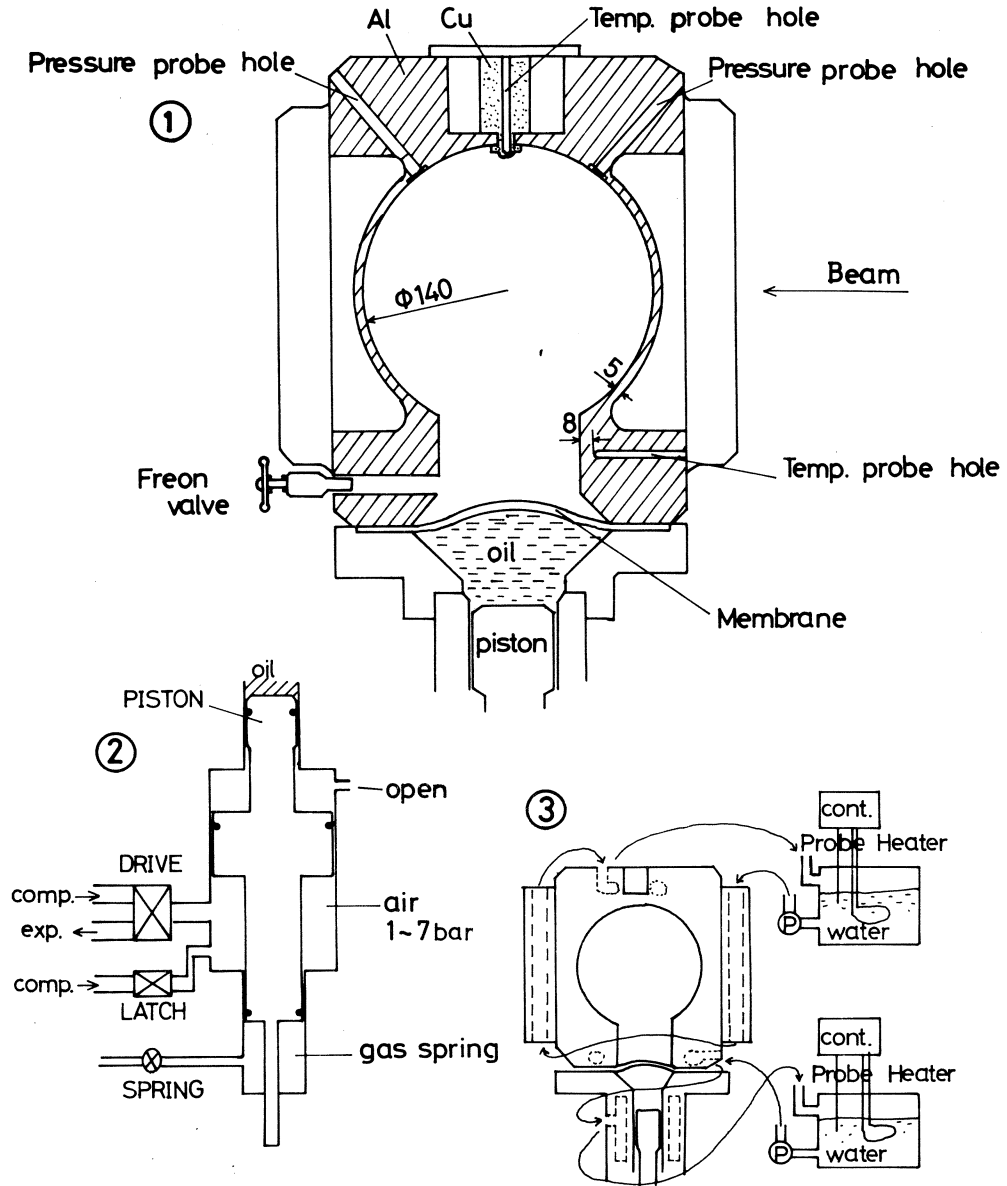
写真撮影のフラッシュ・タイミングは、上記とは独立に行なう。すなわち、泡箱直前に置いたシンチレーション・カウンターからのコインシデンス信号で、電子入射時刻を知り、遅延を加えて、フラッシュ、及びカメラ系を動かす。



第2図 ビームタイミングのブロック図とタイミング・チャート。

2.3 泡箱

泡箱本体、及び駆動系等の各要素を第1表にまとめて示した。



第3図 泡箱。

- ① 泡箱本体断面図,
- ② エアピストン駆動系,
- ③ 温度制御系。

第1表 東北14 cm フレオン泡箱。

泡箱本体	アルミニウム 14.0 cmの直径, 7.6 cm深さの円柱型, 内容積 1,402 cm ³
照明及び撮影用窓	アクリライト 50mm厚, 内部に厚分に泡回避溝付
ピストン	アルミニウム 8.334 kg, 駆動用空気圧 7気圧
ピストン油	モービル DTEオイル
メンブレン	ポリウレタン 6mm厚, 硬度65
膨張/再圧縮バルブ	小金井製作所 3ポジション電磁弁 753-4E2, DC24V, 3/4"
圧力計	トヨタ工機 半導体小型圧力変換器PMS-5, 増巾器AA-B004
温度計	ニッポー電気 LM形デジタル温度計, T60型 白金抵抗体
ピストン位置センサー	手製 光電検出型
使用フレオン	R 115 (C ₂ ClF ₅) R 13 B 1 (CF ₃ Br) R 115 + R 13 B 1 混合液
照明ランプ	Xeフラッシュ管(リング状60mmφ) 使用コンデンサー16μF, 使用電圧800V
対物レンズ	APO Nikkor; f = 180 mm, F 9
使用フィルム	富士ミニコピーフィルム 35mm HR II, PET 100

第3図①には、泡箱本体の断面を示す。本体はアルミニウムブロックより作られ、内容積は、 $\phi 14.0^{\text{cm}} \times 7.6^{\text{cm}}$ の円柱形で、フレオン容積は1402 cm³である。ビーム入射窓は薄く作ってあり、(厚さ5 mm)、また頂上部と下部に、温度プローベを差し込む穴があり、上部斜めに、圧力プローベの穴が2ヶ所にあけられている。プローベとして、圧力は半導体小型圧力変換器、温度は白金抵抗体を使用している。膨張は、メンブレン(ポリウレタン6 mm厚)で行ない、オイルを介して重量8.334 kgのエア・ピストンで駆動される。ピストンの駆動系は、第3図②に図示したようなもので、まず、~7気圧程度の圧縮空気を、シリンダー下部へ圧入して、フレオン液体を圧縮する。膨張電磁弁によりこれを排気するとき、ピストンは下がり、泡箱中の液体は膨張する。適当なタイミングで、圧入電磁弁により空気を圧入してピストンを押し上げ、再び液体を圧縮する。

