

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第 17 卷 第 1 号

1984 年 6 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、ゴシック、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」編集委員長

核理研研究報告 第17巻 第1号 目次

I 原子核物理

- I-1 軽い核における準弾性電子散乱(II) 1

(核理研)

萩野 秀夫, 小山田正幸, 守 和彦, 藤井 芳昭
穂積 裕一, 横川 淳, 寺沢 辰生, 鳥塚 賀治

- I-2 180°非弾性電子散乱による⁴⁰Caの6⁻, T=1 Stretched Stateの励起 10

(核理研, 高工研*)

穂積 裕一, 藤井 芳昭, 斎藤 健治*
斎藤 悌二郎

- I-3 奇核の巨大共鳴(I) ⁶³Cu 23

(核理研, 情教センター*, 教養部**)

横川 淳, 萩野 秀夫, 穂積 裕一, 小山田正幸
寺沢 辰生, 小黑 瞬, 鳥塚 賀治, 川添 良幸*
宮瀬 晴久**, 坪田 博明**

- I-4 ¹⁰Bの巨大共鳴の構造 34

(山形大教養, 核理研*)

上野 博昭, 種市 宏, 高橋 良雄, 庄田 勝房*

- I-5 Tagged Photon Measurements of ¹²C(*r*, n), ¹²C(*r*, p)
and ¹²C(*r*, pn) in the Intermediate Energy Region 39

(メルボルン大*, 核理研, 教養部**)

P.D. Harty*, 守 和彦, 藤井 芳昭
須田 利美, 寺沢 辰生, 今野 収
M.N. Thompson*, 鳥塚 賀治, 前田 和茂**

- I-6 ^{63,65}Cu(e, p₀)角分布 47

(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 物性物理

- II-1 中性子散乱による Zr-O-H 中の水素原子の存在状態と局在振動 53

(金 研)

務川 進, 梶谷 剛, 平林 真

- II-2 A Cryostat for High Pressure Works in TOF Neutron
Diffraction 62

(金 研)

神垣 知夫

- II-3 熱中性子小角散乱装置 (WIT-1) の開発と製作 (II) 66

(核理研, 金研*, 工学部**, 高エ研***)

新村 信雄, 山田 和芳, 石田 明*

杉崎 康昭**, 三沢 正勝***

- II-4 多結晶用デバイ・シェラー型パルス中性子分光器の製作 (II) 71

(仙台電波高専, 核理研*)

小野寺重文, 山田 和芳*

III 放射化学

- III-1 Photospallation Reactions of ^{132}Cs and ^{139}La by 100MeV- and
200MeV- Bremsstrahlungs 81

(金沢大理学部)

坂本 浩, 寅本 尚男, 浜島 靖典, 岡田喜久雄

堂庭 雅夫

- III-2 Spallation Yields from Natural Rb, Sr and Y Irradiated
with 100 MeV and 200 MeV Bremsstrahlungs 110

(金沢大理学部)

坂本 浩, 西尾 正善, 堂庭 雅夫, 岡田喜久雄

浜島 靖典

III-3	A Rapid Preparation Method for ^{39}Cl -labelled Alkyl Chlorides	128
	(核理研, 理学部化学*)	
	八木 益男, 村野 宜央*, 伊澤 郡蔵*	
	榎本 和義	
III-4	反跳インプランテーションによる錯体生成機構の研究 — 錯体混合系と混合配位子単一錯体系	139
	(理学部化学)	
	佐野 正明, 関根 勉, 吉原 賢二	
III-5	(銅, 亜鉛)フタロシアニン混晶系における中心金属の反跳挙動 に対する外部雰囲気の影響	145
	(筑波大化学系)	
	荘司 準, 沖 雄一, 池田 長生	
III-6	銅(II)- β -ジケトンキレート液-液分配係数の評価	150
	(理学部化学)	
	井村 久則, 鈴木 信男	
III-7	環境試料の内部標準法による光量子放射化分析	159
	(核理研)	
	榎本 和義	
III-8	東北地方南部の更新世前期に活動した火砕流の地球化学的研究	169
	(理学部地学)	
	青木謙一郎, 吉田 武義, 金 義沢	
III-9	静岡県みかぶ帯, 輝緑岩質分化岩床の地球化学的研究	182
	(理学部地学, 弘前大*, 仙台一高**)	
	吉田 武義, 大貫 仁*, 花松 俊一**	
	青木謙一郎	
III-10	北上山地, 白亜紀深成岩類の地球化学的研究	197
	(教養部, 理学部地学*)	
	蟹沢 聡央, 吉田 武義*, 石川 賢一	
	青木謙一郎*	

III-11	紀伊半島中部，大峯地域に分布するSタイプ花崗岩の微量化学組成……………	207
	(理学部地学)	
	村田 守，吉田 武義，青木謙一郎	
IV	加速器・測定器	
IV-1	スリットによって散乱された電子によるビームダクトの発熱……………	215
	(核理研)	
	今野 収，須田 利美，菅原 真澄	
IV-2	(e, e'p)実験装置……………	228
	(核理研，教養部*，情教センター**)	
	日野 威，田中 陽，川原 英明，菅原 真澄	
	玉江 忠明，坪田 博明*，宮瀬 晴久*	
	川添 良幸**	
IV-3	マイクロ・ロボットによる放射線計測の自動化……………	236
	(核理研)	
	榎本 和義，武藤 正勝，八木 益男	
V	加速器・データ処理装置稼動状況	
V-1	昭和58年度マシン報告……………	243
	(核理研マシニンググループ)	
	一戸 隆，栗原 亮，高橋 重伸，柴崎 義信	
	浦澤 茂一	
V-2	データ処理装置稼動状況……………	245
	(核理研計測グループ)	
	小山田正幸，窪田 健雄，佐藤 正幸，武藤 正勝	
VI	論文リスト……………	247

I. 原 子 核 物 理

軽い核による準弾性電子散乱(II)

核理研

荻野秀夫・小山田正幸・守 和彦

藤井芳昭・穂積裕一・横川 淳

寺沢辰生・鳥塚賀治

§ 1. はじめに

電子散乱スペクトルには、巨大共鳴領域をこえた高い励起エネルギー領域に幅の広いピークが存在する。従来このピークは、電子が核内の個々の核子とインコヒーレントに相互作用し、一核子の放出反応(準弾性散乱)を起こしたものと単純な理解がなされてきた¹⁾。

しかし、最近この準弾性散乱領域の縦及び横成分応答関数が実験的に分離され、フェルミガス模型に依る単純な理解が成り立たない事が示された²⁾。フェルミガス模型の計算値と実験値との不一致は、縦成分において顕著であり、種々の理論的解釈の可能性が示されている³⁾。

このような背景を踏まえ、我々は、軽い核の準弾性散乱スペクトルの縦及び横成分応答関数の分離を目的とした実験を行った。

前回の報告⁴⁾では、実験条件、SSDの効率補正、輻射補正などについて述べたが、今回は縦及び横成分応答関数の分離法、理論計算との比較を述べる。

§ 2. データ編集

今回の報告では、⁹Be, ¹²Cを標的核とした測定結果について述べる。

断面積の規格化には、⁹Be, ¹²Cそれぞれ弾性散乱ピークを用いた。基準となる形状因子として、¹²Cには文献5)を、⁹Beの縦成分には文献6)、横成分には文献7)を用いている。

§ 3. 縦及び横成分応答関数の分離

電子散乱微分断面積は、平面波ボルン近似で、

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \sigma_M \cdot R(q, \omega, \theta)$$

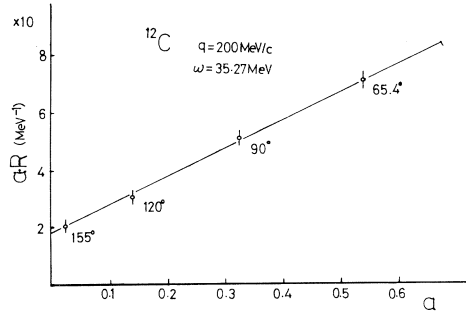
$$= \sigma_M \cdot \left[\frac{q_\mu^4}{q^4} R_L(q, \omega) + \left(\frac{q_\mu^2}{2q^2} + \tan^2 \frac{\theta}{2} \right) R_T(q, \omega) \right] \quad (1)$$

$$\sigma_M = \left(\frac{Z\alpha}{2E} \right)^2 \frac{\cos^2 \frac{\theta}{2}}{\sin^4 \frac{\theta}{2}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{2E}{M_T} \sin^2 \frac{\theta}{2}} \quad (2)$$

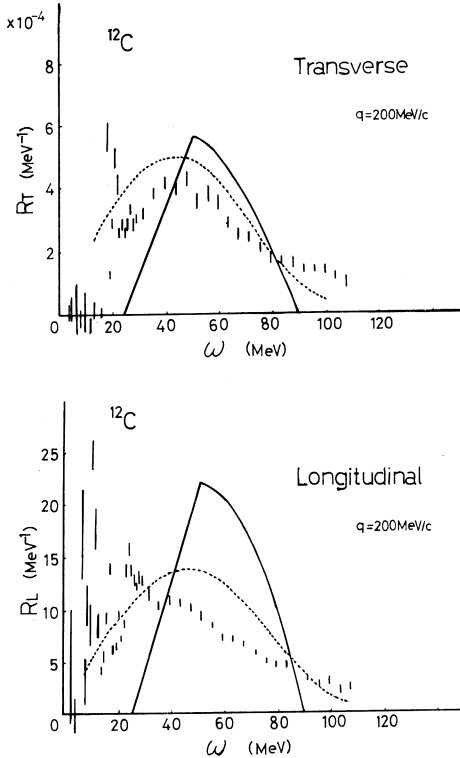
とあらわされる⁸⁾。ここで、 ω はエネルギー一損失、 q は運動量移行、 σ_M は、Mott 散乱断面積である。

R を全応答関数と呼ぶ。 R_L は縦(電荷)成分、 R_T は横(電流、磁気)成分応答関数である。

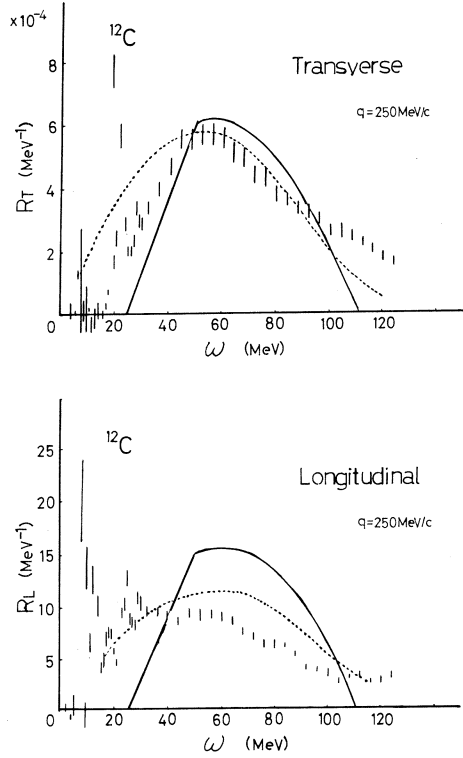
輻射補正をした測定スペクトルについて $\omega/E = \text{一定}$ の直線に沿った内挿法を用いて運動量移行一定の全応答関数 R を決定し



第1図 ローゼンブルス プロット例。実線は回帰直線である。



第2図 縦、横成分応答関数。 ^{12}C , $q = 200 \text{ MeV}/c$ のもの。実線はフェルミガス模型 (Van Orden の式⁹⁾) による計算値で $k_F = 221 \text{ MeV}/c$, $\bar{\epsilon} = 25 \text{ MeV}$ を用いている。点線は相対論的フェルミガス模型 (R. Rosenfelder の式¹¹⁾) に依る計算で、有効質量は $M^*/M = 0.6$ とし、文献¹²⁾ の核内核子の運動量分布を用いている。



第3図 縦、横成分応答関数。 ^{12}C , $q = 250 \text{ MeV}/c$ のもの。実線はフェルミガス模型⁹⁾ ($k_F = 221 \text{ MeV}/c$, $\bar{\epsilon} = 25 \text{ MeV}$)。点線は相対論的フェルミガス模型¹¹⁾ で有効質量 ($M^*/M = 0.63$) と核子の運動量分布¹²⁾ を用いている。

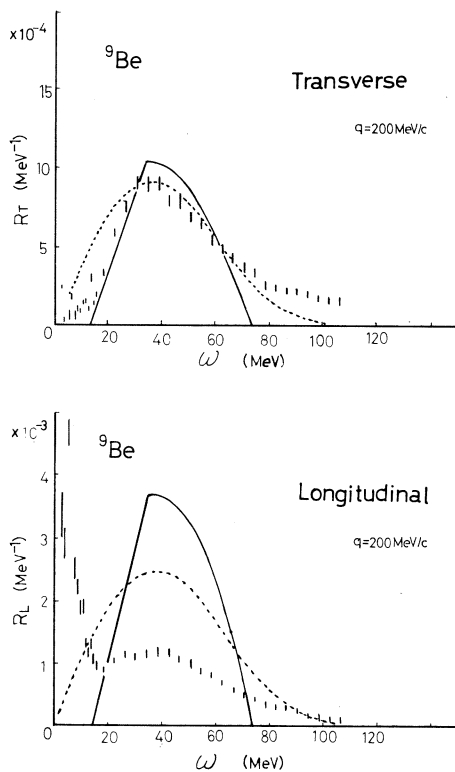
た。但し、離散的なレベルの存在する極低い ω 領域 (^{12}C で $\omega < 26 \text{ MeV}$, ^9Be で $\omega < 15 \text{ MeV}$ 以下の領域) では、励起エネルギー一定方向での内挿を行った。

この様にして求めた運動量移行一定の全応答関数を用いてローゼンブルースプロット法⁸⁾により縦、横成分応答関数の分離を行った。分離に使用した散乱角は、 q が $200 \text{ MeV}/c$ 以下で 65.4° , 90° , 120° , 155° の 4 点, $200 \text{ MeV}/c$ 以上で 90° , 120° , 155° の 3 点である。

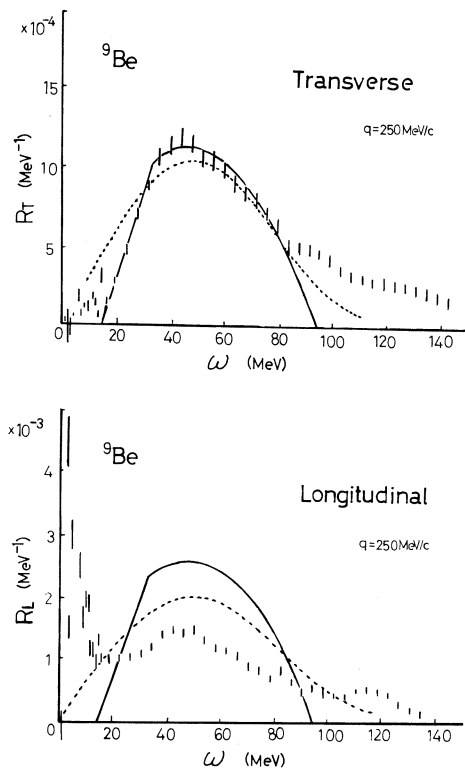
ローゼンブルースプロットの一例を第 1 図に示す。但し、 $a = \left[1 + (2q^2/q_\mu^2) \tan^2\left(\frac{\theta}{2}\right) \right]^{-1}$ とし、 $a \cdot R$ を a の関数としてプロットしたものである。

各散乱角のデータは、直線上に乗り平面波ボルン近似が良く成り立っている事が分かる。縦成分応答関数は回帰直線の傾きから、横成分応答関数は切片から求められる。

第 2 ~ 5 図に分離後の応答関数例を示す。



第 4 図 縦、横成分応答関数, ^9Be , $q=200 \text{ MeV}/c$ のもの。実線はフェルミガス模型⁹⁾ ($k_F=195 \text{ MeV}/c$, $\bar{\epsilon}=14 \text{ MeV}$)。点線は相対論的フェルミガス模型¹¹⁾で有効質量 ($M^*/M=0.65$) と核子の運動量分布¹²⁾を用いている。



第 5 図 縦、横成分応答関数。 ^9Be , $q=250 \text{ MeV}/c$ のもの。実線はフェルミガス模型⁹⁾ ($k_F=195 \text{ MeV}/c$, $\bar{\epsilon}=14 \text{ MeV}$)。点線は相対論的フェルミガス模型¹¹⁾で有効質量 ($M^*/M=0.7$) と核子の運動量分布¹²⁾を用いている。

§ 4. 応答関数の解析及び考察

まず、フェルミガス模型計算と測定応答関数との比較を行う。第2～5図にVan Ordenのフェルミガス模型⁹⁾を用いた計算値を実線で示した。

フェルミ運動量 k_F は、 ^{12}C で $221\text{MeV}/c$, ^9Be で $195\text{MeV}/c$ を用い、ピークのずれ $\bar{\epsilon}$ は ^{12}C で 25MeV , ^9Be で 14MeV を用いている。

フェルミガス模型は q の比較的高い領域 ($q \geq 2k_F$) で良く成り立つと考えられる。しかし、横成分応答関数では、今回測定した $q \approx k_F$ 程度の運動量移行でも測定値を良く再現している。

一方縦成分 R_L の計算値は、測定スペクトルに比べ、ピーク値近傍で大きな強度を持っている。

フェルミガス模型で縦成分応答関数の再現性が良くないと言う傾向は、より高い q での ^{12}C の測定でも報告されている¹⁰⁾。

この不一致は、有効質量近似を用いる事により大幅に改善される。これを各図中点線で示す。計算は Rosenfelder に依る相対論的計算¹¹⁾であり、フェルミ運動量 k_F や、ピークのずれ $\bar{\epsilon}$ は用いず、有効質量 M^* のみをパラメータとしてピーク位置、高さ、幅を再現するように決定した。また基底状態の核子の運動量分布として、density dependent Hartee-Fock 計算による分布¹²⁾を用いている。

有効質量を用いた相対論的フェルミガス模型の計算値は、縦成分のピーク近傍での強度の不一致を改善し、両成分共にピーク位置、及び幅として妥当なものを与える事が分かる。

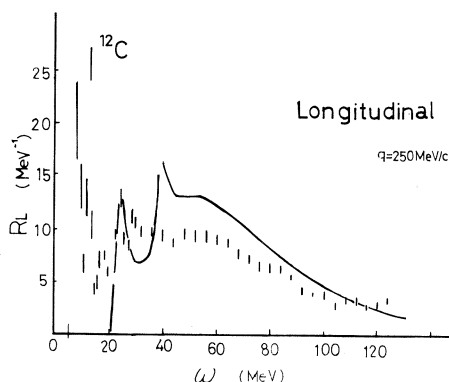
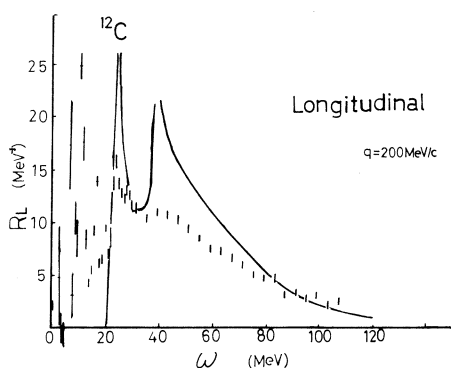
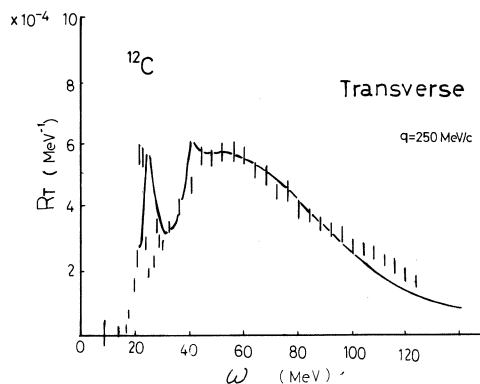
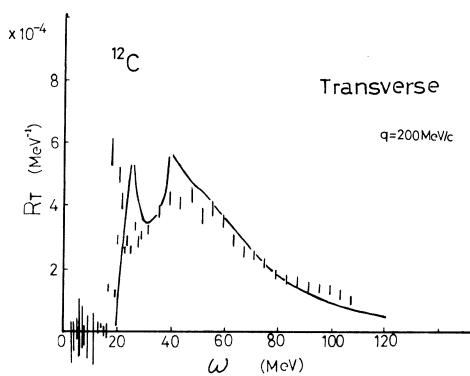
有効質量を用いて縦及び横成分応答関数を統一的に説明しようとする試みは、最近、G. Do. Dang 等も行っている¹³⁾。

次に、Kawazoe 等の独立粒子殻模型計算¹⁴⁾との比較を行う。第6～7図に ^{12}C に対する結果を示す。

この計算では残留相互作用は考えず、終状態は散乱状態とする一核子放出反応を仮定している。又、一体場としてウッド・サクソン型ポテンシャルを用いている。

巨大共鳴領域に鋭い単一粒子共鳴ピークが表れてしまうが、高励起エネルギー側での測定スペクトルとの一致は、位置、幅ともによい。しかし、この計算でも縦成分応答関数の再現は横成分よりも良くない。

以上の様に、縦成分に説明しきれない強度の不一致が残ってしまうが、一粒子放出反応を仮定したフェルミガス模型及び独立粒子殻模型は、準弾性散乱領域の測定スペクトルを比較的良く再現できる。特に横成分応答関数での計算値と測定値との一致は良い。



第6図 縦、横成分応答関数。 ^{12}C , $q=200$ MeV/c のもの。独立粒子殻模型¹⁴⁾との比較。

第7図 縦、横成分応答関数。 ^{12}C , $q=250$ MeV/c のもの。独立粒子殻模型¹⁴⁾との比較。

しかし、この事から独立粒子描像の妥当性について単純に結論することはできないであろう。そのためには、巨大共鳴領域を含めた解釈¹⁵⁾や、 $2p-2h$ 等の複雑な終状態を考慮する¹⁶⁾など核構造に対するより精密な検討を行い、縦横両成分応答関数を更に統一的に説明することが必要である。

§ 5. 総和則値

1) 総和則

応答関数の ω に対する積分（終状態に対する総和）を総和則値と言う。総和則は、短距離相関、テンサー相関など原子核の基本的な性質を解明する手掛かりとして、古くから議論されている。

これは、原子核の状態の closure 性により、総和則値が複雑な励起状態に依らず、基底状態の波動関数のみにより計算できる利点を持つためである。

以下、各実験値は、測定上限までの応答関数、あるいは ω の重みをつけた応答関数の和である。但し縦成分総和則値では、弾性散乱の寄与を取り除いてある。

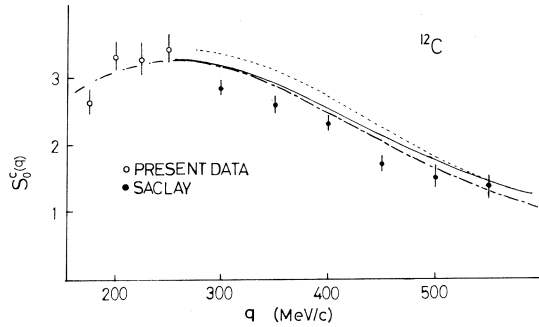
2) Energy Unweighted Sum Rule

^{12}C の縦成分総和則値 $S_0^C(q)$ の測定値と、Van Orden によるフェルミガス模型の計算値との比較を第8図に示す。ここでSaclayのデータ¹⁰⁾も併せてプロットしてある。高運動量移行領域で、フェルミガス模型は比較的良く測定点を再現しており、 ^{56}Fe の測定²⁾のように $\sim 50\%$ もフェルミガス模型の計算値より測定値が小さいということはない。

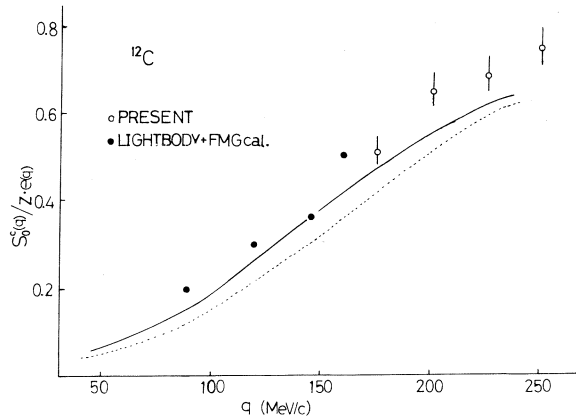
第8図には、F. Dellagiacomia等¹⁷⁾による調和振動子型殻模型基底を用い、基底状態相関として短距離相関、テンサー相関を考慮した計算も示した。

高運動量移行で両相関により計算値と測定値との一致は良くなる傾向にある。しかし彼らの計算は、弾性散乱の寄与を含み、又、今回の測定で得られた運動量移行での計算を行っていない。そこで、第9図にMalecki等¹⁸⁾による同様の計算値との比較を示す。但し、彼等は短距離相関のみを考慮し、テンサー相関は用いていない。この計算に依れば $q \leq k_F$ の運動量移行領域でも、短距離相関を考慮することに依り計算値の測定値に対する一致が改善される傾向にあると言える。

次に、 ^{12}C の横成分総和則値 $S_0^T(q)$ を第10図に示す。理論曲線は、やはりF. Dellagiacomia



第8図 ^{12}C に対する縦成分総和則値 $S_0^C(q)$ 。黒点は文献2)による。一点鎖線はフェルミガス模型による計算。他は、F. Dellagiacomia等による殻模型計算¹⁷⁾で、点線は二体相関を考えないもの、実線は短距離、テンサー相関を考慮したもの。



第9図 ^{12}C に対する縦成分総和則値 $S_0^C(q)$ 。Malecki等の殻模型計算¹⁸⁾との比較。但し核子の形状因子の寄与は取り除かれている。点線はパウリ相関のみ、実線は短距離相関も入れたもの。黒点はJ. W. Lightbodyによる ^{12}C $\omega < 37\text{MeV}$ の測定値にフェルミガス模型の計算値を加えたもの¹⁹⁾。

等¹⁷⁾の殻模型計算である。

殻模型計算により今回得られた測定値は非常に良く説明される事が分かる。但し、文献17)に依れば $S_0^T(q)$ に対する短距離、テンサー相関の寄与は小さく、今回の測定精度では判別が困難であると思われる。

3) Energy Weighted Sum Rule

ω の一次の重みをつけた総和則値 $S_1^{C,T}$ (q)は、R. Rosenfelder^{11,20)}、T. Suzuki²¹⁾等によって、準弾性電子散乱スペクトルのフェルミガス模型からのずれ $\bar{\epsilon}$ やスケールリング変数の平均値 \bar{y} と関係づけられ議論されており、二体相互作用のexchange part が主な寄与を成すことが示されている。

総和則値と \bar{y} 、 $\bar{\epsilon}$ との関係は、

$$\bar{y}^{C,T} = \frac{\bar{\epsilon}^{C,T}}{q} = \frac{1}{q} \left[\frac{S_1^{C,T}}{S_0^{C,T}} - \frac{q^2}{2M} \right] \quad (3)$$

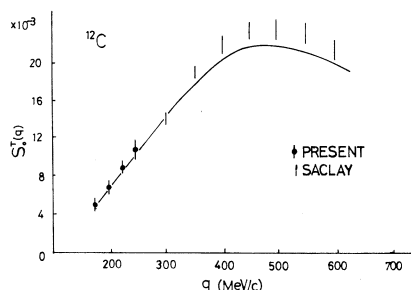
M : 核子の質量

となる。

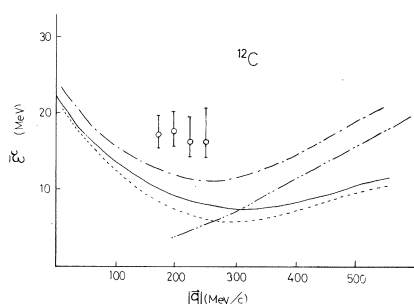
第11図にR. Rosenfelderの総成分 $\bar{\epsilon}^C$ の計算¹¹⁾と今回の測定値を示す。又、参考のためT. Suzuki²¹⁾によるフェルミガス模型の計算値も $\bar{\epsilon}$ に換算して図示した。R. Rosenfelderの計算値は、二体の相互作用に有効相互作用²²⁾を用い、基底状態相関には jj -coupling及びCohen-Kurathの相関を用いている。又、一点鎖線はhard coreを考慮したものである。

何れの計算も測定値より低い値を与える。この傾向は、R. Rosenfelder自身も指摘しているように¹¹⁾、使用した有効相互作用がテンサー部分を持たないためであることが、先ず考えられる。

実際、¹⁶Oの横成分 \bar{y}^T に対するものであるが、二体相互作用のテンサー部分を考慮しているF. Dellagiacoa等¹⁷⁾の計算結果では今回の¹²Cの横成分測定値と比較的良好一致が見られる。



第10図 ¹²Cに対する横成分総和則値 $S_0^T(q)$ 。曲線はF. Dellagiacoa等¹⁷⁾による殻模型計算。短距離、テンサー相関が考慮されている。



第11図 総和則値から求められる縦成分でのピークのずれ $\bar{\epsilon}$ 。実線と点線はガウス型の有効相互作用²²⁾と、それぞれCohen-Kurath, jj -couplingの基底状態相関を、また一点鎖線はhard coreと井戸型ポテンシャルを用いたR. Rosenfelderの殻模型計算¹¹⁾。二点鎖線はフェルミガス模型の計算²¹⁾。

第12図にその比較を示す。基底状態相関については2)で述べたものと同じく短距離、テンサー相関を用いている、また核子間二体相互作用には π 、 ρ 交換相互作用を用いている。

§ 5. 結 論

^{12}C 、 ^9Be 準弾性電子散乱スペクトルの縦及び横成分応答関数の分離を行った。

核子の運動量分布と有効質量近似を用いることにより相対論的フェルミガス模型に依る応答関数の再現性は大幅に改善される事が分かった。また、準弾性散乱スペクトルは、独立粒子殻模型に依り比較的良く再現される。

ω の重みを付けない総和則は、殻模型計算で良く説明される。特に横成分での一致がよい。縦成分では、短距離相関を考慮することで測定値の再現性が改善される。

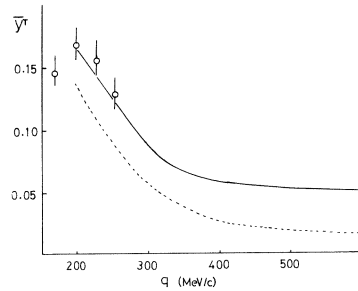
また、 ω の重みを付けた総和則では、テンサー部分を含む二体相互作用を用いた殻模型計算により測定値を説明できると思われる。

以上の様に q を一定にして準弾性電子散乱の縦及び横成分応答関数を分離測定することにより、原子核の高励起状態や基礎的な核子間相関に対する新たな情報が得られる。今後、他の核種に対する系統的な測定が期待される。

東北大・情教センター、川添良幸氏には、有益な御指示をいただくとともに、独立粒子殻模型¹⁴⁾の計算コードを使わせていただきました。厚く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) E. J. Moniz, I. Sick, R. R. Whitney, J. R. Ficenec, R. D. Kephart and W. T. Trower : Phys. Rev. Lett. **26** (1971) 445.
- 2) R. Altemus, A. Cafolla, D. Day, J. S. McCarthy, R. R. Whitney and J. E. Wise : Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 965.
- 3) J. V. Noble : Phys. Rev. Lett. **46** (1981) 412 ; L. S. Celenza, W. S. Pong,



第12図 横成分スケーリング変数平均値 \bar{y}_T 。測定値は ^{12}C のもの。計算は、F. Dellagiacoa 等による ^{16}O に対する殻模型計算¹⁷⁾、短距離、テンサー相関、及び点線は π のみ、実線は π 、 ρ 交換相互作用を用いている。

- M. M. Rahman and C. M. Shakin : Phys. Rev. C **27** (1983) 2729.
- 4) 萩野秀夫, 小山田正幸, 守和彦, 藤井芳明, 寺沢辰生, 鳥塚賀治 : 核理研研究報告 **16** (1983) 199.
 - 5) I. Sick and J. S. McCarthy : Nucl. Phys. **A 150** (1970) 631.
 - 6) M. Barnheim, T. Stovall and D. Vinciguerra : Nucl. Phys. **A 97** (1967) 488 ;
M. Bouten, M. C. Bouten, H. Depuydt and L. Schotsmans : Nucl. Phys. **A 127** (1969) 177.
 - 7) R. E. Rand, R. Frosch and M. R. Yearian : Phys. Rev. **144** (1966) 857.
 - 8) T. de Forest and J. D. Walecka : Adv. in Phys. **15** (1966) 1.
 - 9) J. W. Van Orden : Ph. D. Thesis, Stanford Univ. (1978) unpublished, private communication.
 - 10) P. Barreau *et al.* : Nucl. Phys. **A 402** (1983) 515.
 - 11) R. Rosenfelder : Ann. Phys. **128** (1980) 188.
 - 12) Magaret Sandel, J. P. Vary and S. I. A. Garpman. : Phys. Rev. C **20** (1979) 744.
 - 13) G. Do Dang and Pham Van Thieu : Phys. Rev. C **28** (1983) 1845 ;
G. Do Dang : to be published.
 - 14) Y. Kawazoe, G. Takeda and H. Matuzaki : Prog. Theo. Phys. **54** (1975) 1394.
 - 15) M. Cavinato, D. Drechsel, E. Fein, M. Marangoni and A. M. Seruis : Phys. Lett. **127 B** (1983) 295.
 - 16) Y. Horikawa, F. Lent and Nimai C. Mukhopadhyay : Phys. Rev. C **22** (1980) 1630 ;
L. S. Celenza, W. S. Pong and C. M. Shakin : Phys. Rev. C **27** (1983) 2792 ;
T. Tsukamoto and Y. Kawazoe : Phys. Rev. C **25** (1982) 1272.
 - 17) F. Dellagiacomma, R. Ferrari, G. Orlandini and M. Traini : Phys. Rev. C **29** (1984) 777.
 - 18) A. Malecki and P. Picchi : Phys. Lett. **43 B** (1973) 351.
 - 19) J. W. Lightbody Jr : Phys. Lett. **33 B** (1970) 129.
 - 20) R. Rosenfelder : Phys. Lett. **79 B** (1978) 15.
 - 21) T. Suzuki : Phys. Lett. **101 B** (1981) 298.
 - 22) V. Gillet : Nucl. Phys. **51** (1964) 410.

180°非弾性電子散乱による ^{40}Ca の 6^- , $T=1$ Stretched State の励起

核理研

穂積裕一・藤井芳昭・斎藤健治[†]

斎藤悌二郎

§ 1. 序言

最近の電子線形加速器, 実験方法の改良によって, 電子散乱実験において高いスピンを持つ状態を精度良く観測できるようになった。その中でも特に, 原子核内の粒子と空孔がスピンの最大値を与えるように結合している stretched high spin state $(j_p, j_h^{-1})_{\max}$ が興味を持たれている^{1,2)}。stretched high spin state は次のような特徴を持っている。

1. 始状態と終状態とが高いスピンを持つことから, stretched high spin state を作る粒子-空孔配位はほとんど1つに決まってしまう。
2. 電磁的相互作用によって stretched state を励起する場合には, 原子核の convection current の寄与がなくなりスピンの寄与だけになる。

このような特徴から, stretched high spin state の研究は原子核の殻模型を調べるのに非常に有効である。

今までのところ, 後方電子散乱及び180°電子散乱によって ^{24}Mg , ^{28}Si の $J^\pi=6^-, T=1$ などのいくつかの stretched high spin state が観測されているが³⁻⁶⁾, その強度は1粒子-1空孔配位を考えた理論計算による強度の $\frac{1}{2} \sim \frac{1}{6}$ しか観測されていない(強度の quenching)。このような quenching はM1, M2遷移⁷⁾や, (p, n)反応によって発見されたガモフ・テラ-遷移⁸⁾においても起っていて, 現在これらの quenching の現象を統一的に説明しようとする理論的研究が進められている。

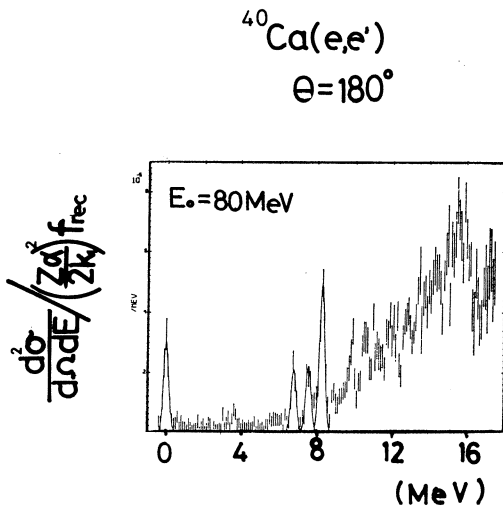
これまで ^{40}Ca において, 強い $6^-, T=1$ stretched state は存在しないと言われてきたが^{2,9)}, 最近Andersonらが $^{40}\text{Ca}(p, n)^{40}\text{Sc}$ 反応によって $6^-, T=1$ stretched state の存在を示唆する実験を行なった¹⁰⁾。そこで本研究においては, 180°非弾性電子散乱によって ^{40}Ca の $6^-, T=1$ stretched state を調べることを目的とした。よく言われるように, 180°電子散乱においては, アイソスカラー励起に比べてアイソベクトル励起が強調される¹¹⁾。したがって,

[†] 現在 高エネルギー研究所 茨城県筑波郡大穂町

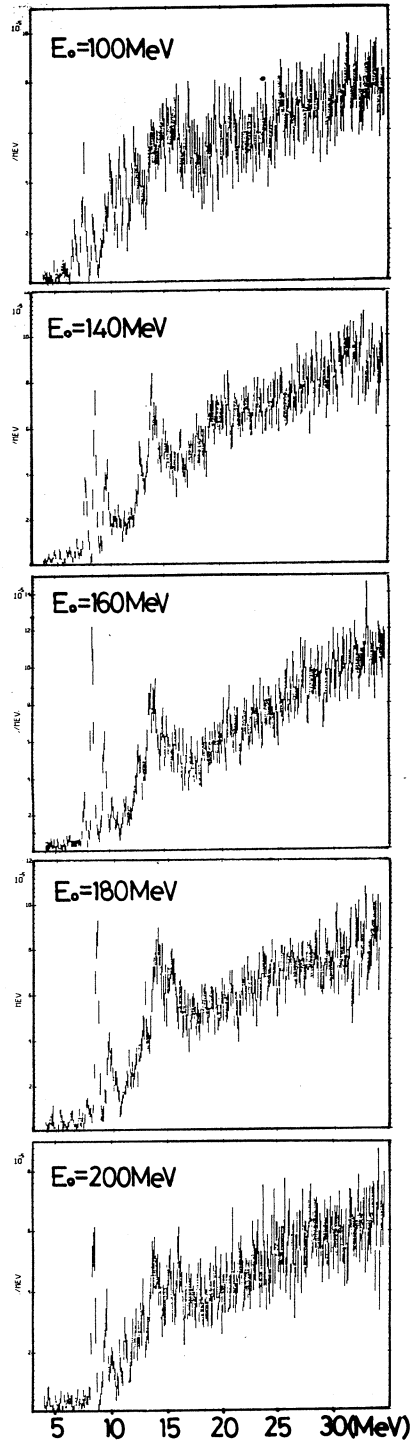
アイソベクトルM6遷移によって励起される ^{40}Ca の 6^- , $T=1$ stretched stateの研究に対して 180° 電子散乱実験が有利であると言えることができる。

§ 2. 実験

実験は東北大学核理研の電子線形加速器と 180° 電子散乱実験装置を用いて行なわれた。測定は入射電子エネルギーが80 MeVから200 MeVまで20 MeV間隔で7点について行なわれ、励起エネルギー5~35 MeVのスペクトルを得た。分解能は約



第1図 ^{40}Ca , 180° 電子散乱によるスペクトル。入射電子エネルギー80 MeVのスペクトルには弾性散乱ピークが出ている。これはスペクトロメーターが有限な立体角を持つために、クーロン散乱をした電子も測定しているからである。縦軸の f_{rec} は反跳因子。

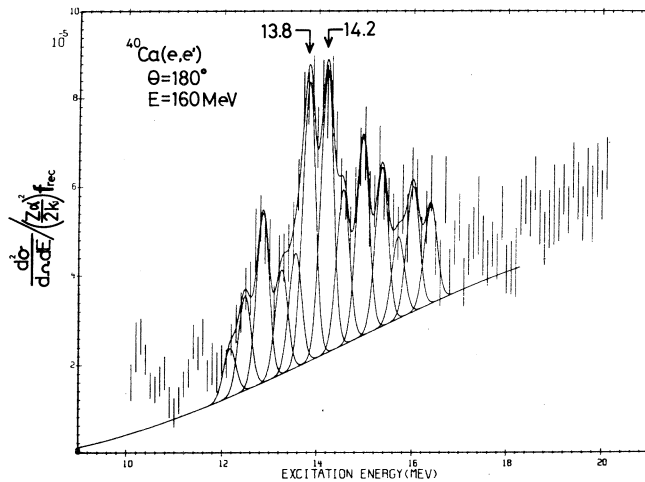


0.3%である。標的としては、厚さ 47.5 mg/cm^2 、純度 99.6% の ^{40}Ca のほかに、散乱断面積の絶対値を求めるために ^9Be 、ポリエチレンを用いた。得られたスペクトルの例を第1図に示す。

§ 3. 解析

3.1 ピーク分離

得られたスペクトルから形状因子を求めるために、ピーク分離による解析を行なった。まず初めに、連続状態からの寄与を3次の多項式で近似した。その際、曲線の立ち上がりの位置としては、 (r, α) 反応の閾値である 7 MeV を採用し、 18 MeV 付近で曲線が実験点と接するように、多項式の係数を決めた。次に、共鳴のピークの形としてガウス型を仮定し、連続状態からの寄与を差し引いたスペクトルをなるべく少ないピークで再現するように、ピークの位置、高さを $\text{CHIFIT}^{12)}$ によって求めた。ピークの幅については、 $7.7, 8.5 \text{ MeV}$ にある孤立したピークの幅を求め、今回解析を行なった励起エネルギー 16 MeV 付近でも変わらないと考えて、その幅をすべてのピークにおいて用いた。その値は約 350 keV 程度である。以上のようにして行なったピーク分離の例を第2図に示す。



第2図 ピーク分離の例。入射電子エネルギー 160 MeV 。矢印で示した2本のピークが、 6^- stretched state の可能性があるピーク。

3.2 理論計算

着目している共鳴状態のスピンを決める手掛りは、ピーク分離によって得られた共鳴状態の位置、形状因子と理論計算によって得られる位置、形状因子とを比較することによって得られ

る。今回の解析においては、Rowe ら¹³⁾によって開発された Open Shell RPA (OSRPA) による計算を行ない、その結果を用いた PWBA により形状因子の理論計算を行なった。PWBA においては、核子の有限な広がりに対する補正、原子核の重心に対する補正を行なった。以下においては、Rowe ら¹⁴⁾の表記法に従って OSRPA について簡単に説明する。

OSRPA では、基底状態に作用して励起状態を作る励起演算子は次のように表される。

$$O_{\lambda}^{\dagger} = \sum_{\alpha > \beta} \frac{1}{\sqrt{n_{\beta} - n_{\alpha}}} [Y_{\alpha\beta}(\lambda) A_{\alpha\beta}^{\dagger}(\Gamma) - Z_{\alpha\beta}(\lambda) A_{\alpha\beta}(\bar{\Gamma})] \quad (1)$$

ここで α , β は単一粒子準位を表わし、 n_{α} , n_{β} は基底状態における各準位の占有率である。OSRPA は、この占有率によって原子核の閉殻からのずれを取り込んでいる。 $A_{\alpha\beta}^{\dagger}(\Gamma)$, $A_{\alpha\beta}(\bar{\Gamma})$ は粒子-空孔の生成、消滅演算子である。励起演算子が(1)のように表されると、RPA 方程式と同じような次の方程式が成り立つ。

$$\begin{pmatrix} A & B \\ B^* & A^* \end{pmatrix} \begin{pmatrix} Y \\ Z \end{pmatrix} = \omega \begin{pmatrix} Y \\ -Z \end{pmatrix} \quad (2)$$