また、排気過程以外では常に、Latch弁が開いていて、ピストンの押し上げの補助をする。シ

リンダー末端の部屋は閉じていて、ガス・スプリングの役割をする。

泡箱の膨張制御は、電磁開閉弁の作動制御、即ち

- ①排気をする時間
- ②排気を終えてから圧入までの時間
- ③圧入の時間

のタイミングを変える事によって行ない、更に、

- ④駆動空気圧
- ⑤Latch空気圧
- ⑥ガス・スプリング圧

を調整する事によっても行なう。調整は、オッシログラフ上で泡箱内圧波形、ピストン位置変化の波形を見て行ない、フロン物の蒸気圧より高い圧力（R 115, 50℃では約24 Bar）から引き落とし、圧力振巾約17 Bar, パルス全巾約60 msの、ほぼcos形の圧力波形を得る。ピストン位置は、できるだけ上死点に近いところから引き落とすようにし、振巾は約3.5 cmである。ピストン位置は、ピストンの最下端で光量の増減を光電変換する装置で検出される。

泡箱の温度制御は、2組の温水の循環系で行なう。そのうちの一つは、泡箱側面を通り上部を一循するもので、もう一つは、泡箱下部（メンブレン附近）を通り、シリンダーのまわりを一循するものである。温水は、ヒーターと温度計により一定温度に保たれ、それによって泡箱内フロン物は、一定温度に保たれる。フロン物の温度は、本体にあげられた穴にプローベを差し込み、フロン物に近い壁面の温度でモニターした。ペンレコーダーで見ると限りでは、0.1°～0.2℃の精度で一定している。第3図③に、温水循環系を示した。

2.4 泡箱力学系

泡箱の力学系は、第4図に示すような質量-スプリングの振動系で表わせる。

$$M\ddot{X} = -(k_F + k_G)X,$$

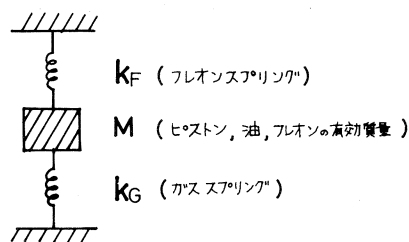
$$M = \text{ピストン質量} + \text{油質量} + (\text{フロン物質量}) * 0.05$$

$$k_F, k_G = \text{フロン物並びにガススプリングの弾性係数}$$

$$k_F X = -\frac{a^2 X}{\beta V}, \quad \beta = \beta_0 / \text{EFF}$$

$$k_G X = p_G \cdot a_G \left(\frac{l_G}{l_G - X} \right)^{1.4}$$

ここで β = effective体積弾性率 (EFF=1.55/0.798)



第4図 泡箱力学系モデル。

β_0 = 体積弾性率 (R 13 B 1 音速測定より $0.798 \times 10^{-3} \text{ bar}^{-1}$)