この方程式を解くことによって励起エネルギー ω が得られ、換算遷移確率 $B(W^J; i \rightarrow f)$ も次のように求まる。

$$B(W^J; i \rightarrow f) = \left| \sum_{\mu\nu T} F_{\mu\nu}(JT) \langle \mu \| W^{JT} \| \nu \rangle \right|^2 \quad (3)$$

ここで $F_{\mu\nu}(JT)$ は遷移振幅で、次のように定義される。

$$\begin{aligned} F_{\alpha\beta}(JT) &= \hat{T}^{-1} Y_{\alpha\beta}^*(\lambda) (n_{\beta} - n_{\alpha})^{\frac{1}{2}} \\ F_{\beta\alpha}(JT) &= \hat{T}^{-1} (-1)^{J+T+\alpha-\beta} Z_{\alpha\beta}^*(\lambda) (n_{\beta} - n_{\alpha})^{\frac{1}{2}} \end{aligned} \quad (4)$$

ただし、 $\alpha > \beta$, $\hat{T} = (2T+1)^{\frac{1}{2}}$, $\alpha - \beta = j_{\alpha} - j_{\beta}$ である。また $\langle \mu \| W^{JT} \| \nu \rangle$ は軌道角運動量とアイソスピンの両方に対して reduce された単一粒子行列要素である。

第1表 OSRPA 計算で用いた ^{40}Ca の占有率と単一粒子エネルギー。 n_a は ^{40}Ca の 1^+ の実験¹⁵⁾ から得られた占有率。 n_b は Gillet ら¹⁶⁾ によって求められた占有率。

次に具体的な計算方法について述べる。まず初めに、考える殻模型空間を $2s1d$ 殻と $1f2p$ 殻に切断(truncate)した。したがって ^{40}Ca の 6^- 状態は、 $1d_{5/2}$ と $1f_{7/2}$ の間の粒子-空孔生成、消滅演算子によってのみ励起されることになる。基底状態における各準位の

軌道	占有率 n_a	占有率 n_b	単一粒子エネルギー (MeV)
$1f_{5/2}$	0.0	0.04	13.4
$2p_{1/2}$	0.0	0.02	11.1
$2p_{3/2}$	0.0	0.03	9.0
$1f_{7/2}$	0.12	0.09	7.0
$1d_{3/2}$	0.76	0.87	0.0
$2s_{1/2}$	1.0	0.88	-2.3
$1d_{5/2}$	1.0	0.95	-6.2

占有率としては、第1表のような2通りの値を用いた。占有率 n_a は、 ^{40}Ca の電子散乱実験で得られた 1^+ 状態の励起エネルギーを説明するように決められた値である¹⁵⁾。占有率 n_b は、Gillet ら¹⁶⁾ が理論計算によって求めた値である。各準位の単一粒子エネルギーとしては、Gillet ら^{16,17)} がいろいろな実験結果から求めた値を用いた。この値も第1表に示す。次に、計算において用いた二体の残留相互作用は次の形の中心力である。

$$V = \sum_{TS} P^{TS} V_c^{TS} f_c(r) \quad (5)$$

ここで P^{TS} はアイソスピン T 、スピン S 状態への射影演算子である。 V_c^{TS} は相互作用の強さで、今回の計算においては Gillet ら¹⁶⁾ によって与えられている核力のパラメータ

第2表 Gillet ら¹⁶⁾ による力のパラメータ CAL。単位 MeV。

V_c^{01}	V_c^{10}	V_c^{00}	V_c^{11}
-45	-22.5	29.3	6.8

CAL を用いた。その値を第2表に示す。また $f_c(r)$ としては、次のようなガウス型を仮定した。

$$f_c(r) = \exp\left(-\left(\frac{r}{\mu}\right)^2\right) \quad (6)$$

ここで μ は到達距離を表わし、その値も Gillet らに従い

$$\mu = 1.7 \text{ fm}$$

とした。以上の二体相互作用の行列要素の計算では、単一粒子波動関数の動径部分として調和振動子ポテンシャルの解を用いた。その際、oscillator parameter b については次の2つの値を採用して比較を行なった。

$$b = \begin{cases} 1.89 \text{ fm} \cdots \text{Gillet and Sanderson}^{16)} \\ 2.03 \text{ fm} \cdots \text{Donnelly and Walker}^{18)} \end{cases}$$

二体相互作用の行列要素の実際の計算においては、東京大学原子核研究所の小川氏の計算コードを使用させていただいた。

§ 4. 結果及び考察

4.1 OSRPAの結果

OSRPA による各多重極度を持つ状態の励起エネルギーの計算結果を第3図に示す。図からわかるように、 6^- が予想される14 MeV 付近には $1^- \sim 5^-$ のすべての多重極度の励起状態が予想

第3表 ^{40}K の IAS の励起エネルギーの実験値¹⁹⁾ と計算値 (占有率は n_b) との比較。

J^π	実験値 $E_{\text{exp}}(\text{MeV})$	計算値 差				
		$E_{\text{th}}(\text{MeV})$	$E_{\text{exp}} - E_{\text{th}}$ (MeV)			
			$b=1.89$	$b=2.03$	$b=1.89$	$b=2.03$
4^-	7.66	7.55	7.46	0.11	0.20	
3^-	7.69	7.73	7.65	0.04	0.04	
2^-	8.42	8.77	8.58	0.35	0.16	
5^-	8.55	8.28	8.14	0.27	0.41	

第4表 理論計算による ^{40}Ca , 6^- stretched state の励起エネルギー。

	計算値 (MeV)	oscillator parameter (fm)
Present calculation (占有率 n_b)	14.0 13.9	1.89 2.03
Rowe <i>et al.</i>	14.5	2.03
Donnelly <i>et al.</i>	14.7	2.03
Gillet <i>et al.</i>	13.9	1.89

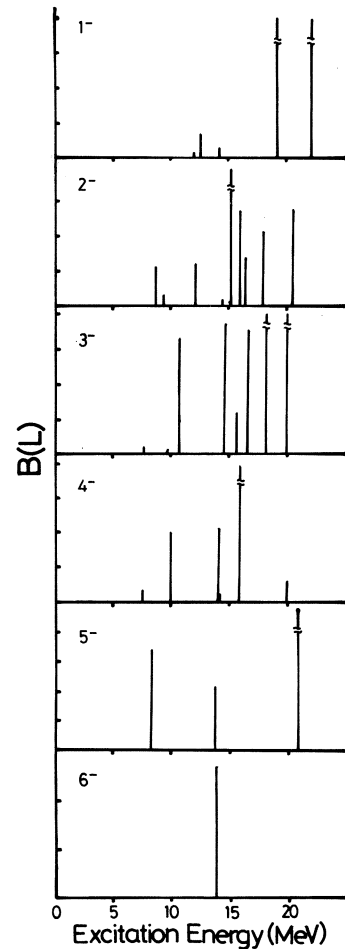
される。この理論計算の信頼度を確かめるために、 ^{40}K の isobaric analog state として実験で良く知られている 4^- , 3^- , 2^- , 5^- について、実験値¹⁹⁾と理論値との比較を行なった。その結果を第3表に示す。この表から、OSRPAによる励起エネルギーの値には500 keV程度の誤差があると考えらる。第4表には、OSRPAによる 6^- stretched stateの励起エネルギーの値を、Roweら¹⁴⁾によるOSRPA計算の値、Donnellyら¹⁸⁾による簡単な粒子-空孔模型計算の値、Gilletら¹⁶⁾によるRPA計算の値と共に示す。我々の計算とRoweらとの違いは、主に用いた単一粒子エネルギーの値の違いによるものと思われる。Roweらは文献20)で述べられている内挿法によって求めた値を用いている。

次に、OSRPAによって計算された 6^- stretched stateへのM6遷移に対する遷移振幅 $F_{1f7/2, 1d5/2}$, $F_{1d5/2, 1f7/2}$ を第5表に示す。我々の計算とRoweらとの違いは、主に占有率の違い

第5表 ^{40}Ca のM6遷移に対する遷移振幅。

	$F_{1f7/2, 1d5/2}$	$F_{1d5/2, 1f7/2}$
Present calculation (占有率 n_b)	$b=1.89$ 0.535 $b=2.03$ 0.535	0.013 0.012
Rowe <i>et al.</i>	0.577	0.012

^{40}Ca T=1
OSRPA
($b=1.89$ fm)



第3図 OSRPAによる各多重極状態の励起エネルギー。占有率は n_b , oscillator parameter $b=1.86$ fm。

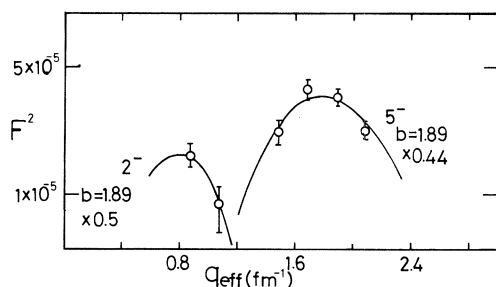
によるものと思われる。RoweらはOak-Ridge Rochester shell model codeによって基底状態を計算して占有率を求めている。

4.2 PWBAによるIASの形状因子と実験との比較

本研究において求められた形状因子がどの程度信頼できるかを確かめるために、 ^{40}K の isobaric analog state である 2^- (励起エネルギー 8.42 MeV), 5^- (8.55 MeV) の形状因子について実験値と理論値との比較を行なった。その様子を第4図に示す。図より、理論曲線は実験点の有効運動量移行依存性を良く再現していると言える。ただし理論曲線には、次式で定義される reduction factor 0.5, 0.44 が掛けられているので、強度は再現されていない。

$$\text{reduction factor } R = \frac{F_{\text{exp}}^2}{F_{\text{th}}^2}$$

ここで F_{exp}^2 は実験で得られた形状因子, F_{th}^2 は理論計算による形状因子である。

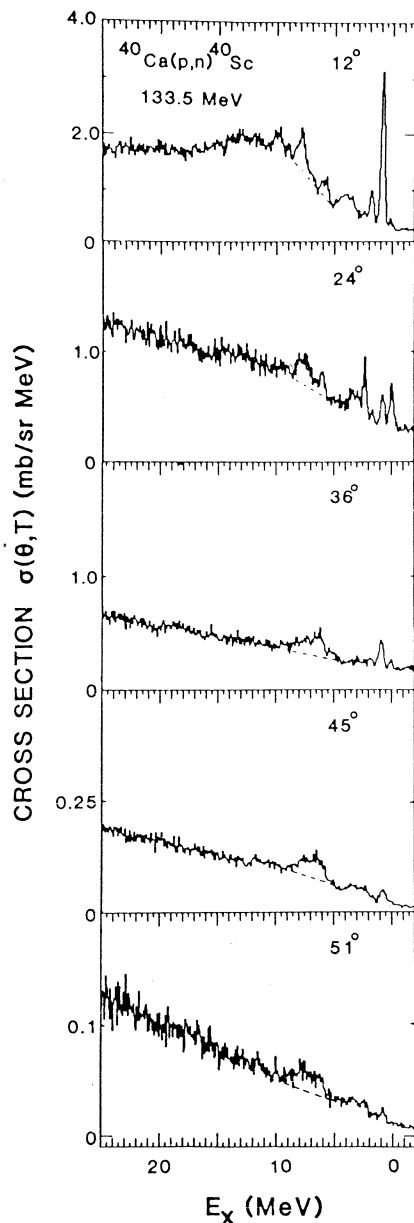


第4図 ^{40}K の isobaric analog state 2^- , 5^- に対する理論計算 (n_b , $b = 1.89$ fm) による形状因子と実験との比較。

4.3 $^{40}\text{Ca}(p, n)^{40}\text{Sc}$ による 6^-

stretched state

Andersonら¹⁰⁾は $^{40}\text{Ca}(p, n)^{40}\text{Sc}$ の実験によって、第5図のようなスペクトルを測定し、 ^{40}Sc の励起エネルギー 5.5~8.8 MeV (^{40}Ca の励起エネルギーでは 13.2~16.5 MeV)の範囲に存在する幅の広い状態に対し

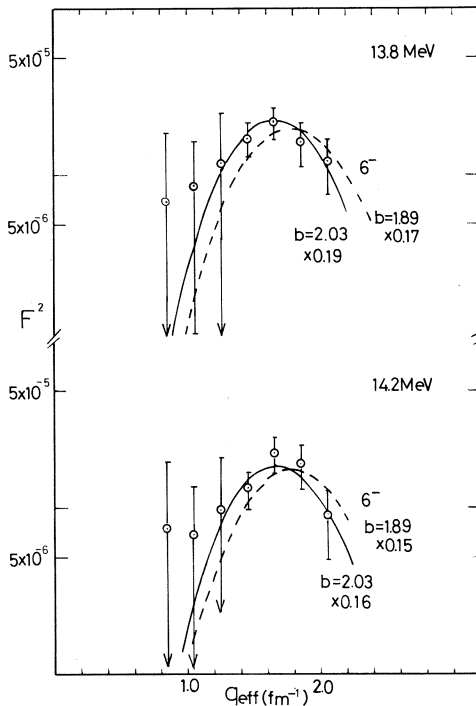


第5図 $^{40}\text{Ca}(p, n)^{40}\text{Sc}$ 反応によるスペクトル¹⁰⁾。入射陽子エネルギー 133.5 MeV。横軸は ^{40}Sc の励起エネルギーである。

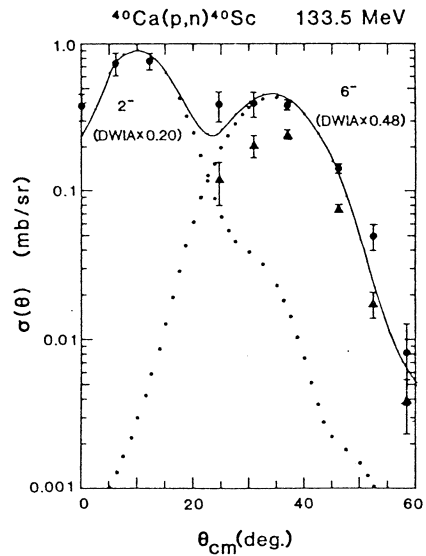
て第6図のような角分布を得た。図中の黒丸は5.5~8.8 MeV 全領域に対する角分布を表わし、三角は5.5~7.2 MeV の領域に対する角分布を表わす。Andersonらはこの角分布から、5.5~8.8 MeVの幅広い状態を($\pi f_{7/2}, \nu d_{5/2}^{-1}$)の配位による 6^- , $T=1$ の stretched state で説明し、 6^- の強度はこの領域全体に広がっていると考えている。

4.4 180°電子散乱による 6^- stretched state

以上のようなAndersonらの実験結果を踏まえ、OSRPAによる励起エネルギーの計算値を参考にして、 6^- stretched state が存在すると思われる励起エネルギー12~16 MeVの領域に



第7図 13.8, 14.2 MeVのピークの形状因子と 6^- の理論曲線(占有率は n_b)との比較。



第6図 $^{40}\text{Ca}(p, n)^{40}\text{Sc}$ 反応によって測定された7 MeV付近の励起状態の角分布とDWIA計算による 2^- , 6^- 状態との比較¹⁰⁾。黒丸は5.5~8.8 MeV, 三角は5.5~7.2 MeV領域に対する角分布。

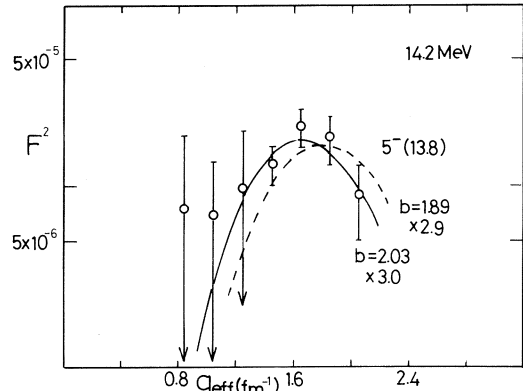
に対するピーク分離の結果を検討した。第2図からわかるように、励起エネルギー13.8 ± 0.1 MeVと14.2 ± 0.1 MeVに比較的強く励起されたピークが2本存在するので、最初はこのピークに着目した。この2本のピークの形状因子と、OSRPAの結果を用いた 6^- のPWBA計算との比較を第7図に示す。ただし、PWBAによる形状因子には reduction factor 0.17 又は 0.19, 0.15 又は 0.16 が掛けてある。図から、この2本のピークが 6^- stretched state である可能性があると考えられる。

しかし、 ^{40}Ca においてsd殻とfp殻の間の $1\hbar\omega$ (約12 MeV)励起のみを考えた場合 6^- stretched state は($1 f_{7/2}, 1 d_{5/2}^{-1}$)配位

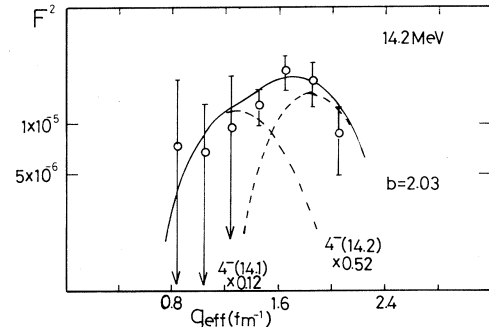
のM6遷移によってのみ励起されるので、今着目している励起エネルギー領域に 6^- stretched state は1つだけ存在すると予想される。(同じsd殻の原子核である ^{24}Mg , ^{28}Si においては、 6^- , $T=1$ stretched state は1つだけしか観測されていない³⁻⁶⁾。)この予想の下に、13.8 MeVと14.2 MeVの2つのピークの中で13.8 MeVのピークを 6^- stretched state と仮定し、14.2 MeVのピークを他の多重極度の励起状態で説明することを試みる。例えば第8図のように 5^- (OSRPAによる励起エネルギーは13.8 MeV)によって説明することができる。ただし、reduction factor は2.9又は3.0である。しかし、 5^- (13.8 MeV)は 6^- とほとんど同じ形の形状因子が予想されるので、電子散乱によって 6^- と 5^- の区別は難しい。ただし、 5^- (13.8 MeV)のPWBAによる形状因子(最大 6×10^{-6})は 6^- のPWBAによる形状因子(最大

1.1×10^{-4})に比べて約1/18の大きさなので、 5^- (13.8 MeV)がそれほど強く励起されるとは考えにくい。14.2 MeVのピークの他の説明方法としては、第9図のように 4^- (14.1 MeV), 4^- (14.2 MeV)の2つの励起状態の重ね合せとして説明する方法も考えられる。

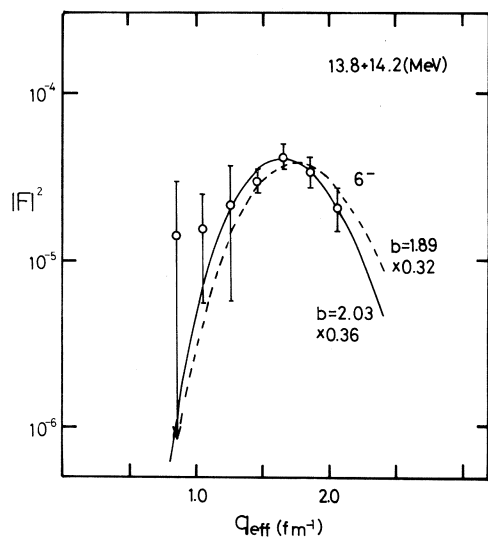
一方、 ^{40}Ca の基底状態が何らかの理由で閉殻状態から大きくずれていると考えて、 ^{40}Ca の 6^- stretched state が2本以上のピークに分散しているとも考えることもできる。 ^{60}Ni においては 8^- , $T=3$ stretched state が数本のピークに分散しているのが観測されている²¹⁾。)この考えに従って、13.8 MeVと14.2 MeVのピーク共に 6^- stretched state の可能性があるとして、2つの形状因子の和と 6^- の理論曲線との比較を行なった。それを第10図に示す。 q_{eff} の高い所で、理論曲線は実験点を良く再現している。 $b=2.03$ fmの時 reduction factor は 0.36 ± 0.12 で、(p, n)反応によって求められた0.48に近い値になっている。また、2本のピークを考えた方が、 6^- stretched state の強度は幅が約2.5 MeVの領域に分散しているという



第8図 14.2 MeVのピークの形状因子と 5^- の理論曲線(占有率は n_b)との比較。



第9図 14.2 MeVのピークの形状因子と 4^- の理論曲線(占有率は n_b)との比較。



第10図 13.8, 14.2MeV のピークの形状因子の和と 6^- の理論曲線 (占有率は n_b) との比較。

単一粒子モデルによるPWBA計算も行った。その結果、形状因子の形はOSRPAを用いた時と同じであったが、強度に関してはOSRPAを用いた時よりも実験との合いが悪くなった。第6表に、以上のreduction factorをまとめておく。

4.5 他の原子核における stretched state との比較

まず初めに、 ^{40}Ca と同様にsd殻の原子核である ^{24}Mg , ^{28}Si の 6^- , $T=1$ stretched stateと本研究で得られた結果との比較を行なう。以前、核理研において 180° 電子散乱によって観測された ^{24}Mg のスペ

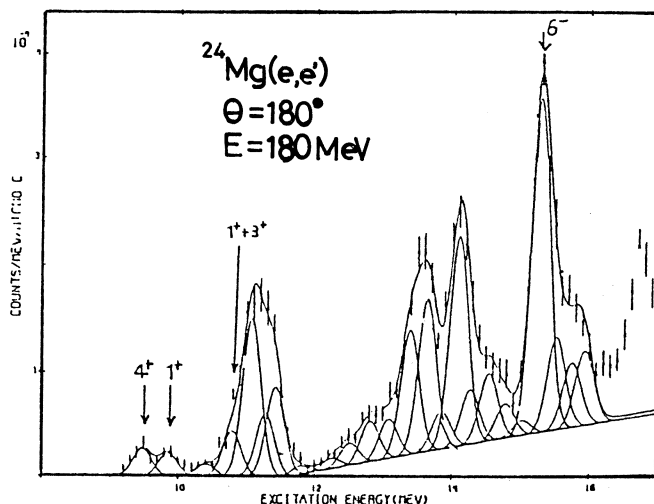
Andersonらの意見とも一致する。

ここでoscillator parameter b について触れておく。第7, 10図からわかるように、13.8MeV, 14.2MeVのピークのどちらか1本又は両方が 6^- stretched stateだとすると、 b としては1.89 fmよりも2.03 fmの方が実験との合いが良い。それに対して、Andersonらが理論計算に用いた値は $b = 1.89$ fmである。

以上の第7~10図の理論曲線は、Gilletらによる占有率 n_b を用いた結果であるが、 ^{40}Ca の 1^+ の実験から求めた占有率 n_a を用いた形状因子の形も上の場合と変わらず、reduction factorも同じ値であった。また比較のために、

第6表 本研究で得られた ^{40}Ca , 6^- stretched stateのreduction factor R 。oscillator parameter $b = 2.03$ fm。

	O S R P A		単一粒子模型
	n_a	n_b	
R	0.36 ± 0.12	0.36 ± 0.12	0.27 ± 0.09



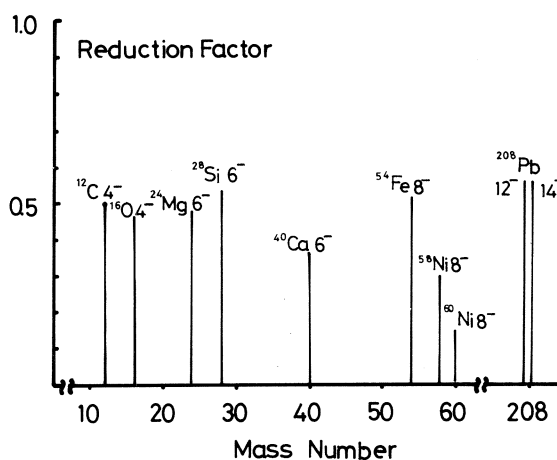
第11図 ^{24}Mg , 180° 電子散乱によるスペクトル⁴⁾。入射電子エネルギーは180 MeV。

クトルを第11図に示す⁴⁾。これを第2図と比較すると、²⁴Mgの方が励起準位の数が少なく6⁻ stretched stateを独立に取り出しやすいことがわかる。次に、²⁴Mg, ²⁸Si, ⁴⁰Caの6⁻, T=1 stretched stateの励起エネルギーと強度について第7表にまとめた。²⁴Mgと²⁸Siの強度は理論の約半分であるのに対して、⁴⁰Caの強度は理論の半分以下である。これは、²⁴Mgや²⁸Siに比べて⁴⁰Caの1d_{5/2}軌道はフェルミ面から深い所にあり、その上にある2s_{1/2}, 1d_{3/2}軌道に存在する核子が6⁻ stretched stateを励起するM6遷移に影響を及ぼし、6⁻ stretched stateの強度を弱めていると考えることもできる²⁾。

stretched stateはsd殻核以外の原子核においても観測されており、その強度は理論値の $\frac{1}{2} \sim \frac{1}{6}$ しか観測されていない。その様子を第12図^{1, 22)}に示す。測定はすべて後方電子散乱によって行なわれた。このうち、²⁴Mg, ²⁸Si, ⁴⁰Ca, ⁵⁸Ni, ⁶⁰Niの形状因子の理論計算にはOSRPAが用いられている。本研究で得られた⁴⁰Caのreduction factorは^{58, 60}Niよりは大きいものの、他の原子核に比べると小さい。これは、⁴⁰Caの6⁻ stretched stateが分散していること、今回の解析では見つけることができなかったことによるとも考えられる。また、⁴⁰Caの実際の基底状態が、本研究の理論計算において考えた基底状態よりも、もっと複雑になっていることによるとも考えられる。

第7表 電子散乱によるsd殻核の6⁻, T=1 stretched stateの励起エネルギーの実験値E_{exp}, 理論値E_{th}とreduction factor R。

	E _{exp} (MeV)	E _{th} (MeV)	R
²⁴ Mg	15.1 ³⁾	17.6 ¹⁴⁾	0.48
	15.3 ⁴⁾	14.5 ⁴⁾	0.47
²⁸ Si	14.4 ⁶⁾	16.9 ¹⁴⁾	0.53
⁴⁰ Ca	13.8	14.0	0.36
	14.2		



第12図 電子散乱によって観測されたstretched stateの強度^{1, 22)}。実験データはそれぞれ次の文献を参考にした。¹²C (23), ¹⁶O (24), ²⁴Mg (3, 4), ²⁸Si (5, 6), ⁵⁴Fe (25), ⁵⁸Ni (26), ⁶⁰Ni (21), ²⁰⁸Pb (27)。このうち、²⁴Mg, ²⁸Si, ⁴⁰Ca, ⁵⁸Ni, ⁶⁰Niの形状因子の理論計算にはOSRPAが用いられている。

§ 5. 結論

^{40}Ca の 180° 非弾性電子散乱によって、励起エネルギー 13.8 MeV, 14.2 MeV に比較的強度の強いピークが観測された。それらのピークの形状因子と OSRPA の結果を用いた PWBA による形状因子とを比較することにより、2本のピーク共に $(1 f_{7/2}, 1 d_{5/2})$ 配位による 6^- , $T=1$ の stretched state として説明できる可能性があることがわかった。本研究で得られた励起エネルギーは、 (p, n) 反応による実験から得られた値、OSRPA によって理論的に予想される値と良く一致する。2本のピーク共に 6^- stretched state と仮定したとき、reduction factor は 0.36 であった。

2本のピークが 6^- stretched state であることを確認し、reduction factor が小さい原因を探るために、より統計精度の良い実験を行なう必要がある。また、stretched state の分散と強度の quenching とを説明できるような理論の改良が望まれる。

参 考 文 献

- 1) B. Frois : *From Collective States to Quarks in Nuclei*, Lecture Notes in Physics. **137** ed. H. Arenhövel and A.M. Saruis (Springer-Verlag, New York 1981) p. 55.
- 2) W. Bertozzi : Nucl. Phys. **A 374** (1982) 109 c.
- 3) H. Zarek *et al.* : Phys. Rev. Lett. **38** (1977) 750 ; Phys. Rev. Lett. **47** (1981) 394.
- 4) 斎藤健治 : 博士論文, 東北大学, 1983.
- 5) T.W. Donnelly Jr. *et al.* : Phys. Lett. **32 B** (1970) 545.
- 6) S. Yen *et al.* : Phys. Lett. **93 B** (1980) 250.
- 7) W. Knüpfner *et al.* : Phys. Lett. **95 B** (1980) 349.
- 8) 鈴木敏男, 池田清美 : 日本物理学会誌 **37** (1982) 664.
- 9) J.W. Watson *et al.* : Phys. Rev. **C23** (1981) 2373.
- 10) B. D. Anderson *et al.* : Phys. Lett. **123 B** (1983) 383.
- 11) 穂積裕一 : 修士論文, 東北大学, 1984.
- 12) P. R. Bevington : *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences* (McGraw-Hill, 1969).
- 13) D. J. Rowe : Rev. Mod. Phys. **40** (1968) 153 ; Nucl. Phys. **A 107** (1968) 99.

- 14) D. J. Rowe *et al.* : Nucl. Phys. **A 298** (1978) 31.
- 15) W. Gross *et al.* : Phys. Lett. **84 B** (1979) 296.
- 16) V. Gillet and E. A. Sanderson : Nucl. Phys. **A 91** (1967) 292.
- 17) V. Gillet and E. A. Sanderson : Nucl. Phys. **54** (1964) 472.
- 18) T. W. Donnelly and G. E. Walker : Ann. Phys. **60** (1970) 209.
- 19) P. M. Endt and C. Van der Leun : Nucl. Phys. **A 214** (1973) 1.
- 20) S. S. M. Wong *et al.* : Phys. Lett. **48 B** (1974) 403.
- 21) R. A. Lindgren *et al.* : Phys. Rev. Lett. **47** (1981) 1266.
- 22) R. A. Lindgren *et al.* : Phys. Rev. Lett. **42** (1979) 1524.
- 23) T. W. Donnelly *et al.* : Phys. Rev. Lett. **21** (1968) 1196 ;
A. Yamaguchi *et al.* : Phys. Rev. **C3** (1971) 1750.
- 24) I. Sick *et al.* : Phys. Rev. Lett. **23** (1969) 1117.
- 25) R. A. Lindgren *et al.* : Phys. Rev. Lett. **46** (1981) 706.
- 26) R. A. Lindgren : Phys. Rev. Lett. **40** (1978) 504.
- 27) J. Lichtenstadt *et al.* : Phys. Rev. **C20** (1979) 497.

奇核の巨大共鳴 (I) ^{63}Cu

核理研, 情教センター*, 教養部**

横川 淳・荻野秀夫・穂積裕一

小山田正幸・寺沢辰生・小黒 瞬

鳥塚賀治・川添良幸*・宮瀬晴久**

坪田博明**

The giant multipole resonances in ^{63}Cu have been investigated by electron scattering. The conventional method of multipole expansion is extended to treat all of the data in (q, ω) plane so as to deduce the multipole response functions.

The excitation energies and the widths of giant multipole resonances are compared to the neighbouring isotones. The presently measured C1 component is shown to be consistent with the photo reaction data by the Siegert theorem.

§ 1. 序

偶核を標的核とした電子散乱実験は、軽い核から重い核まで系統的に行なわれており、各多重極巨大共鳴の励起エネルギー (E_R) 及び幅 (Γ) の質量数依存性が調べられている。^{1,2)} しかし奇核に対しては、巨大共鳴を研究目的とした電子散乱実験は殆ど行なわれていない。奇核を系統的に調べることによって、偶核と奇核との間に E_R , Γ の質量数依存性の違いが現われることも考えられ、原子核の巨大共鳴の性質に新しい情報を提供することが期待される。

今回標的核として、解析上非常に参考になる光核反応の実験データ³⁻⁵⁾ がそろっている ^{63}Cu を選び、特に縦成分を調べる為に前方での電子散乱実験を行ない、巨大共鳴領域について考察を行なった。

また次回に予定している ^{65}Cu の実験データと今回得られた実験データとを比較することによって、奇核のアイソベクトル型巨大共鳴のアイソスピンスプリッティングと、基底状態のアイソスピンの大きさとの関係が分かり、アイソスピン依存性についての知識が得られる。特にアイソベクトル型四重極巨大共鳴のアイソスピンスプリッティングについては理論的予言⁶⁾ があるだけなので、大いに興味を持たれている。

§ 2. 実験

東北大学原子核理学研究施設 300 MeV 電子線型加速器からの電子線を ^{63}Cu に照射し、散乱電子を大型電子線スペクトロメータ (LDM) で運動量分析した後、焦点面上にある 33 チャンネルの半導体検出器 (SSD) で検出した。実験に用いた 2 枚のターゲットの厚さ及び純度を第 1 表に示す。これらのターゲットの純度では、巨大共鳴領域に ^{63}Cu 以外のものによって生じる影響はほとんどない。実験条件及びエネルギー分解能を第 2 表に示す。但しエネルギー分解能は得られた弾性散乱のピークの半値幅を示している。有効運動量移行は $E_x = 20 \text{ MeV}$ での値である。測定した励起エネルギー範囲は多少ばらつきがあるがおよそ 50 MeV までである。9 と 10 の実験条件に於いては、微分断面積が小さいので、効率を上げるために厚いターゲットを用いた。他の実験条件に於いては薄いターゲットを用いた。これは以下の理由による。弾性散乱断面積が非常に大きいと、その輻射による裾の見積りの誤りが、巨大共鳴領域の断面積に大きく影響する。このため、輻射補正が非常に困難な外部輻射 (external radiation) を小さくする必要があるのである。この輻射は、ターゲットの厚さの自乗に比例するので、弾性散乱断面積が大きい実験に対しては薄いターゲットを使用した。

第 1 図に理論計算による ^{63}Cu の形状因子の有効運動量移行 (q_{eff}) 依存性、及び今回の実験条件に対応する有効運動量移行の値を示す。ここでは DWBA による計算コード DUELS を用いた。遷移電荷密度として、C1 については Goldhaber -

第 1 表 実験で使用したターゲットの厚さ及び純度。

ターゲット	厚さ	純度
a ^{63}Cu	10.1 mg/cm ²	98% 以上
b ^{63}Cu	80.24 mg/cm ²	99.9%

第 2 表 実験条件及びエネルギー分解能。

設定番号	入射電子エネルギー ; E_i (MeV)	散乱角 ; θ (deg)	エネルギー分解能 (MeV)	有効運動量移行 ($E_x = 20 \text{ MeV}$ で) (fm ⁻¹)	ターゲット
1	100	30	0.29	0.29	a
2	140	30	0.26	0.39	a
3	140	40	0.25	0.50	a
4	220	30	0.32	0.59	a
5	220	35	0.28	0.68	a
6	220	40	0.30	0.78	a
7	220	45	0.31	0.87	a
8	220	50	0.30	0.96	a
9	220	55	0.30	1.04	b
10	220	60	0.31	1.13	b

Teller 模型⁷⁾を, C2, C3, C4 については Tassie 模型⁸⁾を仮定している。基底状態の電荷分布は, 2変数型 Fermi 分布⁹⁾

$$\left. \begin{aligned} \rho(r) &= \frac{\rho_0}{1 + \exp((r-c)/z)} \\ c &= 4.214 \text{ fm} \quad z = 0.586 \text{ fm} \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

を用いた。この図より C1 成分から C4 成分までが強調される広い領域で実験が行なわれていることが分かる。

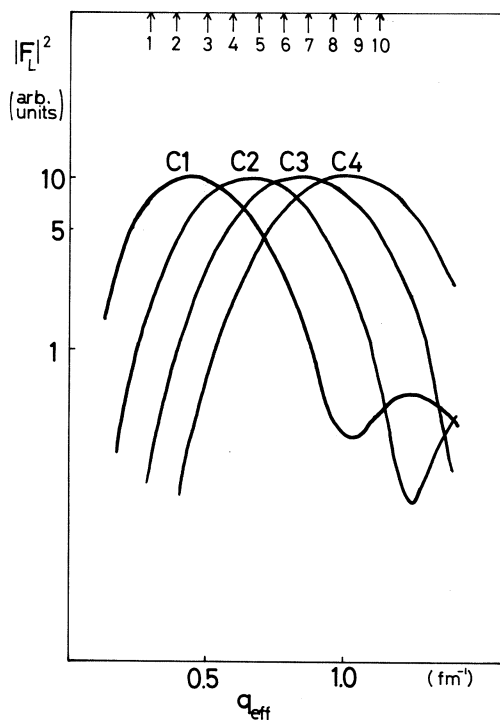
得られたスペクトルに輻射補正を施し, 同じ条件で測定した¹²C 弾性散乱断面積により規格化を行ない散乱微分断面積

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_x} = \sigma_M \eta \frac{d\omega}{dE_x} Z^2 R(q_{\text{eff}}, E_x) \quad (2)$$

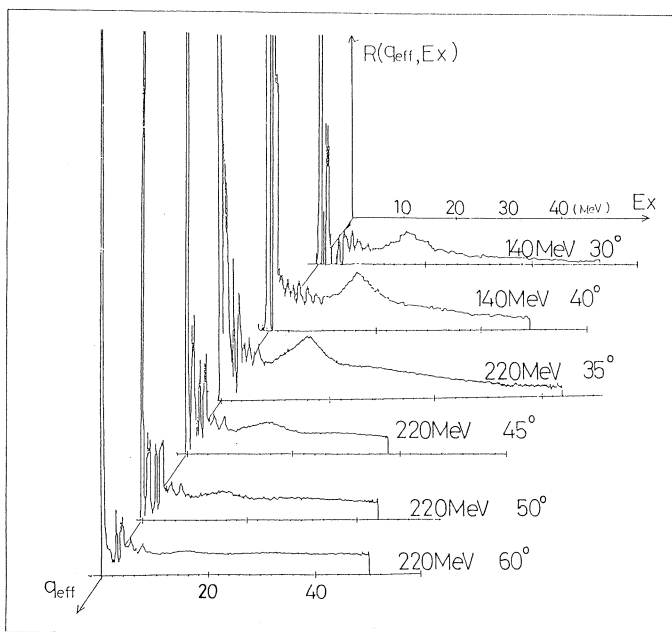
を求めた。ここで σ_M は Mott 断面積, η は反跳因子, Z は原子番号,

$R(q_{\text{eff}}, E_x)$ は応答関数

である。式(2)によって求めた応答関数のいくつかを第2図に示す。



第1図 ⁶³Cu の形状因子の q_{eff} 依存性。上の番号と矢印は, 設定番号とそれに対応する q_{eff} の値。



第2図 実験によって得られた応答関数。

§ 3. 解析方法及び結果

第2図を見ると, q_{eff} によって応答関数の励起エネルギー依存性が変化していることが分かる。このことより ^{63}Cu のこの励起エネルギー領域には, 異なる多重極度を持ったいくつかの共鳴状態が存在していることが予想される。今回は特にC1, C2の巨大共鳴に着目して, それらの存在が期待される11 MeVから37 MeVの間の実験データについて, 以下に述べる2通りの方法で解析を行なった。

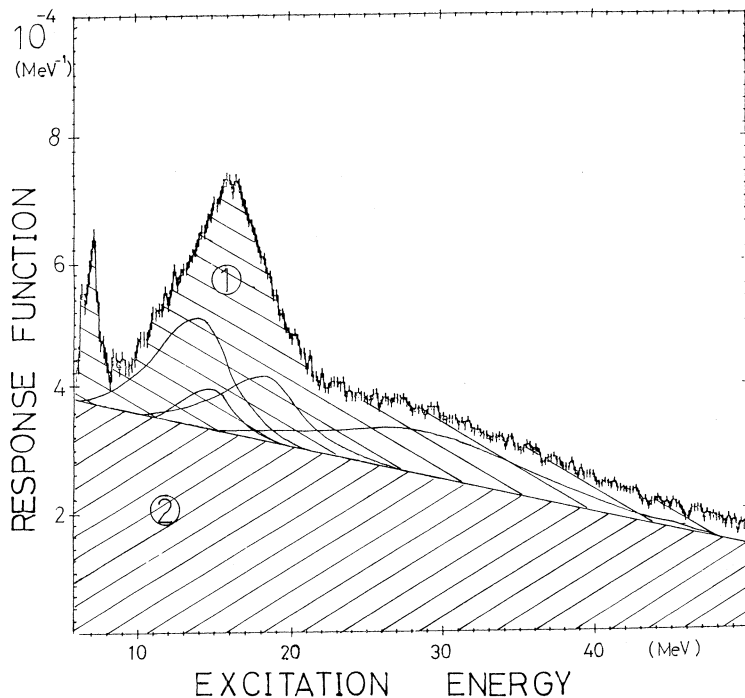
3.1 多重極ピーク分離

有効運動量移行 q_{eff} , 励起エネルギー E_x の2変数関数として応答関数が得られるという電子散乱の特徴を利用する。

ある入射電子エネルギー, ある散乱角で測定された応答関数に着目する(第3図参照)。これは

- ① 構造がある部分
- ② ほとんど構造がない部分

から出来ていると考えられる(以下①②と省略)。①はいくつかのクーロン励起による巨大共



第3図 $E_i = 220 \text{ MeV}$, $\theta = 35^\circ$ で測定された応答関数。①構造がある部分, ②構造がない部分。

鳴から成り立っていると考えられる。②は非共鳴的な連続状態からの寄与、横成分、弾性散乱の裾の見積りの誤り等が考えられる。

①の部分を説明する為に、巨大共鳴状態の応答関数に対して、次の A. B. を仮定する。

A. 各多重極成分の応答関数の q_{eff} 依存性は液滴模型で計算した形状因子の q_{eff} 依存性(第 1 図)によって表される。

他の多くの実験によってこの仮定の妥当性は裏付けられている。

B. 各共鳴の応答関数の E_x 依存性は、中心エネルギー E_R 、幅 Γ によって定まる Breit - Wigner 型¹⁰⁾

$$B \cdot W(E_x, E_R, \Gamma) = \frac{\left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}{(E_x - E_R)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \times \frac{E_x}{E_R} \quad (3)$$

に従う。

この仮定の妥当性については、後で述べる。

次に、ほとんど構造がない部分②を決める為に

C. 各スペクトルに、巨大共鳴以外の部分があり、それは直線 $Q(E_x, b, b')$ で表されると仮定する。

ここで実験データが、直線及びいくつかの巨大共鳴で再現できるものとする。巨大共鳴を決定するためのパラメータ(強度 a 、中心エネルギー E_R 、幅 Γ)と、②を表す直線を決定するパラメータを、全実験データに対して(4)式を最小自乗法でフィットすることにより求めた。

$$\begin{aligned} R(q_{\text{eff}}, E_x) = & \sum a_{c1} |F_{c1}(q_{\text{eff}})|^2 B \cdot W(E_x, E_R, \Gamma) \\ & + \sum a_{c2} |F_{c2}(q_{\text{eff}})|^2 B \cdot W(E_x, E_R', \Gamma') \\ & + \dots\dots\dots \\ & + Q(E_x, b, b') \end{aligned} \quad (4)$$

ここでパラメータの数は(共鳴の数 $\times 3$)と(スペクトルの数 $\times 2$)との和である。

今回の解析では、 ^{63}Cu の場合に、励起エネルギー 11 MeV から 37 MeV の間に存在すると考えられる次の四つの巨大共鳴を考えた。……光核反応³⁻⁴⁾によって存在が確認されているアイソベクトル型双極子巨大共鳴(IVC1)、系統的に調べられている偶核の実験データ²⁾により ^{63}Cu についても存在すると思われるアイソスカラー型及びアイソベクトル型四重極子巨大共鳴(ISC2, IVC2)、さらに理論上、この領域に存在が期待されており、また他のいくつかの原子核の実験¹¹⁾によって発見されているアイソスカラー型単極子共鳴(ISCO)……実験によ

りスペクトルが10通り得られており、そこに共鳴を4種類考えているので、計32個のパラメータを、実験データを最も良く再現するように決めた。得られた結果をスペクトルで表したものを第4図に示す。4個のBreit-Wigner型の共鳴及び直線で実験データがよく再現されていることが分かる。