a = ピストン断面積

X = ピストン変位

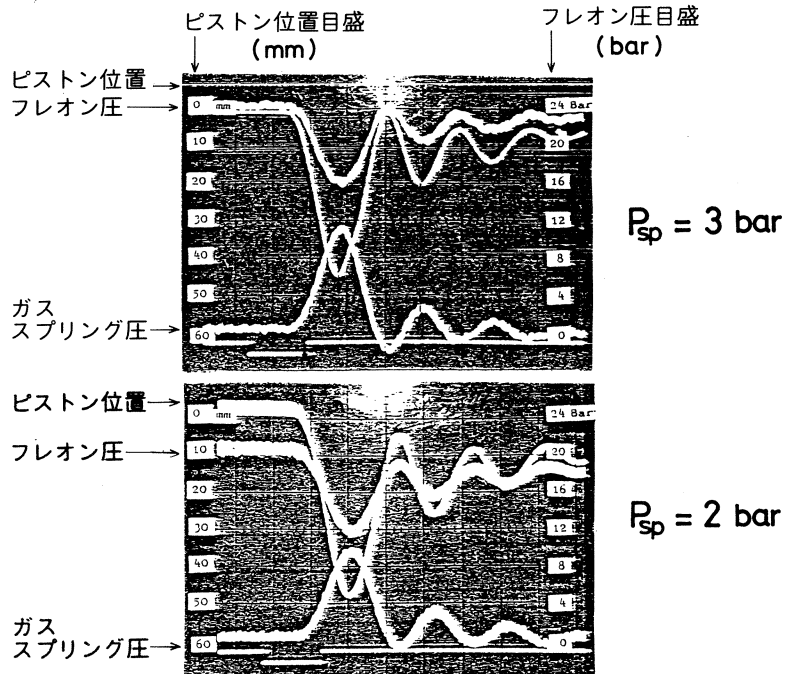
V = フレオン体積

p_G = ガススプリング気圧

a_G = ガススプリング断面積

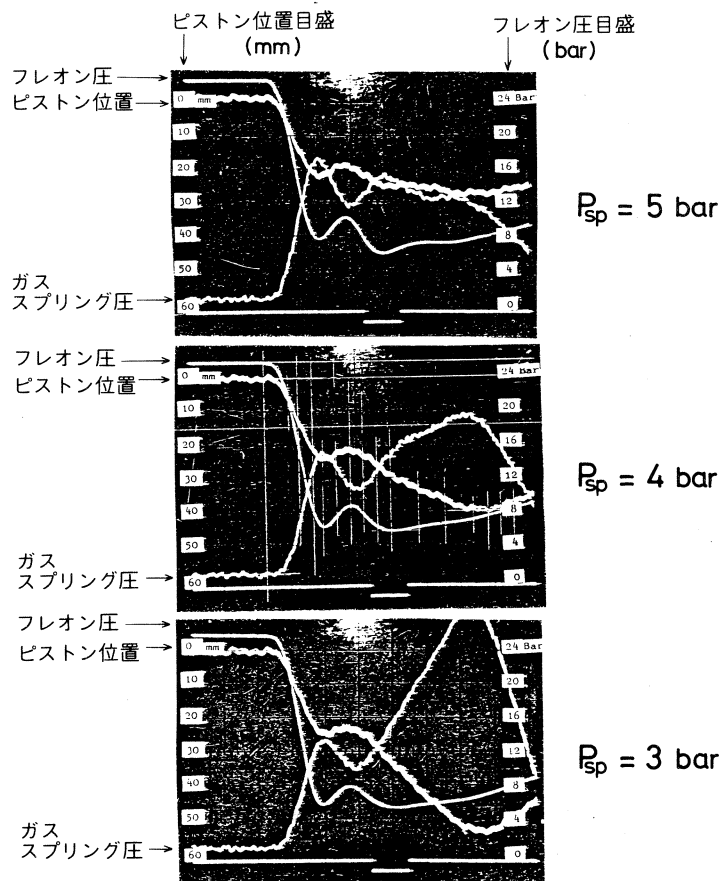
l_G = ガススプリング長さ

第5図①は、14 cm 泡箱の1運転例でのフレオン圧を示すが、固有周期 44ms の自由振動に摩擦減衰が加わっていることが見られる。

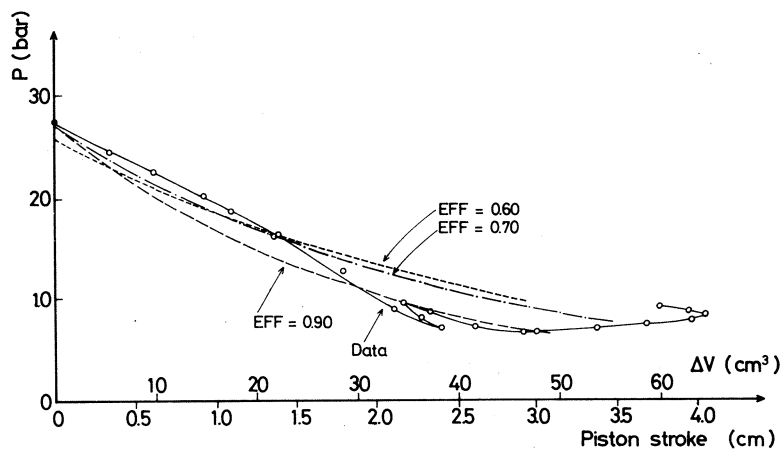


第5図 ①泡箱運転の一状態 (20 m. s/cm)

第5図②は、単に膨張バルブを開放し振動エネルギーを放出してしまった場合の、フレオン圧並びにピストン位置の時間変化の実例である。これより、フレオン圧 p とピストン位置 X (フレオン容積変化 ΔV) の関係を求めたものが第6図である。これを見て明らかなことは、変位小なる所では傾斜はほぼ直線、即ち、フレオンスプリング常数は $k_F = \text{const}$ であるが、ある所



第5図 ②泡箱膨張の例, 再圧縮なし。①及び②には, ピストン位置, フレオン内圧及びガススプリング圧の波形が示されている (20ms/cm)。



第6図 ピストン変位とフレオン内圧の関係 (R115, 30°C, $P_{sp} = 4 \text{ bar}$)。

から傾斜は寝て来て(スプリング柔らかくなり), p は 0 に漸近して行き負になることはない。即ち, $k_F = \text{const}$ の振動は現実の泡箱では起らない。(Ref. TUHEL 82-06)。

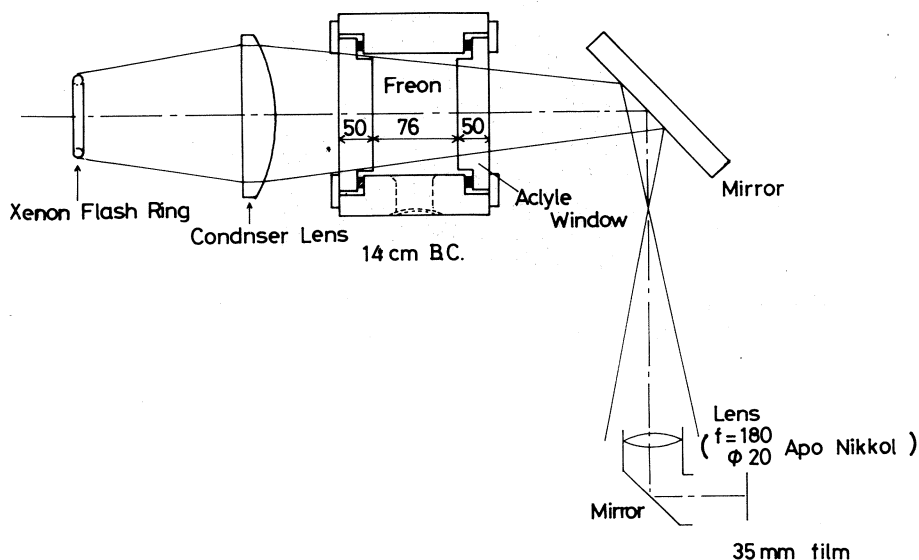
Exponential 型の弾性係数

$$p = p_0 \exp \left[- \left(\frac{\Delta V}{V} \right) / \beta / p_0 \right]$$

で近似した場合, effective 体積弾性率を $\beta = \beta_0 / \text{EFF}$ とおいた時, $\text{EFF} = 0.75$ 位にとると全振巾に対し適当である。通常の運転に対し, フレオンの体積膨張は約 3.3% である。

2.5 カメラ, 光学系

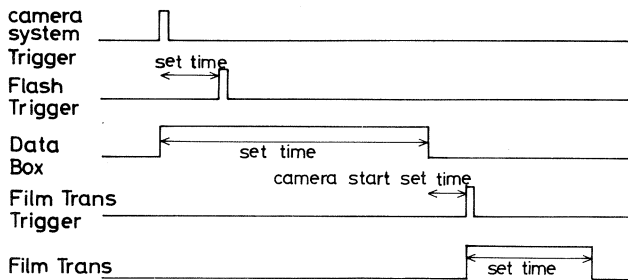
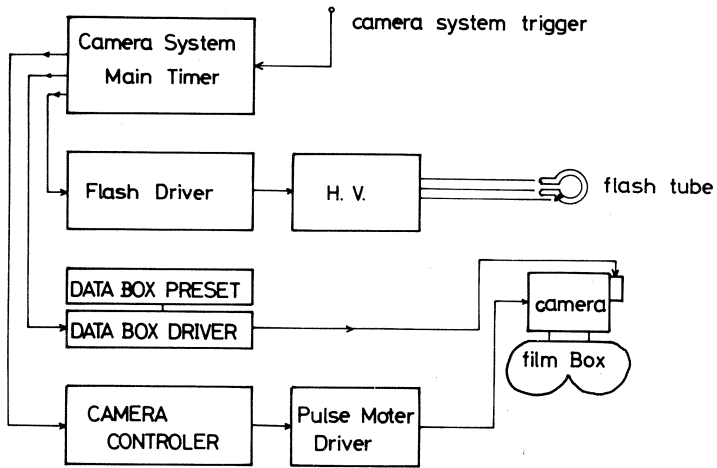
第7図に撮影の配置を示す。Xe フラッシュ管(リング状)の光源よりの光を, コンデンサーレンズで集光して泡箱内を照明し, その像が, 対物レンズのまわりに出来るような暗視野照明とした。高分解能と広い焦点深度を得るために, Apo-Nikkor $f = 180 \text{ mm}$, $F 9$ を, 泡箱中心から 924 mm の位置に設置した。フィルム駆動, データボックス駆動タイミング回路は, 高エ



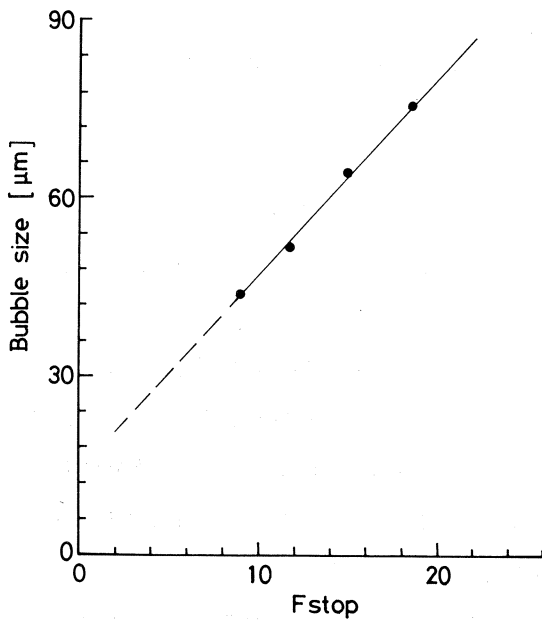
第7図 光学系(暗視野照明)。

ネルギー物理学研究所 1 m 泡箱に使われていたものをそのまま用いた。

第8図に, カメラ系のブロック図とタイミング図を示す。



第8図 フラッシュ・トリガーとカメラ駆動；ブロック図とタイミング・チャート。



第9図 対物レンズの絞りと、撮影された泡像の拡がりの関係。

フラッシュは、リング状のXeフラッシュ管を用い、コンデンサー放電で発光させる。今回の実験では、30ミクロン程度の小さい泡サイズ記録を目的としているので、発光パルスの時間巾は、泡の成長時間に比して短くしなければならない。この実験では、発光の途中でSCRにより回路をショートして、巾約 $100\mu\text{s}$ 程度のシャープな発光を得るようにした。フィルムの感度を考えると、撮影条件は、コンデンサーにかける電圧とパルス時間巾で決まる事になる。ミニコピーフィルムでは、800V、パルス巾 $120\mu\text{s}$ で、 $30\mu\text{m}$ 程度の泡を鮮明に撮影する事ができた。次項に示すように、レンズの分解能が $20\sim 30\mu\text{m}$ であるので、フラッシュ波形をこれ以上シャープにしても、像の改善は期待できない。

第9図に、レンズのF値対写真より求めた泡サイズの実例を示してあるが、開放の時(F9)と一番絞った時(F19)を比較すると、この条件で $\sim 44\mu\text{m}$ から $\sim 70\mu\text{m}$ に像がぼけて拡がる。なお、撮影は、ほとんどF9で行ない、高分解能を得ることを目指した。

§ 3. 泡生成に関する実験結果

写真撮影は、いろいろな条件で行ない、各条件ごとに20frame程度撮した。撮影した写真枚数は、

フレオン R 115 = 5310 frame

フレオン R 13B1 = 854 "

(R 115 + R 13B1)混合液 = 1384 "

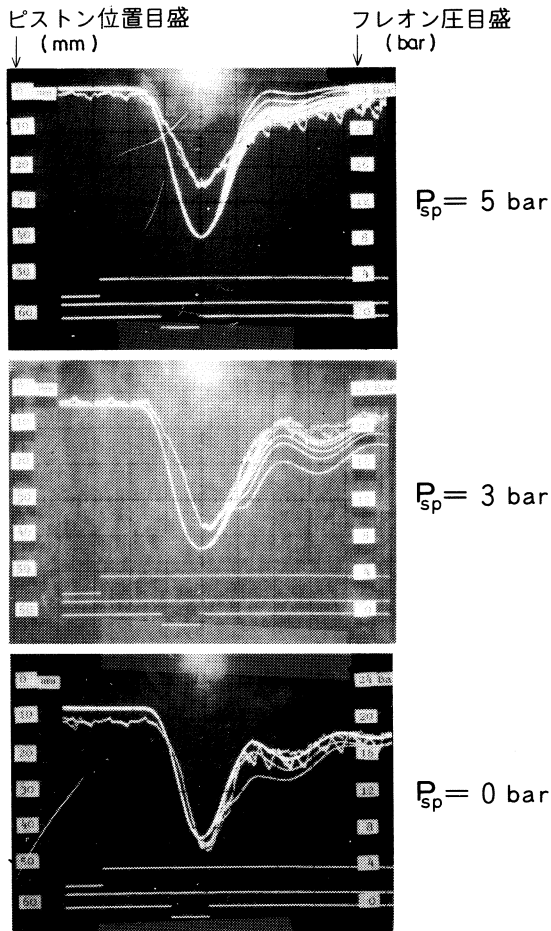
で、これらの写真は泡箱写真用投影機により泡密度、泡の大きさが測定された。以下、3.1~3.4に得られた実験結果をまとめる。

3.1 運転条件

第10図に、典型的運転時のピストン位置波形と、フレオン内圧波形を写真で示した。フレオンはR 115、温度は 50.0°C (上部)、 44.5°C (下部)、 p_{SP} (ガススプリング圧)は5.3及び0 barである。

波形で、ノイズの乗った方がピストン位置を表わしており、膨張排気弁を開くタイミングでスイープをトリガーしている。 $p_{\text{SP}}=5\text{ bar}$ の例では、トリガーから約50ms経てピストンが動き始め、約2.5 cm引き下げられる。その結果、フレオン内圧は、24 barから8 barまで変化している。この間約30msである。フレオンの蒸気圧は、この温度領域で約17 barであり、内圧の断熱変化によりフレオンは泡発生可能な過熱状態に到達している。