この領域に存在が推測されている八重極子巨大共鳴も考え、計5種の共鳴で再現することも試みたが、八重極子共鳴を決定するパラメータは得られなかった。

3.2 多重極展開

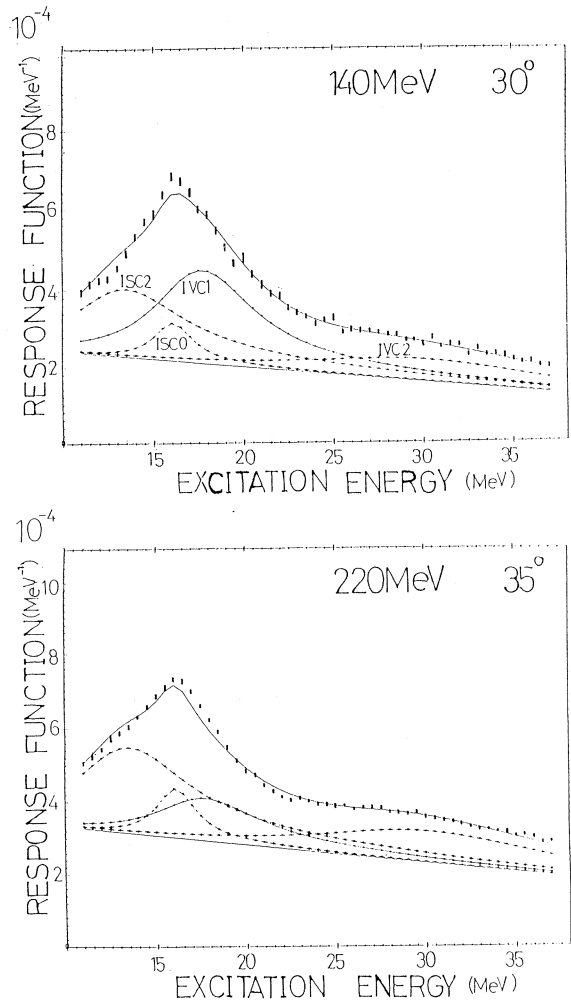
3.1の多重極ピーク分離で決定された構造がある部分

$$R_K(q_{\text{eff}}, E_x) = R(q_{\text{eff}}, E_x) - Q(E_x, b, b') \quad (5)$$

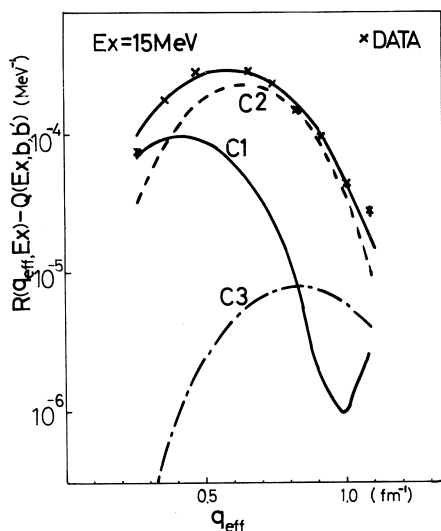
に着目する。各多重極成分の応答関数の q_{eff} 依存性は液滴模型で計算した形状因子の q_{eff} 依存性によって表されると考え、各励起エネルギー E_x の $R_K(q_{\text{eff}}, E_x)$ に対して

$$R_K(q_{\text{eff}}, E_x) = \sum_{cl} a_{cl}(E_x) |F_{cl}(q_{\text{eff}})|^2 \quad (6)$$

を最小自乗法でフィットして、 a_{cl} を決定する。ここで添字 l は多重極度を表わしている。構造がある部分は共鳴によって生じていると考えられるので、多重極成分としては共鳴を起こすと考えられる低い多重極度 $C1, C2, C3$ を考えた。非弾性電子散乱に対する形状因子の q_{eff} 依存性が $C0$ と $C2$ とではほとんど同じであるので、この $C1, C2, C3$ の分離によって得られた $C2$ 成分は、 $C0$ 成分と $C2$ 成分の和であると考えられる。



第4図 3.1の多重極ピーク分離の結果のスペクトルによる表示。ピークの多重極度が解析時に仮定されているので、振幅は第1図に示した各多重極の形状因子の q_{eff} 依存性に従って変化する。



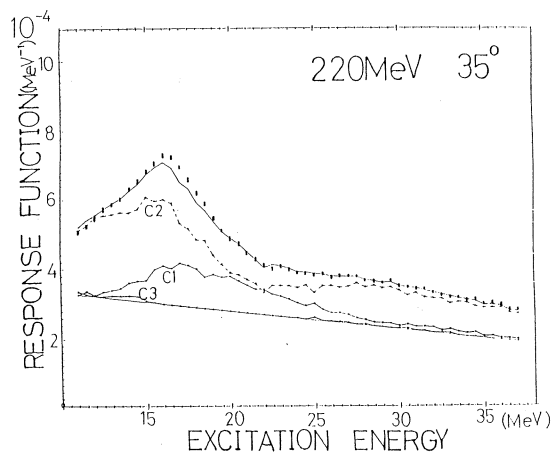
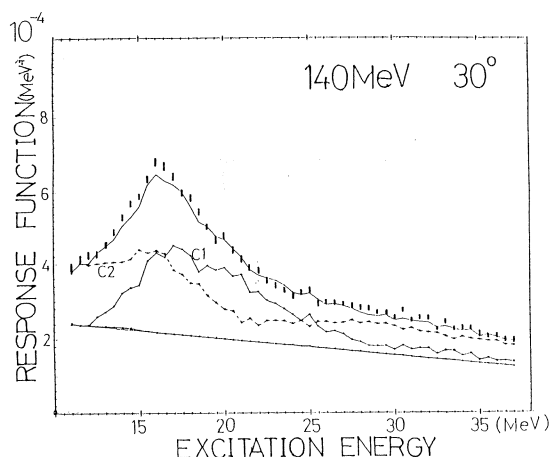
第5図 多重極ピーク分離で決定された構造がある部分 $R(q_{\text{eff}}, E_x) - Q(E_x, b, b')$ に対する多重極展開, $E_x = 15 \text{ MeV}$ 。

1例として、励起エネルギー15 MeVに於いて多重極展開した結果を第5図に示す。この図より、この励起エネルギーに於いてはC2成分が強く励起されていることが分かる。第6図に多重極展開した結果をスペクトルで表示している。こ

こでは各共鳴の応答関数に対して E_x 依存性を仮定していないので、Breit-Wigner型からのずれが分かる。

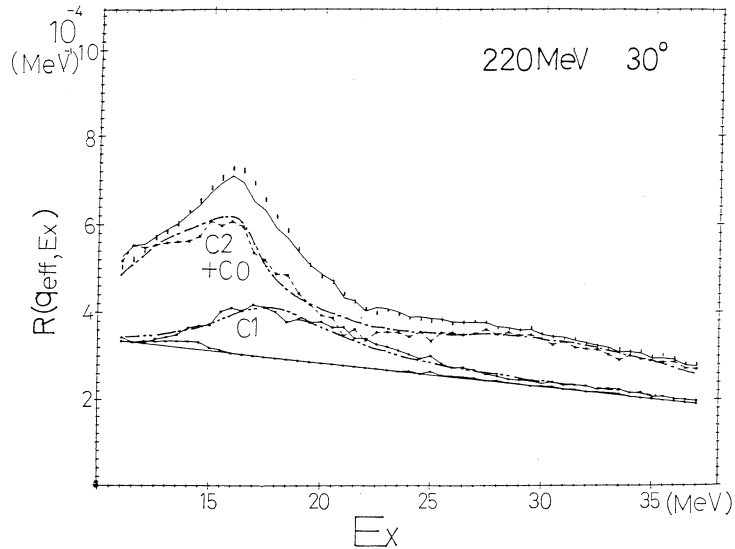
3.3 解析結果の比較

3.1, 3.2のそれぞれの解析方法で得られた結果を比較する為に、2つの結果を重ねて第7図に示す。ここで、C0+C2成分については、3.1の結果を一点鎖線で、3.2の結果を破線で、またC1成分については、3.1の結果を2点鎖線で、3.2の結果を折線で示している。3.1, 3.2の結果にそれほど大きな相違がないことから、3.1で用いた各共鳴の応答関数の E_x 依存性はBreit-Wigner型に従うという仮定Bは妥当であると考えられる。また、3.1の多重極ピーク分離に於いてC3巨大共鳴を考えなかったが、このことがC1, C2巨大共鳴を決定するパラメータ、 E_R, Γ に大きく影響しないと思われる。従って以下に述べる共鳴エネルギー及び幅



第6図 3.2の結果のスペクトルによる表示。

の議論では、3.1で得られた値を用いる。



第7図 解析方法3.1, 3.2の結果の比較。

1点鎖線は3.1によるC0+C2成分, 破線は3.2によるC0+C2成分, 2点鎖線は3.1によるC1成分, 折線は3.2によるC1成分。

§ 4. 隣接偶核との比較

3.1の多重極ピーク分離で得られた各巨大共鳴の励起エネルギー, 幅, 及びエネルギー重み付き和則(EWSR)の値を, 電子散乱実験によって得られた隣接偶核 $^{62}\text{Ni}^{12}$, $^{64}\text{Zn}^{13}$)の値と共に

第3表 今回得られた ^{63}Cu の巨大共鳴の励起エネルギー, 幅, エネルギー重み付き和則と, 隣接偶核 $^{62}\text{Ni}^{12}$, $^{64}\text{Zn}^{13}$)のそれらの値との比較。

共鳴モード 核種	ISC0			IVC1			ISC2			IVC2		
	E_R (MeV)	Γ (MeV)	EWSR (%)	E_R (MeV)	Γ (MeV)	EWSR (%)	E_R (MeV)	Γ (MeV)	EWSR (%)	E_R (MeV)	Γ (MeV)	EWSR (%)
^{62}Ni	not observed			18.0	6.0	115	11.9	1.5	16	34.4	10.4	59
^{63}Cu	16.0	2.9		17.4	6.9	130	13.0	7.8	103	29.2	16.3	150
^{64}Zn	18.2	4.3	※	17.7	4.3	63	15.0	6.0	49	30.4	5.0	16
				21.4	3.5	40						

※ α 散乱実験による結果¹¹⁾

※※ 光核反応による ^{60}Ni の値¹⁴⁾

に第3表に示す。ただし、 ^{62}Ni の電子散乱実験はC1が強調される低い q_{eff} においては行なわれておらず、C1成分の情報は正確に得られていない。また、 ^{62}Ni に対して、巨大共鳴領域における光核反応実験は行なわれていない。従ってここでは、 ^{62}Ni のISC1巨大共鳴については光核反応による ^{60}Ni の値¹⁴⁾を示している。また ^{64}Zn のISC0巨大共鳴は α 散乱によって得られた値¹¹⁾である。

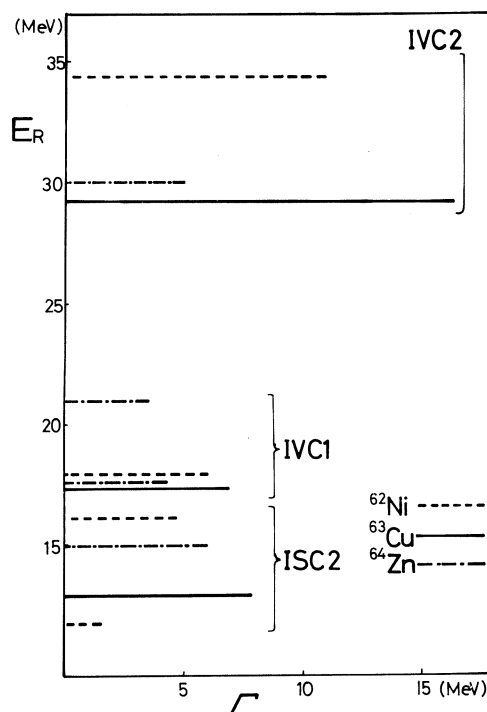
共鳴エネルギー及び幅を隣接偶核と比較する為に第8図にそれらを図示した。IVC1巨大共鳴は遷移アイゾスピンの大きさによって分離するので、 ^{64}Zn のIVC1巨大共鳴は2つの共鳴に分けられている。しかし、今回の ^{63}Cu の解析では、パラメータを出来るだけ少なくする為に1つの共鳴とした。 ^{60}Ni の

IVC1も一つの共鳴と考えている。また ^{62}Ni のISC2共鳴は2個観測されている。2個に分かれている共鳴については、強度の重み付きの平均を各巨大共鳴の励起エネルギーと考える。このようにして比較を行なうと ^{63}Cu の巨大共鳴の励起エネルギーは、どの共鳴についても、隣接核の対応する値より低くなっている。また幅についても、多少広いという傾向が見られる。

この原因の詳しい理論解析は今後委ねるが、奇核は偶核に比べ粒子放出の閾値が低いこと、また励起状態の状態密度が高いことがその原因として考えられる。

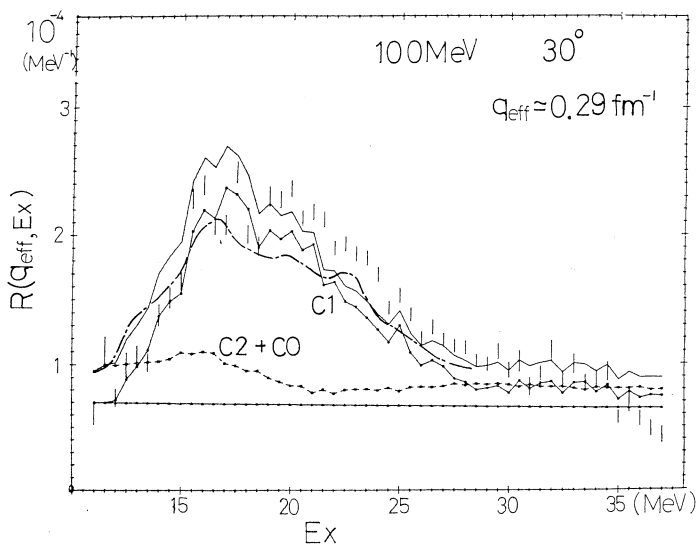
§ 5. 光核反応との比較

今回の電子散乱実験で得られた応答関数に占めるC1成分の大きさを、光核反応による中性子及び陽子放出の全断面積の和から評価する。中性子放出断面積はFultz等によって測定された $\sigma(r, S_n) = \sigma(r, n) + \sigma(\sigma, 2n) + \sigma(r, pn)$ ³⁾を採用した。陽子放出の断面積は田中によって測定された陽子の放出角 90° での微分断面積⁴⁾を、等方的に陽子は放出されると考え



第8図 ^{62}Ni , ^{63}Cu , ^{64}Zn の各巨大共鳴の励起エネルギー及び幅。破線が ^{62}Ni 、実線が ^{63}Cu 、一点鎖線が ^{64}Zn 。縦軸は共鳴エネルギー、横軸は幅である。

て 4π 倍して求めた。光核反応の断面積は、運動量移行が非常に小さいので全て E1 遷移によるものであると仮定する。Siegert の定理を用いて E1 の行列要素から C1 の行列要素を導き、第 1 図に示した形状因子の q_{eff} 依存性より、本実験の q_{eff} に対応する C1 成分の応答関数を得た。このようにして見積った 100 MeV 30° に於ける C1 成分を今回の実験データと共に第 9 図に一点鎖線で示す。同時に 3.2 の多重極展開の結果を、C1 成分は黒丸付実線で、C2 成分は破線で



第 9 図 今回の解析で得られた C1 成分(黒丸付折線)と光核反応の実験データより見つかった C1 成分(一点鎖線)。直線はほとんど構造がない部分。

示した。本実験で得られた C1 成分は、光核反応の実験データを Siegert の定理を用いて焼きなおした C1 成分と、強度及び励起エネルギー依存性が極めてよく一致していることが分かり、両反応が原子核の双極子巨大共鳴を同様に励起することがうかがわれる。また理論的には Siegert の定理は良く知られているが、これ程きれいにその成立を示した例はそう多くない。

次にこの図に直線で示されている構造がない部分について考える。この実験条件では運動量移行が小さいので、高次の多重極成分からの寄与はほとんどないと考えられる。従って、図に直線で示されている構造がない部分は、弾性散乱断面積の裾の見積りの誤り、ないしは機器による散乱(instrumental scattering)によるものと考えられる。電子散乱によって C1 成分を正確に調べる為には、これらの改善が望まれる。

§ 6. ま と め

今回の実験により、 ^{63}Cu の C1 及び C2 巨大共鳴の励起エネルギーは、隣接偶核 ^{62}Ni , ^{64}Zn の対応する値に比べ低く、またその幅は広がっている事が分かった。しかし、これらの実験値には偶核の間でさえもかなりばらつきがあるので、今回の結果から共鳴エネルギーと幅の質量数依存性が、偶核と奇核との間で異なると結論づけることは早急過ぎると考えられる。この問題に対する結論を得る為には、奇核に対しても系統的に実験を行ない、データを蓄積する必要がある。

また、電子散乱では C0 励起と C2 励起を区別することが出来ないので、本実験で得られた $E_x = 16$ MeV 付近の幅の狭いピークがアイソスカラー単極子巨大共鳴だとは断言できない。実験的に識別する為には、単極子と四重極子とで全く角度分布が異なる前方でのハドロン散乱実験を ^{63}Cu に対して行なうことが望まれる。

参 考 文 献

- 1) B. L. Berman and S. C. Fultz : Rev. Mod. Phys. **47** (1975) 713.
- 2) F. E. Bertrand : Nucl. Phys. **A 354** (1981) 129.
- 3) S. C. Fultz, R. L. Bramblett, J. T. Caldwell and R. R. Harvey : Phys. Rev. **B133** (1964) 149.
- 4) 田中俊成 : 博士学位論文 (東北大学) (1980).
- 5) H. Miyase, H. Tsubota, Y. Kawazoe and T. Tsukamoto : Phys. Rev. Lett. **50** (1983) 821.
- 6) Y. Kawazoe and T. Tsukamoto : Phys. Rev. C **23** (1980) 2364.
- 7) M. Goldhaber and E. Teller : Phys. Rev. **74** (1948) 1046.
- 8) L. J. Tassie : Aust. J. Phys. **9** (1956) 407.
- 9) H. Gompelman, H. J. Blaauw and C. W. de Jager : Atomic Data and Nuclear Data Table **14** (1974) 491.
- 10) G. Breit and E. Wigner : Phys. Rev. **49** (1936) 519.
- 11) D. H. Youngblood : *Giant Multipole Resonances* ed. F. E. Bertrand (harwood) p. 113
- 12) 穂積裕一, 藤平 力, 広田淳一, 藤井芳昭, 斎藤健治, 斎藤悌二郎, 鳥塚賀治 : 核理研究報告 **16** (1983) 21.
- 13) A. A. Nemashkalo, N. G. Afanas'ev, Yu. V. Vladimirov, V. P. Likhachev, G. A. Savitskii and V. M. Khvasturov : JETP. Lett. **26** (1978) 422.
- 14) S. C. Fultz, R. A. Alvarez, B. L. Berman and P. Meyer : Phys. Rev. C **10** (1964) 608.

^{10}B の巨大共鳴の構造

山形大教養, 核理研*

上野博昭・種市 宏

高橋良雄・庄田勝房*

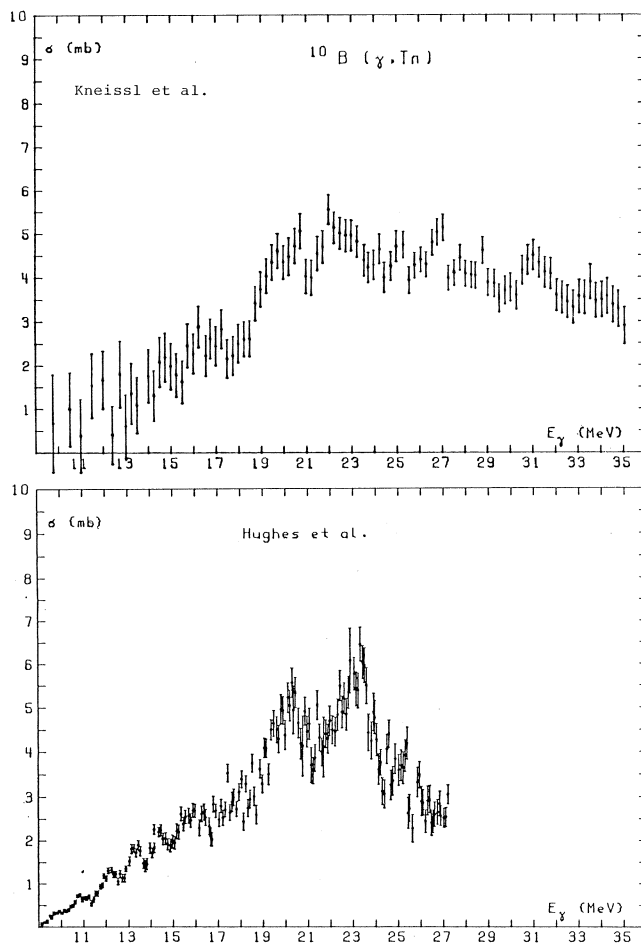
§ 1. 序

電子線エネルギー $E_e = 13 \sim 31$ MeVの範囲で $^{10}\text{B}(e, p)^9\text{Be}$ 反応の実験をした。

^{10}B の巨大共鳴領域の研

究は、主に $^{10}\text{B}(\gamma, n)$ 反応でなされているが、それ以外の反応による研究は殆んどない。 $^{10}\text{B}(\gamma, n)$ 反応では、 γ 線が制動輻射¹⁾と単色 γ 線²⁾による実験があるが、測定した中性子はいずれも全中性子である。その結果を第1図に示す。

$E_\gamma = 23$ MeV までの断面積はだいたい一致しているが、それよりエネルギーの高い領域は異なっている。我々も以前に $^{10}\text{B}(e, p)$ 反応の大まかな実験³⁾を行ったが、その結果は1)の結果に似ている。我々の実験は残留核 ^9Be の各レベルに行く陽子を p_0, p_{+4}, p_5 の3つのグループに分けて解析してある。それによる



第1図 $^{10}\text{B}(\gamma, \text{Tn})$ 反応の断面積。
上の図はKneisslたちの単色光子による実験²⁾、
下の図はHughesたちの制動輻射による実験¹⁾。

と、 p_0 と p_{1-4} の微分断面面積曲線は殆んど構造を持たず、 p_5 だけが大きな2つのピークを持つ構造を示し、その山は第1図の下の図に見られる山に対応するものと考えられる。

今回は、 p_5 に焦点を絞って、もっと詳しく微分断面面積を測定し、さらにピークの位置での角分布を測定した。報告は主に実験結果について行なう。

§ 2. 実験

実験は第1実験室の広帯域磁気スペクトロメーターで行なった。スペクトロメーターの検出器は100個のSi(Li)検出器である。

^{10}B の標的は96.5%濃縮の粉末を金箔に沈澱させて作ったもので、厚さは $10.0\text{mg}/\text{cm}^2$ である。

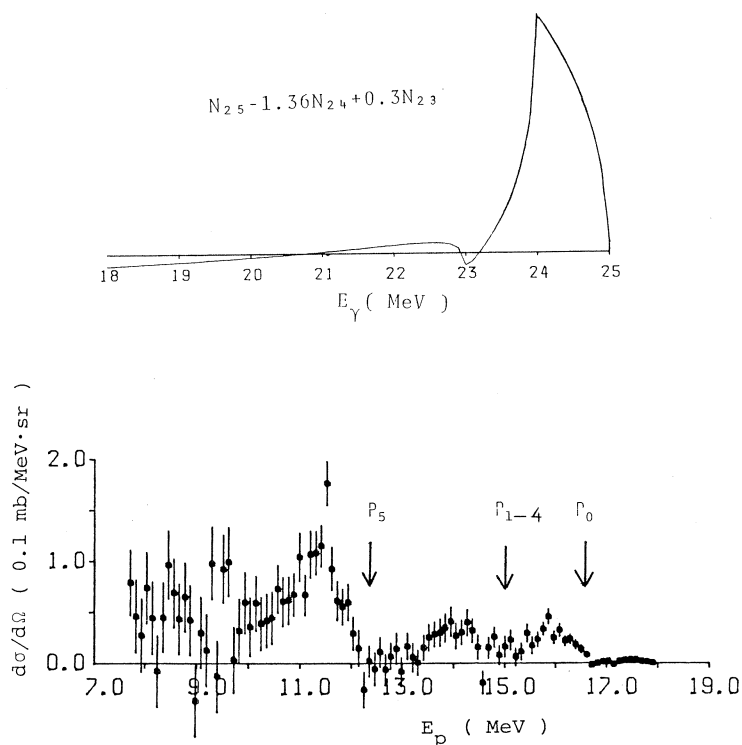
微分断面面積曲線を得るための実験は、スペクトロメーターを 90° にセットし、電子線エネルギー $E_e = 13 \sim 31\text{ MeV}$ では1 MeV 間隔で測定し、 $E_e = 20 \sim 27\text{ MeV}$ では0.5 MeV 間隔で測定した。

角分布は $E_e = 21 \sim 25\text{ MeV}$ を1 MeV 間隔で、角度は $30^\circ \sim 140^\circ$ を 15° ないし 10° 間隔で測定した。

測定は ^{10}B 標的以外に、バックキングの金箔についても測定した。その結果は、前方では実験系のバックグラウンドと思われる収量が、 ^{10}B 標的のときの数%あるので、角分布の測定では、すべての測定で金箔の測定も行い、バックグラウンドを差し引いた。しかし、 75° 以上の角度では金箔の収量は ^{10}B 標的の2%以下になるので、微分断面面積曲線を得るための 90° の測定では、 ^{10}B 標的のみの測定をした。

§ 3. 測定結果および考察

スペクトロメーターで測定された生の陽子スペクトルは前回の報告と同じなので、ここには載せないが、電子線エネルギーが1 MeV ずつ異なる3つの陽子スペクトルから、ディフェレンス・スペクトルを得た。 $E_e = 25, 24, 23\text{ MeV}$ の陽子スペクトルの組合せで作ったディフェレンス・スペクトルの例を第2図に示す。ディフェレンス・スペクトルの作り方は、3つの入射電子線の仮想光子スペクトルを組合せ、スペクトル N_1 から係数 a をかけたスペクトル aN_2 を差し引き、次に係数 b をかけたスペクトル bN_3 を加えて、第2図上部に示した単色光子に近い仮想光子が得られるように係数 a, b を決める。その係数 a, b を陽子スペクトル n_1, n_2, n_3 にかけて、 $n_1 - an_2 + bn_3$ の計算をしてディフェレンス・スペクトルにする。このディフェレンス・スペクトルは電子線を仮想光子に焼き直したので、 (e, p) 反応が (γ, p) 反応に変換される。



第2図 ディファレンス・スペクトル。

$\theta = 90^\circ$ における $E_e = 23, 24, 25$ MeV の3つの陽子スペクトルを組合せて作ったディファレンス・スペクトル。上の図は $E_e = 23, 24, 25$ MeV の仮想光子スペクトルを組して作った準単色光子の図とスペクトル合成の式。

第2図には p_0, p_{1-4}, p_5 のトップのエネルギーが示されており、そのエネルギーの下に p_0 と p_{1-4} の小さいピークと p_5 の大きいピークが現われている。このときの γ 線のエネルギーはほぼ $E_\gamma = 24.0 \pm 0.5$ MeV と言える。このようにして各 E_γ の p_0, p_{1-4}, p_5 を分離して微分断面積を求め、グラフにしたのが第3図である。 $E_\gamma = 21 \sim 26$ MeV では p_5 は非常に強く、鋭いピークを2つもっている。それ以外のエネルギーでは p_0 や p_{1-4} と同程度の微分断面積になってしまう。

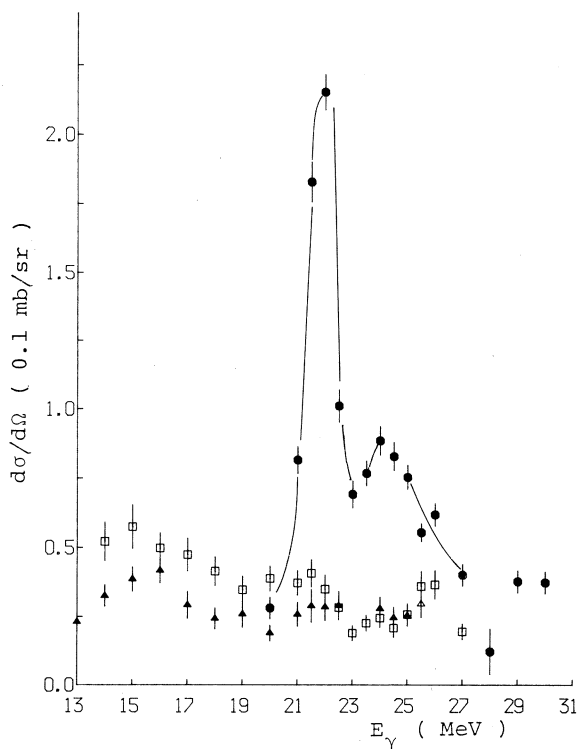
p_5 に現われたピークのエネルギーは 22 MeV と 24 MeV で、Hughes たちの得た値は 20.1 MeV と 23.1 MeV なので、異なる値を示す。特に 22 MeV のピークは鋭く、レベルの存在を示唆するものと考えられるが¹⁰Bのレベル・スキーム⁴⁾には載っていない。共鳴領域から残留核の励起状態に行く粒子で共鳴領域を調べると、例えば⁹Be + p 反応では見えないことが調べられる。

角分布は角度を 30° から 140° までの間で9点、 $E_e = 21 \sim 25$ MeV で1 MeV 間隔で測定

した。得られた陽子スペクトルを上述の方法でディファレンス・スペクトルにして p_0 , p_{1-4} , p_5 を分離し、各グループごとの角分布を得た。その結果を第4図に示す。図の中の実線は得られた角分布を最小自乗法を用いてルジャンドル関数で展開したものである。展開には次の式を用いた。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = A_0 P_0 + A_1 P_1 + A_2 P_2 + A_3 P_3$$

上の式の係数 A_l ($l = 0, 1, 2, 3$) を第1表に示す。 p_0 と p_{1-4} は比較的等方性に近い。 p_5 は 90° の近くにピークをもつが、少し前方にずれる。 $E1$ と $M1$, $E1$ と $E2$ の干渉を示す $|A_1/A_0|$, $|A_3/A_0|$ がかなり大きく、 $M1$ や $E2$ の寄与が大きいことが予想される。

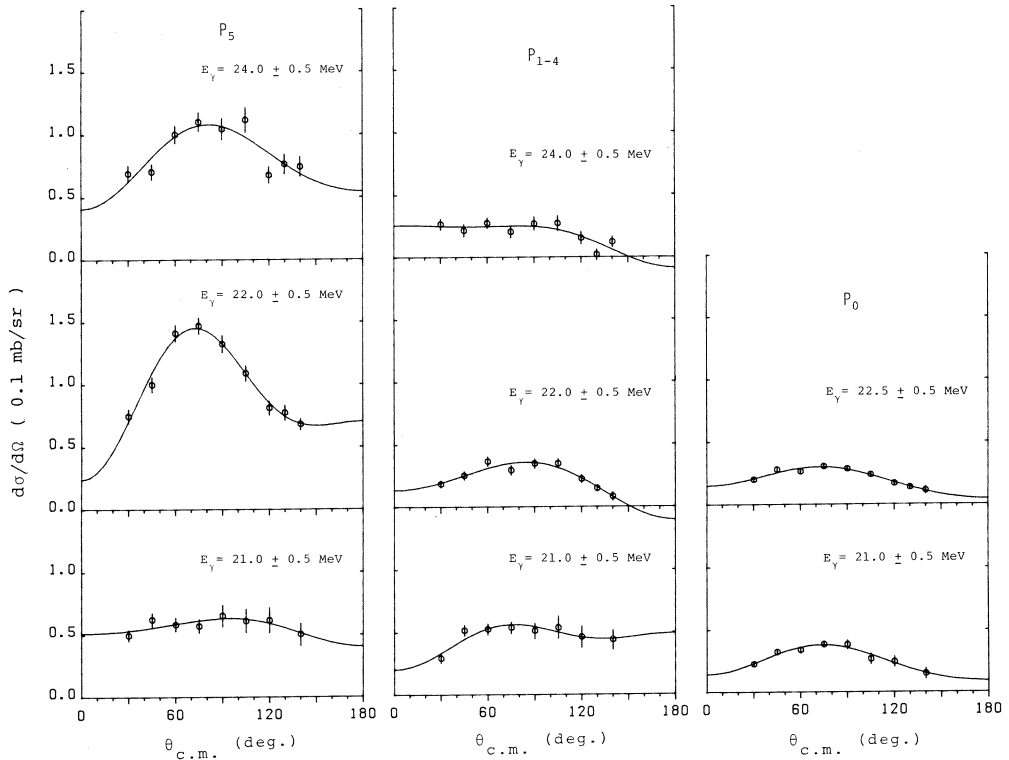


第3図 $^{10}\text{B}(\gamma, p)^9\text{Be}$ 反応の微分断面積
 p_0 は ^9Be の基底状態へ行く陽子 (▲印)。
 p_{1-4} は ^9Be の第1励起状態から第4励起状態までに行く陽子 (□印)。
 p_5 は ^9Be の第5励起状態へ行く陽子 (●印)。

第1表 ルジャンドル多項式の係数。

励起エネルギー (MeV)	A_0 ($\mu\text{b}/\text{sr}$)	A_1 / A_0	A_2 / A_0	A_3 / A_0	
p_0	21.0 ± 0.5	27.4 ± 0.9	0.304 ± 0.072	-0.575 ± 0.098	-0.202 ± 0.125
	22.0 ± 0.5	21.6 ± 0.5	0.401 ± 0.056	-0.557 ± 0.080	-0.151 ± 0.104
p_{1-4}	21.0 ± 0.5	47.8 ± 1.8	-0.062 ± 0.078	-0.274 ± 0.106	-0.239 ± 0.137
	22.0 ± 0.5	23.9 ± 1.3	0.419 ± 0.115	-0.942 ± 0.168	0.084 ± 0.212
p_5	24.0 ± 0.5	19.0 ± 2.2	0.654 ± 0.246	-0.561 ± 0.338	0.254 ± 0.441
	21.0 ± 0.5	57.4 ± 1.7	0.041 ± 0.061	-0.201 ± 0.083	0.053 ± 0.107
	22.0 ± 0.5	104.0 ± 1.8	0.164 ± 0.036	-0.548 ± 0.052	-0.387 ± 0.068
	24.0 ± 0.5	86.7 ± 4.1	0.047 ± 0.095	-0.452 ± 0.137	-0.124 ± 0.180

この実験に際して御援助いただいた核理研の (γ , p) グループの方々, マシングループと測定器グループの方々に感謝致します。



第4図 $^{10}\text{B}(\gamma, p)^9\text{Be}$ の角度分布。
 p_0, p_{1-4}, p_5 の $E_\gamma = 21.0 \pm 0.5 \text{ MeV}, 22.0 \pm 0.5 \text{ MeV}, 24.0 \pm 0.5 \text{ MeV}$ の角度分布。

参 考 文 献

- 1) R. J. Hughes and E. G. Muirhead : Nucl. Phys. **A 215** (1973) 147.
- 2) U. Kneissl *et al.* : Nucl. Phys. **A 264** (1976) 30.
- 3) 種市宏他 : 核理研報告 **13** (1980) 50.
- 4) F. Ajzenberg - Selove : Nucl. Phys. **A 413** (1984) 140.

Tagged Photon Measurements of $^{12}\text{C}(\gamma, n)$, $^{12}\text{C}(\gamma, p)$ and $^{12}\text{C}(\gamma, pn)$ in the Intermediate Energy Region

P. D. Harty[†], K. Mori, Y. Fujii, T. Suda,
T. Terasawa, O. Konno, M. N. Thompson[†],
Y. Torizuka and K. Maeda^{††}

[†]*School of Physics, University of Melbourne,
Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University,*

^{††}*College of Arts and Science, Tohoku University*

Differential $^{12}\text{C}(\gamma, n_{0-3})$ and $^{12}\text{C}(\gamma, p_{0-3})$ cross sections have been measured using tagged photons of energies 20 MeV to 100 MeV. The cross sections exhibit similar photon energy dependences but differ in magnitude by a factor of about 5. Measurement of $^{12}\text{C}(\gamma, pn)$ at 98.6 MeV suggests that most of the (γ, n) cross section is explained by this (γ, pn) process.

§ 1. Introduction

In recent years attention has been given to photon absorption processes above the giant dipole resonance (GDR) and below the pion threshold.

Among the various models suggested to account for the photonucleon reactions in this region it is notable that the single particle direct knock-out model has greatly underestimated cross sections for the (γ, n) reaction. Models based on absorption by correlated neutron-proton pairs have done much better in predicting the magnitudes and angular dependence behaviour for (γ, p) and (γ, n) cross sections. In particular the quasideuteron model¹⁾ which is based on the cross section for photodisintegration of free deuterons, has shown quite good agreement with the energy and angular dependences of data for ^{16}O ²⁾.

Also notable are the calculations of Gari and Hebach^{3,4)}, which use a model that starts from the shell model and includes correlations in the initial and final

states, with exchange current contributions becoming dominant at photon energies greater than 80 MeV.

High resolution photoproton data have been collected at Glasgow^{5,6)} for several photon energies. Peaks corresponding to different states of the residual nucleus can be seen. At Mainz photoproton and photoneutron angular distribution data^{2,7,8)} have been obtained allowing comparison of the angular dependence of these reactions with predictions of models such as the quasideuteron model. For ^{12}C other (γ, n) measurements have been made at Saskatoon⁹⁾ and for (γ, p) , data from the National Bureau of Standards¹⁰⁾ and Torino¹¹⁾ have been published. From these data it is notable that in this intermediate energy region there is a lack of data covering a large number of photon energies.

Using tagged photons it is possible to collect the data for a large number of energies simultaneously thus allowing any systematic energy dependence in the cross section to be measured accurately. The recent construction of the 150 MeV pulsed beam stretcher¹²⁾ at the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University has made such tagging experiments feasible by providing high duty factor beams. The results presented here are the first photoneutron and photoproton measurements in the intermediate energy region for tagged photons.

§ 2. Experimental

The photon tagging system, which has been described previously¹³⁾ provided tagged photons of energies from 20.9 to 101.2 MeV, in intervals of 2.6 MeV. The tagging efficiency was measured to be 50%, using a lead-glass Cherenkov detector in the beam to detect the tagged photons.

In the photoneutron measurement neutrons emitted at 63° from a 37 g/cm^2 graphite block were detected using 4 separate cells of NE 213 liquid scintillator. Photons and electrons were eliminated by the use of pulse-shape-discrimination. Plastic scintillator "veto" counters surrounding the cells reduced greatly the number of cosmic rays reaching the detector, as well as eliminating protons emitted from the target.

The threshold energy for neutrons was set to 6 MeV and the efficiency curve for different neutron energies was calculated using an efficiency calculation, TOTEFF¹⁴⁾, which has been shown to compare well with experimental determinations for similar detectors. This curve was checked by measuring the deuteron cross section at low energies, using a heavy water target.

Neutron energies were determined by time-of-flight (TOF) with a resolution of 10% FWHM at 20 MeV, worsening to 20% at 80 MeV. The electron beam was limited to 2×10^5 electrons per second in order to keep the accidental coincidence rate below 5%. Background was determined to be 7%.

Attenuation of the outgoing neutrons by the target and plastic scintillator "veto" counter was calculated to vary from 10–17% for the graphite target and for the deuteron measurement range of energies, 11–12%.

The $^{12}\text{C}(\gamma, p_{0-3})$ cross sections were measured at 55° using a 288 mg/cm² target. As detector a proton range counter was used. The counter consists of 12 plastic scintillators which are used to determine the proton energies by the energy loss and range of the protons through the scintillators. Electron events can be discriminated by their lower energy loss and range. The optimum value for the number of electrons was 6×10^6 per second. The signal to noise ratio was estimated to be 14 to 1, giving a background of 7%.

The $^{12}\text{C}(\gamma, pn)$ cross sections were measured by using 8×1 cm thickness plastic scintillator proton detectors in the path of the beam. The first scintillator was used as a "veto" to eliminate charged particles from the beam, whilst the other 7 were used as the target. The coincidence between electrons from the tagging counter and the protons was made first, so that a narrow coincidence gate was able to be used. This allowed a beam intensity of 3×10^6 electrons per second. The neutron detector was at 70° to the scintillator targets. Background was found to be of a similar level to that for the single neutron measurement.

§ 3. Results

Double differential cross section spectra versus nucleon energy were measured

for both the neutron and proton experiments. From these data the differential cross sections for transitions to states of the residual nucleus, up to 5 MeV excitation energy were determined. These data are shown in fig. 1. The reason for including the transitions to the first three excited states is that at higher energies the energy resolution is not good enough to distinguish separately the peak due to transitions to the ground state.

In fig. 2 typical spectra are shown for the proton and neutron cases. The excitation energy of the residual nucleus is shown on the horizontal axis.

In fig. 3 double differential cross section spectra for $^{12}\text{C}(\gamma, p)$ and $^{12}\text{C}(\gamma, n)$ are compared to that for $^{12}\text{C}(\gamma, pn)$ at 98.6 MeV incident photon energy.

§ 4. Discussion

The main features of the data shown in fig. 1 are the difference in magnitudes of the (γ, p_{0-3}) and (γ, n_{0-3}) cross sections over the entire energy range and the apparent change of slope at 60 MeV for (γ, n_{0-3}) and at ~ 75 MeV for (γ, p_{0-3}) . Calculations based on a quasideuteron model predict magnitudes for

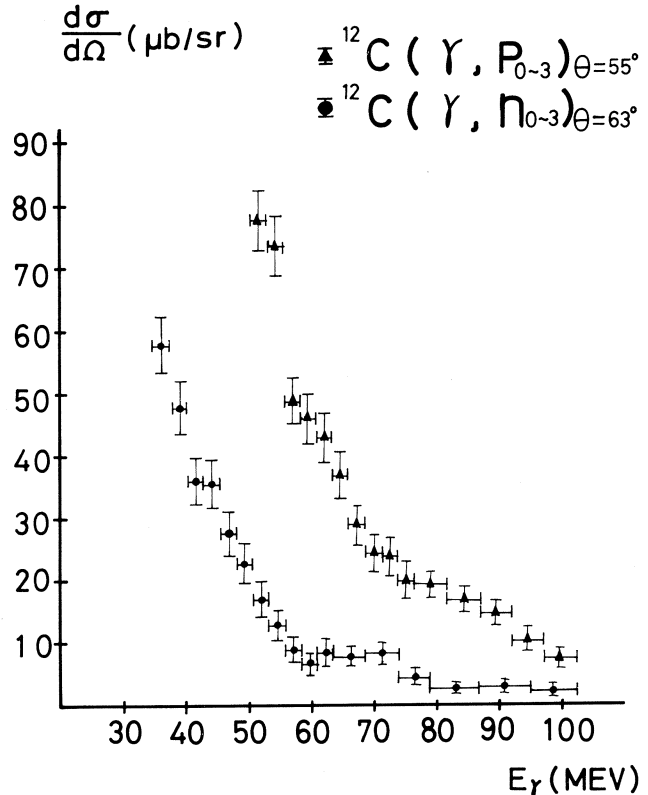


Fig. 1. Differential cross sections for $^{12}\text{C}(\gamma, p_{0-3})$ and $^{12}\text{C}(\gamma, n_{0-3})$ at detector angles of 55° and 63° respectively. The error bars are statistical only.

the photoproton and photoneutron cross sections that are roughly equal at 90° , with only a 50–60% maximum difference at forward and backward angles¹⁵⁾.

The difference in magnitudes of the experimental data cannot be accounted for by the different detector angles. Angular distribution data for $^{16}\text{O}(\gamma, p_0)$ and $^{16}\text{O}(\gamma, n_0)$ at 60 MeV¹⁶⁾ suggest that at these measurement angles there should be only a 60% difference between the cross sections.