p_{SP} が減少すると到達最低圧が下がり、更に泡発生に敏感となり、高泡密度をつくり得る状態

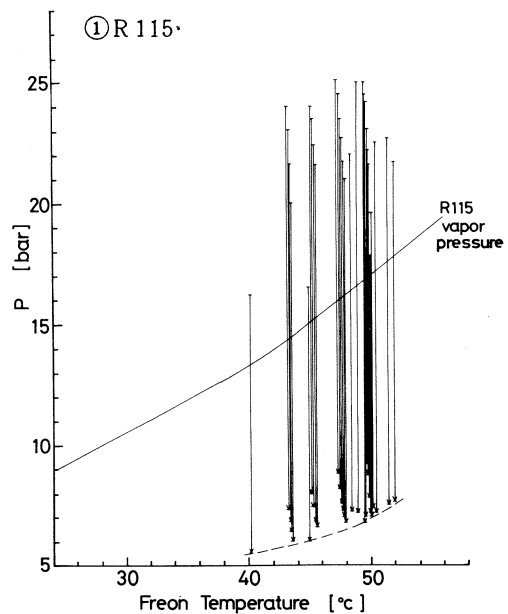


第10図 泡箱運動の実例。

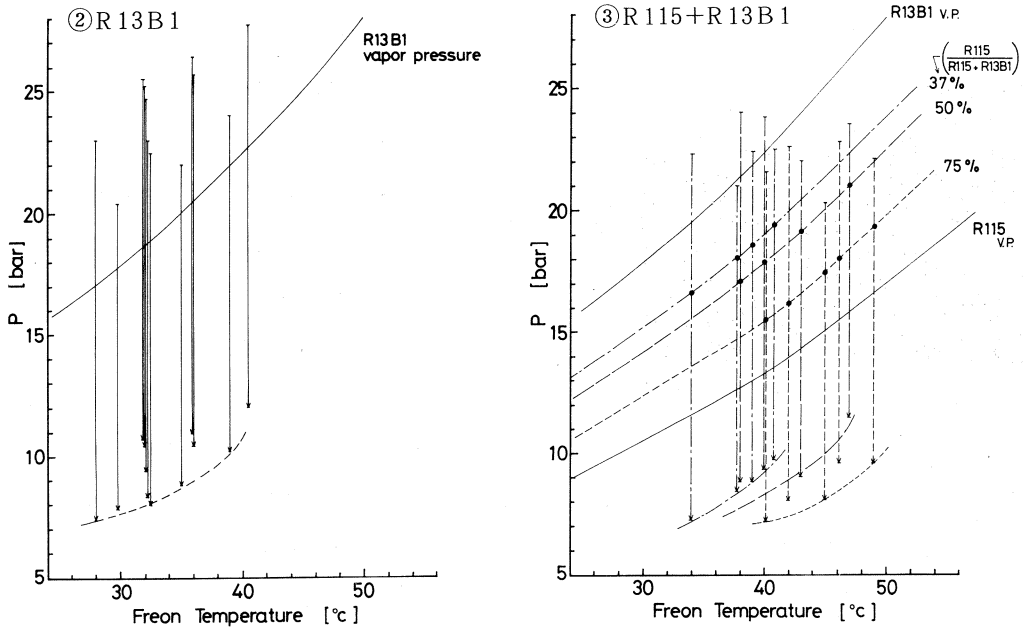
ピストン位置及びフレオン内圧の波形が示されている。ノイズの乗った方がピストン位置である（20ms/cm）。

オン内圧の変化が矢印棒で示されている。
 第11図①は、フレオン R115 (C_2ClF_5) についての運転範囲であるが、 p_{\min} が下がる程泡密度は増加する。但し、余り p_{\min} を下げると、泡箱全体に泡があらわれ沸騰状態になる。図中点線で示したところが、実際的に到達できる最低圧力と思われる。同様に②には、R13B1 (CB_rF_3) について、また、③には R115 と R13B1 の混合につい

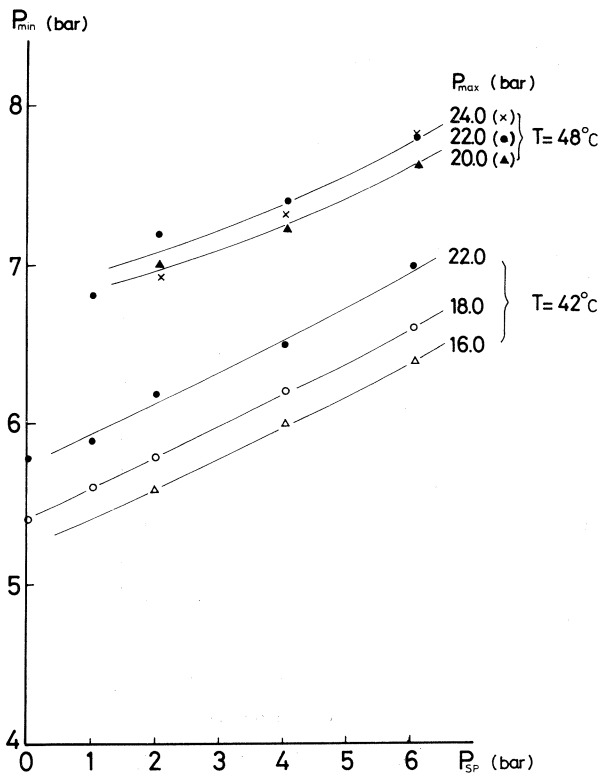
が得られる。しかし、ピストン位置と内圧の波形の間に、位相のズレがあらわれてくる。即ち、ピストンは引き落とす方向に動いているにも拘わらず、内圧を下げる効果を与えていない。これは泡箱容器内、特に窓周辺のパッキング、メンブレン支持枠附近等から発生する、かなりの量の不要な泡の成長に原因するものと思われる。そして、再圧縮時の内圧波形の乱れも大きくなり、次第に運転条件が不安定となる。今回の実験での運転の温度、及び圧力範囲を第11図①～③に示した。ここに示したものは、泡箱上部と下部の温度が等しい場合のデータであり、図には蒸気圧曲線と、泡箱の膨張によるフレ



第11図 フレオン内圧—温度動作図。



第11図 ① R115, ② R13B1 及び③混合液 (R115 + R13B1)。
 実線は蒸気圧曲線, 矢印棒は各温度でテストされたフレオン内圧変化を示し, 点線は到達可能な最低圧の範囲である。