The factor of 5 difference between the (γ, p_{0-3}) and (γ, n_{0-3}) data is unlikely to be due to uncertainty in the neutron or proton cross section magnitudes. The $D(\gamma, n)p$ cross section was well reproduced using the same neutron detection system. Also the cross sections for $(\gamma, n_{0,1})$ at around 30 MeV are in agreement with previous GDR data of Jury *et al.*¹⁷⁾, suggesting that the magnitude is accurately determined, at least for low energies. The proton data is also in good agreement with previous measurements.

The changes of slope seen in fig.1 suggest that a change in the dominant photon absorption process occurs at these energies. As there are very few data for similar light nuclei using photons of 30–60 MeV this behaviour has not been observed before at such energies.

From the spectra of fig. 2 the peak corresponding to ground state transitions to the residual nucleus can be seen in both the proton and neutron data. However

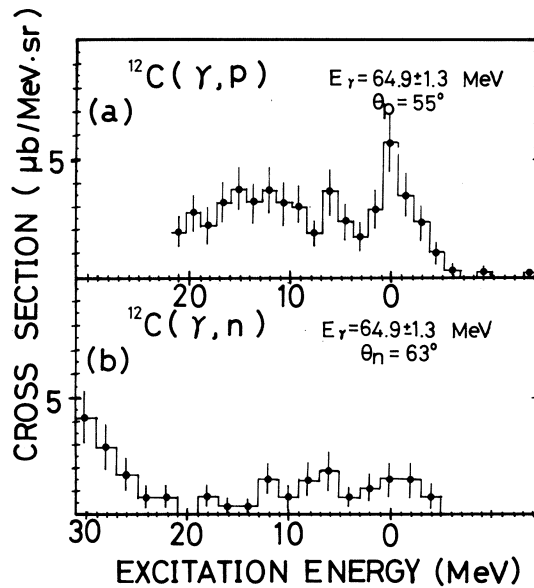


Fig. 2. Double differential cross section spectra for $^{12}\text{C}(\gamma, p)$ and $^{12}\text{C}(\gamma, n)$ at incident energy 64.9 MeV.

the "s-shell" peak that has been observed in quasi-free scattering reactions at 17.5 MeV excitation only seems to occur in the (γ, p) data. The peak observed at higher excitation energy in the neutron spectrum may be due to neutrons emitted by the (γ, pn) process.

The data of fig. 3 suggests that most of the (γ, n) cross section at 98.6 MeV excitation energy is due to the (γ, pn) process. The measured

(γ, pn) cross section shows no structure but increases monotonically with excitation energy of the residual nucleus. A similar behaviour is exhibited by the (γ, n) and (γ, p) cross sections. The (γ, p) cross section is much larger than both the (γ, n) and (γ, pn) cross sections suggesting that many protons are emitted by processes other than (γ, pn) .

§ 5. Conclusions

The data presented here suggest that the $^{12}\text{C}(\gamma, p_{0-3})$ cross section is a factor of 5 bigger than the $^{12}\text{C}(\gamma, n_{0-3})$ cross section over the incident energy range of 50 to 100 MeV. A previously unseen change of slope occurs in each of the 2 cross sections at 60 MeV for (γ, n_{0-3}) and 75 MeV for (γ, p_{0-3}) suggesting a

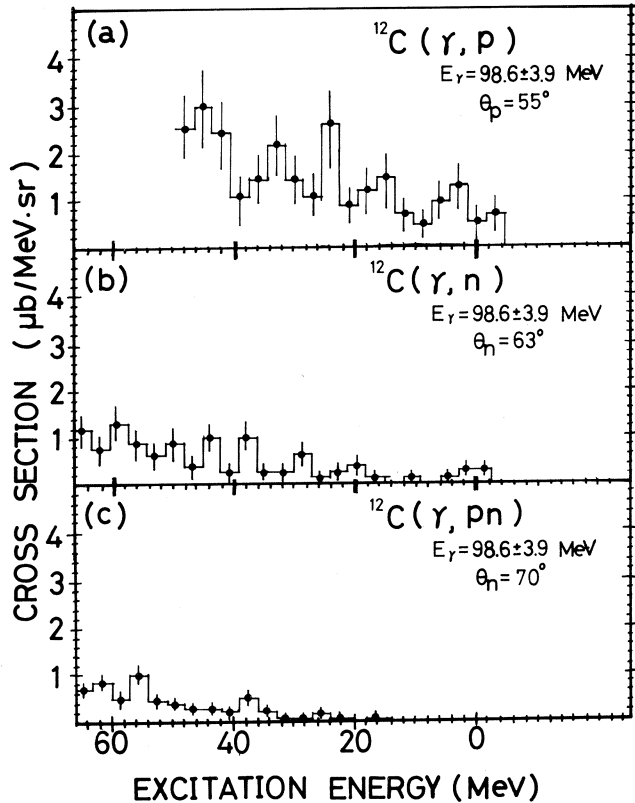


Fig. 3. Double differential cross section spectra for $^{12}\text{C}(\gamma, p)$, $^{12}\text{C}(\gamma, n)$ and $^{12}\text{C}(\gamma, pn)$ at incident energy 98.6 MeV.

change in the dominant process of photon absorption at these energies.

Evidence of an "s-shell" peak in the $^{12}\text{C}(\gamma, p)$ double differential cross section spectrum at 64.9 MeV seems to be missing in the corresponding $^{12}\text{C}(\gamma, n)$ data at the same energy.

Data for $^{12}\text{C}(\gamma, pn)$, (γ, p) and (γ, n) at 98.6 MeV photon energy suggest that most of the (γ, n) cross section is accounted for by the (γ, pn) process at this energy. The major part of the (γ, p) cross section however is not explained by the (γ, pn) process.

References

- 1) B. Schoch : Phys. Rev. Lett. **41** (1978) 80.
- 2) H. Goringer, B. Schoch and G. Luhrs : Nucl. Phys. **A 384** (1982) 414.
- 3) H. Hebach, A. Wortberg and M. Gari : Nucl. Phys. **A 267** (1976) 425.
- 4) M. Gari and H. Hebach : Physics Reports **72** (1981) 1.
- 5) J. L. Matthews, D. J. S. Findlay, S. N. Gardiner and R. O. Owens : Nucl. Phys. **A 267** (1976) 51.
- 6) D. J. S. Findlay, S. N. Gardiner, J. L. Matthews and R. O. Owens : J. Phys. **A 7** (1974) L 157.
- 7) H. Schier and B. Schoch : Nucl. Phys. **A 229** (1974) 93.
- 8) H. Schier and B. Schoch : Nuovo Cimento Lett **12** (1975) 334.
- 9) H. G. Miller, W. Buss and J. A. Rawlins : Nucl. Phys. **A 163** (1971) 637.
- 10) S. Penner and J. Leiss : Phys. Rev. **114** (1959) 1101.
- 11) G. Manuzio, G. Ricco, M. Sanzone and L. Ferrero : Nucl. Phys. **A 133** (1969) 225.
- 12) T. Tamae *et al.* : IEEE Transactions of Nuclear Science, Vol. NS - 30 No. 4 (1983) 3235.
- 13) Y. Fujii *et al.* : Research Report of Laboratory of Nuclear Science **15** (1982) 321.
- 14) R. Kurz : University of California Report No. UCRL 11339, 1964 (unpublished), R. R. Doering, D. M. Patterson and A. Galousky : Phys. Rev. **C 12**

(1975) 378.

- 15) H. Goringe and B. Schoch : Physics Letters **97B** (1980) 41.
- 16) H. Goringe, B. Schoch and G. Luhrs : Nucl. Phys. **A384** (1982) 414.
- 17) J. W. Jury, J. S. Hewitt and K. G. McNeill : Proceedings of International Conference on Photonuclear Reactions and Applications (1973) 157.

$^{63,65}\text{Cu}(e, p_0)$ 角分布

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**

前回までの報告で, 角分布測定の結果, E 1, E 2の巨大共鳴の様子が明らかになったが, 今回, 新たに作製した散乱槽によって更に前方の角度 30° までのデータが得られ, また入射電子ビームのエネルギーを11MeVまで下げられたのでその結果を報告する。

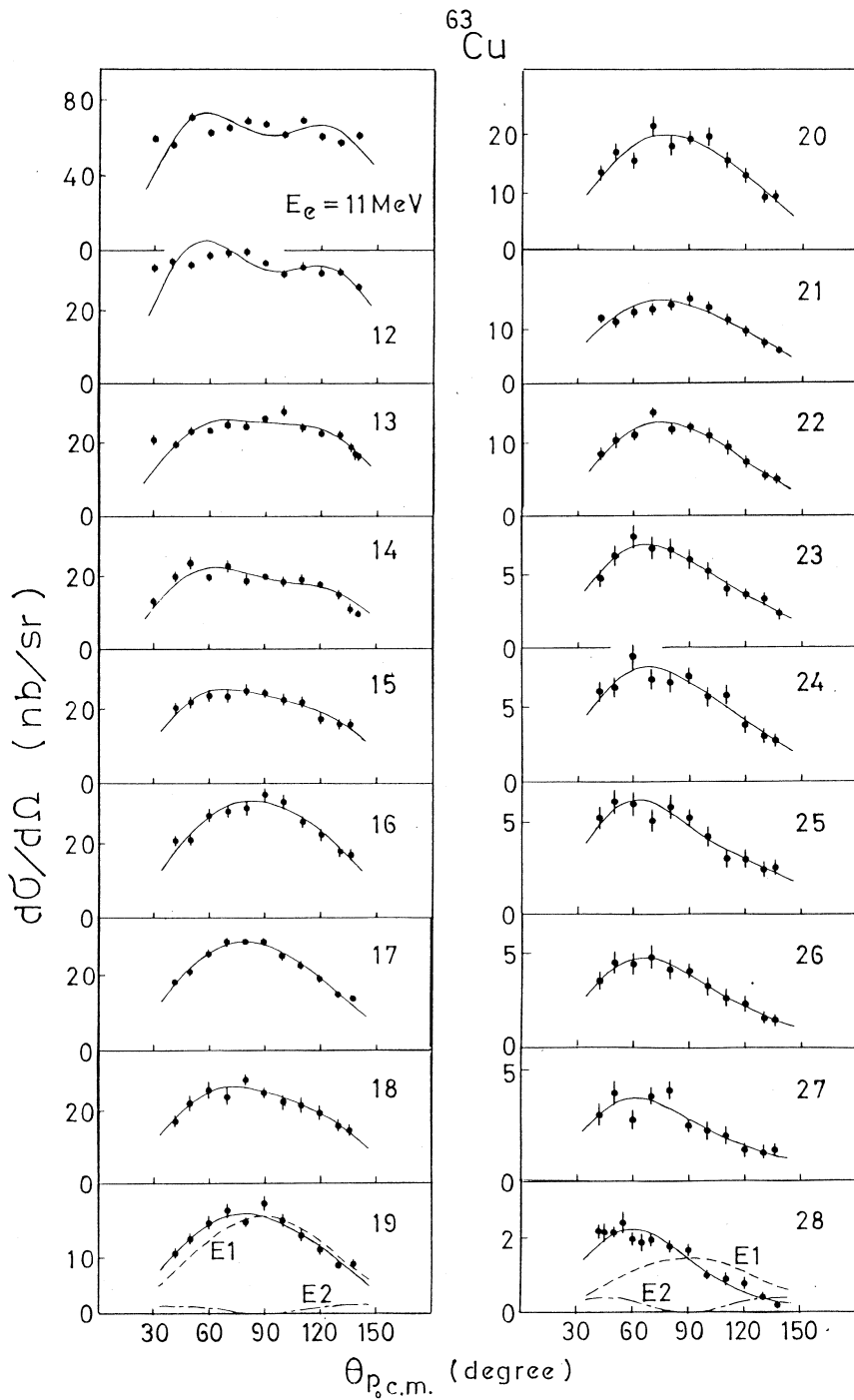
実験及び解析の方法については, 前回の報告¹⁾を参照してもらいたい。

第1, 2図に, 各電子エネルギーに対して, 残留核の基底準位へ遷移する際に放出された陽子の角分布の実験結果を示す。 ^{63}Cu の $E_e=11, 12\text{MeV}$ 及び $E_e=13, 14\text{MeV}$, $\theta=30^\circ$ のデータ, ^{65}Cu の $E_e=12\text{MeV}$ 及び $E_e=13\text{MeV}$, $\theta=30^\circ$ のデータは今回の新しい結果である。実線は簡単な共鳴模型²⁾による解析結果である。前回の結果で, ^{63}Cu の $E_e=13\text{MeV}$ ($\theta=42^\circ\sim 138^\circ$)の実験と理論の結果は良い一致を示していたが, $\theta=30^\circ$ の測定により, あまり良い一致とはいえないことが明らかになった。これは $E_e=11, 12\text{MeV}$ に対してもいえることで, $E_e=13\text{MeV}$ 以下ではこの共鳴模型が良い模型とはいえないことを示している(χ^2 の値は $E_e=11, 12, 13\text{MeV}$ のデータに対し, それぞれ14.4, 11.3, 5.1であった)。

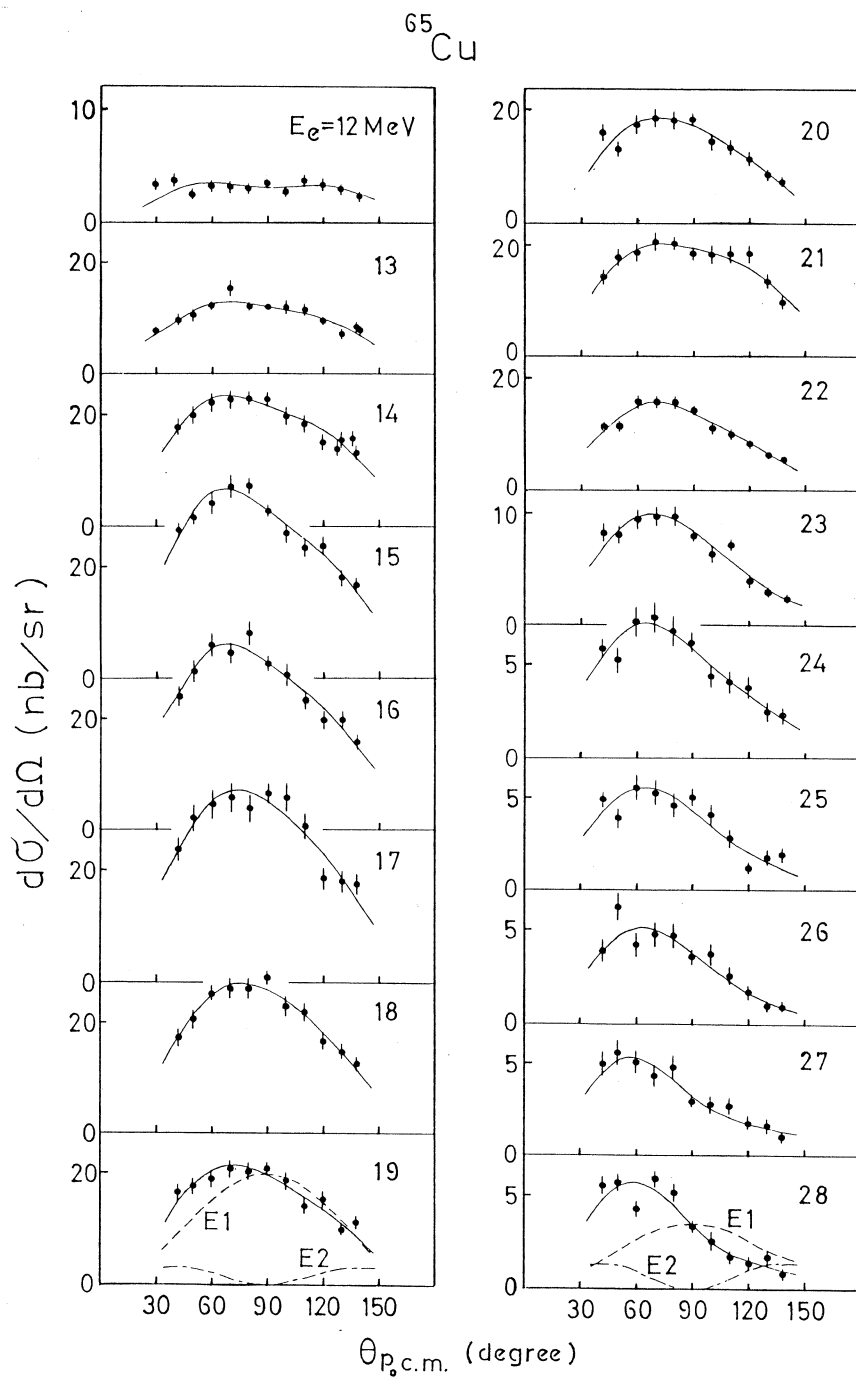
第3, 4図に, 各角度に於ける (e, p_0) 反応の微分断面積を示す。実線は共鳴模型によるベストフィットの結果である。E 1巨大共鳴の位置 $E_R\sim 16\text{MeV}$ を注目すると, 90° より前方及び後方の角度に於て, そのピークの位置がエネルギーの低い方へ移動していることがわかる。このことは, E 2の共鳴がE 1のそれより低いエネルギーの所に存在することを示している。

解析の結果のE 1, E 2成分それぞれの (e, p_0) 反応断面積を, DWBAを用いて計算した仮想光子数で割ることによって得られた (r, p_0) 反応断面積を第5図に示す。 ^{63}Cu の $E_e=13\text{MeV}$ 以下で断面積が大きくなっているが, これは陽子, 中性子のしきい値が $S_p=6.1$, $S_n=10.9\text{MeV}$ となっており, 中性子放出がおさえられる為と考えられる。このことは $E_e=13\text{MeV}$ 以下では, 解析に用いた共鳴模型が良い模型とはいえないことと矛盾していない。

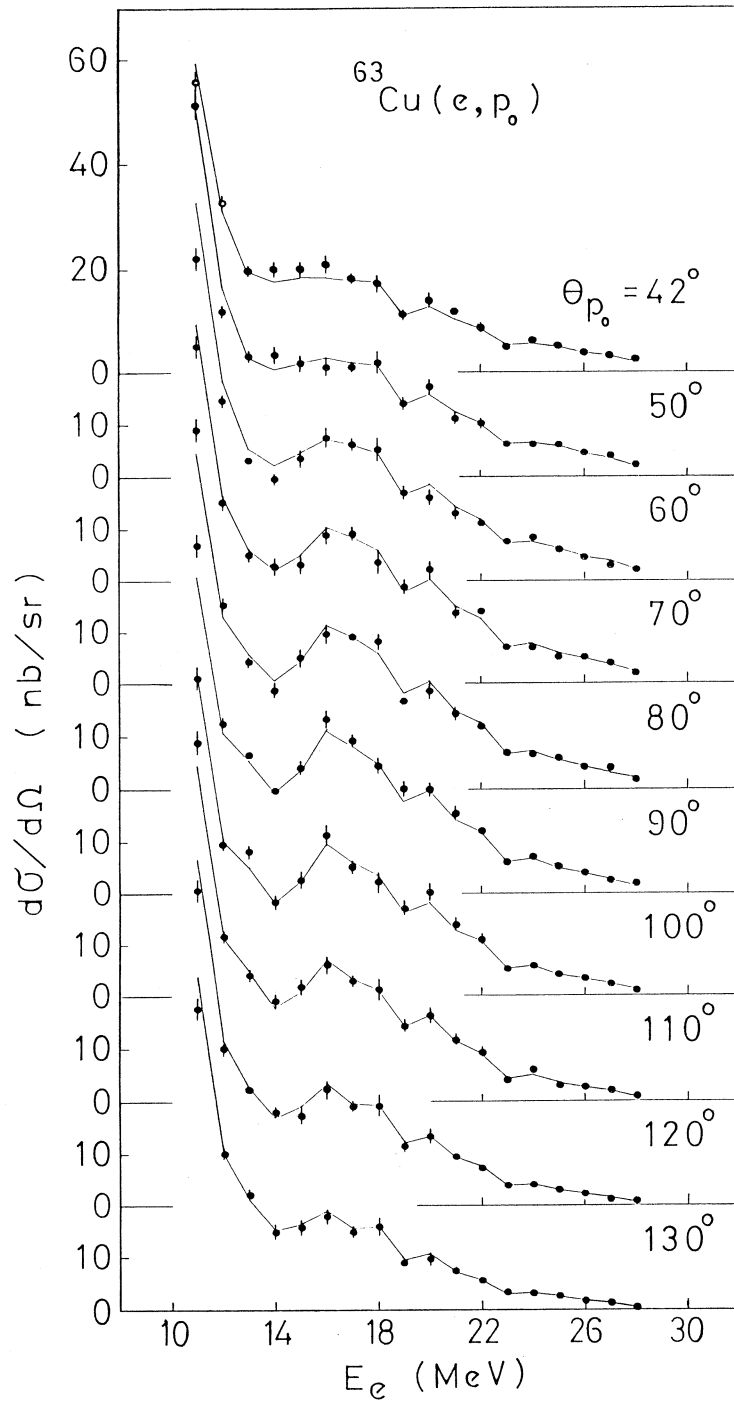
最近, (e, e') の実験より ^{63}Cu のE 2は $E_R\sim 13\text{MeV}$ という結果が出ているが, 今回の報告結果からははっきりしない。なお, 得られた実験結果に対する他の解析は現在進行中である。



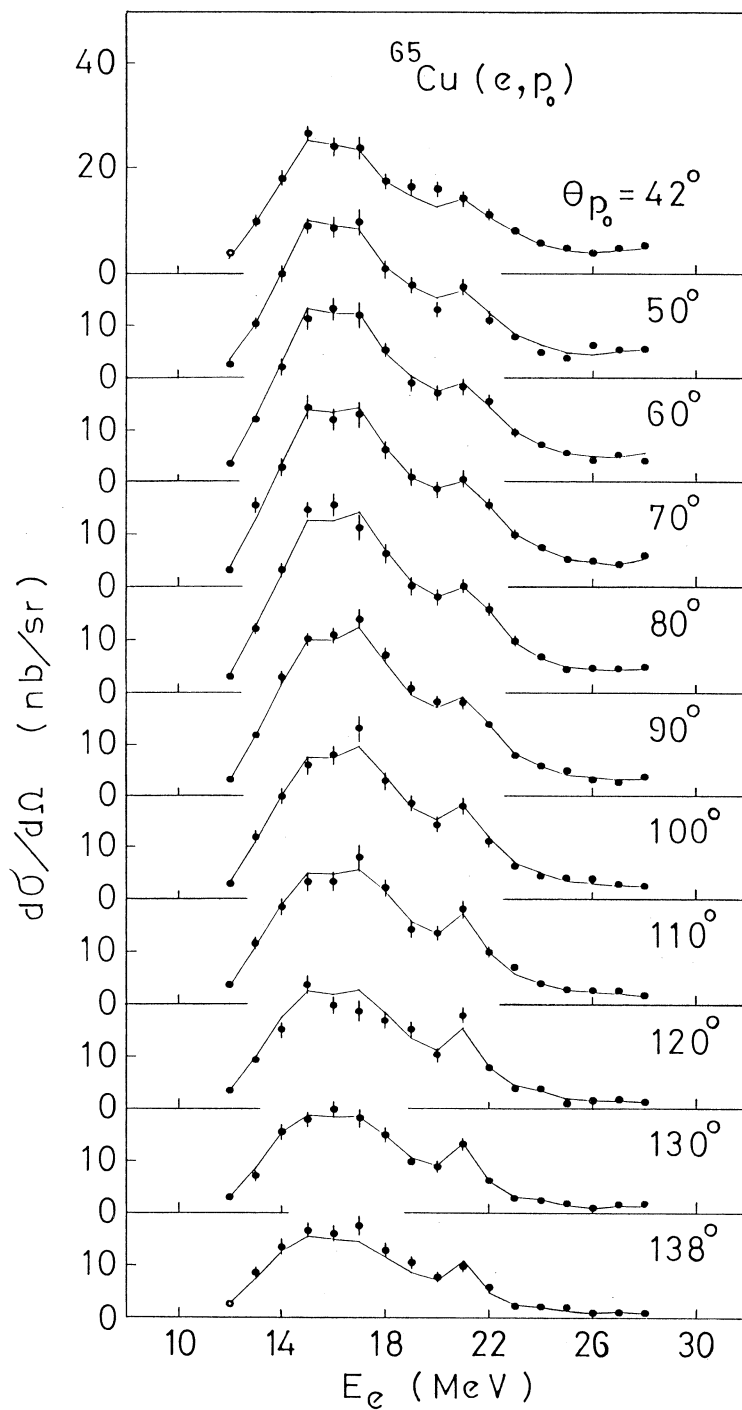
第1図 各入射電子エネルギーに於ける放出陽子の角度依存性。実線は解析結果。破線及び一点鎖線はそれぞれE1, E2成分。



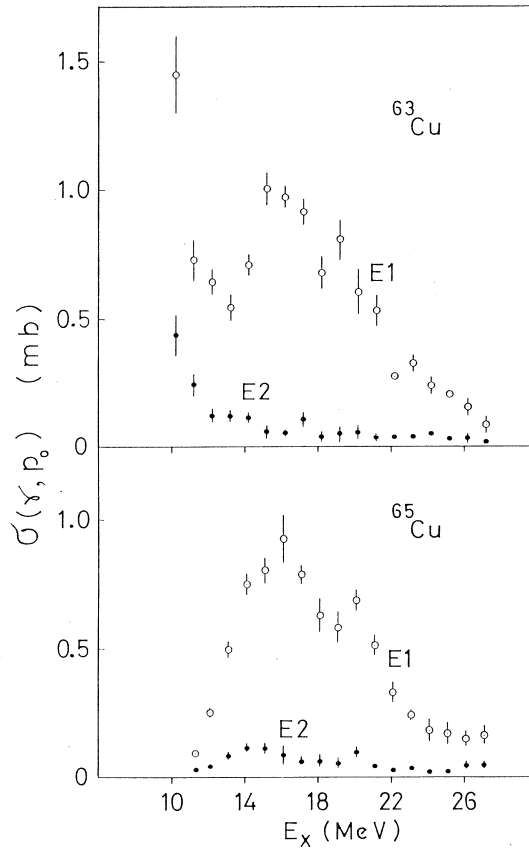
第2図 各入射電子エネルギーに於ける放出陽子の角度依存性。実線は解析結果。破線及び一点鎖線はそれぞれE1, E2成分。



第3図 各角度に於ける反応微分断面積。 $\theta_{p_0} = 42^\circ$ に於ける $E_e = 11, 12\text{MeV}$ の白丸は $\theta_{p_0} = 40^\circ$ のデータを用いた。実線は解析結果による χ^2 フィットの最良値を結んだもの。



第4図 各角度に於ける反応微分断面積。 $\theta_{p_0} = 42^\circ, 138^\circ$ に於ける $E_e = 12\text{MeV}$ の白丸はそれぞれ $\theta_{p_0} = 40^\circ, 140^\circ$ のデータを用いた。



第5図 (r, p_0) 反応断面積。白丸及び黒丸はそれぞれ E1, E2 成分。

参 考 文 献

- 1) 宮瀬晴久他：核理研研究報告 **16** (1983) 39.
- 2) H. Taneichi *et al.* : Nucl. Phys. **A 350** (1980) 157 ;
 D.M. Skopik *et al.* : Phys. Rev. C **21** (1980) 1746 ;
 H. Miyase *et al.* : Phys. Rev. Letters **50** (1983) 821.

II. 物 性 物 理

中性子散乱による Zr-O-H 中の水素原子の存在状態と局在振動

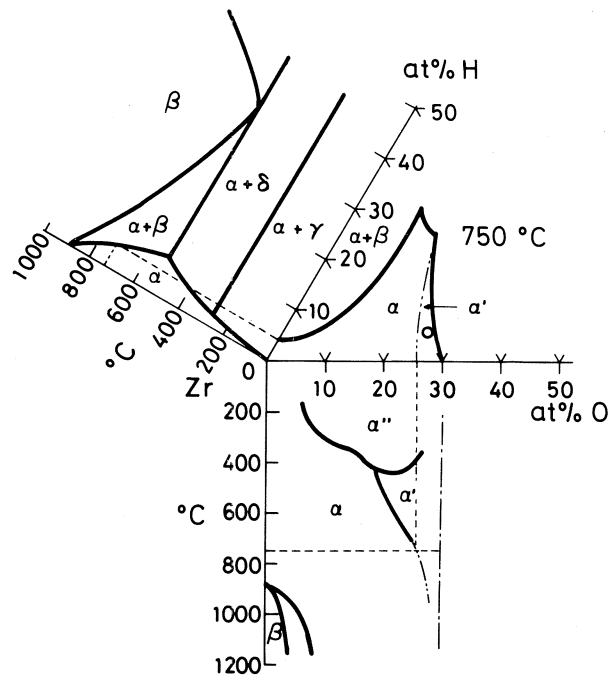
金 研

務川 進†・梶谷 剛・平林 真

§ 1. 序 論

稠密六方 (hcp) α -Ti および α -Zr 中の水素の存在状態に関しては、未だ不確定な点が残っている。Pintoら¹⁾は $\text{TiH}_{0.04}$ 中の H は hcp 格子中の四面体格子間位置 (t-位置) を占めることを粉末中性子回折の研究から結論した。Alperinら²⁾は $\text{TiD}_{0.075}$ の 375 °C における中性子回折より、D の大部分 (68%) は八面体格子間位置 (o-位置) を占め、残りが t-位置を占めることを報告している。 α -TiH の中性子非弾性散乱の結果では、t-位置³⁾あるいは o-位置⁴⁾と報告されている。一方、 α -Zr 中の H (D) については、中性子回折⁵⁾でも、中性子非弾性散乱^{3,4)}でも、t-位置を占めると結論されている。

本研究では hcp α -Zr 中に O 原子と共存する H (D) 原子の存在位置と局在振動を TOF 中性子散乱により明らかにすることを目的とした。 α -Zr 中の H (D) の溶固度は室温では非常に少ないが、温度の上昇と共に増大し 500 °C 付近で最大となる。



第1図 Partial phase diagram of Zr-O-H, Zr-H and Zr-O. The solubility curve of α Zr-O-H at 750 °C is given by ref. (7). An open circle indicates the $\text{ZrO}_{0.4}\text{H}_{0.1}$ composition.

† 現在 新日本製鉄株式会社

O-原子が共存すると H の固溶度は増大することが知られており⁹⁾, 第1図に Zr-O-H 系状態図の 750°C における断面を示す⁷⁾. Zr-O 系中の O 原子は, hcp 格子の O-位置を占め, 500°C 以下では規則配列をとる. 第1図の α' , α'' 相は規則相である. α' , α'' 相中の O 原子の配列は詳しく調べられており, 本研究と関係する $ZrO_{0.4}$ の α'' 相結晶構造を第2図に示した¹⁰⁾. この構造は ZrO_2 型とよばれ, ϵ - Fe_2N 型構造を基本とし, それから導かれるものである.

また, Zr-O と比べる目的で Ti-O 中の H(D) に関しても中性子散乱の測定を行った. その結果についても簡単にふれる.

§ 2. 実験方法

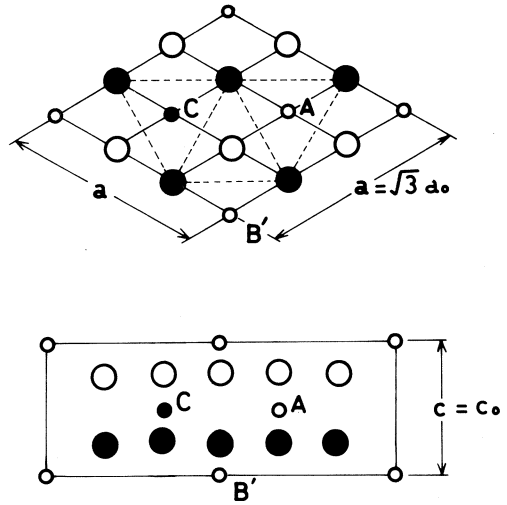
Zr と ZrO_2 をアルゴンアーク炉で溶解し $ZrO_{0.25}$ と $ZrO_{0.4}$ のインゴットを作った^{9,10)}. 数回, 溶解, 破碎, 混合を繰返した後, 所要量の H(D) をジーベルツ法で吸収させた. $ZrO_{0.4}$ については, 浮游帯域法で単結晶を作り, それに H(D) を吸収させ $ZrO_{0.4}H_{0.1}$, $ZrO_{0.4}D_{0.1}$ 結晶を作った. H(D) を吸収後, 300°C で約1週間焼鈍し, 室温に徐冷した.

中性子弾性散乱測定には, 直径約 3 mm の単結晶を用い, 1次元位置敏感検出器で2次元強度分布を求めた. 非弾性散乱測定には, 液体窒素冷却 Be フィルターを用いる時間焦点結晶アナライザ-法によった¹²⁾. 粉末試料は 110×85×5 mm のアルミニウム容器に入れた.

金属および O 原子の結晶学的パラメーターを決めるため, 0.1 mm 直径の球状単結晶を用いて X 線回折強度の精密測定を行った. これには選鉱製錬研究所の四サークルデフラクトメーターを用いた.

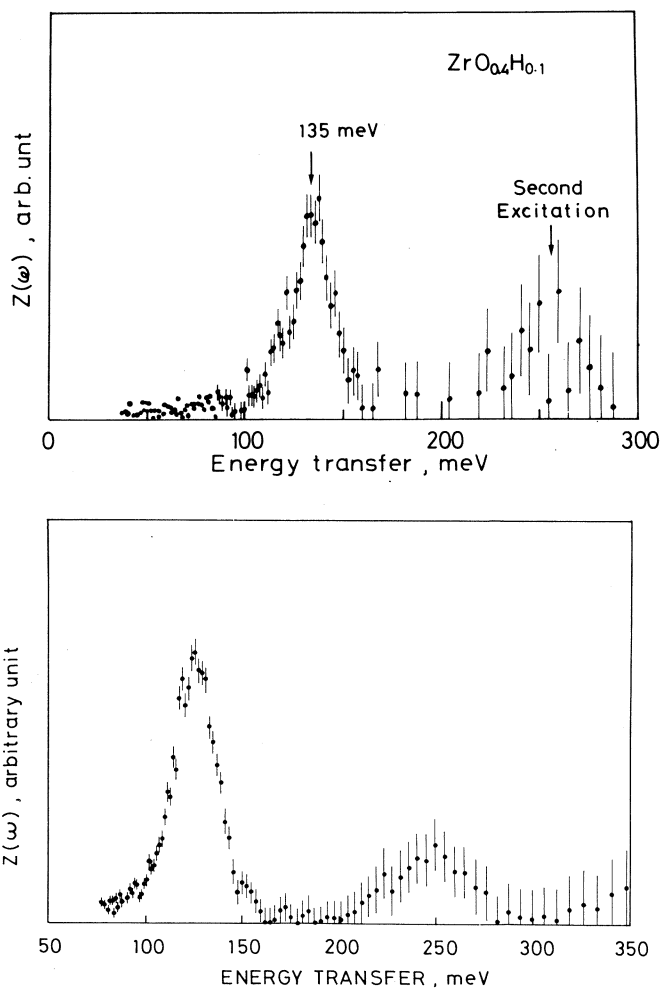
§ 3. 実験結果

3.1 中性子非弾性散乱



第2図 Structure model of α'' - ZrO_2 .

For $ZrO_{0.41}$, the occupation probabilities of O at o-sites A, B' and C are given as 0.92, 0.87 and 0.69, respectively.¹⁰⁾



第3図 Frequency distribution (density of state) curve $Z(\omega)$ of $ZrO_{0.4}H_{0.1}$ (a) and $ZrO_{0.25}H_{0.6}$ (b).

第1表 Comparison of local modes of hydrogen.

	Peak energy (meV)		FWHM of first peak (meV)	Temperature ($^{\circ}C$)	Reference
	First	Second			
$ZrO_{0.3}H_{0.1}$	135 ± 3	~ 270	21	20	this work
$ZrO_{0.25}H_{0.62}$	125 ± 3	~ 250	27	20	this work
$ZrH_{0.05}$ (α)	144 ± 1		47	600	(3)
$ZrH_{0.03}$ (α)	143.1 ± 0.6	277.7 ± 3.4		492	(4)
($\alpha + \beta$)	141.4 ± 0.4	279.4 ± 1.2		216	(4)
ZrH_2 (ϵ)				20	(14)

ZrO_{0.4}H_{0.1} および ZrO_{0.25}H_{0.6} の非弾性散乱スペクトルには、約 130 meV に H の局在振動によるピークが観測された。第 3 図(a), (b)に、2つの試料の振動数分布曲線 $Z(\omega)$ を示す。これは測定スペクトルから前報と同様の方法¹³⁾で導いた。ZrO_{0.4}H_{0.1} については、局在振動のエネルギーは 135 meV、その半価幅 (FWHM) は 21 meV、また等方性振動振幅の二乗平均は 0.061 Å であった。このピークエネルギー値は CaF₂ 型水素化物 ZrH₂ における局在ピーク 137 meV と 143 meV¹⁴⁾ に非常に近く、H 原子の環境が似ていることを示唆している。第 3 図のスペクトルには、第 2 高調ピークが 260 meV 近くに見られるけれども、統計誤差が大きく調和振動モデルからのずれは検出されない。

第 1 表に観測結果を、ZrH_{0.03}⁴⁾ と ZrH_{0.05}³⁾ の高温における測定値、および ZrH₂ のデータと比較した。これらの比較から、ZrO_{0.4}H_{0.1} および ZrO_{0.25}H_{0.6} 中の H は、 α -Zr 中と同様に hcp 格子中の t₁-位置を占めると結論される。

3.2 X-線および中性子回折

まず、ZrO_{0.4}D_{0.1} 単結晶の X 線回折強度測定により、Zr と O 原子の結晶学的パラメーターの精密化を行った。実験条件と結果を第 2 表に示す。測定強度についてローレンツ因子、偏光因子、吸収因子の補正を行い、さらに異方性二次消衰効果の補正¹⁵⁾を行った。空間群 P 312 で精密化を行った結果、R 因子は 4.28% に達した。このようにしてえられたデータを第 3 表に示す。O 原子の存在位置は、ZrO_{0.41} の結果と大体一致しており、1(a) と 1(d) 位置に優先的に分布し、残りが 1(f) に入っている。1(a), 1(d), 1(f) 位置は、第 2 図と第 3 表では B', C, A とそれぞれ記してある。

D 原子の分布は、TOF 中性子回折強度を解析して決定した。 $[2\bar{1}\bar{1}0]$ 軸を垂直に保ち、41 ケの反射強度を測定し、独立な 16 ケの反射をもとに解析した。測定データの一例を第 4 図に示した。

D 原子の存在確率と等方的温度因子を第 3 表にまとめて示した。この表から、D 原子は $1/3 \ 1/3 \ 1/8$ の 6(1) 位置 (以下 t₂-位置とよぶ) よりも、 $1/3 \ 0 \ 5/8$ の 6(1) 位置 (以下 t₁-位置とよぶ) に優先的に占めていることがわかる。第 5 図の構造モデルに示し

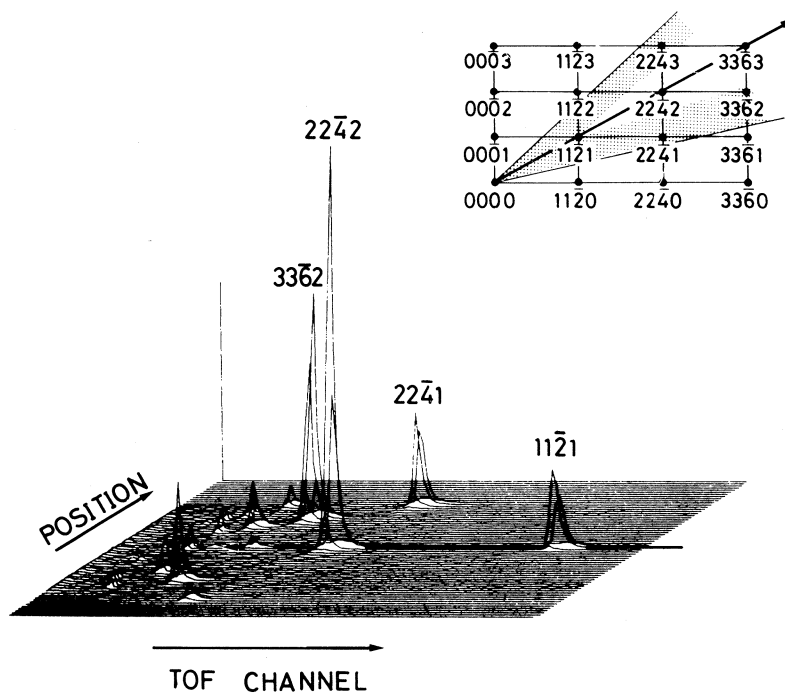
第 2 表 Crystal data and experimental conditions in X-ray diffraction of ZrO_{0.4}D_{0.1}.

Space group	P 312, Trigonal
Unit cell dimension	a=5.6327 (5) Å c=5.2209 (7) Å
Diameter of crystal	0.2 mm
Radiation	Mo K α 0.70926 Å
Monochromator	Graphite plate
Collimator	0.5 mm ϕ
Scan mode	ω -2 θ
2 θ _{max}	80°
(sin θ / λ) _{max}	0.9063

たように、 t_1 -位置はAとCと名付けたO原子が存在している近くの t -位置であり、一方 t_2 -位置は1ケのO原子(B')が存在する層内の t -位置である。この結果は、D原子が近くにO原子がいる t -位置にトラップされることを示しており、O-D原子間には引力的な相互作用があることを示唆している。

第3表 Results of X-ray and neutron diffraction
on $ZrO_{0.4}D_{0.1}$.

Atom	Position	Site	Coordinate			Occupation probability	Temperature factor
			x	y	z		
Zr	6 (l)		0.33324	-0.00008	0.24993	1	0.28
	1 (f)	(C)	2/3	1/3	1/2	0.465	0.46
O	1 (d)	(A)	1/3	2/3	1/2	0.730	0.59
	1 (a)	(B')	0	0	0	0.788	0.37
D	6 (l)	(t_2)	1/3	1/3	1/8	0.06	0.57
		(t_1)	1/3	0	5/8	0.60	0.58



第4図 Neutron diffraction spectrum of $ZrO_{0.4}D_{0.1}$.