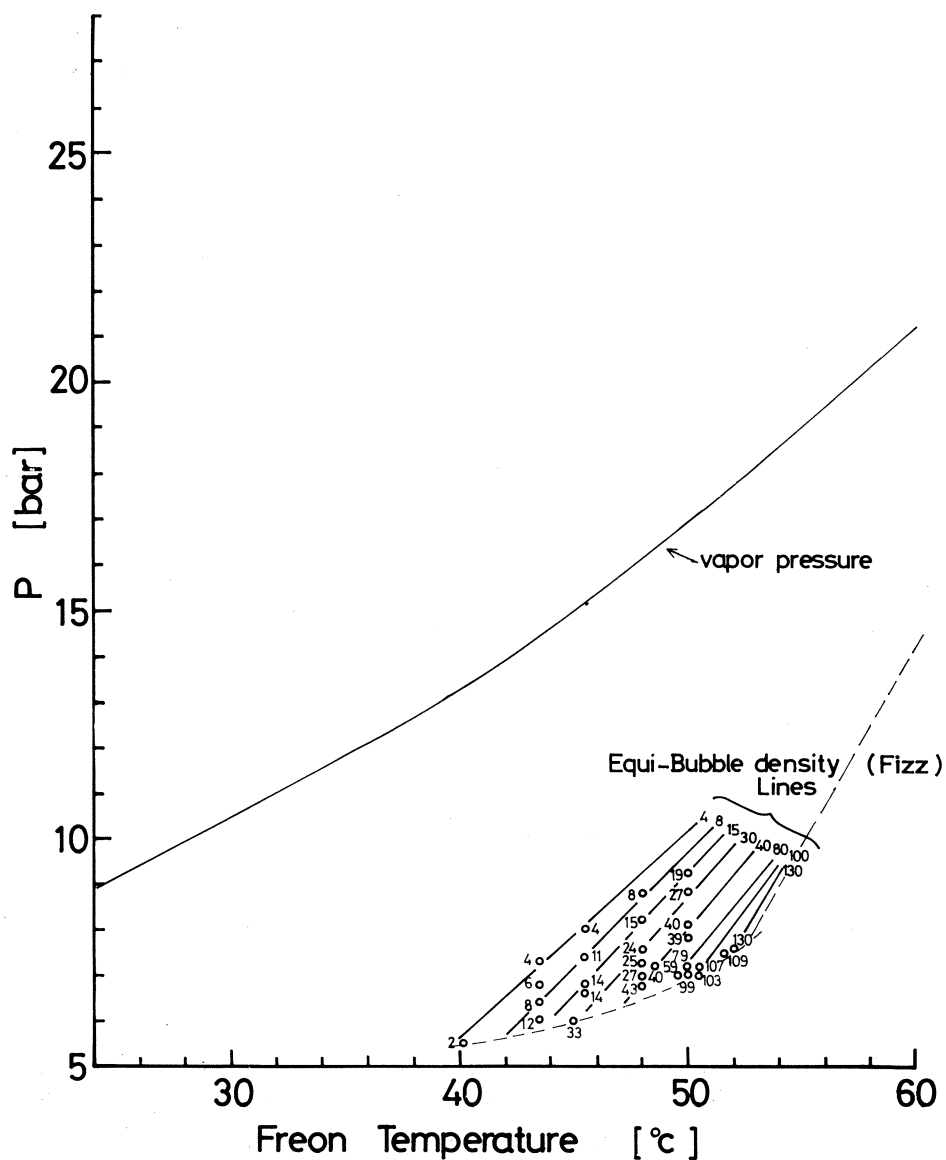
で示してある。泡密度の定量的議論は次節に述べる。

第12図に、フレオン R115 の場合の p_{max} (フレオン初期圧) と p_{sp} (ガスプリング圧) で、 p_{min} (フレオンの最小圧力) がどの程度制御できるかを示した。(温度 42°C と 48°C を例としてあげた)。それによると p_{sp} を上げると linear に p_{min} が上がり、また p_{max} を上げても p_{min} が上がる事がわかる。従って、 p_{min} を制御するには p_{sp} と p_{max} の両者が重要である。

第12図 R115における p_{sp} (スプリング圧) と p_{min} (到達可能な最低圧) の関係。

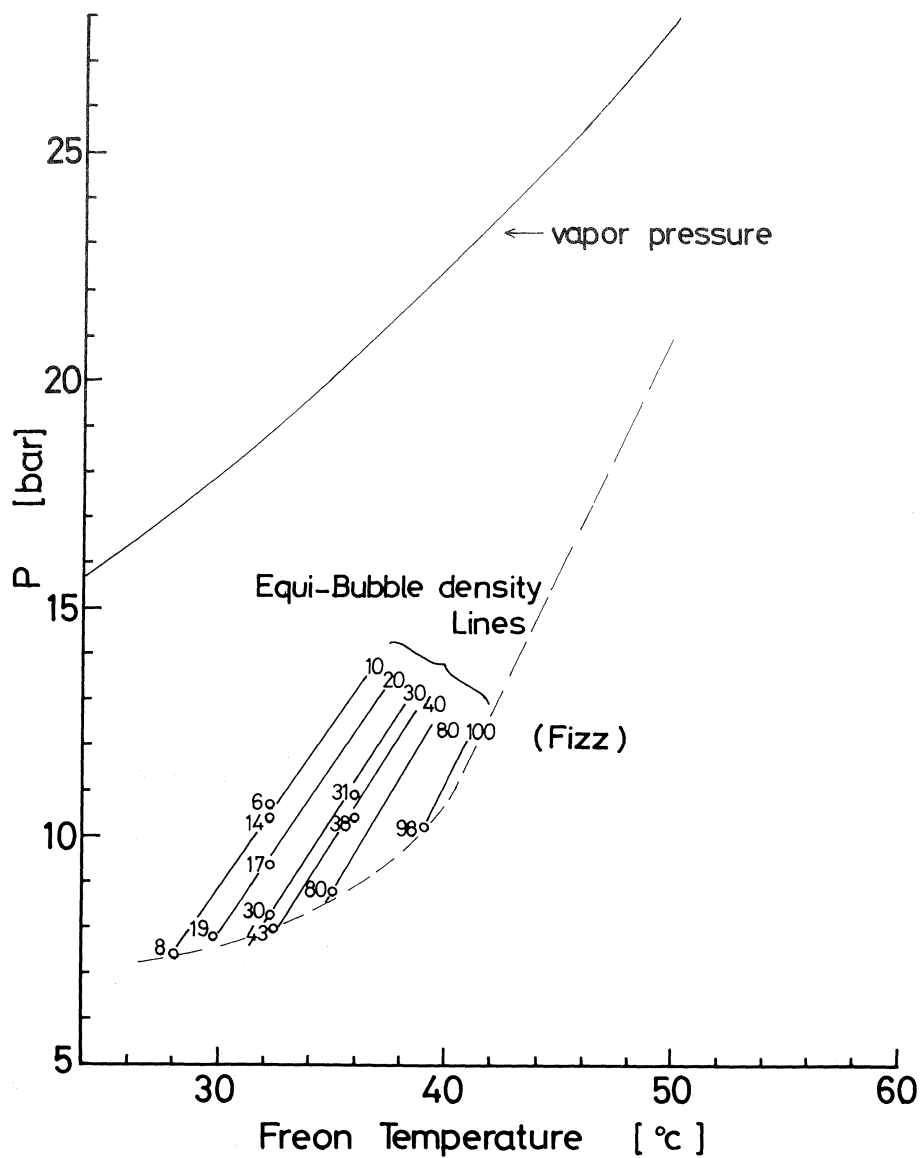
3.2 泡密度

第13図に、R115 の温度-圧力平面上の等泡密度線を、測定データ点より推定したものを示す。第14図には、R13B1 のものを示す。下部の点線は、この泡箱が安定に運転できる最低圧力を示したものである。前項にも述べたように p_{\min} をこれ以下に下げようとする、泡箱全体が沸騰状態になるか、又は多くの場合、泡箱内壁又はメンブレン等からの発泡が著しくなり圧力

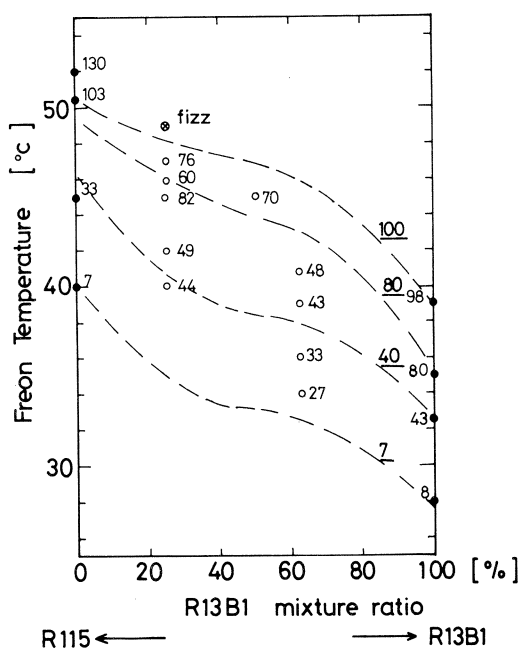


第13図 フレオン内圧-温度図上での泡密度の分布 (R115)。
○印の数字は泡密度を示し、実線は推定された等泡密度線である。

は下らない。この図を見ると、R115 では高泡密度運転（100 bubbles/cm以上）をするためには、52℃以上で適当な p_{min} を得るようにすればよく、R13B1では40℃以上で行なわなければならない。ただし、R13B1は蒸気圧が温度と共に急に上昇するので、注意しなければならない。