§ 4. 考察と総括

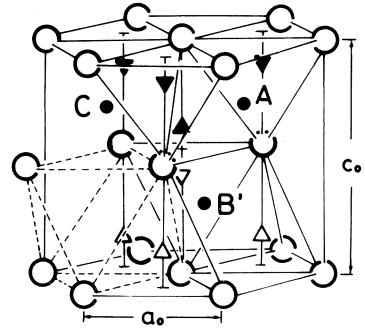
以上の実験から, $\text{ZrO}_{0.4}\text{H}_{0.1}$ および $\text{ZrO}_{0.25}\text{H}_{0.6}$ 中の H 原子は t_1 -位置を占めること, また $\text{ZrO}_{0.4}\text{D}_{0.1}$ 中の D 原子は t_1 -位置を優先的に占めていることが明らかになった。

ここで第3図の $\text{ZrO}_{0.4}\text{H}_{0.1}$ の振動数分布 $Z(\omega)$ 曲線の解析を試みよう。この局在振動モードについて, ω_1 , ω_2 , ω_3 の3つの振動数を仮定し, 最小二乗法で観測曲線との fitting を行った¹⁷⁾。それぞれの成分 $Z(\omega_j)$ はローレンツ曲線とし, その半価幅と ω_j をパラメータとした。その結果, $\hbar\omega_1 = 129 \text{ meV}$, $\hbar\omega_2 = \hbar\omega_3 = 136 \text{ meV}$ で最も良い fit がえられ, 残差 $R = \sum \{Z(\omega_j)_{\text{obs}} - Z(\omega_j)_{\text{cal}}\}^2 / \sum \{Z(\omega_j)_{\text{obs}}\}^2$ は 3.0% となった。第6

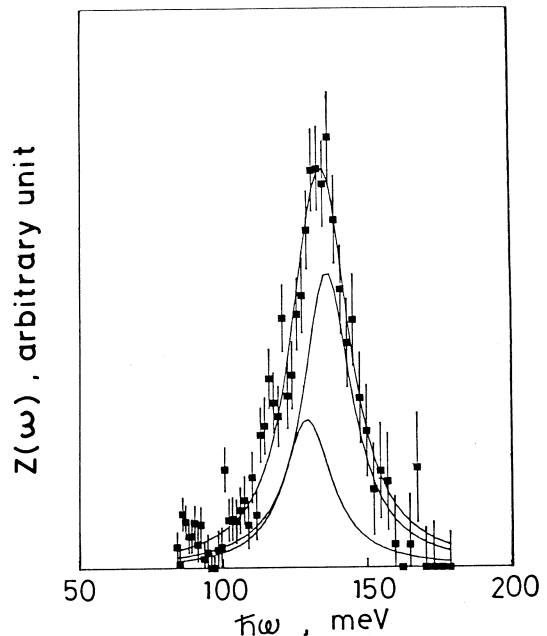
図に計算曲線と実測値とともに示した。 $\omega_2 = \omega_3$ となったことは2重縮退を意味し, $\text{ZrO}_{0.4}\text{H}_{0.1}$ の六方格子の軸比 $c/a = 1.60$ が理想軸比 1.633 より小さく, t_1 -位置がひずんでいることと合致する。

Zr-O-H系と比べる目的で, $\text{TiO}_{0.3}\text{H}_{0.1}$ の局在モードの測定も行った。その結果は, 第7図に示したように 86 meV にピークをもち, 100 meV に肩が見られた。この結果は H 原子が t_1 -位置よりも O-位置に入っていることを示唆している。これは, Hempelmann ら⁴⁾ の α -Ti 中の H 原子と同様である。

このような Zr-O-H と Ti-O-H 中の H 原子の異なる挙動は, 励起エネ



第5図 Structure model of $\text{ZrO}_{0.4}\text{D}_{0.1}$. Full and open triangles correspond to t_1 - and t_2 -sites, respectively. Small circles marked as A, B' and C are o-sites occupied by O atoms, and large circles are Zr atoms.

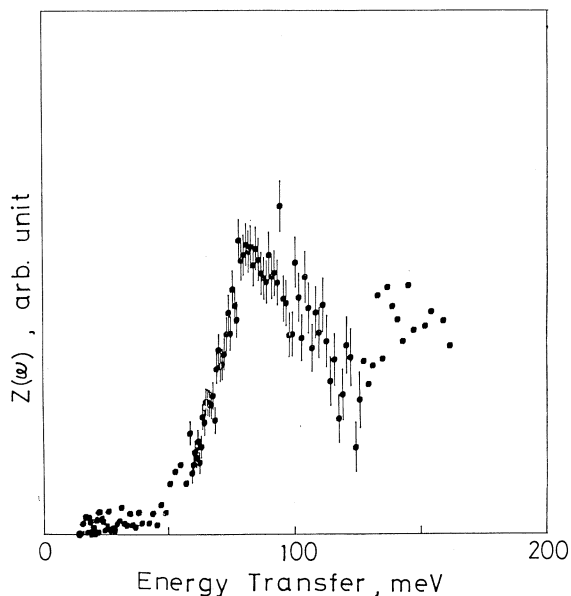


第6図 Fitting of the observed $Z(\omega)$ of $\text{ZrO}_{0.4}\text{H}_{0.1}$ with the calculated curves of $Z(\omega_1)$, $Z(\omega_2 = \omega_3)$ and $\sum_{j=1}^3 Z(\omega_j)$.

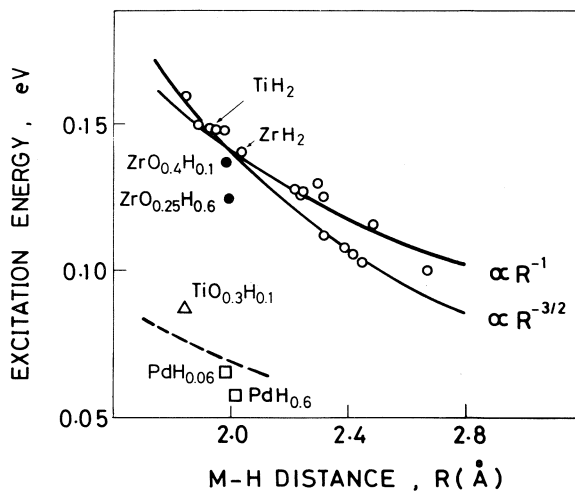
ルギー—vs.—金属水素原子間隔曲線と比較して見るとよく明瞭になる。第8図は CaF_2 型金属水素化物中の t-位置にある H 原子の局在振動エネルギー ΔE をプロットしたものである^{18,19)}。

$\text{ZrO}_{0.4}\text{H}_{0.1}$, $\text{ZrO}_{0.25}\text{H}_{0.6}$ の測定値は, CaF_2 型水素化物のデータによく一致している。しかし, $\text{TiO}_{0.3}\text{H}_{0.1}$ の値はそれらの値よりはるかに低く $\text{PdH}_{0.006}$ ²⁰⁾, $\text{PdH}_{0.6}$ ²¹⁾ の fcc 金属中の O-位置を占める H に対する値にむしろ近いことがわかる。

最後に, Zr-O-H(D) 結晶中の Zr 原子位置についてふれる。第3表に示したように, $\text{ZrO}_{0.4}\text{D}_{0.1}$ の Zr の原子位置は誤差の範囲内で $(1/3, 0, 1/4)$ である。一方, $\text{ZrO}_{0.41}$ 中の Zr 原子位置は $(0.335, 0.0017, 0.2486)$ と決定されている¹⁰⁾。Zr 原子は正規の六方格子点から変位 (0.002 程度) している。その変位は D 原子の固溶によって消失したことを, この結果は示している。つまり, D(H) 原子は金属格子の弾性的な変位をおこすことなしに Zr 格子中に O 原子と共存して固溶しうることを物語っている。



第7図 Frequency distribution curve $Z(\omega)$ of $\text{TiO}_{0.3}\text{H}_{0.1}$.



第8図 Local mode excitation energy—vs.—metal hydrogen distance. Experimental data of Zr-O-H (●) and Ti-O-H (△) are plotted in comparison with the data of CaF_2 type metal hydrides (○). Two curves indicate the $R^{-3/2}$ ¹⁸⁾ and R^{-1} ¹⁹⁾ dependences. The data of Pd-H ^{20,21)} are marked with □.

この研究に終始努力頂いた新村信雄助教授，X線構造解析について便宜と助言を頂いた工学部野田泰稔助教授，選鉱製錬研究所松本実講師および実験と討論に加わって頂いた金子尚史氏に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) H. Pinto, C. Korn, S. Goren and H. Shaked: Solid State Comm. **32** (1979) 397.
- 2) H. A. Alperin, H. Flotow, J. J. Rush and J. J. Rhyne: *Proc. Conf. Neutron Scattering, Gatlinburg* (1976) Vol. 1, p. 517.
- 3) R. Khoda-Bakhsh and F. K. Ross: J. Phys. F: Met. Phys. **12** (1982) 15.
- 4) R. Hempelmann, D. Richter and B. Stritzker: J. Phys. F: Met. Phys. **12** (1982) 79.
- 5) P. P. Narang, G. L. Paul and K. N. R. Taylor: J. Less-Common Met. **56** (1977) 125.
- 6) A. Brown and D. Hardie: J. Nucl. Mat. **4** (1961) 110.
- 7) C. E. Ells and A. D. McQuillan: J. Inst. Met. **85** (1956) 89.
- 8) M. Hirabayashi, S. Yamaguchi, H. Asano and K. Hiraga: *in Order-Disorder Transformations in Alloys*, ed. H. Warlimont (Springer-Verlag, 1974) p. 266.
- 9) T. Arai and M. Hirabayashi: J. Less-Common Met. **44** (1976) 291.
- 10) S. Hashimoto, H. Iwasaki, S. Ogawa, S. Yamaguchi and M. Hirabayashi: J. Appl. Cryst. **7** (1974) 67.
- 11) N. Niimura, T. Kubota, M. Sato, M. Arai and Y. Ishikawa: Nucl. Instrum. Methods **173** (1980) 517.
- 12) N. Watanabe, M. Furusaka and M. Misawa: Research Report Nucl. Sci. Tohoku Univ. **12** (1979) 72.
- 13) R. Yamada, N. Watanabe, K. Sato, H. Asano and M. Hirabayashi: J. Phys. Soc. Japan **41** (1976) 85.
- 14) J. G. Couch, O. K. Harling and L. C. Clune: Phys. Rev. **B4** (1971) 2675.
- 15) P. Coppens and W. C. Hamilton: Acta Cryst. **A26** (1970) 71.
- 16) P. J. Becker and P. Coppens: Acta Cryst. **A30** (1974) 129.

- 17) M. Kitamura, Y. Takeda, K. Kawase and K. Sugiyama : Nucl. Instrum. and Methods **136** (1976) 363.
- 18) D. K. Ross, P. F. Martin, W. A. Oates and R. Khoda-Bakhsh : Z. Phys. Chem. N. F. **114** (1979) 221.
- 19) Y. Fukai and H. Sugimoto : J. Phys. F : Metal Phys. **11** (1981) L 137.
- 20) W. Drexel, A. Murani, D. Tocchetti, W. Kley, I. Sosnowska and D. K. Ross : J. Phys. & Chem. Solids **37** (1976) 1135.
- 21) J. Bergsma and J. A. Goedkoop : *Inelastic Scattering of Neutrons in Solid and Liquids* (IAEA, Viena, 1961) p. 501.

A Cryostat for High Pressure Works in TOF Neutron Diffraction

Kazuo Kamigaki

*The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals,
Tohoku University, Katahira, Sendai 980*

An apparatus was constructed to apply the pressure to the sample *in situ* at low temperatures. The pressure cell is a piston-cylinder type, the material of the cylinder is Ti-Zr incoherent alloy. The cell is cooled by direct contact with the liquid nitrogen tank. Heat flow to the cell is prevented by plastic blocks inserted in the thrust rod and in the base. Temperature of the cell is kept at about -50°C in consumption with 0.51 / hr of liquid nitrogen.

§1. Introduction

A piston-cylinder type high pressure apparatus was presented in the previous report¹⁾ for the time-of-flight (TOF) neutron diffraction. The cylinder was made of Ti-Zr alloy and the diffraction lines from the cylinder itself were suppressed perfectly. The TOF analysis of the neutron energy was done at fixed diffraction angles through the slits cut in the binding ring. The maximum pressure attained was about 20 kb at room temperature.

In low temperature-high pressure apparatus, the massive pressure cell must be insulated thermally from the outer parts and cooled down effectively. To achieve this, a considerably large-scale apparatus was designed for angle dispersive neutron diffraction²⁾. In some cases, cramped pressure cell was used to attain the efficient cooling^{3,4)}. In the present apparatus of TOF diffraction, *in situ* application of pressure is intended and the cell is coupled mechanically with the outer frame. Blocks of plastics are inserted as heat insulators between the thrust rods and in the basal frame of the press. The high pressure cell is cooled by liquid nitrogen contained in a tank touched on the cell. A steady cooling to -50°C is

aimed at 20 kb.

§ 2. Structure of the cryostat

The present system is designed as a combination of cooling device and thermal insulators with the original apparatus¹⁾. The outline of the cryostat is illustrated in Fig. 1.

The hydraulic press is composed of parts (1a-1d) and driven by a pump (maximum pressure : 700 kg / cm² and discharge capacity 0.11 / min). (1a) is the ram : maximum loading is 20 tons and stroke is 5 cm. (1b) is the top frame, (1d) is the basal frame and (1c)'s are the pillars, 50 cm long and 5 cm² in cross section. (2a-2c) and (1d) form a vacuum chamber : In the top plate (2a) the thrust rod (3a) is equipped through a vacuum seal. (2b) is the upper chamber made of brass plate, and (2c) is the lower chamber made of aluminum plate 2 mm thick, flanges and aluminum plate are glued by epoxy resin. Both incident neutrons and diffracted ones pass through the aluminum chamber. Small black circles illustrate the cross section of O-ring vacuum seals.

(3a-3d) are the parts to drive the piston and to insulate the heat flow, most of steel parts are made of heat-treated tool steel. Thrust rod (3a) is 2 cm diameter, its bottom end is expanded to 3.5 cm. (3b) is a block of phenolic resin 3.6 cm in diameter and 4 cm long, the compressional strength is about 10 tons at room temperature

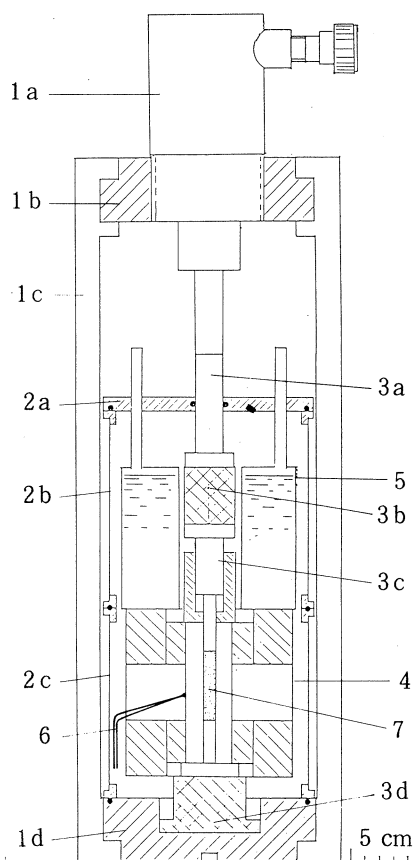


Fig. 1. Low temperature - high pressure apparatus for TOF neutron diffraction. Explanation is given in the text.

and reduced somewhat at lower temperatures. (3c) is a guided pushing rod to drive the piston. The lower insulator (3d) is made of phenolic resin 5cm in diameter and 4 cm long. Details of the pressure cell (4) were described in the previous report¹⁾.

The coolant is contained in the tank (5) made of brass plates, the capacity is about 1 liter. The tank is joined with the top plate (2a) by rubber tubes to keep some flexibility for adjusting contact with the cell. Temperature of the pressure cell is monitored by an alumel-chromel thermocouple (6) inserted in a slit.

The cryostat is assembled in the following way : at first, the cell (4) loaded with specimen (7) and the lower chamber are placed on the base frame. Then the assembled upper half is fixed on, the contact surfaces of (4) and (5) are glued with silicone grease and the fitness is adjusted at low vacuum.

§ 3. Performance of the cryostat and discussion

The performance of the cryostat was tested for liquid nitrogen in a vacuum of 10^{-3} mm Hg. About 2 liters of liquid nitrogen is consumed in about 1 hour and the pressure cell is cooled down to about -30°C . Then 1 liter is consumed in about 2 hours to reach -50°C . After that, temperature is kept around -50°C by supplying 0.5 liters every one hour. After the evaporation of liquid nitrogen, temperature is raised gradually to -30°C in about 3 hours.

For the practical operation of neutron diffraction in the Laboratory of Nuclear Science, the preferable interval to supply nitrogen is about 3 hours. In such operation, temperature drifts 10°C around -40°C , and the problem is to extend the interval of supply.

The weight of the high pressure cell is about 10 kg and the heat capacity is about 1 kcal / $^{\circ}\text{C}$. The heat of evaporation of liquid nitrogen is about 39 kcal / l, and 2 liters of nitrogen is capable of cooling the cell down to -50°C . The actual consumption of liquid nitrogen is reasonable for the cooling but somewhat large to maintain the low temperature state. This will depend on room temperature and the degree of vacuum.

In the present cryostat, the maximum of pressure is limited to about 10 kb at

low temperatures because of the fracture of the bakelite rod. The important factors affecting the performance are the thermal conductivity of the plastic block and its mechanical strength. In ordinary plastics the conductivity is about $1/100$ of the stainless steel but the mechanical strength is about $1/30$, and about $1/3$ of heat conduction is expected for the same strength. In this point of view, some strong plastics such as fiber reinforced one e.g. glass-epoxy resin are preferable and a good performance will be expected to 4.2 K.

Acknowledgement

The author thanks Prof. K. Suzuki and Dr. M. Ueno for their support. The main parts of the cryostat were made at the factory of the Research Institute for Iron, Steel and Other Metals. Thanks are due to Mr. Y. Sato for his advice.

References

- 1) K. Kamigaki : Jpn. J. Appl. Phys. **19** (1980) 2507.
K. Kamigaki, H. Yoshida, M. Ohashi, T. Kaneko and K. Sato : Sci. Rep. RITU **A 29** (1980) 70.
- 2) C. Vettier, D. B. McWhan, E. I. Blount and G. Shirane : Phys. Rev. Lett. **39** (1977) 1028.
- 3) D. B. McWhan, C. Vettier, R. Youngblood and G. Shirane : Phys. Rev. **B20** (1979) 4612.
- 4) J. Mizuki and Y. Endo : J. Phys. Soc. Jpn. **50** (1981) 914.

熱中性子小角散乱装置 (WIT-1) の開発と製作(II)

核理研, 金研*, 工学部**, 高工研***

新村信雄・山田和芳・石田 明*

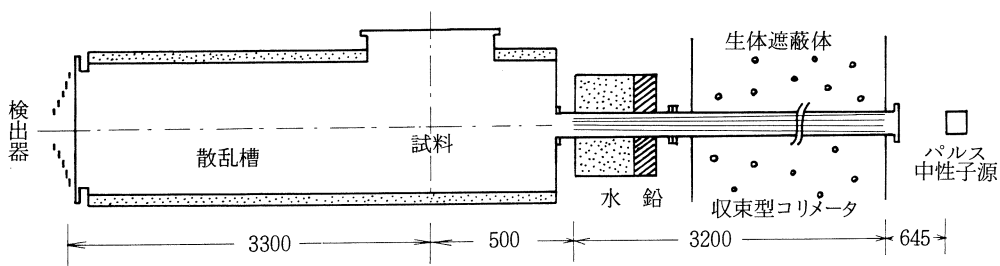
杉崎康昭**・三沢正勝***

§ 1. 序 論

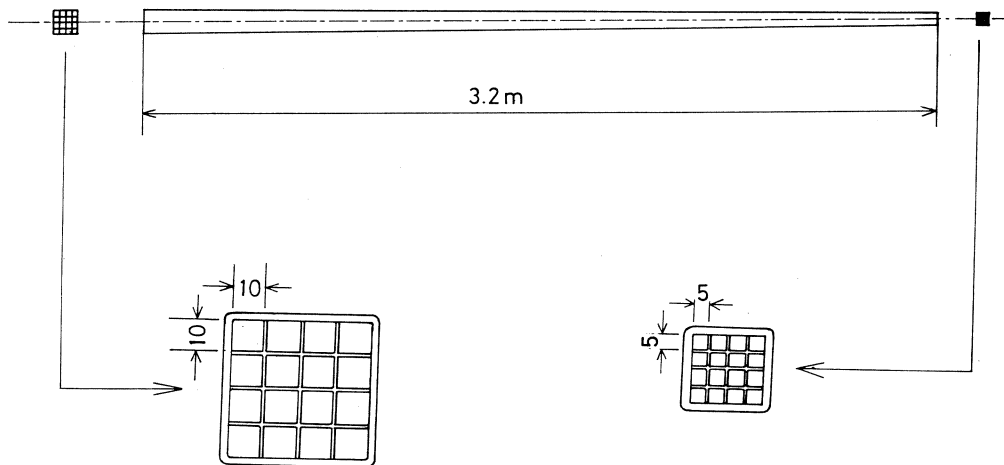
前回, 熱中性子小角散乱装置の概要と B_4C 繊維を用いたメッシュ型収束ソラースリット(MCスリット)について報告した¹⁾。これらの結果等を考慮して, 核理研パルス中性子源のH-3ビーム孔に3.2 m長のMCスリットを装備した熱中性子小角散乱装置を建設した。これを用いて行ったテスト実験を含めて, WIT-1の開発状況を報告する。

§ 2. WIT-1 本体

第1図にWIT-1の配置を示す。MCスリット(これの性能等の詳細は後述)は生体遮蔽体内を貫通して配置した。散乱槽と生体遮蔽体の間に γ 線及び速中性子の遮蔽のため鉛(約20 cm厚)及び水(40 cm厚)を置いた。尚速中性子の遮蔽として従来はパラフィンを用いていたが, パラフィンを溶かして遮蔽容器に詰めるとき, 空隙が生じ易く遮蔽効果に欠陥があったが, 水遮蔽を用いることで, その心配がなくなった。散乱槽の周囲も10 cm厚の水遮蔽を施してある。水10 cm厚で $\lambda = 0.4 \text{ \AA}$ の熱外中性子の透過率は 10^{-7} である。散乱槽の内壁にCd板を張って水遮蔽からの散乱中性子を除去してある。試料は上から釣り下げ, 真空中で測定可能な試料であれば, 試料の近くに不必要な散乱体のない散乱系を構成できる。検出器は維持管理が容易にできるよう散乱槽の外に出した。



第1図 熱中性子小角散乱装置の全体図。



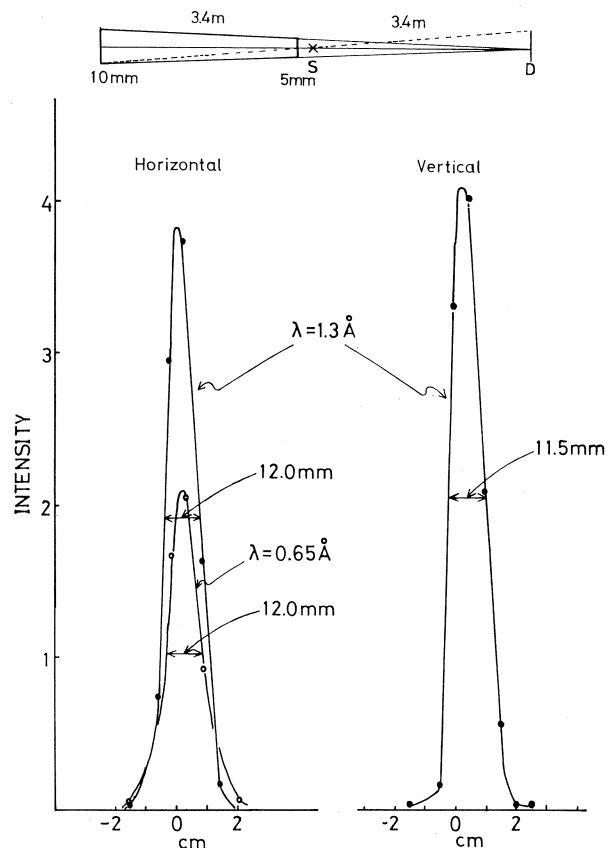
第2図 メッシュ型収束スリット。

§ 3. 3.2m長メッシュ型 収束ソラスリット

前回，MCスリットと Q の分解能について考察したが，検出器面上で10 mmの焦点のボケがあるMCスリットでは， 1.5 \AA の波長の中性子に対して，リング状検出器のリング半径 $R=100 \text{ mm}$ で $Q=0.12 \text{ \AA}^{-1}$ ，分解能10%， $R_{\min}=30 \text{ mm}$ で $Q_{\min}=0.01 \text{ \AA}^{-1}$ ，分解能40%が実現可能である。

我々は，第2図に示すようなMCスリットを製作した。上流側10 mm × 10 mm，下流側5 mm × 5 mmのL型棒を組み合わせるにより製作した。

B_4C 粉末(1200番，粒子半径 $1.5 \mu\text{m}$)をL型棒両面に塗付し



第3図 1号機MCスリットの中性子線による焦点のボケ。

た。

L型棒としては、0.5 mm厚のステンレス板を用いたもの（1号機）及び0.3 mm厚のアルミ板を用いたもの（2号機）を製作した。尚、2号機は1号機の製作工程での種々の欠陥を改良したもので、白色光を用いての透過光測定では約30倍の性能向上が見られた。2号機をWIT-1に装備しての中性子散乱実験は未だ実施しておらず、以下の話はすべて1号機MCスリットを用いての結果である。

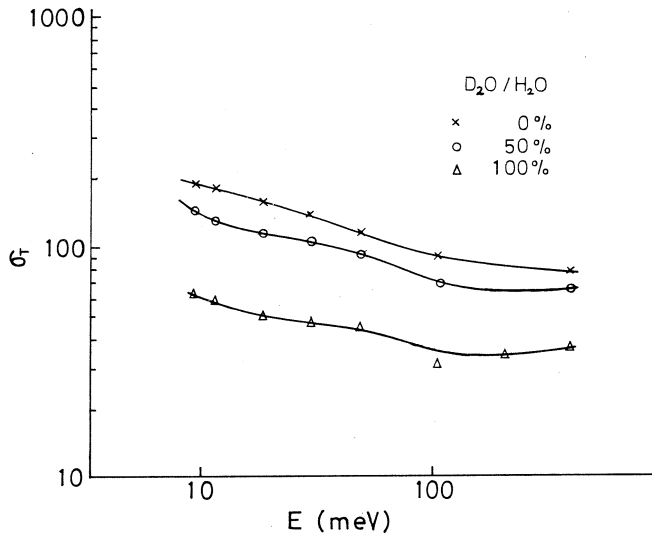
MCスリットをWIT-1に装備し、検出器面上で焦点のボケを測定した。第3図にその結果を示す。測定は、検出器を上下・左右に移動させることにより行った。横方向で半値幅12.0 mm、縦方向で11.5 mmである。これは幾何学的配置を考慮すると設計通りの値である。

§ 4. 中性子透過強度の測定

1号機MCスリットの中性子透過強度は大変弱いので、いわゆる小角散乱実験は不可能であるが、透過強度測定より物質の全散乱断面積を求めるにはビームが充分焦られているので最適である。

4.1 D_2O/H_2O

D_2O/H_2O 混合液は生体物質の溶液散乱の溶媒として用いられる重要な液体であり、全散乱断面積の中性子波長依存性は、散乱データ補正に必須のデータである。試料を1 mm厚のクォ



第4図 D_2O/H_2O の全散乱断面積。

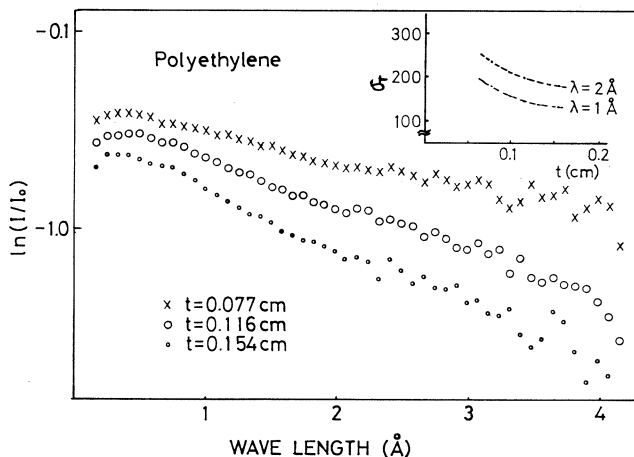
ルツ容器に入れて、透過強度測定が行われた。空容器の強度で規格化することにより全散乱断面面積を求めた。

$$\ln(I^S(\lambda)/I^C(\lambda)) = -N\sigma_T(\lambda) \cdot r$$

ここで、 $I^S(\lambda)$ 、 $I^C(\lambda)$ は試料及び空容器からの透過強度、 N は単位体積中の分子の個数、 r は試料(水)の厚み、 $\sigma_T(\lambda)$ は全散乱断面面積である。第4図にこのようにして求められた D_2O/H_2O の全散乱断面面積を示す。パーン・ブックに書かれている結果とはほぼ一致した結果が得られている。試料厚の絶対値が全散乱断面面積に直接効いてくるので、詳細な絶対値の議論は困難である。

4.2 ポリエチレン・シート

市販のポリエチレン・シートは構成成分、密度、厚みが判明しているので、このシートを一定数重ねることにより、厚みをパラメーターにしてポリエチレンの全散乱断面面積が求められる。水素は大きな全散乱断面面積を有するので、多重反射効果がある厚み以上で大きく効いてくる可能性がある。また、ポリエチレンの水素と水の水素の反跳効果の差も観測可能かもしれない。



第5図 ポリエチレン・シートの全散乱断面面積の厚み依存性。

このような目的でポリエチレン・シートの全散乱断面面積を求めた。結果を第5図に示す。ポリエチレン・シート1 mm厚以上になると、多重効果が効き始める。反跳効果は現在解析中である。

MC スリット2号機がすでにWIT-1には装備されているので、今後は中性子小角散乱実験が可能となろう。また、広い面積をカバーできる検出器の設置を考えているので、それにより測定効率向上するものと思われる。

参 考 文 献

- 1) 新村信雄, 山田和芳, 杉崎康明, 三沢正勝, 石田 明: 核理研研究報告 **16** (1983) 241.

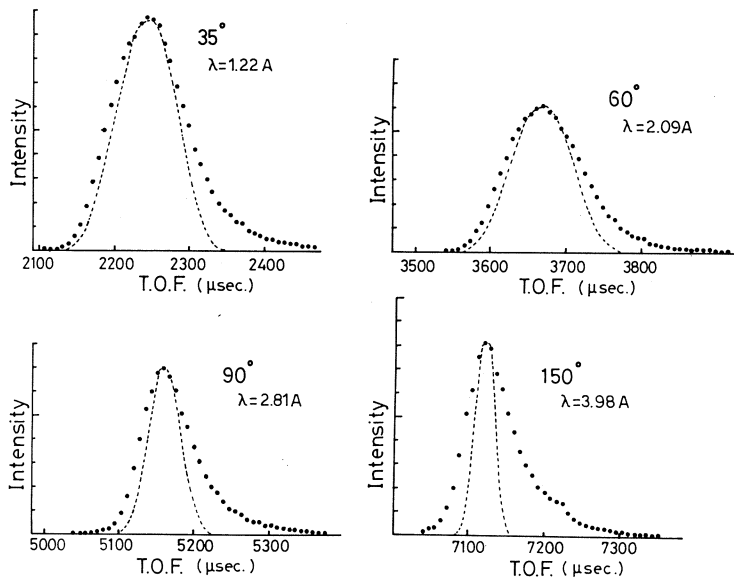
多結晶用デバイ・シェラー型 パルス中性子分光器の製作(II)

仙台電波高専, 核理研*

小野寺重文・山田和芳*

§ 1. 序 論

多目的な利用が可能で分解能の割合高い多結晶用デバイ・シェラー型パルス中性子分光器を製作し, その分解能が ^3He ディテクターを時間焦点条件を一次元的に満足するように配置したために 1% ($= \Delta Q/Q$) に達したことを前号で報告した¹⁾。検出器として ^3He ディテクターを使用した場合, 厳密に時間焦点条件を満足するように検出器を配置することは不可能である。厳密に時間焦点条件を満足するような検出系を実現した場合, どれだけ分解能が向上するか興味がある。我々は, 前回報告した分光器で測定した粉末 Fe の回折スペクトルから本施設の中性子パルスの時間分布関数を決定し, 厳密に時間焦点条件を満足する検出器を使用した分光器の分解能をモンテカルロ法で評価した。§ 2. では中性子パルスの時間分布の近似方法を, § 3. ではモンテカルロによる TOF 回折スペクトルのシミュレーションの方法を, § 4. ではこ

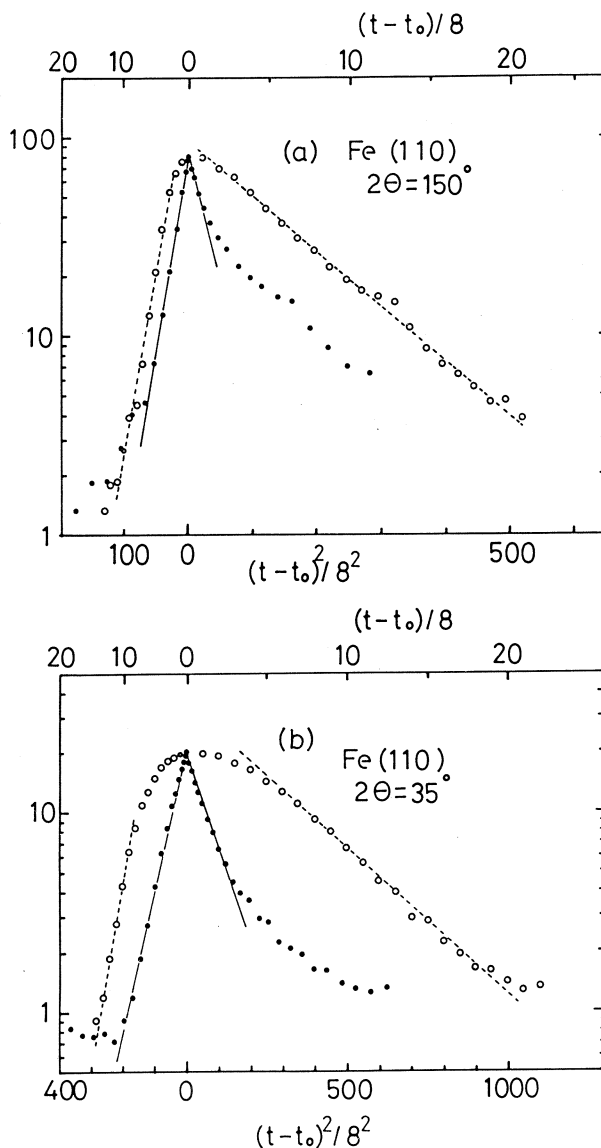


第1図 粉末 Fe 試料の中性子回折強度。
黒丸は実験値, 破線は装置の幾何学的要因によるスペクトルの広がり(計算値)。

のシミュレーションの方法で、分解能の良い検出器の設計について述べる。§ 5.ではまとめと今後の方針について述べる。

§ 2. 中性子パルスの時間分布の近似関数

第1図に粉末 Fe の (110) ブラッグ散乱による回折スペクトルを示す。散乱角が小さくなるに従い、ピークは丸味をおびてくる。図中の破線はモンテカルロ法 (§ 3:で述べる) で装置の幾何学的要素のみを考慮して求めた回折スペクトルである。散乱角が小さくなるに従い装置の幾何学的要素の回折スペクトルの形への寄与が大きくなっている。特に散乱角 35 度のスペクトルの立上り部分の形状は、幾何学的要因の寄与をそのまま表している。中性子パルスの時間分布の近似関数を推論するために、縦軸に散乱強度の対数、横軸にチャンネル幅 (t_w) で規格化した時間 $(t-t_0)/t_w$ (白丸)、時間の2乗 $(t-t_0)^2/t_w^2$ (黒丸) をとり第2図のように整理した。幾何学的要因の比較的少ない散乱角 150 度の場合の第2図-(a) から中性子パルスの時間分布は指数関数で立上り指数関数で立下る関数で表現できると思われる。散乱角 35 度の場合 (第2図-(b)) 回折スペクトルへの幾何



第2図 強度の片対数と時間及び時間の2乗プロット。

学的要因の寄与が非常に大きく、それがスペクトルの立上りがガウス関数で表され、また、立上りの指数関数で表現される範囲が少なくなっている点にあらわれている。結局、本研究施設のパルス中性子の時間分布関数 $n(\lambda, t)$ を

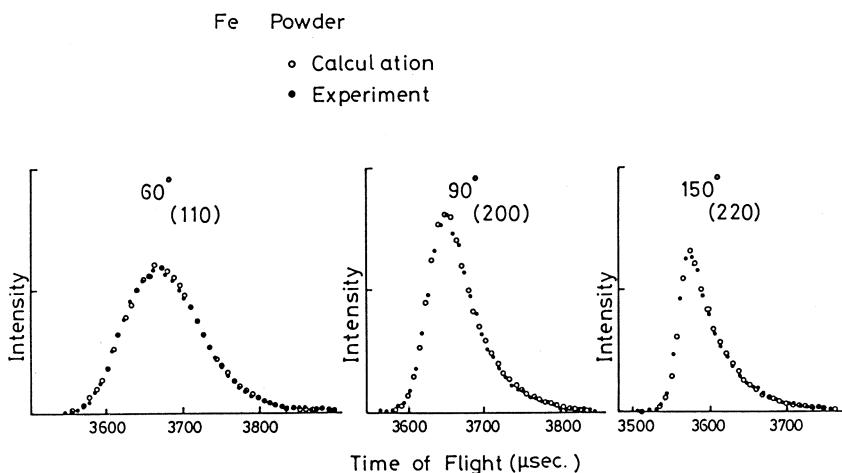
$$n(\lambda, t) = \begin{cases} \exp(B(\lambda)t) & (t \leq 0) \\ \exp(-A(\lambda)t) & (t \geq 0) \end{cases}$$

で近似した²⁾。

§ 3. モンテカルロ法による TOF スペクトルの計算

3.1 計算方法

TOF スペクトルの形は、減速材、試料及び検出器が有限の大きさであるために生じる散乱角及び飛行距離のゆらぎと（幾何学的寄与）、パルス中性子源に固有のパルス中性子の時間分布関数（パースト幅による寄与）によってきまる。ここでは、中性子の減速材通過位置、試料での散乱位置及び中性子の検出位置をそれぞれ独立に一樣乱数で決定し散乱角と飛行距離を求め飛行時間を計算することで幾何的要因からの寄与を考慮した。パースト幅による寄与を次のような方法でとりいれた。分布関数とその最大値の百分の1になる時刻を T_{100} , T'_{100} ($T_{100} < T'_{100}$) とする。中性子が減速材を飛び出す時刻 T を $T_{100} < T < T'_{100}$ の範囲の一樣乱数を発生させて決め、その時の時間分布関数 $n(\lambda, T)$ の値を飛行中性子のカウント数に重みとして付加することで中性子パルスの時間分布を考慮した。

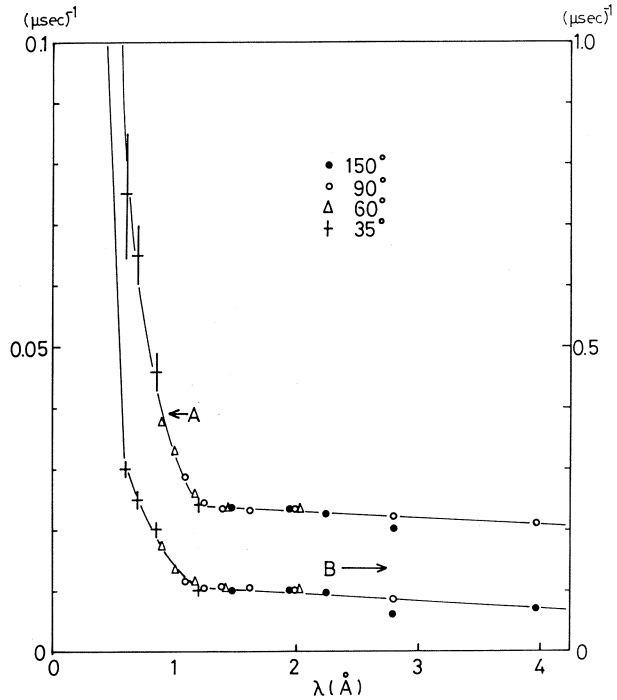


第3図 粉末 Fe 試料での中性子回折強度。

黒丸が実験値、白丸が中性子パルスの時間分布及び装置の幾何学的要因の両方を考慮した時の計算値。

3.2 粉末 Fe 試料の回折スペクトルの計算

第3図に、この方法で計算したスペクトルの例を示す。それぞれのスペクトルは、異なる散乱角に設置した検出器で測定した異なる指数からのブラッグ散乱スペクトルである。いずれの場合も散乱されてきた中性子の波長は 2 \AA でほとんど一定である。白丸が計算値、黒丸が実験値である。このように、計算値と実験値の一致はきわめてよい。種々の散乱角に設置された検出器で測定したスペクトルを使ってパラメータ $A(\lambda)$, $B(\lambda)$ の波長依存性を求めた。それを第4図に示す。A, B の波長依存性は検出器に関係なく一つの関数で表現される。この事実は、モンテカルロによる計算方法の妥当性を示している。

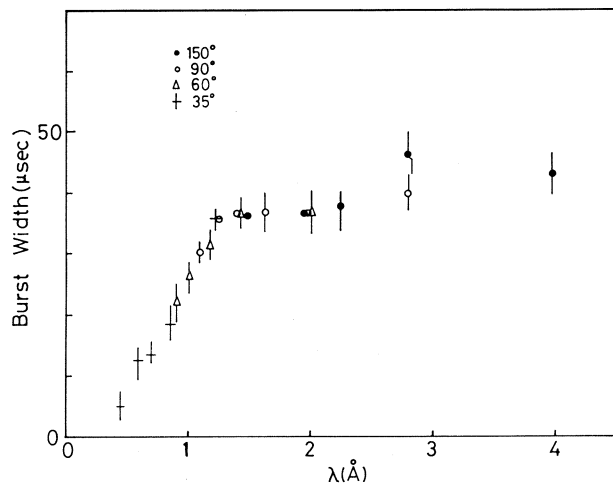


第4図 パルス中性子の時間分布関数のパラメータ A, B の波長依存性。

第5図に、パラメータ A, B の値を用いて求めた中性子パルスの全半値幅（バースト幅）の波長依存性を示す。

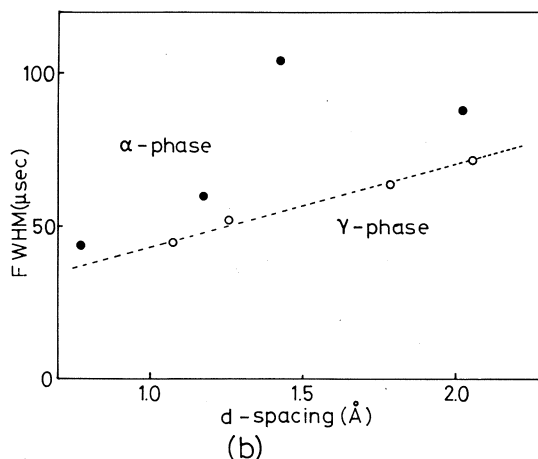
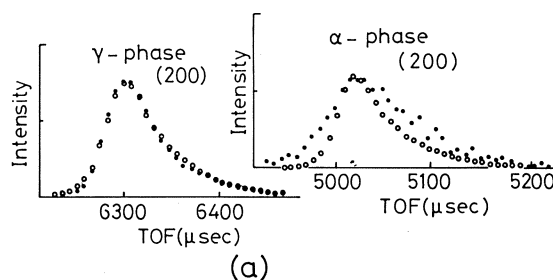
3.3 $\text{Fe}_{68}\text{Ni}_{32}$ 試料の回折スペクトル解析へのモンテカルロ法の適用

$\text{Fe}_{68}\text{Ni}_{32}$ は典型的なインバー合金として知られている $\text{Fe}_{65}\text{Ni}_{35}$ に近い組成比をしており、約 140°K 付近でマルテンサイト変態 (γ 相から α 相への変態) を起こす物質である。



第5図 バースト幅の波長依存性。

この系での相変態の微視的静
 的な研究はX線回折装置・電子
 顕微鏡などを用いて表面に近い
 原子層から得られる情報に基づ
 いて行われてきた。中性子回折
 では、バルク試料での実験が可
 能であり、物質内での結晶構造
 についてのデータが得られるの
 で、新しい現象が見出される可
 能性がある。第6図-(a)(b)に、
 100°Kにおけるバルク多結晶
 $\text{Fe}_{68}\text{Ni}_{32}$ のTOFスペクトルの
 一部を示す。黒丸が実験値であ
 る。白丸は、粉末Feのスペク
 トルから求めたパラメータ $A(\lambda)$ 、
 $B(\lambda)$ の値を使いモンテカルロ法
 で計算したスペクトルである。
 相変態をおこす以前と同じ相で
 ある γ 相からのブラッグ散乱ス
 ペクトルは、モンテカルロ法の
 計算から期待されるスペクトル