第14図 第13図に同じ（R13B1）。



第15図 混合液 (R115 + R13B1) における泡密度の混合比及び温度依存性, 鎖線は推定された等泡密度線である。

3.3 泡サイズの時間成長

第16図①にR115, また②にR13B1におけるビーム・フラッシュ間遅延時間-泡サイズの関係を示した。これらのグラフを見ると一定遅延時間において温度が高くなるに従って泡サイズは小さく, 即ち高温になるほど泡の成長速度がおさえられることが示されている。

通常, 泡箱での泡の時間成長に関しては,

$$B = a \sqrt{t}$$

ここで, B = 泡サイズ, t = 成長時間, という形が論じられている。しかしながら, 本実験の Fig. 9-①及び②に

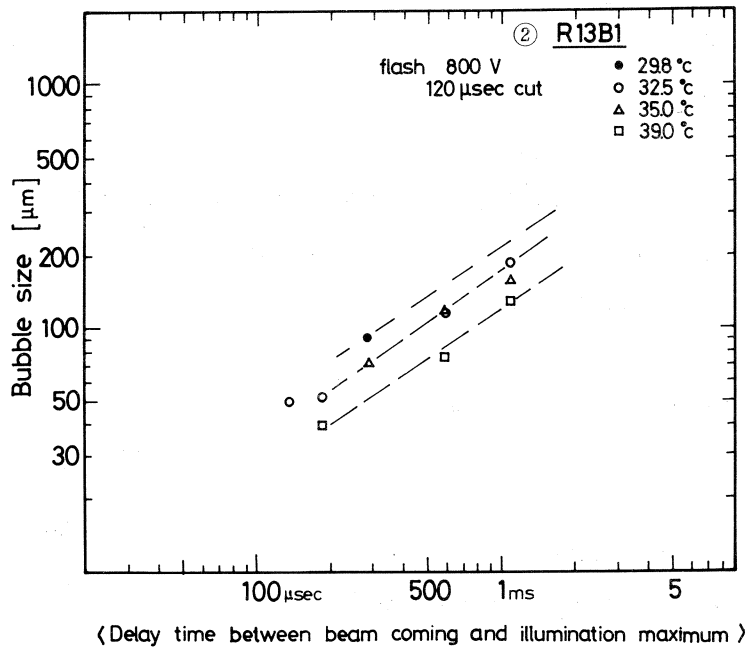
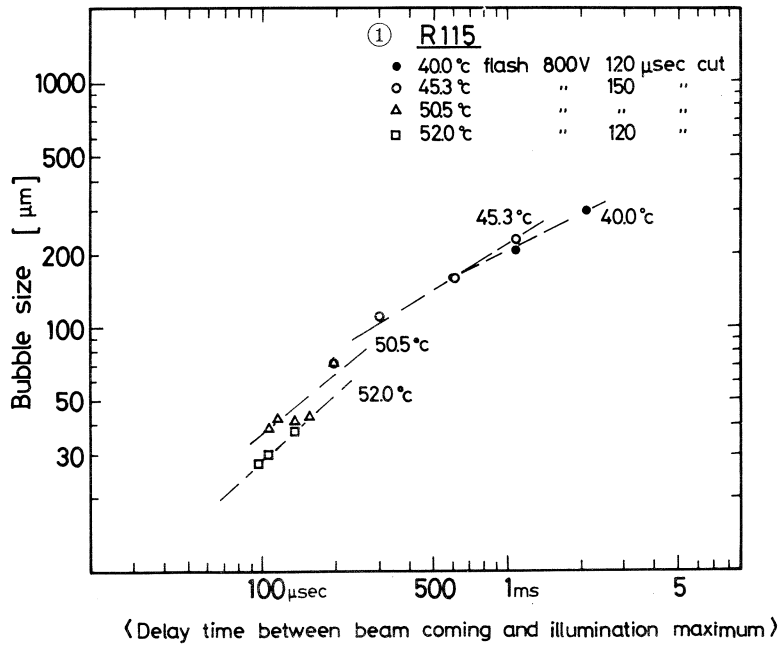
$$B = at^n$$

の形を試みると, 温度の関数として, a , n について次の値を得た。〔 B は μm , t は μs の単位〕
また, R115 において温度 40~52°C の全データを一括してみると, $a = 1.1$, $n = 0.75$ となる。

第15図は, R115とR13B1の混合液体での, 各温度で到達できる等泡密度曲線を推定したものである。なお, 第13, 14図のデータは泡箱の上部と下部との温度差のないもののみを用いた。第15図の混合液体で上下の温度差のある場合には低い方をとった。

また混合液体のデータには k_{\min} がもっと引けると思われるものもあるがそのようなデータは, ここには引用しなかった。混合液体のデータは, ばらついてはいるが, 純粋なR115より低い温度での運転が可能であることを示している。

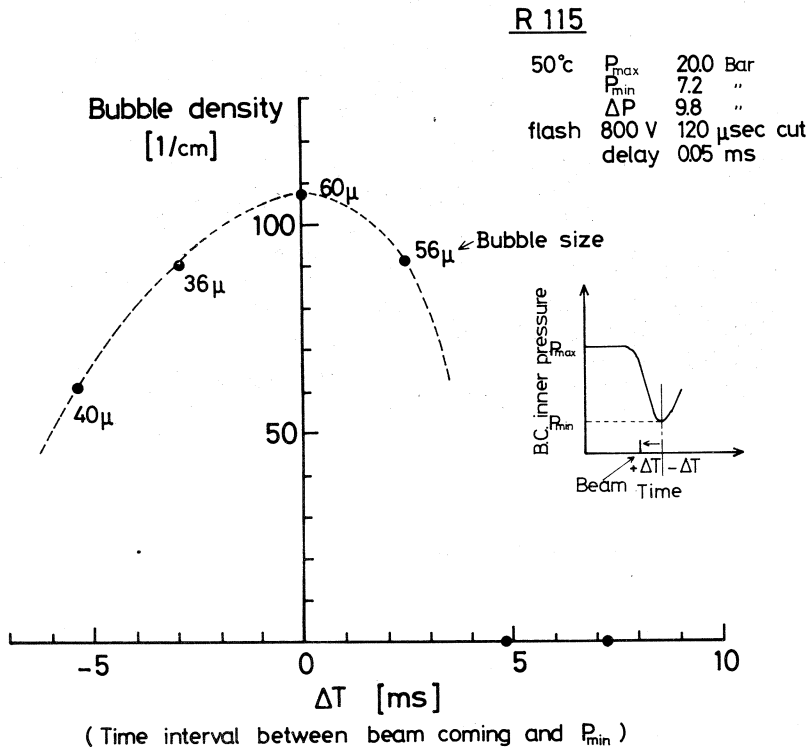
フレオン	温度 (°C)	a	n
R115	40.0	16.4	0.38
"	45.3	3.2	0.61
"	50.5	0.75	0.84
"	52.0	0.46	0.90
R13B1	30~39	1.2	0.70