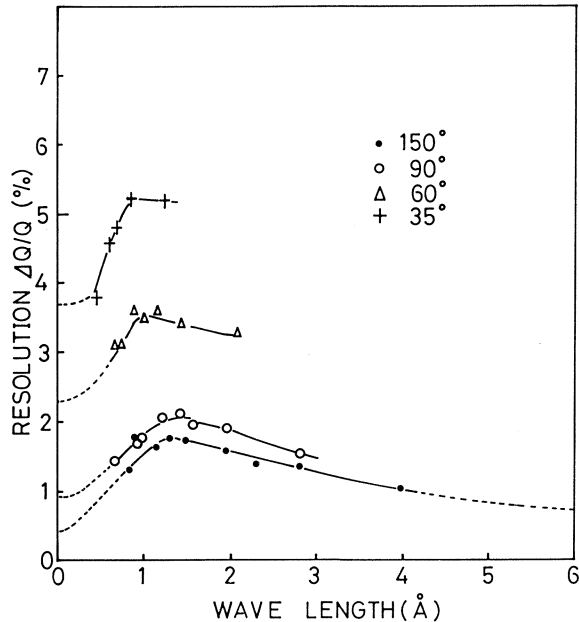


第6図 バルク $\text{Fe}_{68}\text{Ni}_{32}$ 試料での回折実験。
 (a) 回折スペクトル、黒丸は実験値、白丸は計算
 値。
 (b) 回折スペクトルの全半値幅の面間隔 (d -
 spacing) による変化。
 黒丸及び白丸は、それぞれ α 相、 γ 相から
 のブラッグ散乱スペクトルの全半値幅を示す。

とよく一致している。一方、析出相である α 相からのブラッグ散乱スペクトル(例では(200)
 ブラッグ散乱)は計算されたスペクトルと比較して異常に幅が広がっている。 γ 相と α 相か
 らの数本のブラッグ散乱スペクトルの全半値幅を面間隔の関数として第6図に示した。 α 相か
 らのブラッグ散乱スペクトルの幅が γ 相のそれより全体的に広いが、特に(200) ブラッグ散
 乱の幅が異常に広がっている。このような特定の指数からのブラッグ散乱スペクトルの幅が
 広がるという現象は、ストレスを加えたホイスラー合金 (Pd_2MnSn) 粉末でも観測されてお
 り³⁾ その原因に興味を持たれる。

§ 4. 検出系の設計

第7図に、 ^3He カウンターで構成した検出器¹⁾で測定した粉末 Fe スペクトルから求めた分解能 ($\Delta Q/Q$, ΔQ はピークの全半値幅)の波長依存性を示す。実線はただアイガイドラインと



第7図 粉末 Fe 試料の回折スペクトルより求めた分解能。点線は計算によって予測される分解能。

して記した。破線は、§ 3. で述べた方法で計算した分解能の外挿曲線である。特に $\lambda=0$ での分解能は、パルス幅を零として計算したいわゆる装置の幾何学的要因のみによる分解能である。散乱角 150度の検出器での分解能は、計算上は 0.39% ($\lambda=0 \text{ \AA}$) が限界である。

4.1 厳密に時間焦点条件を満足する検出器の分解能

我々は、減速材及び試料を点とみなした時に時間焦点条件を完全に満足するような検出器を想定し、本施設のパルス中性子源を用いた時の分解能の波長依存性を計算した。検出系の仕様

第1表 検出器の仕様。

減速材から試料までの距離	: 650 cm
試料から検出器までの距離	: 86 cm
検出器中心での散乱角	: 155 度
検出面の寸法	: 15 cm (h) × 20 cm (w)
検出面の張る角度	水平方向 : 9 度 垂直方向 : 10 度

を第1表に示す。

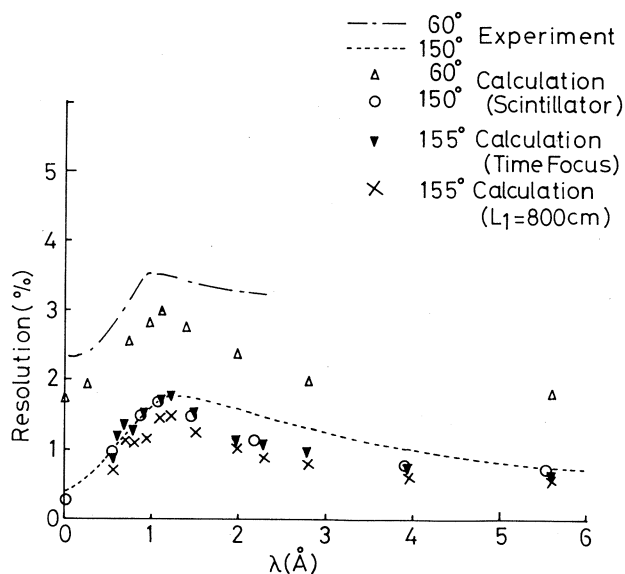
このような仕様で、試料の寸法を直径10mm、長さ60mmの円柱として計算した分解能を第8図に示す(▼印)。粉末Feの回折スペクトルから求めた散乱角150度検出器での分解能を比較のため破線で示した。波長1.4 Åから4 Åの範囲では、分解能が改善されている。たとえば、 $\lambda=4\text{ Å}$ の所で分解能は0.75%程度になる。

4.2 シンチレータで構成し

た検出器の分解能

厳密に時間焦点条件を満足するような検出系を有限の大きさを持った検出器で構成することは一般にむずかしいが、薄いシンチレータを用いると比較的容易に構成できる。そこで我々は第2、第3表に示す仕様の検出器を想定し、分解能の波長依存性を計算した。

これらの仕様に基づく分解能の計算結果を第8図に示す(△印60度系、○印155度系)。155度系の場合、厳密に時間焦点条件を満足する検出器の分解能とはほぼ同程度の分解能になっている。60度系の場合、 ^3He カウンターでの粉末Feの回折スペクトルから求めた分解能に比



第8図 種々の検出器での分解能の波長依存性(計算値)。

第2表 散乱角155度の検出器仕様。

減速材から試料までの距離	:	650 cm
試料から検出器までの距離	:	72 cm
シンチレータの寸法	:	1.5 cm (w) × 15 cm (h) × 0.1 cm (t)
シンチレータ使用枚数	:	15 枚
検出器中心の散乱角	:	156 度
検出器の張る水平面内角度	:	11 度
シンチレータの配置方法	:	減速材及び試料中心を含む水平面内での時間焦点曲線の接線方向とシンチレータの面が一致するように垂直縦長に配置

第3表 散乱角 60° の検出系の仕様。

減速材から試料までの距離	:	650 cm
試料から検出器までの距離	:	65 cm
シンチレータの寸法	:	3.7 cm(w) × 15 cm(h) × 0.1 cm(t)
シンチレータの使用枚数	:	10 枚
検出器中心の散乱角	:	約 60 度
検出器の張る水平面内での角度	:	約 3.5 度
シンチレータの配置方法	:	155 度系と同じ

べて 1.3～1.5 倍程度分解能が向上している。

4.3 より高分解能を実現するために

中性子の飛行距離を延ばすことで、より分解能をよくすることができる。現在の施設的环境下では、減速材から試料までの距離 (L_1) を 800 cm 程度まで延ばすことが可能である。4.1 の仕様の検出系で $L_1 = 800$ cm としたときに実現される分解能の波長依存性を計算した。その結果を第 8 図に ×印で示した。全波長領域で分解能は改善されている。 $\lambda = 3.5 \text{ \AA}$ 付近 (フレームオーバーラップの制約内で許される最長波長) では 0.65% の分解能になっている。

§ 5. まとめと今後の方針

本施設のパルス中性子の時間分布関数をその中のパラメータが検出器の形状・寸法・散乱角及び試料に依存しないという本来の形で定めることができた。

この時間分布関数を利用して、本施設で得られる中性子分光器の分解能を 0.75% と評価することができた。このような分解能の検出器をガラスシンチレータで容易に構成できることを示した。さらに、減速材から試料までの距離を 800 cm (現在 650 cm) にのばすことにより、分解能 ($\lambda = 2 \text{ \AA}$ 付近) を現在の装置の分解能に比べて 1.3 倍程度向上できることがわかった。

マルテンサイト変態を起こした $\text{Fe}_{68}\text{Ni}_{32}$ 多結晶試料の測定を行い、析出相である α -相の特定の指数のブラッグ散乱スペクトルの幅が異常に広がっているという現象を観測することができた。

モンテカルロ法による回折スペクトルの計算方法には、計算時間が非常に長くかかるという欠点がある。しかし、試料に固有なブラッグ散乱スペクトルの幅の広がりなどを定量的に評価する時には、非常に有効で不可欠な解析方法であると考えられる。

今後は、このようなモンテカルロ法を使用したトータルプロファイルフィティングによる TOF 回折スペクトルの解析方法を整備する予定である。同時に、ガラスシンチレータで構成したより高分解能の分光器を試作する予定である。

参 考 文 献

- 1) 松本 実, 山田和芳, 小野寺重文, 具沼亮介: 核理研研究報告 **16**(1983) 236.
- 2) R. B. Von Dreele, J. D. Jorgensen and C. G. Windsor: J. Appl. Cryst. **15** (1982) 581.
- 3) 篠原 猛: 第39回日本物理学会年会予稿集 **3** (1984) 180.

Ⅲ. 放 射 化 学

Photospallation Reactions of ^{133}Cs and ^{139}La by 100 MeV and 200 MeV Bremsstrahlungs

K. Sakamoto, H. Toramoto, Y. Hamajima,

K. Okada and M. Dohniwa

*Department of Chemistry, Faculty of Science, Kanazawa
University, 1 - 1 Marunouchi, Kanazawa, 920, Japan*

Spallation yields relative to the ^{196}Au yield from $^{197}\text{Au}(\gamma, n)$ of 26 to 46 nuclides of Sb, Te, I, Xe, Cs and/or Ba and La from ^{133}Cs and ^{139}La targets irradiated with 100 MeV and 200 MeV bremsstrahlungs, were radiochemically determined. The isomeric yield ratios for ^{132}La and ^{131}Ba from the ($^{139}\text{La} + 100 \text{ MeV} - \gamma$), ^{132}La , ^{131}Ba , ^{121}Te and ^{119}Te from the ($^{139}\text{La} + 200 \text{ MeV} - \gamma$), and ^{120}I , ^{121}Te and ^{119}Te from the ($^{133}\text{Cs} + 200 \text{ MeV} - \gamma$) were also determined. The isotopic yields from the ($\gamma, \gamma n$) reactions decrease exponentially with increase of γ up to 5, and show no dependences on energy and targets studied, indicating that the reactions of a few neutron emissions occur at energies lower than 100 MeV. When the product yields from the ($\gamma, x\gamma n$) reactions were plotted against $(x + \gamma)$ for each x (isotopic distribution), a regular variations of the Gaussian distributions, typical of nuclear spallation, was observed. Isobaric mass distributions and charge dispersions were deduced to extract characteristic features of these reactions. The isobaric distributions obtained for photons of 100 MeV ~ 200 MeV from the difference of those for the two energies are very close to symmetric one peaking at about 8 amu from the target masses. Nuclear charges are also dispersed symmetrically with most probable N/Z_p of about 1.3 replaced by about 1 amu to the neutron-deficient side from the beta stability valley in all the cases studied. Parameters included in Rudstam's semiempirical formula were examined by comparing with the observed yield curves. The P values of 0.45 and 0.65 chosen for a better fit to the 200 MeV data on ^{133}Cs and ^{139}La , respectively, were larger than the predictions reported in the

literatures. The magic number effects of ^{139}La are evident on mass distributions.

§ 1. Introduction

Energetic photons interact electromagnetically with atomic nuclei and result a diverse of photonuclear reactions. For heavy elements, and at low energies, where the de Broglie wave length λ is of nuclear size, the incident photon interacts with the nucleus as a whole, and the excited nucleus then loses energy by evaporating a small number of particles according to the well known compound nucleus picture of nuclear reactions. It is these energies that reactions are dominated by what is known as a giant resonance : photon absorption via excitation of electric dipole vibrations of all the protons against all the neutrons in a nucleus¹⁾. The excitation function for total photoabsorption goes through a broad maximum a few MeV wide. The peak energy varies smoothly with mass number (A), decreasing from about 24 MeV at ^{16}O to about 13 MeV at ^{209}Bi , which are approximated by $aA^{1/3}$; a varies somewhat with energy and A . Cross sections at peaks are 100~300 mb, and those under the peak are given by $0.058 NZ/A$ MeV⁻¹, the sum rule²⁾. In the giant resonance region, mostly simple processes such as (γ, n) , (γ, p) , some $(\gamma, 2n)$ and fission (in heavy elements) take place. For heavy elements at high energies, and for light elements at all energies, the "direct" nuclear photoeffect become of importance. In the energy range of 30~150 MeV (above the giant resonance and below the pion production threshold), λ is comparable to the intranucleonic distance in the nucleus and absorption of a photon by a proton-neutron pair, termed as quasideuteron, is the main process³⁾. The cross section of this process, σ_γ , is then related to those of the photo-disintegration of the deuteron, σ_D .

$$\sigma_\gamma = L \frac{NZ}{A} \sigma_D \quad (1)$$

where NZ represents the number of neutron-proton pairs in the nucleus $A = N + Z$, and L is a measure of the relative probability of two nucleons being close each other in comparison with that of a free deuteron. The value of about 10 is assigned for L in

accordance with the experimental data^{4,5}). At higher energies, when λ become smaller, the incident photon interacts with individual nucleon, and production of one or more π -meson and a recoil nucleon become appreciable. Particles produced in these initial interactions would have enough energies to escape the nucleus, and/or initiate a intranuclear cascade followed by evaporation step⁶⁻⁸), just as induced by particle bombardments, and the processes then lead to emission of a large number of nucleons, and to production of a variety of residual nuclei (spallation, fission and fragmentation). With the picture described, photonuclear data might well be explained.

However, the photonuclear reactions yields have been investigated rather still poorly both theoretically and experimentally, when compared with those of particle-induced reactions, though the groups of Itali and Brasil, Sweden and USSR, and others have published a series of papers on selected photo-reactions on a range of target masses induced by bremsstrahlungs of the maximum energies up to 2 GeV⁹). Also attempts to describe the general trend of photonuclear cross sections or yield distributions have been made by means of multi-parameter semiempirical formula, as first given by Rudstam for particle-induced spallations¹⁰). The empirical formula with revised parameter values reproduces the experimental yield within a factor of about 2 to 3¹¹), but the predictions are poor for the yields of nuclides close to the target and restricted to high energy spallations as is the case for proton-reactions. At energies higher than a few tens MeV, the photon sources are bremsstrahlungs of continuous energies; this makes the experiments and the theoretical analyses tedious and difficult.

The present study concerns with an extensive measurement of the product nuclides from target nuclei of two mass regions; one of ¹³³Cs, ¹³⁹La, ^{nat}Ba and ^{nat}Ce, and the other of ⁸⁵⁺⁸⁷Rb, ^{nat}Sr and ⁸⁹Y (nat. = natural isotopic composition), irradiated with bremsstrahlungs of maximum energies of 100 and 200 MeV. Simple reactions such as (γ , n), (γ , p) and (γ , np) are expected to be due to giant resonance occurring up to 30 MeV and to quasi-deuteron mechanism operative up to in excess of 100 MeV at most. In the energy interval of several tens to 200 MeV, only quasi-deuteron process would be the main mechanism, though the threshold for one-pion

production is about 150 MeV, as noted above. Therefore, with irradiations by bremsstrahlungs of the two end-energies of 100 and 200 MeV, one may look at relative importance of the two mechanisms; two-step cascade evaporation mechanism initiated by the quasi-deuteron interaction at high energies and evaporation mechanism initiated by giant resonance at low energies. For this purpose, measurements were performed on radionuclides as many as possible with aids of radiochemical technique, and the characteristics of the isotope distributions and the charge dispersions of the reaction products were deduced. The results were compared with the existing data on photon- and particle-induced reactions of targets and energies of wide ranges, and also with the predictions of the Rudstum's formula. One of our aims in the present study was to see whether any differences from other reactions exist or not in the yields of the proton-rich isotopes of xenon and krypton¹²⁾. In all of the reactions selected in the present work, xenon or krypton isotopes are expected to be produced together with the isotopes of the neighbouring elements. In the following, we describe our measurements and results mostly on ¹³³Cs and ¹³⁹La targets. Those on Rb, Y and Sr targets are reported separately in the companion paper,¹³⁾ and a comparison study of the yield characteristics with other reaction data is given together in the latter.

The measurements of the stable isotopes of xenon and krypton produced were also intended to add more data on the photonuclear yields, and both the photon and proton irradiations for this purpose and the installation and the performance testing of a sensitive noble-gas mass spectrometer system were performed, and their results will be given in a separate paper.

§2. Experimental

2.1 Target preparation

Commercial CsCl, La₂O₃ and LaCl₃ of reagent grade (Wako Pure Chemicals Industries, Ltd.) were used for target material. Anhydrite LaCl₃, the melting point of which is 860 °C much lower than about 2000 °C of La₂O₃, were prepared from LaCl₃·7H₂O by heating with NH₄Cl. The compounds of low

melting points were preferred for xenon extraction by heating of the irradiated target. The target materials were dried at 110 °C in a vacuum oven before weighing, and about one gram each and a piece of Au wire (0.6 mm×5~10 mm) for beam monitor were placed in a quartz tube of 1 cm in diameter and the tube was sealed under reduced pressure. Gold foils of 40~50 mg/cm², copper of 300 mg/cm², and/or nickel of 13 mg/cm² were cut into 10~15 mm square and were scotch-taped on the back and forth sides of the quartz tube for another beam monitor. And, 3 to 6 tubes were stacked and placed along the beam path, in a water-cooled target holder (Fig. 1).

2.2 Irradiation

The irradiations were performed with an uncollimated bremsstrahlung beam from the 300 MeV Electron Linear Accelerator of the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. The electron beam of energies of 100 (+10, -5) MeV and 200(±20) MeV with 40 mA (pulse width $\Delta\tau$ of 2.5 μ s and repetition R of 300 pps) and 20 mA ($\Delta\tau$ of 3.0 μ s and R of 300 pps), respectively, were converted

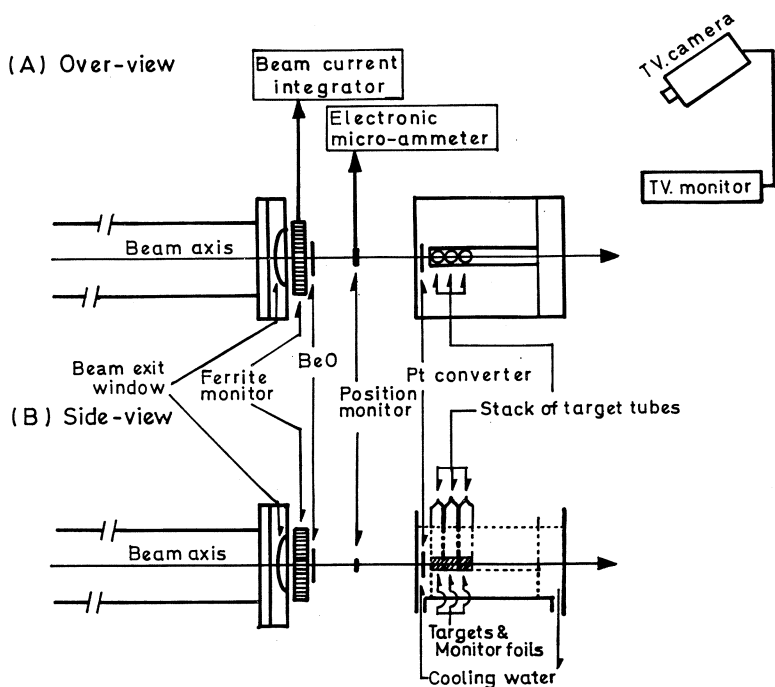


Fig. 1 Schematic drawing of the irradiation system.

to bremsstrahlung with a Pt plate of 0.5 mm in thickness in the water-cooled target holder shown in Fig. 1. The conversion efficiency of the Pt converter was higher than 95 %¹⁴⁾. The electron beam current was monitored with a ferrite core monitor calibrated with a Faraday cup combined with a current integrator and also a small Pt plate placed in between the electron beam exit window and the Pt converter. The beam size and position were monitored visually with TV cameras. The photon flux was monitored with the Au, Cu, and/or Ni placed in or attached to the target tubes. Durations of irradiation were 5, 10, 30 and 240 min, depending on half-lives of the product nuclides to be determined. Secondary neutrons were monitored with (n, γ) products in the targets and the same materials placed on various off-beam positions of the target holder during the irradiations, and found not appreciable.

2.3 Radiochemistry

The yield determinations for radioactive nuclides were performed by non-destructive gamma-ray spectrometry described in the in the next section. But to a part of the irradiated targets, the radiochemical separations shown in Figs. 2 and 3 were applied. Soon after the irradiations, the target materials were dissolved in distilled water or in conc. HNO_3 for I, Cs, La and Ba separations and in conc.

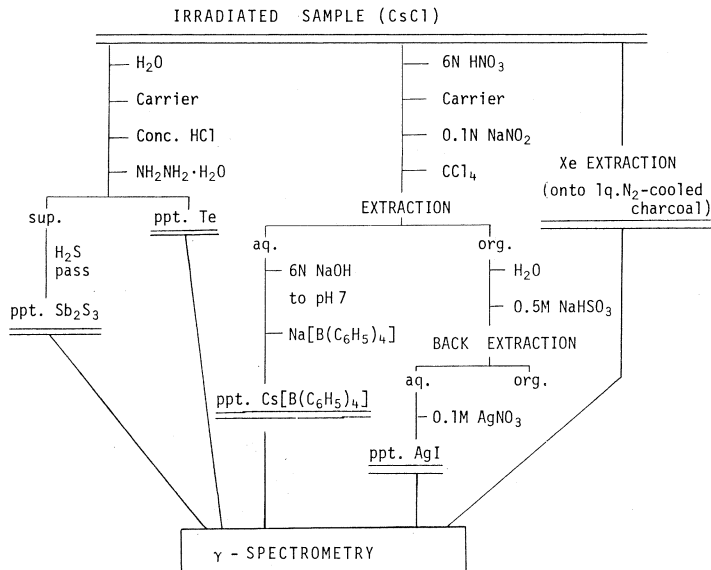


Fig. 2 Chemical procedure for Cs target .

diated LaCl_3 target with a gas burner or dissolving the irradiated La_2O_3 with HNO_3 . The collection was aided with aspirator and He carrier. Chemical yields of Ba, Te, Sb from the La targets and of Te from the Cs targets were determined gravimetrically after countings. Those of I, Cs and some Sb samples of the forms of AgI , $\text{Cs}\{\text{B}(\text{C}_6\text{H}_5)_4\}$ and Sb_2S_3 , respectively, were exceeded 100 % due to rough and rapid separations. The yield determinations for these samples and for radioxenon on charcoal were performed by comparing characteristic gamma-ray peaks of ^{126}I , ^{132}Cs , $^{118\text{m}}\text{Sb}$, $^{129\text{m}}\text{Xe}$ and also $^{119\text{g}}\text{Te}$ with those from the chemically-unprocessed targets irradiated at the front and back sides of the processed one.

2.4 Radioactivity Measurements

Radioactivity assays for both chemically-processed and unprocessed targets were performed by gamma-ray spectrometry using a 80 cm^3 ORTEC $\text{Ge}(\text{Li})$ detector coupled with a Canberra 4k pulse height analyzer (PHA) and a 68.2 cm^3 ORTEC $\text{Ge}(\text{Li})$ detector coupled with a NAIG 4k PHA. The energy resolutions of the two detectors were $1.8\sim 2.0\text{ keV}$ FWHM at 1333 keV . The detector efficiencies were obtained with calibrated Amersham standards and ^{152}Eu sources of the sample size. The product nuclides were assigned and evaluated with the characteristic gamma-ray energies and the half-lives. The decays were followed for at least one month. An example is displayed in Fig. 4. Gamma-ray spectra were analyzed manually and/or with an automatic peak search program by Komura¹⁵⁾.

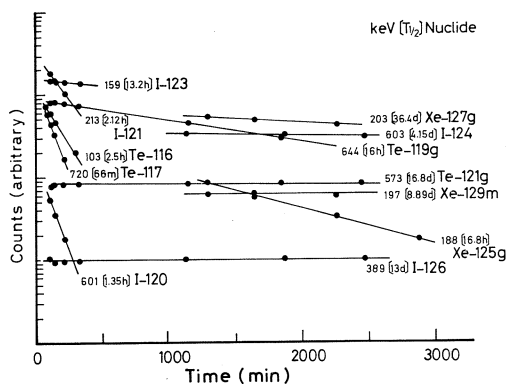


Fig. 4 Examples of photopeak decays during two days period after the end of the irradiation. Samples are the chemically isolated fractions from a ^{133}Cs target irradiated for 30 min with 200 MeV bremsstrahlung.

2.5 Yield Calculation

A yield in the present paper is a radioactivity yield defined as the production rate of a nuclide from a certain photonuclear reaction and expressed as the ratio of the disintegration rates (dps) of the nuclide per gram of the target element and of ^{196}Au from $^{197}\text{Au}(\gamma, n)$ reaction per gram of the Au monitor, both at the end of the irradiation, thus normalizing the yield to a standard amount of photons passed through the target¹⁶⁾. The cross sections per equivalent quanta for the photonuclear reactions in ^{197}Au has been reported by de Carvalho et al.¹⁷⁾ for the energy region of 1.0 to 5.5 GeV, Andersson et al.¹⁸⁾ for 1 to 7 GeV, di Napoli et al.¹⁹⁾ for 0.4 to 0.9 GeV, and by Lindgren and Jonsson²⁰⁾ for 75 to 900 MeV. The results of the (γ, n) cross sections are discrepant by about 25 % among the different laboratories. According to the last authors the excitation curve for the (γ, n) reaction starts to increase rather slowly at about 70 MeV, and the values at 100, 200 and 1000 MeV are shown to be 205, 210 and 220 mb per equivalent quanta, respectively. The yield data in the present paper might be converted to the cross sections on the basis of these values, if necessary. For the yield calculation, count rate (cps) of a characteristic photopeak at the end of irradiation was converted to disintegration rate (dps) by $\text{dps} = \text{cps} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_b}) / I \cdot \epsilon$, where I is the abundance of γ -rays per disintegration of a nuclide of interest, ϵ the detection efficiency for the photopeak, λ the decay constant (sec^{-1}) and t_b the irradiation time (sec). The yield (Y) was then obtained, relative to the ^{196}Au yield from $^{197}\text{Au}(\gamma, n)$, by $Y = (\text{dps} / \text{g} - \text{target}) / (\text{dps} / \text{g} - \text{Au}) \cdot Y_c$, where Y_c is chemical yield. The specific activity of ^{196}Au was obtained from those of Au foils taped on the front and back sides of the target tube and/or Au wires in the tube. Alternatively, the values were obtained from those of Ni or Cu foil monitors for economy. The conversion factors from the Ni and Cu values to the Au's were experimentally obtained, and listed for 100 MeV on Table 1, are the activity ratios of $(\text{dps} / \text{g} - \text{Au}) / (\text{dps} / \text{g} - \text{Ni or Cu})$. The values of the factor deduced from the three durations of irradiation are quite consistent within statistical errors for any of radionuclides measured in Ni or Cu, and an average of the monitor data from Au,

Table 1 Activity Ratios of Monitor Products at 100 MeV.

(A) Au/Ni

	Co - 58	Mn - 54	Ni - 57
5 min.	(4.85 ± 0.22) E1	(9.25 ± 0.42)	(1.06 ± 0.05) E1
	(4.49 ± 0.20) E1	(8.54 ± 0.39)	(9.68 ± 0.44)
10 min	(4.75 ± 0.21) E1	(9.04 ± 0.4)	(1.02 ± 0.05) E1
30 min	(4.58 ± 0.21) E1	(8.62 ± 0.38)	(9.46 ± 0.44)

(B) Au/Cu

	Co - 58	Fe - 59	Mn - 54
5 min	(1.65 ± 0.10) E2	(7.56 ± 0.61) E3	(4.49 ± 0.44) E3
	(1.84 ± 0.11) E2	(8.51 ± 0.66) E3	(4.48 ± 0.45) E3
30 min	(1.93 ± 0.12) E2	(9.23 ± 0.62) E3	(6.01 ± 0.48) E3
	(1.83 ± 0.12) E2	(7.82 ± 0.70) E3	(5.48 ± 0.37) E3

Cu and/or Ni was used in the present calculation. Relevant nuclear data were quoted from the latest issues of the data tables^{21,22}. Some of the data used are given together with the yield data in Tables 2 and 3.

2.6 Correction for Precursor Decays

Some of the observed radionuclides are not shielded from decays of their precursors. One approach to see any effects of the precursor decays is the comparison of the yields from different durations of irradiation. To reduce possible cumulations of the precursor effects, the measurements of radioactivities, and therefore radio-chemical separations were performed as rapidly as possible after irradiations.

Also, the precursor contributions to ¹²⁹Cs and ^{121g}Te in the La target and ^{120g}I, ¹²¹I, ¹²³I and ^{121g}Te in the Cs targets were estimated from iterative chemical separations for the aliquots from the same target solution²³. From a two-body Bateman equation for a beta decay for a parent isotope P to the daughter D, the number N_D of the D nuclei, at the time τ_c of chemical separation is given by

$$N_{D, \tau_c} = \frac{\lambda_P}{\lambda_D - \lambda_P} \cdot N_{P, 0} (e^{-\lambda_P \cdot \tau_c} - e^{-\lambda_D \cdot \tau_c}) + N_{D, 0} e^{-\lambda_D \cdot \tau_c} \quad (1)$$

where, $N_{P, 0}$ and $N_{D, 0}$ are the numbers of P and D nuclei, respectively, at the end of irradiation. At the time τ_m of radioactivity measurement, the number of D

is then

$$\begin{aligned} N_{D, \tau_m} &= N_{D, \tau_c} e^{-\lambda_D (\tau_m - \tau_c)} \\ &= \frac{\lambda_P}{\lambda_D - \lambda_P} \left\{ \exp(-\lambda_P \cdot \tau_c + \lambda_D \cdot \tau_c) - 1 \right\} \cdot e^{-\lambda_D \cdot \tau_m} \cdot N_{P, 0} + N_{D, 0} \cdot e^{-\lambda_D \cdot \tau_m} \end{aligned} \quad (2)$$

Here chemical yield is assumed to be 100 %. The counting rate A_{D, τ_m} of D is expressed as

$$A_{D, \tau_m} = \lambda_D \cdot N_{D, \tau_m} \cdot \epsilon_D \quad (3)$$

and the primary yields $Y(E)$ of P or D are

$$Y(E) = \frac{A_0}{\epsilon \cdot S} = \frac{\lambda N_0}{S} \quad (4)$$

by definition, where ϵ , S and A_0 are the counting efficiency, saturation factor and radioactivity, respectively, at the end of the irradiation. Then one obtains

$$\begin{aligned} A_{D, \tau_m} = \lambda_D \cdot N_{D, \tau_m} \cdot \epsilon_D &= \left[\frac{\lambda_P}{\lambda_D - \lambda_P} \left\{ \exp(-\lambda_P \cdot \tau_c + \lambda_D \cdot \tau_c) - 1 \right\} \frac{Y(E)_P \cdot S_P}{\lambda_P} \right. \\ &\quad \left. + \frac{Y(E)_D \cdot S_D}{\lambda_D} \right] e^{-\lambda_D \cdot \tau_m} \cdot \lambda_D \cdot \epsilon_D \end{aligned} \quad (5)$$

then

$$A_{D, \tau_m} e^{\lambda_D \cdot \tau_m} \cdot \frac{1}{\epsilon_D \cdot \lambda_D} = X \cdot \frac{Y(E)_P \cdot S_P}{\lambda_P} + \frac{Y(E)_D \cdot S_D}{\lambda_D} \quad (6)$$

where

$$X \equiv \frac{\lambda_P}{\lambda_D - \lambda_P} \left\{ \exp(-\lambda_P \tau_c + \lambda_D \tau_c) - 1 \right\}$$

For a shielded isotope D_j with mass number j of the same element as the radioisotope D_i with mass i , the primary yield $Y(E)_D^j$ is given by

$$Y(E)_D^j = A_{D, 0}^j / \epsilon_D^j \cdot S_D^j = A_{D, \tau_m}^j \cdot e^{\lambda_D^j \cdot \tau_m} / \epsilon_D^j \cdot S_D^j = \frac{\lambda_D^j \cdot N_{D, \tau_c}^j}{S_D^j} \quad (7)$$

Here Y is defined to be a saturation- and apparent decay-corrected radioactivity ratio of i and j .

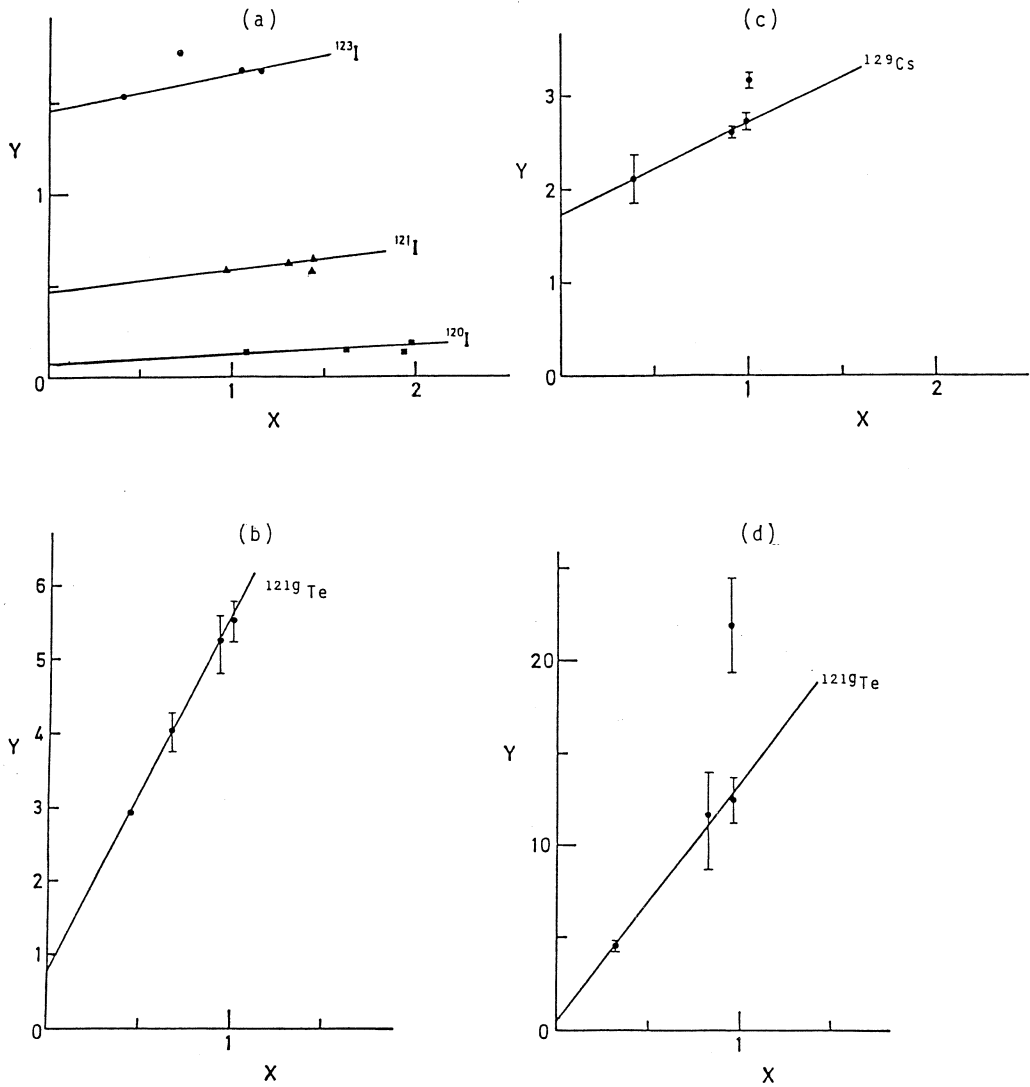


Fig. 5 Correction of precursor decay by iterative chemical separation according to Eq. (8).

(a) X vs Y for primary yields of ^{120}I , ^{121}I and ^{123}I

$$[{}^{133}\text{Cs} + 200 \text{ MeV} - r]$$

(b) X vs Y for primary yields of ^{121g}Te

$$[{}^{133}\text{Cs} + 200 \text{ MeV} - r]$$

(c) X vs Y for primary yields of ^{129}Cs

$$[{}^{139}\text{La} + 200 \text{ MeV} - r]$$

(d) X vs Y for primary yields of ^{121g}Te

$$[{}^{139}\text{La} + 200 \text{ MeV} - r]$$

$$Y \equiv \frac{A_{D,\tau_m}^i \cdot e^{\lambda_D^i \tau_m} / \epsilon_D^i \cdot S_D^i}{A_{D,\tau_m}^j \cdot e^{\lambda_D^j \tau_m} / \epsilon_D^j \cdot S_D^j} = X \cdot \frac{Y(E)_P^i \cdot S_P^i \cdot \lambda_D^i}{Y(E)_D^j \cdot S_D^j \cdot \lambda_P^j} + \frac{Y(E)_D^i}{Y(E)_D^j} \quad (8)$$

Thus, a plot of Y versus X , that is τ_c , results in a straight line, whose intercept gives the primary yield of the product i relative to the observed (independent) yield of the product j .

The results of the iterative separations of iodine and tellurium from a ^{133}Cs target and cesium and tellurium from a ^{139}La target, both irradiated for 30 min with 200 MeV bremsstrahlung, are shown in Figs. 5(a) ~ (d). Here the observed yields of ^{126}I , ^{132}Cs and $^{119\text{m}}\text{Te}$ were taken for as the primary references. $^{119\text{m}}\text{Te}$ is not shielded, and the observed yield of $^{119\text{m}}\text{Tm}$ is actually the cumulative yield. But the precursor ^{119}I ($T_{1/2} = 19$ min) is produced much less than $^{119\text{m}}\text{Te}$, and assumed to affect little to the primary yield of $^{119\text{m}}\text{Te}$.

2.7 Results

The measured yields are tabulated in Tables 2 and 3. The distinction of independent and cumulative yields are noted as I and C in the tables. The values corrected for the "fed-in" effect are indicated by daggers. The errors given are statistical, including uncertainties in background subtraction, and counting efficiency determination both for the nuclides of interest and the beam monitor nuclides. Those due to uncertainties in nuclear data, and weighings of target materials and precipitates are not included. Errors introduced from correction for the "fed-in" effect from the precursor decay were large for some cases. The "fed-in" effects expressed as the ratio of (fed-in amount) / (primary yield) were 0.22 for ^{129}Cs , 8.08 for $^{121\text{g}}\text{Te}$ for the ^{139}La target, and 0.06 for ^{123}I , 0.25 for ^{121}I , 0.78 for $^{120\text{g}}\text{I}$ and 2.96 for $^{121\text{g}}\text{Te}$ for the ^{133}Cs targets. The data for the remaining nuclides are not corrected for the "fed-in." Also the "fed-in" effect during irradiation was not corrected for. The correction for chemical yields were most accurate in Te and less accurate in Xe, I and Sb due to small photopeaks of $^{129\text{m}}\text{Xe}$, ^{126}I and

Table 2 Nuclear Data and Spallation Yields from $^{133}\text{Cs} + 200 \text{ MeV } \gamma$ and $^{133}\text{Cs} + 100 \text{ MeV } \gamma$.

Nuclide	Half-life	Reaction type	Gamma-ray used (keV)(Branching ratio %)	200 MeV yield [$\frac{\text{dps/g(sample)}}{\text{dps/g(Au)}}$]		100 MeV yield [$\frac{\text{dps/g(sample)}}{\text{dps/g(Au)}}$]		
				90 min	5 min	30 min	10 min	5 min
Cs-132 (I)	6.47d	(γ, n)	668(100)	(1.5 ± 0.2)	(2.5 ± 0.7)	(6.9 ± 0.6)	(4.3 ± 0.3)	E-1
Cs-130 (I)	29.9 m	($\gamma, 3n$)	536(2.5)	(9.4 ± 1.7) E-2	(1.6 ± 0.4) E-1	(4.3 ± 0.4)	(6.6 ± 0.4)	E-3
Cs-129 (I)	32.4 h	($\gamma, 4n$)	372(32)	(2.9 ± 0.6) E-2	(5.4 ± 1.6) E-2	(1.4 ± 0.1)	(7.4 ± 0.4)	E-3
Cs-127 (I)	6.25h	($\gamma, 6n$)	411(63)	(6.9 ± 1.4) E-3	(1.6 ± 0.5) E-2	(2.7 ± 0.2)	(1.4 ± 0.1)	E-3
Cs-125 (I)	45 m	($\gamma, 8n$)	526(24)	(1.5 ± 1.3) E-3	(4.3 ± 1.2) E-3	(2.2 ± 0.8)	(2.7 ± 1.0)	E-4
Xe-131m(C)	11.8 d	(γ, pn)	164(2.0)	(2.6 ± 0.5) E-3		(6.1 ± 0.4)	(2.3 ± 1.4)	E-3
Xe-129m(C)	8.89d	($\gamma, p3n$)	197(3.3)	(2.6 ± 0.1) E-3		(4.0 ± 0.3)	(1.1 ± 0.7)	E-3
Xe-127g(C)	36.4 d	($\gamma, p5n$)	203(58)	(2.8 ± 0.8) E-3		(4.6 ± 0.3)	(2.8 ± 0.4)	E-3
Xe-125 (C)	17.3 h	($\gamma, p7n$)	188(55)	(1.5 ± 0.3) E-3		(9.0 ± 0.6)	(5.2 ± 0.7)	E-4
Xe-123 (C)	3.08h	($\gamma, p9n$)	149(50)	(4.0 ± 0.7) E-4		(1.6 ± 0.1)		E-4
Xe-122 (C)	20.1 h	($\gamma, p10n$)	350(7.8)	(1.3 ± 0.2) E-4				E-6
I-131 (I)	8.04d	($\gamma, 2p$)	365(82)	(4.3 ± 1.3) E-5	(8.2 ± 3.4) E-5	(1.3 ± 0.1)	(1.6 ± 0.1)	E-5
I-130 (I)	12.4 h	($\gamma, 2pn$)	536(100)	(1.2 ± 0.4) E-4	(1.8 ± 0.7) E-7	(2.6 ± 0.1)	(3.0 ± 0.1)	E-5
I-128 (I)	25 m	($\gamma, 2p3n$)	443(18)	(5.5 ± 1.8) E-4	(9.5 ± 4.0) E-5	(1.9 ± 0.1)	(1.6 ± 0.1)	E-4
I-126 (I)	13 d	($\gamma, 2p5n$)	389(35)	(1.5 ± 0.4) E-3	(2.6 ± 0.9) E-7	(2.5 ± 0.1)	(2.9 ± 0.2)	E-4
I-124 (I)	4.15d	($\gamma, 2p7n$)	603(62)	(1.3 ± 0.4) E-3	(2.4 ± 1.0) E-5	(1.4 ± 0.1)	(1.4 ± 0.1)	E-4
I-123 (C)	13.2 h	($\gamma, 2p6n$)	159(83)	(2.2 ± 0.6) E-3†	(3.0 ± 1.9) E-7	(1.1 ± 0.1)	(9.2 ± 0.4)	E-4
I-121 (C)	2.12h	($\gamma, 2p10n$)	213(84)	(7.1 ± 2.1) E-4†	(1.3 ± 0.5) E-5	(1.6 ± 0.1)	(2.4 ± 0.2)	E-7
I-120m (C)	53 m	($\gamma, 2p11n$)	560(87)	(1.2 ± 0.1) E-4†	(9.6 ± 4.0) E-5	(7.7 ± 2.1) E-8		E-8
I-120g (C)	1.35h	($\gamma, 2p11n$)	560(73)		(4.1 ± 1.7) E-4			
I-119 (C)	19.3 m	($\gamma, 2p12n$)	258(95)		(1.7 ± 0.7) E-5			
Te-127g(C)	9.35h	($\gamma, 3p3n$)	418(0.1)	(7.6 ± 0.7) E-4	(1.0 ± 0.3) E-4			
Te-126m(C)	120 d	($\gamma, 3p7n$)	159(84)	(2.3 ± 0.2) E-4		(6.0 ± 1.4)		E-6
Te-121m(C)	154 d	($\gamma, 3p9n$)	212(81)	(2.3 ± 0.2) E-4	(4.3 ± 1.0) E-4			
Te-121g(C)	16.8 d	($\gamma, 3p9n$)	575(79)	(9.6 ± 0.2) E-4	(3.4 ± 0.8) E-4	(5.5 ± 0.5)		E-7
Te-119m(I)	4.68d	($\gamma, 3p11n$)	154(62)	(1.2 ± 0.7) E-4	(2.1 ± 0.9) E-4			
Te-119g(C)	16.1 h	($\gamma, 3p11n$)	644(88)	(1.7 ± 0.1) E-4	(2.2 ± 0.5) E-4			
Te-117 (C)	66 m	($\gamma, 3p13n$)	720(66)	(3.4 ± 0.3) E-5	(5.8 ± 1.3) E-5			
Te-116 (C)	2.5 h	($\gamma, 3p14n$)	94(29)	(6.5 ± 0.5) E-6	(1.6 ± 0.4) E-5			
Sb-122g(I)	2.68d	($\gamma, 4p7n$)	564(63)	(2.8 ± 1.4) E-5	(6.3 ± 3.6) E-5	(2.6 ± 0.1)		E-6
Sb-120 (I)	5.0 h	($\gamma, 4p9n$)	197(89)	(4.9 ± 3.4) E-5	(6.2 ± 3.6) E-5	(1.1 ± 0.1)		E-6
Sb-118m(I)	2.8 h	($\gamma, 4p11n$)	254(86)	(5.5 ± 3.2) E-5	(7.0 ± 3.8) E-5			
Sb-117 (I)	2.8 h	($\gamma, 4p12n$)	158(88)	(6.4 ± 3.2) E-5	(1.4 ± 0.9) E-4			
Sb-116m(I)	60.4 m	($\gamma, 4p13n$)	973(72)	(2.0 ± 1.0) E-5	(2.1 ± 1.2) E-5			
Sb-115 (I)	31.8 m	($\gamma, 4p14n$)	498(100)	(2.5 ± 1.3) E-5	(2.1 ± 1.2) E-5			

I : independent I* : nearly-independent C : cumulative
 † : the value corrected for fed-in effect

Table 3 Nuclear Data and Spallation Yields from $^{139}\text{La} + 200\text{ MeV }^{-7}$ and $^{139}\text{La} + 100\text{MeV }^{-7}$.

Nuclide	Half-life	Reaction type	Gamma-ray used (keV)(Branching ratio %)	200 MeV yield [$\frac{\text{dps}}{\text{g}}(\text{sample})$]		100 MeV yield [$\frac{\text{dps}}{\text{g}}(\text{sample})$]		
				30 min	5 min	30 min	10 min	5 min
La-135 (I)	19.4 h	(γ ,4n)	481(1.9)	(5.4 ± 0.5) E-3	(2.7 ± 0.1) E-3	(1.7 ± 0.1) E-2	(4.6 ± 0.2) E-3	(6.5 ± 0.3) E-3
La-136 (I)	9.3 h	(γ ,5n)	279(1.9)	(3.2 ± 0.2) E-3	(1.8 ± 0.1) E-3	(2.2 ± 0.2) E-3	(2.2 ± 0.1) E-3	(2.8 ± 0.1) E-3
La-132m (I)	24.9 h	(γ ,7n)	135(4.4)	(4.0 ± 0.3) E-4	(4.0 ± 0.3) E-4	(8.0 ± 3.5) E-4	(3.3 ± 0.2) E-5	(3.5 ± 0.2) E-4
La-132 (C)	4.9 h	(γ ,7n)	54(6.3)	(2.8 ± 0.3) E-4	(1.8 ± 0.2) E-4	(1.8 ± 0.1) E-4	(4.0 ± 0.2) E-4	(4.0 ± 0.2) E-4
La-131 (I)	61 m	(γ ,8n)	418(19)	(3.8 ± 0.3) E-4	(1.4 ± 0.3) E-4	(1.4 ± 0.2) E-4	(7.3 ± 0.3) E-5	(1.2 ± 0.1) E-4
Ba-135m(C)	29.7 h	(γ ,p3n)	268(16)	(1.6 ± 0.1) E-3	(3.5 ± 0.1) E-3	(2.3 ± 0.1) E-3	(2.6 ± 0.1) E-3	(2.1 ± 0.1) E-3
Ba-133m(C)	38.9 h	(γ ,p5n)	276(17)	(1.1 ± 0.1) E-3	(1.2 ± 0.1) E-3	(1.2 ± 0.1) E-4	(6.5 ± 0.3) E-4	(6.5 ± 0.3) E-4
Ba-131m(C)	14.6 m	(γ ,p7n)	107(40)	(2.0 ± 0.3) E-3	(2.0 ± 0.3) E-3	(3.5 ± 0.2) E-4	(2.4 ± 0.1) E-4	(1.4 ± 0.1) E-4
Ba-131g(C)	12.0 d	(γ ,p7n)	124(32)	(2.2 ± 0.1) E-4	(4.8 ± 0.6) E-4	(9.7 ± 0.6) E-7	(1.5 ± 0.1) E-7	(1.5 ± 0.1) E-7
Ba-129m-g(C)	2.2 h	(γ ,p8n)	182(56)	(1.9 ± 0.4) E-4	(1.8 ± 0.2) E-4	(6.9 ± 0.8) E-7	(6.5 ± 0.3) E-7	(3.6 ± 0.1) E-6
Ba-127 (C)	12.7 m	(γ ,p11n)	181(8.2)	(2.9 ± 0.1) E-5	(6.0 ± 0.8) E-5	(4.6 ± 0.8) E-5	(2.4 ± 0.1) E-5	(2.5 ± 0.1) E-5
Ba-126 (C)	100 m	(γ ,p12n)	234(20)	(4.6 ± 0.8) E-5	(2.5 ± 0.4) E-5	(1.7 ± 0.1) E-5	(1.5 ± 0.1) E-5	(1.6 ± 0.1) E-5
Cs-136 (I)	13.0 d	(γ ,2pn)	919(100)	(3.9 ± 0.5) E-4	(3.9 ± 0.5) E-4	(6.7 ± 0.9) E-4	(1.2 ± 0.1) E-4	(1.7 ± 0.1) E-4
Cs-135m(I)	5.3 d	(γ ,2pn)	127(10)	(6.7 ± 0.9) E-4	(3.9 ± 0.7) E-4	(6.1 ± 1.1) E-5	(1.1 ± 0.1) E-5	(1.6 ± 0.1) E-5
Cs-135 (I)	2.9 h	(γ ,2pn)	127(10)	(6.7 ± 0.9) E-4	(3.9 ± 0.7) E-4	(6.1 ± 1.1) E-5	(1.1 ± 0.1) E-5	(1.6 ± 0.1) E-5
Cs-134m(I)	6.47d	(γ ,2p5n)	668(100)	(3.9 ± 0.5) E-4	(3.9 ± 0.5) E-4	(6.7 ± 0.9) E-4	(1.2 ± 0.1) E-4	(1.7 ± 0.1) E-4
Cs-132 (I)	29.9 m	(γ ,2p7n)	536(2.5)	(3.9 ± 0.7) E-4	(6.1 ± 1.1) E-5	(1.1 ± 0.1) E-5	(2.4 ± 0.1) E-4	(1.4 ± 0.1) E-4
Cs-130 (I)	32.4 h	(γ ,2p8n)	372(32)	(4.6 ± 0.8) E-5	(2.5 ± 0.4) E-5	(1.7 ± 0.1) E-5	(1.5 ± 0.1) E-5	(1.6 ± 0.1) E-5
Cs-129 (C)	6.25h	(γ ,2p10n)	411(63)	(1.1 ± 0.1) E-5	(6.0 ± 0.8) E-5	(4.6 ± 0.8) E-5	(2.4 ± 0.1) E-5	(2.5 ± 0.1) E-5
Cs-127 (C)	45 m	(γ ,2p12n)	526(24)	(1.1 ± 0.1) E-5	(6.0 ± 0.8) E-5	(4.6 ± 0.8) E-5	(2.4 ± 0.1) E-5	(2.5 ± 0.1) E-5
Cs-125 (C)	45 m	(γ ,2p12n)	526(24)	(1.1 ± 0.1) E-5	(6.0 ± 0.8) E-5	(4.6 ± 0.8) E-5	(2.4 ± 0.1) E-5	(2.5 ± 0.1) E-5
Xe-135g(I)	9.1 h	(γ ,3pn)	250(92)	(1.1 ± 0.4) E-6	(1.7 ± 0.7) E-4	(4.1 ± 1.1) E-8	(2.4 ± 0.2) E-8	(4.2 ± 0.3) E-8
Xe-131m(I)	11.8 d	(γ ,3p5n)	164(2)	(7.9 ± 4.2) E-5	(1.5 ± 0.6) E-4	(1.1 ± 0.1) E-5	(1.5 ± 0.1) E-5	(1.6 ± 0.1) E-5
Xe-129m(C)	8.99d	(γ ,3p7n)	197(3.3)	(9.4 ± 3.0) E-5	(1.6 ± 0.6) E-4	(5.8 ± 2.2) E-6	(7.5 ± 0.3) E-5	(8.5 ± 0.3) E-5
Xe-127g(C)	36.4 d	(γ ,3p9n)	203(58)	(2.2 ± 0.9) E-4	(8.4 ± 3.5) E-4	(2.1 ± 0.3) E-6	(1.5 ± 0.1) E-4	(1.7 ± 0.1) E-4
Xe-125 (C)	17.3 h	(γ ,3p11n)	188(55)	(1.4 ± 0.6) E-4	(1.6 ± 0.7) E-4	(1.7 ± 0.4) E-7	(2.1 ± 0.1) E-4	(1.6 ± 0.1) E-4
Xe-122 (C)	20.1 h	(γ ,3p14n)	350(7.8)	(2.1 ± 0.9) E-5	(1.0 ± 0.4) E-6	(1.3 ± 0.1) E-9	(5.4 ± 0.2) E-5	(6.0 ± 0.2) E-5
I-131 (I)	8.04d	(γ ,4p4n)	355(82)	(3.8 ± 1.4) E-6	(2.1 ± 0.4) E-6	(2.4 ± 0.2) E-8	(4.2 ± 0.3) E-8	(4.2 ± 0.3) E-8
I-130 (I)	12.4 h	(γ ,4p5n)	595(102)	(1.1 ± 0.3) E-6	(2.4 ± 1.0) E-6	(1.2 ± 0.2) E-7	(1.5 ± 0.1) E-7	(1.6 ± 0.1) E-7
I-128 (I)	25 m	(γ ,4p7n)	445(19)	(2.3 ± 0.9) E-5	(3.8 ± 1.3) E-5	(2.1 ± 0.4) E-6	(2.1 ± 0.4) E-6	(2.1 ± 0.4) E-6
I-126 (I)	13 d	(γ ,4p9n)	389(35)	(1.7 ± 0.6) E-5	(3.8 ± 1.3) E-5	(1.9 ± 0.7) E-5	(1.9 ± 0.7) E-5	(1.9 ± 0.7) E-5
I-124 (I)	4.15d	(γ ,4p11n)	603(62)	(8.4 ± 2.1) E-5	(4.8 ± 1.9) E-5	(1.9 ± 0.7) E-5	(1.9 ± 0.7) E-5	(1.9 ± 0.7) E-5
I-123 (C)	13.2 h	(γ ,4p12n)	159(83)	(9.6 ± 2.4) E-7	(1.1 ± 0.6) E-6	(2.4 ± 0.2) E-8	(4.2 ± 0.3) E-8	(4.2 ± 0.3) E-8
I-121 (C)	2.12h	(γ ,4p14n)	213(84)	(4.7 ± 1.4) E-6	(6.2 ± 2.3) E-6	(1.9 ± 0.7) E-5	(1.9 ± 0.7) E-5	(1.9 ± 0.7) E-5
Te-123m(C)	120 d	(γ ,5p11n)	159(84)	(4.7 ± 1.4) E-6	(6.2 ± 2.3) E-6	(1.9 ± 0.7) E-5	(1.9 ± 0.7) E-5	(1.9 ± 0.7) E-5
Te-121m(C)	154 d	(γ ,4p13n)	212(81)	(6.5 ± 0.3) E-6	(2.0 ± 0.5) E-6	(2.0 ± 0.5) E-6	(2.0 ± 0.5) E-6	(2.0 ± 0.5) E-6
Te-121g(C)	16.8 d	(γ ,4p13n)	573(79)	(6.0 ± 0.6) E-7	(2.0 ± 0.5) E-6	(2.0 ± 0.5) E-6	(2.0 ± 0.5) E-6	(2.0 ± 0.5) E-6
Te-119m(I)	4.66d	(γ ,4p15n)	389(35)	(1.2 ± 0.4) E-6	(1.1 ± 2.1) E-6	(1.3 ± 0.3) E-7	(1.3 ± 0.3) E-7	(1.3 ± 0.3) E-7
Te-119g(C)	16.1 h	(γ ,4p15n)	154(62)	(1.1 ± 2.1) E-6	(1.1 ± 2.1) E-6	(1.3 ± 0.3) E-7	(1.3 ± 0.3) E-7	(1.3 ± 0.3) E-7
Te-117 (C)	66 m	(γ ,4p17n)	720(66)	(9.6 ± 2.4) E-7	(1.1 ± 0.6) E-6	(6.2 ± 1.9) E-8	(6.2 ± 1.9) E-8	(6.2 ± 1.9) E-8
Te-116 (C)	2.5 h	(γ ,4p18n)	94(29)	(5.4 ± 0.7) E-7	(4.4 ± 1.4) E-6	(4.4 ± 1.4) E-6	(4.4 ± 1.4) E-6	(4.4 ± 1.4) E-6
Sb-122e(I)	2.68d	(γ ,5p11n)	564(63)	(6.3 ± 0.3) E-7	(5.0 ± 1.3) E-6	(5.0 ± 1.3) E-6	(5.0 ± 1.3) E-6	(5.0 ± 1.3) E-6
Sb-122m(I)	5.09d	(γ ,5p13n)	267(89)	(2.4 ± 0.9) E-6	(2.4 ± 0.9) E-6	(2.4 ± 0.9) E-6	(2.4 ± 0.9) E-6	(2.4 ± 0.9) E-6
Sb-117 (C)	2.8 h	(γ ,5p16n)	159(86)	(3.5 ± 0.3) E-6	(4.5 ± 1.6) E-6	(4.5 ± 1.6) E-6	(4.5 ± 1.6) E-6	(4.5 ± 1.6) E-6
Sb-116m(C)	60.4 m	(γ ,5p17n)	973(72)	(4.5 ± 2.3) E-6	(4.5 ± 2.3) E-6	(4.5 ± 2.3) E-6	(4.5 ± 2.3) E-6	(4.5 ± 2.3) E-6
Sb-115 (C)	31.8 h	(γ ,5p18n)	498(100)	(4.5 ± 2.3) E-6	(4.5 ± 2.3) E-6	(4.5 ± 2.3) E-6	(4.5 ± 2.3) E-6	(4.5 ± 2.3) E-6

I : independent I* : nearly-independent C : cumulative

† : the value corrected for fed-in effect

^{118m}Sb in unprocessed targets.

In the tables, the results from different durations of irradiation are listed separately. Large discrepancies exist in some yields. For cases of cumulative yields, a longer irradiation time would result a larger cumulation from the precursor decay. The discrepancies among the results of the independent yields are difficult to interpret, but do not affect much the general yield patterns discussed below.

§3. Discussions

3.1 *Isotopic Distribution*

The experimental yields for $^{133}_{55}\text{Cs}(\tau, xpy_n)$ and $^{139}_{57}\text{La}(\tau, xpy_n)$ are plotted against mass differences $(x+y)$ between target and product nuclei, isotopic yield distribution, in Figs. 6 and 7, respectively. For the yields from 100 MeV irradiations, the data are expressed by open marks and approximated with the dotted lines. For those from 200 MeV irradiations, the closed marks and solid lines are used. The yield data from different durations are plotted separately.

The yields of the (τ, y_n) reactions on the Cs and La targets decrease exponentially with increase of y , in both the 100 and 200 MeV irradiations. A slight shoulder appears at $y \approx 5$. This may indicate an evidence for distinct contributions of giant resonance-evaporation mechanism at low energies and of quasi-deuteron-cascade evaporation mechanism at high energies (see the discussion for charge dispersion). An interesting feature for (τ, y_n) yields is that little difference between the two irradiations was observed at $y \leq 5$. For the (τ, xpy_n) yields for $y \geq 1$, the observed distributions (yield surfaces) for any separated element (i. e. each x) are featured by a similar Gaussian form. The shape of the surface of the 100 MeV is somewhat asymmetrical, enhancing at the side of fewer particle emissions. This feature seems also to be caused by the low-energy mechanism. The slope of the yield surface ridges (peak heights) of the 100 MeV is steeper than that of the 200 MeV.

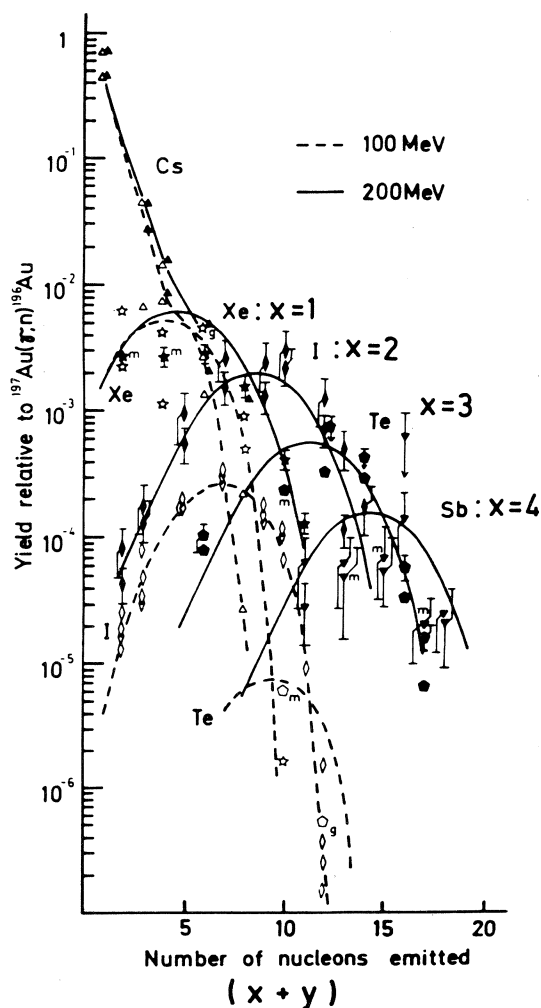


Fig. 6 Isotopic distribution from $^{133}_{55}\text{Cs}_{78}(\gamma, xpyn)$ reaction.

The experimental yields shown in Table 2 are plotted against the difference, $(x+y)$, between the target mass 133 and the product mass for each x . The open marks and the dotted lines are for 100 MeV irradiations and the closed marks and the solid lines are for 200 MeV irradiations. The data from different irradiation times are plotted separately. Triangles denote the yields of Cs isotopes, stars of Xe, diamonds of I, pentagons of Te and reversed triangles of Sb. The data points with 'm' or 'g' are for the yields of isomers of metastable or ground state, respectively.

These features (peak mass, A_0 , and peak height Y and slope of the ridges b) of the ^{133}Cs and ^{139}La targets at the two energies are compared in Table 4 together with those obtained by Kato and Tsai¹⁶⁾ with 20 MeV-bremsstrahlung from the same accelerator. The decrease of the surface ridges was approximated by a form of $Y = ae^{-bA_0}$, and were found that the extent of the decrease with increase of the irradiation energy from 200 MeV to 250 MeV is not very insignificant compared with that from 100 MeV to 200 MeV. The differences of the slopes for the ^{133}Cs and ^{139}La targets at the corresponding irradiation energies are small, but the average numbers of nucleons emitted from ^{133}Cs are slightly larger, thence the slope is smaller, than

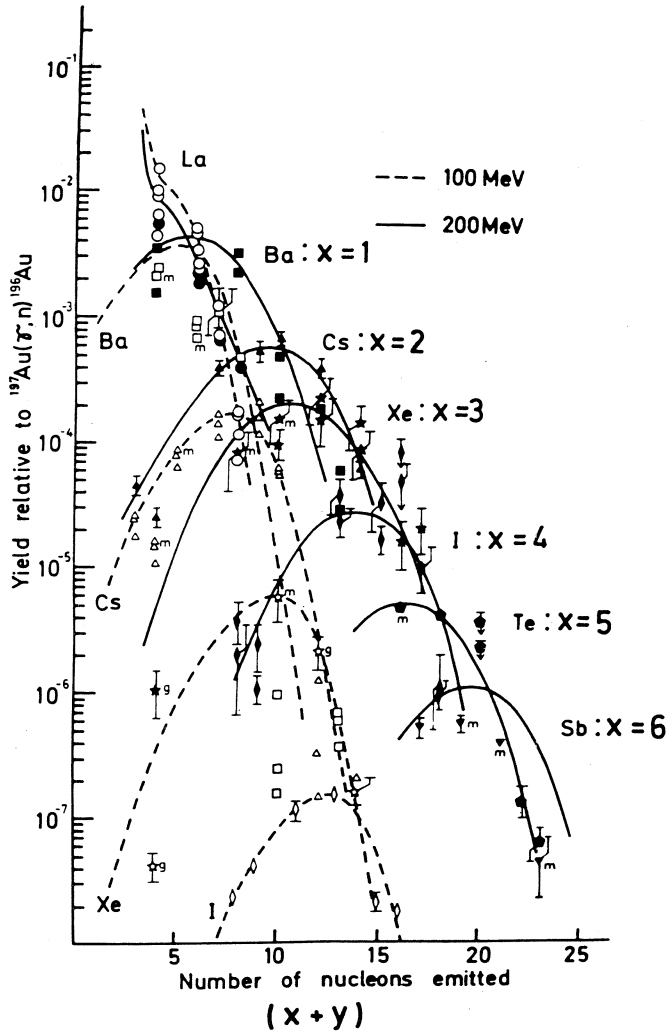


Fig. 7 Isotopic distribution from $^{139}_{57}\text{La}_{82}(\tau, xp\gamma n)$ reactions.

Circles denote the yields of La, squares of Ba. The others are explained in Fig. 6. Data are listed in Table 3.

those from ^{139}La , the effect of which is expected from a magic nature of the latter ($N=82$). Peak masses for each product element are quite similar for both targets and show a slight energy dependence, decreasing with increase of energy. The width, FWHM of the yield curves obtained in the present work are almost same ($5\sim 6$ amu); $5.3\sim 5.4$ amu for ($^{133}\text{Cs}+100$ MeV and 200 MeV), 5 amu for ($^{139}\text{La}+100$ MeV) and 6

Table 4 Peak and Slope of Isotopic Distributions.

Peak position (A_0) and height (Y) were approximated by $Y = a \cdot \exp(-b A_0)$, giving the slope b of the surface ridges. The correlation factor r indicates the goodness of the approximation. The 250 MeV results were quoted from Kato and Tsai¹⁶⁾.

Product	100 MeV A_0 [Y]	200 MeV A_0 [Y]	250 MeV A_0 [Y]
¹³³ Cs target			
Xe	128.7 [5.5E-3]	128.0 [6.0E-3]	
I	125.9 [2.8E-4]	124.1 [2.0E-3]	123.0 [1.1E-3]
Te	123.7 [7.8E-6]	121.6 [5.8E-4]	120.5 [2.9E-4]
Sb		118.3 [1.6E-4]	118.0 [1.9E-4]
r	0.997	0.994	0.958
b	1.21	0.38	0.35
¹³⁹ La target			
Ba	133.9 [3.7E-3]	133.4 [4.2E-3]	
Cs	131.0 [1.4E-4]	129.5 [6.0E-4]	128.5 [8.7E-4]
Xe	129.2 [5.8E-6]	128.5 [2.0E-4]	
I	126.3 [1.6E-7]	125.4 [2.9E-5]	123.0 [9.2E-5]
Te		122.7 [5.3E-6]	120.5 [4.0E-5]
Sb		119.5 [1.3E-6]	118.0 [1.2E-5]
r	0.997	0.996	0.999
b	1.35	0.60	0.40

amu for ($^{139}\text{La} + 200 \text{ MeV}$). The widths of the 100 MeV reaction are slightly smaller than the widths of the 200 MeV in both targets, but insignificant. However, those of the 250 MeV are reported by Kato and Tsai¹⁶⁾ to decrease with increase of y ($4Z = Z_t - Z_p$); 7.0 of I, 5.8 of Te and 5.0 of Sb for ^{133}Cs and 5.7 of Cs, 5.0 of I, 3.4 of Te and 3.8 of Sb for ^{139}La . Kato and Tsai¹⁶⁾ ascribed the decrease of the width to the restricted neutron emissions at high y at these energies. In our view, the conclusion is not certain because of insufficient data points in their work.

The peak heights of the distribution curves of the elements especially distant from the targets increase rather drastically from 100 MeV to 200 MeV, but not for ^{133}Cs from 200 MeV to 250 MeV where the yields rather decrease by a factor of two. The latter remains to be confirmed experimentally. The drastic changes of the slopes and the peak heights from 100 MeV to 200 MeV suggest the relative importance of the quasideuteron mechanisms in energies of 100~200 MeV. The contribution of the pion production mechanism for a 250 MeV irradiation might be appreciable in ^{139}La , considering the increase of peak height and then the smaller slope from 200 MeV to 250 MeV. But no increase of the yields from ^{133}Cs , if the observed trends be real, is not easy to explain with the pion mechanism. Alternatively and more possibly, the expected high probability of quasideuteron formation, L in eqn. (1), in magic ^{139}La would be responsible for the changes at these high energies. The b values higher than those of ^{133}Cs , as noted above, would be a consequence of the restriction of nucleon emissions due to the magic nature of ^{139}La at energies of several tens MeV up to 200 MeV.

3.2 Isobaric Mass Distribution

Isobaric yields from ($r, xpyn$) reactions for $y \geq 1$ were calculated by summing the isotope yields for every isobars using the isotopic yield curves in Fig. 6 and 7 to complement the unmeasured ones. The results for the ^{133}Cs and ^{139}La spallations are shown in Figs. 8 and 9, respectively. The dashed curves are for 100 MeV and the dotted ones for 200 MeV. A clear difference in the yields for the two energies is shown in the product masses A_p lighter than ($A_t - A_p = x + y \approx 5$) from the target mass A_t . The difference between the yields of the two energies are drawn

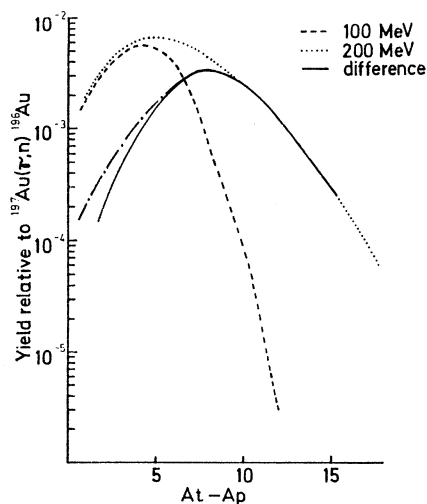


Fig.8 Mass distribution of ^{133}Cs spallation products from $(r, xpyn)$ for $\gamma \geq 1$. The dashed and dotted curves are for 100 MeV and 200 MeV, respectively, and the solid one is the difference of these two curves. The curve with one-dot is drawn symmetrically relative to the right wing of the solid one.

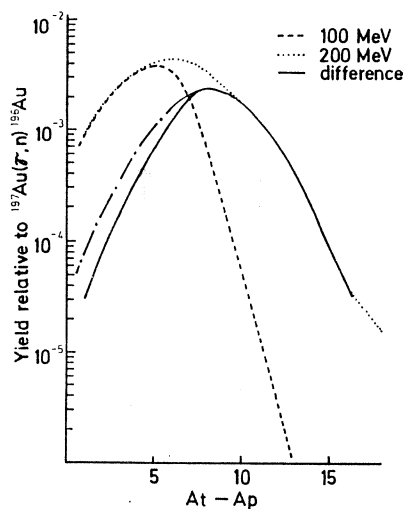


Fig.9 Mass distribution of ^{139}La spallation products from $(r, xpyn)$ for $\gamma \geq 1$. The dashed and dotted curves are for 100 MeV and 200 MeV, respectively, and the solid one is the difference of these two curves. The curve with one-dot is drawn symmetrically relative to the right wing of the solid one.

by the solid curve, for which photons of energies of 100 to 200 MeV would be responsible. The yield distribution is very close to symmetric one, peaking at about 8 amu respectively from the masses of both targets. In Figs. 8 and 9, a curve with one dots is drawn symmetrically relative to the light mass side (the far side from the target) for a reference. The widths of the curves for ^{133}Cs are somewhat broader than those for ^{139}La .

3.3 Charge Dispersion

The N/Z charge dispersions were derived in the mass regions $120 \leq A \leq 131$ for the ($^{133}\text{Cs} + 100 \text{ MeV} - r$), $115 \leq A \leq 131$ for the ($^{133}\text{Cs} + 200 \text{ MeV} - r$), $123 \leq A \leq 135$ for the ($^{139}\text{La} + 100 \text{ MeV} - r$), and $115 \leq A \leq 136$ for the ($^{139}\text{La} + 200 \text{ MeV} - r$) reactions. The fractional isobaric yields were obtained on the basis of the measured values and of the total isobaric yields described in the preceding section, and plotted against N/Z in Figs. 10, 11, 12 and 13. The symbols

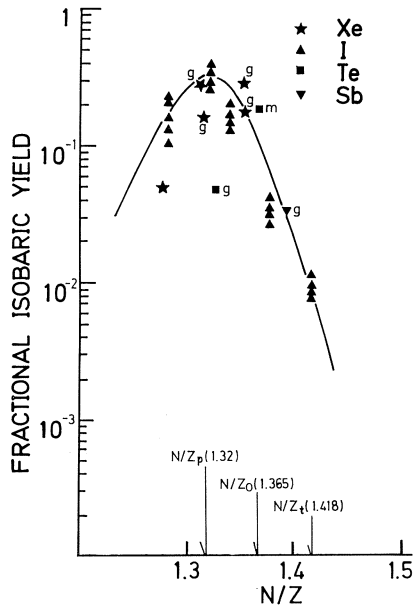


Fig.10 N/Z Charge dispersion for $^{133}\text{Cs}+100\text{ MeV} - r$, $120 \leq A \leq 131$ ($A_m=125.5$).

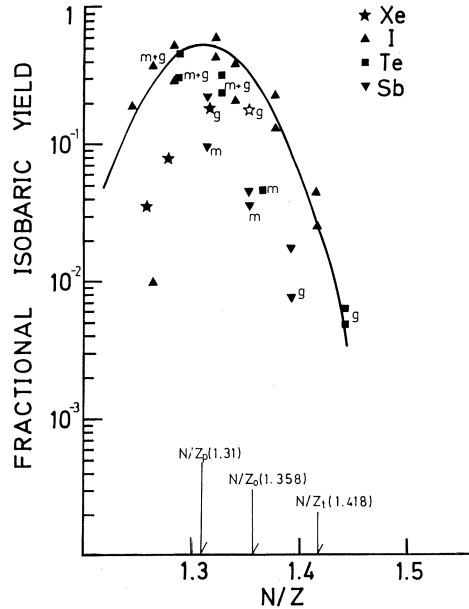


Fig.11 N/Z Charge dispersion for $^{133}\text{Cs}+200\text{ MeV} - r$, $115 \leq A \leq 131$ ($A_m=123$).

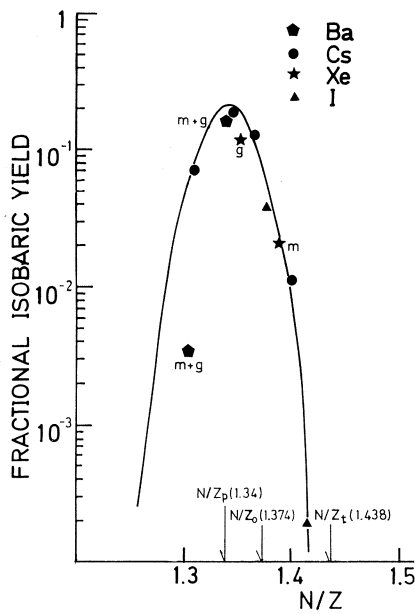


Fig.12 N/Z Charge dispersion for $^{139}\text{La}+100\text{ MeV} - r$, $123 \leq A \leq 135$ ($A_m=129$).

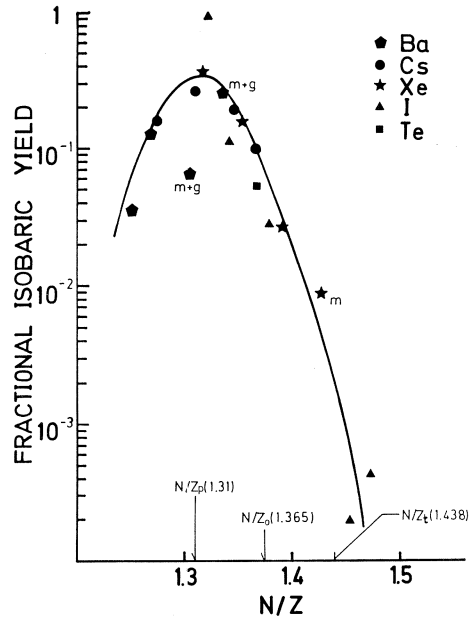


Fig.13 N/Z Charge dispersion for $^{139}\text{La}+200\text{ MeV} - r$, $115 \leq A \leq 136$ ($A_m=125.5$).

are the same as those in Figs. 6 and 7. The solid curves are of visually fitted ones to the obtained plots, assuming a Gaussian form. Noted in Figs. 10~13 are the medium mass of the products A_m , the atomic number of target Z_t , the nuclear charge Z_o at the beta stable valley for A_m , and the most probable charge Z_p corresponding to the peak of the derived charge dispersion.

For the two targets, the value of N/Z_p of the 100 MeV is larger (closer to N/Z_t) and FWHM of the 100 MeV is much smaller than those of the 200 MeV. The N/Z_o locates in between N/Z_p and N/Z_t ; the most probable charge locates on the neutron-deficient side by about one charge from Z_o .

These results suggest that the final product distribution would then be determined mostly by nuclear nature of the products, not of the target. A cascade step initiated by direct interactions would result in emissions of nucleons possibly with $n/p \approx N/Z_t \approx 1.4$ followed by neutron-dominated evaporation. In the 100 MeV, the cascade step would be initiated by photons of several tens of MeV and develop in an extent lesser than in the 200 MeV. As suggested by the mass yield distributions, photons of energies of 100 MeV ~ 200 MeV are responsible for almost pure spallation in which cascade process develops quite well to leave the nucleus with an energy low enough for Coulomb restriction for proton emission. The evaporation process following the cascade may lead a stabilized distribution of the product nuclei. A more full discussion is presented in the companion paper¹³⁾ in terms of the parameters.

3.4 Systematics

Some regularities in the yield distributions were shown to exhibit in the above subsections. Such regularities have been reported in particle - induced reactions and photonuclear reactions at high energies^{9,10)}. Rudstam¹⁰⁾ has systematized the regularities observed in particle - induced spallation reactions in the form of five parameter formula for charge distribution and mass distribution (CDMD) ;

$$\sigma(Z, A) = \frac{\hat{\sigma} P R^{2/3}}{1.79 (\epsilon^{PA_t - 1})} \exp[PA - R | Z - SA + TA^2 |^{3/2}]$$

for a given target A_t producing a product with charge Z and mass number A , where P , $\hat{\sigma}$, R , S and T are free parameters. The parameters P and R define the slope

and the width, respectively, of the mass-yield curve, $\hat{\sigma}$ the total inelastic cross section per nucleon, and S and T the position of charge distribution. According to Jonsson and Lindren⁹⁾, the parameters for photon-induced spallation yields is expressed as

$$P = 1460 E_0^{-0.81} \cdot A_t^{-0.89} \quad \text{for } E_0 \leq 600 \text{ MeV,}$$

$$= 7.66 A_t^{-0.89} \quad \text{for } E_0 > 600 \text{ MeV,}$$

$$\hat{\sigma} = (-0.81 + 0.184 \ln E_0) A_t^{1.13} \quad (\text{mb/equivalent quanta})$$

$$R = d' A^{-e'} \quad \text{with } d' = 11.8 \quad \text{and } e' = 0.45$$

$$S = 0.486 \quad \text{and } T = 0.00038$$

for the bremsstrahlung with the end-point energy E_0 (MeV). To find a fit to the present results, a calculation for isotope distributions was performed with the R values given above, and $\hat{\sigma}$ and P as free parameters. The values for S and T

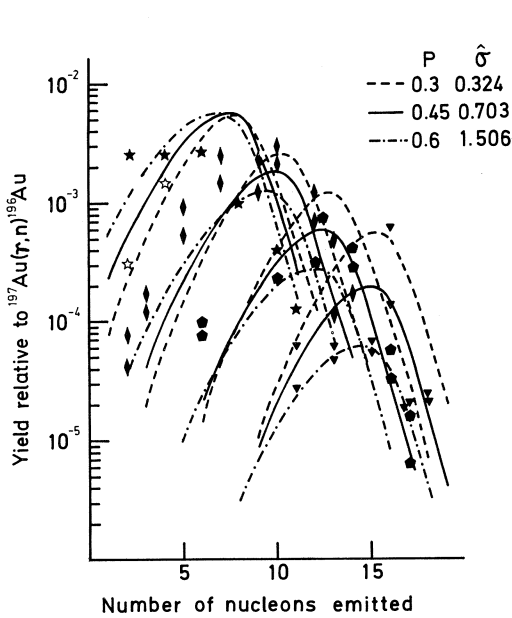


Fig.14 Fitting by Rudstam formula
($^{133}\text{Cs} + 200 \text{ MeV} - \tau$).

The curves are the isotopic distributions calculated by the Rudstam's formula with different parameter sets for P and $\hat{\sigma}$ as noted. These parameter values were chosen to fit the experimental Xe pattern. For the remaining parameters see the text. The experimental points are the same as those in Fig.6.

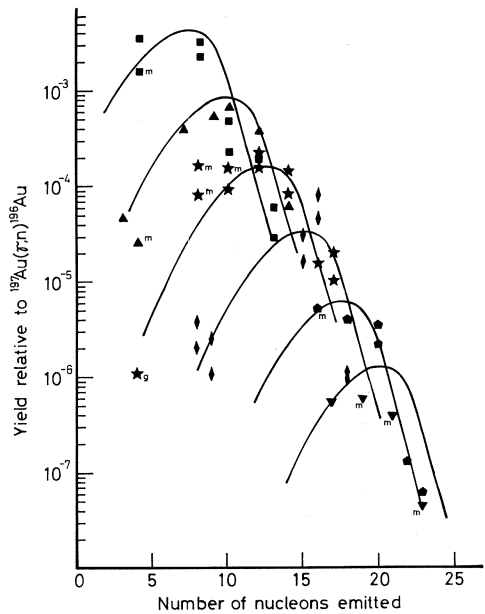


Fig.15 Fitting by Rudstam formula
($^{139}\text{La} + 200 \text{ MeV} - \tau$).

The curves are the isotopic distributions calculated by the Rudstam's formula with $P=0.65$. The parameter $\hat{\sigma}$ is adjusted to the experimental Xe pattern. See the text for the other parameter. The symbols for the experimental points are the same as those in Fig.7.

were obtained to be 0.466 and 2.66×10^{-4} , respectively, by solving $Z_p = SA_m - TA_m^2$ with the results of the N/Z charge dispersions for ^{133}Cs and ^{139}La with 200 MeV (see the companion paper¹³⁾ for the Z_p dependence on A_m) the best fits were searched for by adjusting $\hat{\sigma}$ to the xenon yields, and the results for the ^{133}Cs and ^{139}La targets are shown in Figs. 14 and 15, respectively. The P values of 0.45 and 0.65 for the 200 MeV data on ^{133}Cs and ^{139}La , respectively, seem to be a good choice, though the equation for P above gives 0.26 for ^{133}Cs and 0.25 for ^{139}La . The fitness is better for the large $\Delta Z (= Z_t - Z_p)$ but not for $\Delta Z \leq 1 \sim 3$. The 100 MeV data are not able to be fitted with the Rudstam formula, because of a large contribution of pure evaporation mechanism.

3.5 Isomeric Yield

Ratio

The yield ratios of some isomeric pairs were measured, and are given together with statistical weights $(2I_m + 1) / (2I_g + 1)$ in Tables 5, 6 and 7. The isomeric ratio is defined as the ratio of the relative yields Y_m of the meta-stable (m) state and Y_g of the ground

(g) state. The yields were not corrected for precursor decays except for ^{121g}Te . For this reason, the yields obtained from 5 min and 30 min irradiations are listed separately. The isomeric ratios from the 5 min irradiation are given for ^{132}La , since the decay of ^{132m}La (24 min) during the 30 min irradiation is large, as noted in the table. The ratios for ^{131}Ba and ^{119}Te are of the weighted means. The (Y_m / Y_g) ratios in the brackets given under 200 MeV are those of 250 MeV obtained by Kato and Tsai¹⁶⁾ from a 1 hr irradiation of ^{133}Cs and a 2 hr irradiation of ^{139}La . The target spin and parity are 7/2+ both for ^{133}Cs and ^{139}La .

Table 5 Isomeric Yield Ratios ($^{139}\text{La} + 100 \text{ MeV} - r$).

Nuclide		^{132}La	^{131}Ba
Spin & Parity	m	6 -	1 / 2 +
	g	2 -	3 / 2 +
5 min	m	(4.00±0.30) E-4	
	g	(3.55±0.25) E-4	
30 min	m	(7.98±3.55) E-4	(1.24±0.11) E-4
	g	(1.82±0.10) E-4	(3.49±0.16) E-4
Yield Ratio (Y_m / Y_g)		1.13 ± 0.11	0.36 ± 0.03
$\frac{2I_m + 1}{2I_g + 1}$		13 / 5	1 / 2

Note: The yield ratio for ^{132}La was calculated using the 5 min result because the 30 min result is largely affected with the decay of ^{132m}La (24 m).

Table 6 Isomeric Yield Ratios [$^{139}\text{La} + 200 \text{ MeV} - \tau$].

Nuclide		^{132}La	^{131}Ba	^{121}Te	^{119}Te
Spin (I)	m	6 -	1 / 2 +	11 / 2 -	11 / 2 -
	g	2 -	3 / 2 +	1 / 2 +	1 / 2 +
5 min	m	(4.40±0.32) E-4	(1.22±0.15) E-3		(2.01±0.47) E-6
	g	(1.82±0.19) E-4	(2.03±0.3) E-3		(1.57±0.36) E-6
30 min	m	(3.46±0.26) E-4	(1.12±0.05) E-3	(3.47±0.43) E-6	(1.22±0.12) E-6
	g	(2.84±0.29) E-4	(1.14±0.05) E-3	(6.05±0.59) E-7 †	(1.07±0.09) E-6
Yield Ratio (Y_m/Y_g)		2.22 ± 0.29	0.89 ± 0.06	5.73 ± 0.9 (1.136 E-1)	1.15 ± 0.14 (1.862 E-1)
$\frac{2I_m+1}{2I_g+1}$		13 / 5	1 / 2	6	6

† Yield corrected for the precursor effect from ^{121}I (2.12 h).

Note : Yields of $^{131\text{m,g}}\text{Ba}$ and $^{119\text{m,g}}\text{Te}$ are, respectively, affected with contributions of ^{131}La and ^{119}I decays, but these contributions might be small because of the lower yields of ^{131}La and ^{119}I compared with those of $^{131\text{m,g}}\text{Ba}$ and $^{119\text{m,g}}\text{I}$, respectively. The yield ratios for ^{131}Ba and ^{119}Te are of the weighted means. And the yield ratio for ^{132}La was calculated using the 5 min result because the 30 min result is largely affected with the decay of $^{132\text{m}}\text{La}$ (24 m). The values in brackets are deduced from the $Y_m / (Y_m + Y_g)$ for 250 MeV by Kato and Tsai¹⁶⁾.