第16図 ビーム入射からフラッシュ光量最大までの時間の泡サイズへの影響, ①R115及び②R13B1。

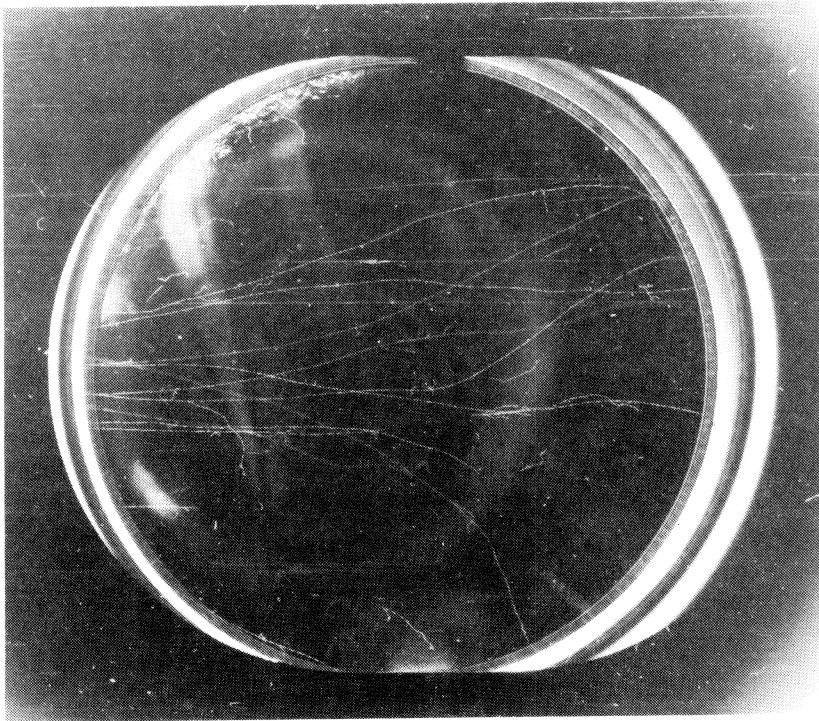
3.4 ビームタイミングの影響

ビーム入射のタイミングを内圧波形のどの位置に置くかについてテストした結果を第17図に示す。これによると、泡密度はフロン内圧の最低の位置（振巾最大の位置）にビームを入射する時が一番高い。また、（一定遅延時間後）泡サイズも振巾最大の位置で一番大きい。これは、最も泡発生の起こりやすい所で、泡密度最大並びに泡の成長速度最大が起こるといことである。



第17図 泡箱膨脹とビーム入射タイミングの泡密度への影響。

第18図に撮影された電子ビームの写真例をあげておく。これは、フロンR 115を温度50°Cで運転したときのものである。入射電子がフロンにより多重散乱を受けながら、エネルギー損失をする様子が見える。また入射窓等を通過する際、放出された γ 線による電子対生成も見られる。

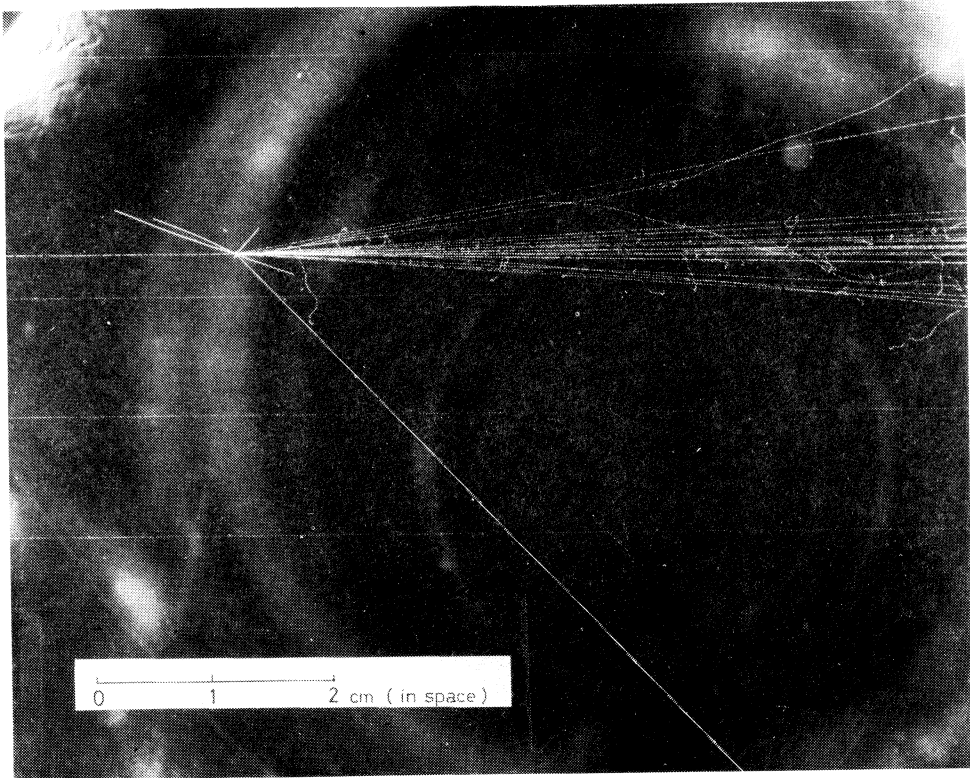


第18図 泡箱写真の例（左側から56 MeV 電子ビーム入射）。

§ 4. フェルミ研究所における実験

核理研での14 cm 泡箱テスト実験終了後、若干の手直しをして、泡箱は米国フェルミ研究所に空輸された。そして、フェルミ研究所での高エネルギー・ビームによる実験は、予定通り5月末日まで約1ヶ月にわたって実施された。

この間、200 GeVハドロンによる泡箱写真を、約5万枚撮影することに成功した。この結果、来たるべき東北1 m フレオン泡箱に対するフェルミ研究所側の期待は非常に高まった。第19図に、フェルミ研究所で撮影されたものの1枚を掲げ、14 cm 泡箱テスト実験に御協力頂いた、核理研の御好意に重ねて感謝の意を表する次第です。



第19図 フェルミ研究所での写真例。

200 GeV 入射ハドロンによる原子核からの中間子多重発生の起っている様子が見られる。フレオンは R 115 を使用，泡サイズは直径 $50 \mu\text{m}$ ，泡密度は 100 bubbles/cm である。

核理研研究報告 第15巻 第2号

1982年12月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設
仙台市三神峯1-2-1 (郵便番号982)
電話 0222-45-2151 (代)

印刷所 株式会社 東北プリント
仙台市立町24番24号
TEL (63) 1166 (代)

RESEARCH REPORT OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

Volume 15 Number 2 December 1982

Laboratory of Nuclear Science,
Tohoku University,
1-2-1, Mikamine, Sendai 982, Japan