There seems to be a correlation between the (Y_m / Y_g) ratios and the statistical weights, rather favoring the high spin states closer to the target spin in all the cases except for ^{119}Te from ($^{133}\text{Cs} + 200 \text{ MeV}$) and for all from the 250 MeV cited. In the ^{139}La reactions, the (Y_m / Y_g) ratios for ^{132}La and ^{131}Ba increase with increase of bremsstrahlung energy from 100 MeV to 200 MeV. However, the (Y_m / Y_g) ratios for ^{121}Te and ^{119}Te from both ^{133}Cs and ^{139}La with 250 MeV reported by Kato and Tsai¹⁵⁾ are smaller by an order of magnitude or more than the present results with 200 MeV. It has been reported that the isomeric ratios of $^{119,121}\text{Te}$, $^{116,118,120}\text{Sb}$ and $^{110,115}\text{In}$ from the ^{127}I reactions increase with bremsstrahlung end-point energy²⁴⁾ but that the ratios of ^{44}Sc from the ^{45}Sc , ^{51}V , ^{55}Mn ,

Table 7 Isomeric Yield Ratios [$^{133}\text{Cs}+200\text{ MeV}-r$].

Nuclide		^{120}I	^{121}Te	^{119}Te
Spin (I)	m	0 +	11 / 2 -	11 / 2 -
	g	2 +	1 / 2 +	1 / 2 +
5 min	m	(9.62±4.02) E-5	(4.31±1.02) E-4	(2.08±0.48) E-4
	g	(4.12±1.72) E-4	(3.43±0.79) E-4	(2.16±0.49) E-4
30 min	m		(2.26±0.17) E-4	(1.21±0.09) E-4
	g		(9.59±0.60) E-5 †	(1.71±0.01) E-4
Yield Ratio (Y_m / Y_g)		0.23 ± 0.14	2.36 ± 0.24 (9.05E-2)	0.72 ± 0.05 (0.1933E-1)
$\frac{2 I_m^+ 1}{2 I_g^+ 1}$		1 / 5	6	6

† Yield corrected for the precursor effect from ^{121}I (2.12 h).

Note : Yields of $^{120\text{m,g}}\text{I}$ and $^{119\text{m,g}}\text{Te}$ are respectively, affected with contributions of ^{120}Xe and ^{119}I , but these contributions might be small because of the lower yields of ^{120}Xe and ^{119}I compared with those of $^{120\text{m,g}}\text{I}$ and $^{119\text{m,g}}\text{Te}$, respectively. The yield ratio for ^{119}Te is of the weighted means. And the yield ratio for ^{121}Te was calculated using the 30 min result. The values in brackets are deduced from the $Y_m / (Y_m + Y_g)$ for 250 MeV by Kato and Tsai¹⁶⁾.

Fe, ^{59}Co and ^{75}As are independent of the energy²⁵⁾. The (Y_m / Y_g) ratios also seem to be independent of the distance of the product nucleus from the target, as was seen in the ^{127}I reactions²⁴⁾. This and the correlation noted above suggest that the emitted nucleons carry off only small amounts of angular momentum from the target nucleus.

Acknowledgements

The authors are indebted to Drs. M. Yagi, K. Masumoto and the LINAC group members at the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, for their invaluable assistance throughout the experiment. Dr. T. Mitsugashira and his fellow members at the Radioisotope Subcenter of Tohoku University are acknowledged for making some counting facilities available to the authors at an early stage of the ex-

periment. This work was supported by a Grant-in-Aid for Scientific Research and in part a Grant-in-Aid for Special Project Research of the Ministry of Education and Culture. Also a financial support from the Nissan Science Foundation was thanked. Miss N. Fukushima is acknowledged for manuscript typing and drawings.

References

- 1) M. Goldhaber and E. Teller: Phys. Rev. **74** (1948) 1046.
- 2) J. S. Levinger and H. A. Bethe : Phys. Rev. **78** (1950) 115 ; J. S. Levinger : Phys. Rev. **91** (1955) 122 ; Phys. Rev. **101** (1956) 733.
- 3) J. S. Levinger: Phys. Rev. **84** (1951) 43.
- 4) J. Garvey, B. H. Patrick, J. G. Rutherglen and I. L. Smith : Nucl. Phys. **70** (1965) 241.
- 5) I. L. Smith, J. Garvey, J. G. Rutherglen and G. R. Brookes : Nucl. Phys. **B 1** (1967) 483.
- 6) R. Serber : Phys. Rev. **72** (1947) 1114.
- 7) T. A. Gabriel and R. G. Alsmiller, Jr : Phys. Rev. **182** (1969) 1035.
- 8) V. S. Barashenkov, F. G. Geregghi, A. S. Iljinov, G. G. Jonsson and V. D. Toneev : Nucl. Phys. **A 231** (1974) 462.
- 9) G. G. Jonsson and K. Lindgren : Phys. Scripta **7** (1973) 49 ; **15** (1977) 308, for review.
- 10) G. Rudstam : Z. Naturforsch. **21a** (1966) 1027.
- 11) V. di Napoli, M. L. Terranova, J. B. Martins and O. A. P. Tavares : Lett. Nuovo Cimento **21** (1978) 83 ; M. L. Terranova, P. de Chiara, V. di Napoli, J. B. Martins and O. A. P. Tavares : *ibid.* **28** (1980) 44.
- 12) K. Sakamoto : *Proc. 16th Intern. Cosmic-Ray Conf*, Kyoto, Vol. 2, (1979) Paper No. OG-12-26, p. 324.
- 13) K. Sakamoto, M. Nishio, M. Dohniwa, K. Okada and Y. Hamajima : Res. Rept. Lab. Nucl. Sci, Tohoku Univ. **7** (1984) 110.

- 14) M. Yagi: Private Comm. (1984).
- 15) K. Komura : Tech. Rept. Inst. Nucl. Study, Univ. Tokyo, INS-TCH-9 (1974) .
- 16) T. Kato and H. Tsai : J. Inorg. Nucl. Chem. **36** (1974) 1.
- 17) H. G. de Carvalho, V. di Naponi, D. Margadonna, F. Salvetti and K. Tesch : Nucl. Phys. **A126** (1969) 505.
- 18) G. Andersson, I. Bromqvist, B. Forkman, G. G. Jonsson, A. Järund, I. Kroon, K. Lindgren, B. Schröder and K. Tesch : Nucl. Phys. **A197** (1972) 44 ; Nucl. Phys. **A197** (1972) 71.
- 19) V. di Napoli, D. Margadonna, F. Salvetti, H. G. de Carvalho and J. B. Martins : Lett. Nuovo Cimento **1** (1969) 121.
- 20) K. Lindgren and G. G. Jonsson : Nucl. Phys. **A166** (1971) 643.
- 21) C. M. Lederer and V. S. Shireley : *Table of Isotopes* (J. Willey & Sons, N. Y., 1978) 7th ed.
- 22) G. Erdtmann and W. Soyka : *The Gamma Rays of the Radionuclides, Topical Presentations in Nuclear Chemistry*, ed. K. H. Lieser, (Verlag Chemie, Weinheim N. Y., 1979) Vol. 7.
- 23) N. G. Runnalís and D. E. Troutner : Phys. Rev. **C1** (1970) 316.
- 24) G. G. Jonsson and B. Persson : Nucl. Phys. **A153** (1970) 32.
- 25) M. Eriksson and G. G. Jonsson : Nucl. Phys. **A242** (1975) 507.

Spallation Yields from Natural Rb, Sr and Y Irradiated with 100 MeV and 200 MeV Bremsstrahlungs

K. Sakamoto, M. Nishio, M. Dohniwa, K. Okada and Y. Hamajima

Department of Chemistry, Faculty of Science, Kanazawa

University, 1-1 Marunouchi, Kanazawa, 920, Japan

Spallation yields, relative to the ^{196}Au yield from $^{196}\text{Au}(\gamma, n)$, of 17 to 25 radioactive products respectively from Rb, Sr and Y of natural abundances irradiated with 100 MeV and 200 MeV bremsstrahlungs are reported. The isotopic distributions, isobaric mass distributions and charge dispersions are described and examined with respect to the spallations induced on the other targets by photons and particles of wide ranges. The isomeric ratios for $^{85,86,87}\text{Y}$ and ^{85}Sr determined are discussed.

§ 1. Introduction

Extending mass region of the photon-induced reactions reported in the preceding paper¹⁾, yield determinations were performed on the radioactive products from Rb, Sr and Y of natural abundances²⁾ (^{85}Rb 72.17%, ^{87}Rb 27.83%; ^{84}Sr 0.56%, ^{86}Sr 9.84%, ^{87}Sr 7.0%, ^{88}Sr 82.6%, ^{89}Y 100%) irradiated with 100 MeV and 200 MeV bremsstrahlungs. The characteristics of the isotopic distributions, the isobaric distributions, the charge dispersions and the isomeric ratios were compared with the existing data on photon- and particle-induced reactions of targets and energies of wide ranges and also with the predictions by Rudstam's five parameter formula. The present results on the targets of composite isotopic abundance like Rb and Sr somewhat restrict clear distinctions of the nuclear phenomena, but serve to extend our knowledges on nuclear effects occurring in nature such as cosmic-ray induced spallation and on productions of radionuclides useful, for an example, to medical applications.

§ 2. Experimental

2.1 Target preparation

Commercial RbCl and Y_2O_3 of reagent grade (Mitsuwa Chemicals Industries, Ltd), and anhydride $SrCl_2$ prepared by heating commercial $SrCl_2 \cdot 6H_2O$ (Wako pure Chemicals Industries, Ltd.) at $110^\circ C$ in a vacuum oven were used for target materials. About one gram of the material was introduced together with a piece of Au wire (0.6 mm in diameter \times 5~10 mm) in a quartz tube of 1 cm in diameter. Several of the tubes with monitor foils of Au ($40\sim 50$ mg/cm²), Cu (300 mg/cm²) and/or Ni (13 mg/cm²) cut into 10×15 mm were placed along the beam path in a water-cooled target holder.

2.2 Irradiation

The irradiations were performed for 5 min and 60 min with an uncollimated bremsstrahlung from the 300 MeV Electron LINAC of the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. The details of the irradiations and the monitor reactions are described in the separate paper¹⁾.

2.3 Radiochemistry and Radioactivity Measurements

Soon after the irradiations, the targets were subjected to radiochemical processings shown in Fig. 1. The principal chemical procedures are almost the same as described in ref. 1 for the Cs and La targets. But for bromine the oxidation of Br^- was aided by 1M $KMnO_4$, and krypton was expelled to cooled charcoal by heating RbCl or $SrCl_2$ or by dissolving Y_2O_3 in 6N HNO_3 . Chemical yields were determined gravimetrically after counting, except for Se, As and Kr. For Se and As radiotracers of ^{75}Se and ^{76}As were added before chemical separations and/or reactivations of the precipitates by 14 MeV-neutrons after the separations. For Kr, radioactivity ratios of ^{85m}Kr to ^{83}Sr , ^{81}Sr and/or ^{81}Rb were determined with the chemically-unprocessed targets irradiated together with the processed one. The obtained yields were ranged 60~80% for Sr, 11~92% for Kr, 60~90% for Rb, 75~99% for Br, 63~98% for Se and 85~95% for As.

Radioactivity measurements were performed by gamma-ray spectrometry using a 80 cm³ and a 68 cm³ ORTEC Ge(Li) detector of 1.8~2.0 keV FWHM at 1333 keV

and a 500 m² ORTEC low-energy photon detector of 545 eV FWHM at 122 keV, both calibrated with Amer-sham standards and ¹⁵²Eu sources of the sample size. The product nuclides were assinged and evaluated with characteristic gamma-rays and the half-lives. The decays were followed for months. Relevant nuclear data were quoted from the latest issues of the data tables^{2,3)}.

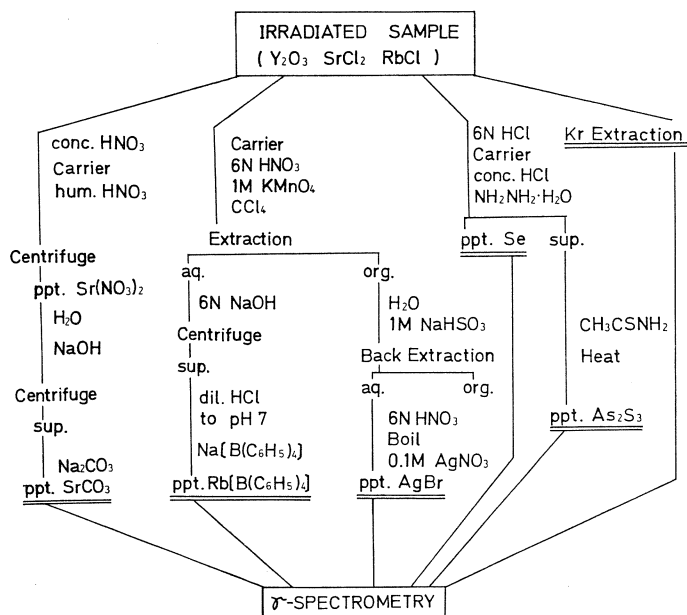


Fig. 1 Chemical procedures for irradiated Y₂O₃, SrCl₂ and RbCl.

§ 3. Results

A yield in the present work is a radioactivity yield defined as the production rate of a nuclide per gram of the target element relative to those of ¹⁹⁶Au from ¹⁹⁷Au (γ, n) reaction per gram of Au irradiated together¹⁾. The results of the yields are tabulated together with the relevant nuclear data for Rb in Table 1, for Sr in Table 2, and for Y in Table 3. The symbols *I* and *C* denote the independent and cumulative yields, respectively. The errors given are of the statistical ones associated with photopeak counts, background subtraction and efficiency determination. In these tables the results from Rb and Y of 5 min and 30 min irradiations are listed separately for the two irradiation energies. These are not corrected for precursor decays. The difference of the yields from the 5 min and 30 min irradiations are fairly consistent within the uncertainties except for a few cases. The discrepancies are mostly considered to be due to fed-in from precursor decays, but some data remain to be confirmed further experimentally. But these do

Table 2 Nuclear Data and Spallation Yields from $^{nat}\text{Sr}+200\text{ MeV}-\gamma$ and $^{nat}\text{Sr}+100\text{ MeV}-\gamma$.

Nuclide	Half-life	Reaction type from ^{88}Sr	Gamma-ray used (keV) (Branching ratio %)	200 MeV yield		100 MeV yield	
				$[\frac{\text{dps/g(sample)}}{\text{dps/g(Au)}}]$ 30 min	$[\frac{\text{dps/g(sample)}}{\text{dps/g(Au)}}]$ 30min	$[\frac{\text{dps/g(sample)}}{\text{dps/g(Au)}}]$ 30min	$[\frac{\text{dps/g(sample)}}{\text{dps/g(Au)}}]$ 30min
Sr-87m (I)	2.81h	(γ, n)	388 (83)	(1.3 \pm 0.3) E-1	(1.2 \pm 0.1) E-1		
Sr-85m (I)	68.0 m	($\gamma, 3n$)	232 (85)	(1.7 \pm 0.5) E-2	(1.7 \pm 0.1) E-2		
Sr-85g (C)	64.85d	($\gamma, 3n$)	514 (99)	(3.0 \pm 0.8) E-2	(2.3 \pm 0.2) E-2		
Sr-83g (C)	32.4 h	($\gamma, 5n$)	763 (30)	(2.4 \pm 0.5) E-3	(1.3 \pm 0.1) E-3		
Rb-86 (I)	18.82d	(γ, pn)	1077 (8.8)	(6.1 \pm 0.6) E-3	(4.2 \pm 0.4) E-3		
Rb-84g (C)	32.77d	($\gamma, p3n$)	882 (71)	(3.4 \pm 0.3) E-3	(1.3 \pm 0.1) E-3		
Rb-83 (C)	86.2 d	($\gamma, p4n$)	520 (46)	(3.6 \pm 0.3) E-3	(1.5 \pm 0.3) E-3		
Rb-82m (C)	6.2 h	($\gamma, p5n$)	777 (83)	(1.3 \pm 0.1) E-3	(2.3 \pm 0.2) E-4		
Rb-81g (C)	4.58h	($\gamma, p6n$)	446 (23)	(1.2 \pm 0.1) E-3	(1.9 \pm 0.2) E-4		
Kr-85m (I)	4.48h	($\gamma, 2pn$)	152 (78)	(2.3 \pm 0.5) E-5	(1.6 \pm 1.0) E-5		
Kr-79g (C)	35.04h	($\gamma, 2p7n$)	261 (13)	(7.6 \pm 1.8) E-4	(5.6 \pm 3.5) E-5		
Kr-77 (C)	74.7 m	($\gamma, 2p9n$)	130 (84)	(6.3 \pm 1.5) E-5	(2.1 \pm 1.5) E-5		
Kr-76 (C)	14.82h	($\gamma, 2p10n$)	316 (40)	(8.7 \pm 2.3) E-6			
Br-83 (I)	2.39h	($\gamma, 3p2n$)	530 (1.3)		(3.1 \pm 0.5) E-6		
Br-82g (I)	35.34h	($\gamma, 3p3n$)	776 (83)	(2.0 \pm 0.2) E-5	(5.3 \pm 0.4) E-6		
Br-80m (I)	4.42h	($\gamma, 3p5n$)	616 (7.2)	(6.1 \pm 0.6) E-5	(2.9 \pm 0.2) E-6		
Br-77g (C)	57.04h	($\gamma, 3p8n$)	239 (23)	(1.4 \pm 0.1) E-4	(2.1 \pm 0.2) E-7		
Br-76 (C)	16.1 h	($\gamma, 3p9n$)	559 (72)	(2.7 \pm 0.3) E-5	(6.1 \pm 0.1) E-8		
Br-75 (C)	95.5 m	($\gamma, 3p10n$)	289 (92)	(1.7 \pm 0.2) E-5			
Se-75 (C)	118.45d	($\gamma, 4p9n$)	265 (59)	(1.6 \pm 0.2) E-4			
Se-73g (C)	7.18h	($\gamma, 4p11n$)	361 (97)	(1.5 \pm 0.1) E-5			
As-76 (I)	26.32h	($\gamma, 5p7n$)	559 (45)	(2.1 \pm 0.2) E-5			
As-74 (I)	17.79d	($\gamma, 5p9n$)	596 (60)	(5.0 \pm 0.5) E-5			
As-73 (C)	80.3 d	($\gamma, 5p10n$)	53 (10)	(5.3 \pm 0.7) E-5			
As-72 (C)	26 h	($\gamma, 5p11n$)	834 (80)	(2.8 \pm 0.3) E-5			
As-71 (C)	61 h	($\gamma, 5p12n$)	175 (32)	(4.8 \pm 0.5) E-5			

I : independent C : cumulative

Table 3 Nuclear Data and Spallation Yields from $^{89}\text{Y} + 200 \text{ MeV} - \gamma$ and $^{89}\text{Y} + 100 \text{ MeV} - \gamma$.

Nuclide	Half-life	Reaction type	Gamma-ray used (keV) (Branching ratio %)	200 MeV yield [$\frac{\text{dps/g(sample)}}{\text{dps/g(Au)}}$]		100 MeV yield [$\frac{\text{dps/g(sample)}}{\text{dps/g(Au)}}$]	
				30 min	5 min	30 min	5 min
Y-88g (C)	106.6 d	(γ, n)	1836 (99)	(4.7 ± 0.4) E-2	(4.1 ± 0.2) E-2	(5.7 ± 0.5) E-2	(9.2 ± 0.8) E-2
Y-87m (I)	13.2 h	($\gamma, 2n$)	381 (74)	(2.7 ± 0.2) E-3	(2.3 ± 0.3) E-3	(3.3 ± 0.3) E-3	(5.9 ± 0.5) E-3
Y-87g (C)	80.3 h	($\gamma, 2n$)	485 (92)	(8.2 ± 0.8) E-3	(6.4 ± 0.6) E-3	(9.5 ± 0.9) E-3	(1.4 ± 0.1) E-2
Y-86m (I)	48 m	($\gamma, 3n$)	208 (94)	(2.8 ± 0.3) E-4	(2.6 ± 0.2) E-4	(2.7 ± 0.2) E-4	(5.6 ± 0.4) E-4
Y-86g (C)	14.74h	($\gamma, 3n$)	1076 (83)	(1.0 ± 0.1) E-3	(9.4 ± 0.8) E-4	(1.1 ± 0.1) E-3	(1.9 ± 0.2) E-3
Y-85m (I)	2.68h	($\gamma, 4n$)	767 (67)	(1.1 ± 0.1) E-4	(8.5 ± 0.8) E-5	(2.3 ± 0.4) E-4	(2.0 ± 0.2) E-4
Y-85g (C)	4.7 h	($\gamma, 4n$)	505 (64)	(1.1 ± 0.1) E-4	(8.5 ± 0.8) E-5	(1.5 ± 0.7) E-5	(4.4 ± 0.4) E-5
Y-84g (C)	38.5 m	($\gamma, 5n$)	793 (95)			(3.9 ± 0.6) E-5	
Sr-87m (C)	2.81h	(γ, pn)	388 (83)	(2.4 ± 0.2) E-3	(3.0 ± 0.2) E-3	(3.8 ± 0.3) E-3	(2.0 ± 0.2) E-3
Sr-85m (C)	68.0 m	($\gamma, p3n$)	232 (85)	(1.3 ± 0.1) E-3	(1.5 ± 0.1) E-3	(1.4 ± 0.1) E-3	(7.5 ± 0.6) E-4
Sr-85g (C)	64.85d	($\gamma, p3n$)	514 (99)	(3.8 ± 0.4) E-3	(4.9 ± 0.5) E-3	(2.7 ± 0.3) E-3	(1.5 ± 0.2) E-3
Sr-83g (C)	32.4 h	($\gamma, p5n$)	763 (30)	(1.1 ± 0.1) E-3	(1.5 ± 0.1) E-3	(2.4 ± 0.2) E-4	(1.7 ± 0.2) E-4
Rb-86 (I)	18.82d	($\gamma, 2pn$)	1077 (8.8)	(9.5 ± 1.1) E-5	(1.7 ± 0.2) E-4		(5.7 ± 0.5) E-6
Rb-84m (I)	20.2 m	($\gamma, 2p3n$)	247 (65)				(1.2 ± 0.1) E-5
Rb-84g (C)	32.77d	($\gamma, 2p3n$)	882 (71)	(3.9 ± 3.2) E-4	(8.3 ± 0.7) E-4	(2.1 ± 0.2) E-5	(1.5 ± 0.1) E-5
Rb-83 (C)	86.2 d	($\gamma, 2p4n$)	520 (46)	(5.8 ± 0.5) E-4	(1.2 ± 0.1) E-3	(2.4 ± 0.2) E-5	(5.0 ± 0.4) E-6
Rb-82m (C)	6.2 h	($\gamma, 2p5n$)	777 (83)	(3.0 ± 0.2) E-4	(6.6 ± 0.9) E-4	(8.1 ± 0.7) E-6	(1.4 ± 0.1) E-7
Rb-81m (C)	31.5 m	($\gamma, 2p6n$)	85 (100)				(4.5 ± 0.5) E-6
Rb-81g (C)	4.58h	($\gamma, 2p6n$)	446 (23)	(3.3 ± 0.3) E-4	(7.4 ± 1.1) E-4	(6.3 ± 0.5) E-6	
Rb-79 (C)	23 m	($\gamma, 2p8n$)	688 (23)				(2.7 ± 0.7) E-7
Kr-85m (I)	4.48h	($\gamma, 3pn$)	152 (78)	(5.7 ± 1.1) E-8	(3.5 ± 0.6) E-7		
Kr-79g (C)	35.04h	($\gamma, 3p7n$)	261 (13)	(5.9 ± 0.9) E-5	(8.4 ± 1.3) E-5		
Kr-77 (C)	74.7 m	($\gamma, 3p9n$)	130 (84)	(7.6 ± 1.2) E-6	(9.5 ± 1.4) E-6		
Kr-76 (C)	14.82h	($\gamma, 3p10n$)	316 (40)	(5.8 ± 1.0) E-7	(1.3 ± 0.3) E-6		
Br-82g (I)	35.34h	($\gamma, 4p3n$)	776 (83)	(5.5 ± 0.6) E-7	(1.6 ± 0.1) E-6		
Br-80m (I)	4.42h	($\gamma, 4p5n$)	616 (7.2)	(3.4 ± 0.4) E-6	(4.7 ± 0.6) E-6		
Br-77g (C)	57.04h	($\gamma, 4p8n$)	239 (23)	(1.5 ± 0.1) E-5	(2.4 ± 0.3) E-5		
Br-76 (C)	16.1 h	($\gamma, 4p9n$)	559 (72)	(3.6 ± 0.3) E-6	(6.4 ± 0.7) E-6		
Br-75 (C)	95.5 m	($\gamma, 4p10n$)	289 (92)	(1.6 ± 0.1) E-6	(3.1 ± 0.3) E-6		

I : independent C : cumulative

not affect much the deduction of features of mass distributions.

§ 4. Discussions

4. 1 *Isotopic Distributions*

The measured isotope yields are plotted against the number of nucleons ($x+y$) emitted from the targets ^{85}Rb , ^{88}Sr and ^{89}Y , respectively, in Figs. 2, 3 and 4. The open marks approximated with the dotted curves are for the 100 MeV irradiation and the closed marks approximated with the solid curves are for the 200 MeV. The circles, squares, triangles, stars, diamonds, pentagons and reversed triangles are for isotopes of Sr, Y, Rb, Kr, Br, Se and As. The shapes and their variations with the number of emitted nucleons, ($x+y$), and with the end-point energies look quite similar for all the targets including ^{133}Cs and ^{139}La described in the preceding paper¹⁾; the exponential decrease of the (τ, yn) yields for $y \leq 4 \sim 5$, the Gaussian distributions for each element, the exponential decrease of the surface ridges with increase of ($x+y$),

and the smaller slopes for 200 MeV than those for 100 MeV. However, some details are quite different among the targets studied. For Rb target, the FWHMs of the distributions for 100 MeV range 3.2 ~ 3.7 amu, but those for 200 MeV do increase from 3.6 amu of Kr to 5.1 amu of As. This increase of the width should be apparent, since the products from the ^{87}Rb reactions are over-lapped on the right

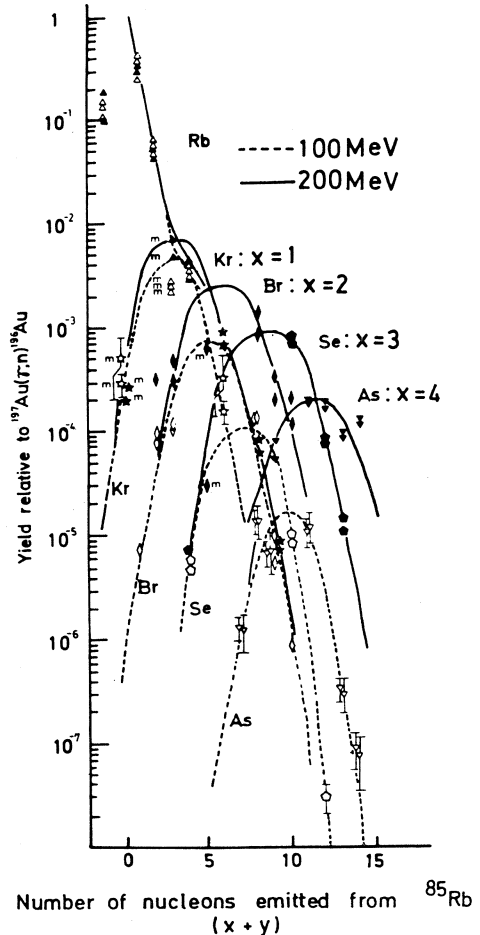


Fig. 2 Isotope distribution from $^{85}\text{Rb}_{48}(\tau, xpy)$ reaction.

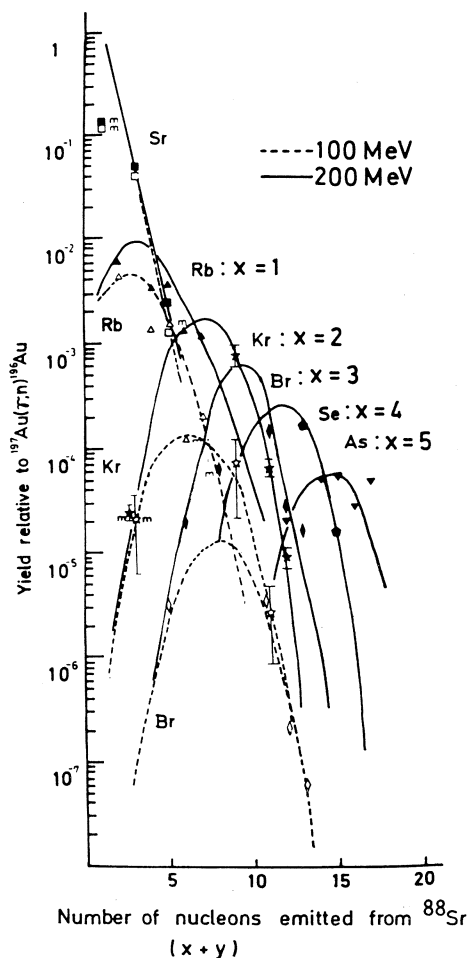


Fig. 3 Isotope distribution from $^{88}\text{Sr}_{50}(\tau, xpyn)$ reaction.

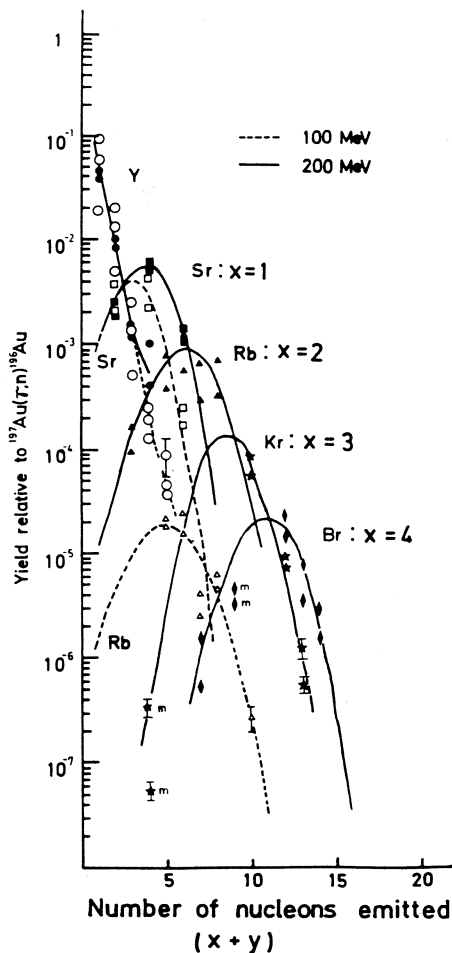


Fig. 4 Isotope distribution from $^{89}\text{Y}_{50}(\tau, xpyn)$ reaction.

wings of the distributions plotted referring to 72.17 % ^{85}Rb , though the extent of the broadening is expected not to be large due to magic nature of ^{87}Rb ($N=50$). The widths for Sr target are about 4 amu and the slope of the surface ridges is larger than those of the Rb target. The yield contributions from the less abundant Sr isotopes raise up the yields at the left wings of the distributions. The plots are referred to the most abundant, heaviest and neutron magic ^{88}Sr ($N=50$). The product distribution from the monoisotopic and neutron magic ^{89}Y are limited in small ranges in mass; 3.6~3.9 amu at half-maximum, both for 100 MeV and 200 MeV.

4.2 Isobaric Yield Distribution

Isobaric distributions were obtained by summing the yields of the same mass number. The isotopic yield curves were used to complement the unmeasured yields. The differences of the isobaric yields for 100 MeV and 200 MeV are drawn against the distance of the product mass A_p from the target mass A_t and are compared with those for ^{133}Cs and ^{139}La in Fig. 5. The A_t values for Rb and Sr are chosen again to be 85 and 88, respectively. These distributions are considered to be of spallation caused by photons of energies between 100 MeV and 200 MeV. The distributions for Rb,

Sr and Y are quite asymmetric to the peak masses corresponding to $\Delta A = A_t - A_p = 4$, tailing to larger ΔA , as are in ^{133}Cs and ^{139}La . However the extents of asymmetry are very small in the latter targets. The ΔA of about 4 at the peak is a half of ΔA for ^{133}Cs and ^{139}La . The width and peak height for ^{89}Y are distinctly small compared with those for the isotopically composite Rb and Sr. The features for ^{88}Y , as well as those for ^{139}La , would partly be a consequence of their magic nature. The magic effect of ^{88}Sr and ^{87}Rb on the mass distribution is not very clear, since the yields at low ΔA are overlapped with the ones which come from the non-magic Sr isotopes lighter than ^{88}Sr and the yields at high ΔA with those from ^{87}Rb . The extent of the latter would be relatively small due to neutron magic.

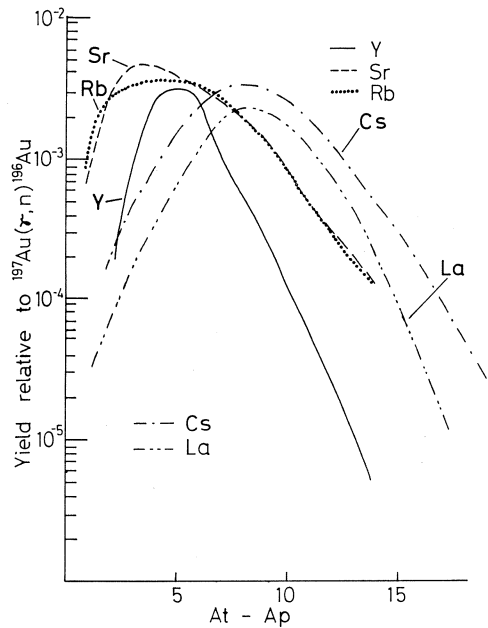


Fig. 5 Mass distribution for 100 – 200 MeV from $^{\text{nat}}\text{Rb}$, $^{\text{nat}}\text{Sr}$, $^{89}\text{Y}(\gamma, xpyn)$ for $x \geq 1$.

4.3 Charge Dispersion and Systematics

The N/Z charge dispersions for Rb, Sr and Y targets are shown respectively in Figs. 6, 7 and 8. The symbols are the same as those in Figs. 2 ~ 4. The solid and dotted curves are of visually fitted ones to the obtained plots for 100 MeV and 200 MeV, respectively, assuming a Gaussian form. The 100 MeV curves especially for ^{89}Y are far exact due to insufficient data points. Noted in the figures are the median mass A_m of the products, the (N/Z) values corresponding to the

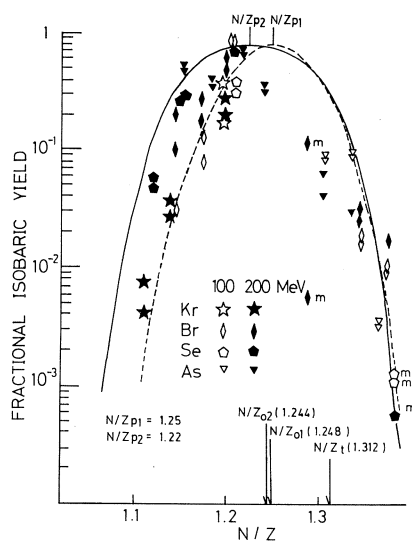


Fig. 6 N/Z Charge dispersion from $^{\text{nat}}\text{Rb}$.
 100 MeV $75 \leq A_m \leq 83$ ($A_m = 79$)
 200 MeV $71 \leq A_m \leq 83$ ($A_m = 77$)
 Suffixes 1 and 2 refer to 100 MeV and 200 MeV.

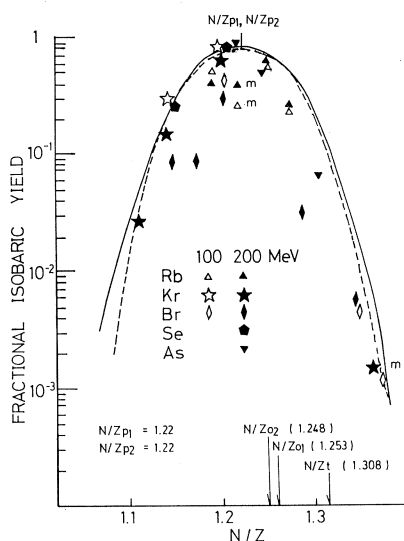


Fig. 7 N/Z Charge dispersion from $^{\text{nat}}\text{Sr}$.
 100 MeV $77 \leq A_m \leq 85$ ($A_m = 81$)
 200 MeV $73 \leq A_m \leq 85$ ($A_m = 79$)
 Suffixes 1 and 2 refer to 100 MeV and 200 MeV.

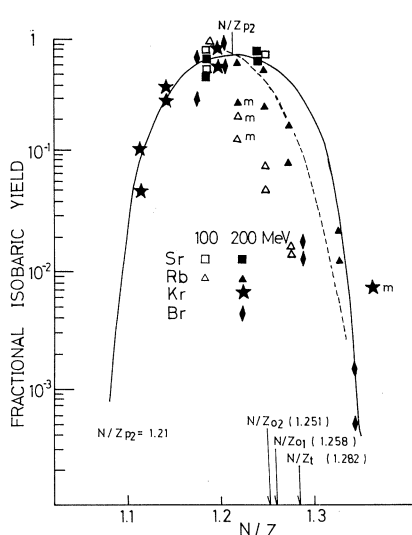


Fig. 8 N/Z Charge dispersion from ^{89}Y .
 100 MeV $81 \leq A_m \leq 85$ ($A_m = 83$)
 200 MeV $74 \leq A_m \leq 86$ ($A_m = 80$)
 Suffixes 1 and 2 refer to 100 MeV and 200 MeV.

target, (N/Z_t , the weighted means for the composite Rb and Sr targets), to the beta-stability valley for A_m , (N/Z_o), and to the most probable charge, (N/Z_p). The suffixes 1 and 2 refer to 100 MeV and 200 MeV.

The N/Z dispersion parameters extracted from Figs. 6–8 are compared with the other targets and photon energies of wide ranges^{1, 4-6} in Table 4. Some results on high energy proton induced spallations^{7, 8} are included. In the table, the width of the charge dispersion is expressed by FWHM, $\Delta(N/Z)$ and by the corresponding Z -spread, ΔZ . The values of the peak position, N/Z_p or Z_p and the widths, $\Delta(N/Z)$ or ΔZ have been found to be almost same for similar A_m from V, Mn, Fe and Co targets^{5, 6}, independent of both the type and energy of the incident particles. The (N/Z_p)'s for Sr and Y targets seem to be independent of the end-point energy of bremsstrahlung, and all the Z_p 's locate at neutron-deficient side of Z_o by at most 1 unit, but far from Z_t . According to a theoretical analysis by Rudstam⁹ for evaporation step for excitation energies between 100~200 MeV in particle-induced spallation reactions, the width of charge dispersion is determined by the level density parameter a and by the separation energies. In Fig. 9, the values of the

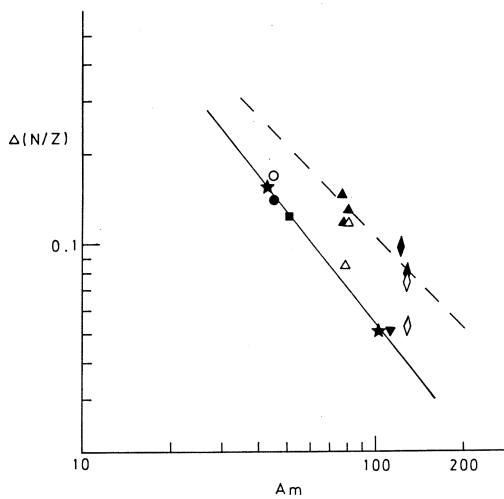


Fig. 9 FWHM of the CD curves.

- ◇ $^{133}\text{Cs}, ^{139}\text{La} + 100 \text{ MeV} - r$
- ◆ $^{133}\text{Cs}, ^{139}\text{La} + 200 \text{ MeV} - r$
- ▼ $^{127}\text{I} + 250 \sim 900 \text{ MeV} - r$
- ★ $^{\text{nat}}\text{Ag} + 3, 29 \text{ GeV} - p$
- △ $^{\text{nat}}\text{Rb}, ^{\text{nat}}\text{Sr}, ^{89}\text{Y} + 100 \text{ MeV} - r$
- ▲ $^{\text{nat}}\text{Rb}, ^{\text{nat}}\text{Sr}, ^{89}\text{Y} + 200 \text{ MeV} - r$
- $^{59}\text{Co} + 0.3 \sim 1 \text{ GeV} - r$
- $^{51}\text{V} + 3, 29 \text{ GeV} - p$
- $^{51}\text{V} + 0.3 \sim 1 \text{ GeV} - r, 250 \sim 400 \text{ MeV} - r$
- $^{55}\text{Mn} + 0.3 \sim 1 \text{ GeV} - r$
- $^{59}\text{Co} + 0.3 \sim 1 \text{ GeV} - r$

Table 4 N/Z Dispersion Parameters.

Target Nucleus	Energy	Mass Region	A_m	N/Z_p	Z_p	Z_0	FWHM $\Delta(N/Z)$	ΔZ	References
natRb	100 MeV - γ	75-83	79	1.25	35.1	35.1	0.085	1.33	Present work
	200 MeV - γ	71-83	77	1.22	34.7	34.3	0.147	3.23	Present work
natSr	100 MeV - γ	77-85	81	1.22	36.5	36.0	0.118	1.94	Present work
	200 MeV - γ	73-85	79	1.22	35.6	35.1	0.121	1.94	Present work
⁸⁹ Y	100 MeV - γ	81-85	83	—	—	36.8	—	—	Present work
	200 MeV - γ	76-86	81	1.21	36.7	35.5	0.130	2.16	Present work
¹³³ Cs	100 MeV - γ	120 - 131	125.5	1.32	54.1	53.1	0.075	1.75	K. Sakamoto et al. (1984) ¹⁾
	200 MeV - γ	115 - 131	123	1.31	53.3	52.5	0.098	2.25	
¹³⁹ La	100 MeV - γ	123 - 135	129	1.34	55.1	54.3	0.053	1.25	K. Sakamoto et al. (1984) ¹⁾
	200 MeV - γ	115 - 136	125.5	1.31	54.3	53.1	0.080	1.87	
¹²⁷ I	250 -900 MeV - γ	—	113	1.27	49.8	48.6	0.032	1.15	G. G. Jonsson et al.(1970) ⁴⁾
⁵¹ V	0.3-1 GeV - γ	42-48	45	1.16	20.8	24.1	0.143	1.36	V. di Napoli et al.(1978) ⁵⁾
	250 -400 MeV - γ	42-48	45	1.16	20.8	24.1	0.142	1.37	B. Bülow et al. (1976) ⁶⁾
⁵⁴ Mn	3, 29 GeV - p	42-48	45	1.16	20.9	24.1	0.168	1.63	L.Husain et al. (1973) ⁷⁾
	0.3-1 GeV - γ	42-48	45	1.16	20.8	24.1	0.142	1.37	V.di Napoli et al. (1978) ⁵⁾
⁵⁹ Co	0.3-1 GeV - γ	42-48	45	1.16	20.8	24.1	0.141	1.36	
	48-54	48-54	51	1.16	23.6	26.2	0.124	1.36	
natAg	3, 29 GeV - p	36-49	43	1.15	20.0	23.3	0.156	1.45	S. Katcoff et al. (1968) ⁸⁾
	97 - 106	97 - 106	102	1.23	45.8	44.7	0.051	1.05	

Note : A_m is the median mass. N/Z_p is the neutron/proton ratio for the most probable nuclear charge Z_p of A_m . Z_0 is atomic number at the center of beta stable valley. FWHM is the full width at half-maximum of the CD curves. ΔZ is the spread corresponding to $\Delta(N/Z)$.

width in Table 4 are plotted against A_m . The results of the present series of work, drawn through by a dotted line, apparently deviate from the solid line drawn through the other data. In view of the uncertainty in the width, the discrepancy is considered to be due to the uncertainty in fitting of a Gaussian form. An important point is that the width decrease exponentially with the increase of A_m , within a range shown by the two lines. This, in turn, indicates the parameter a to be a function of A_m , thence the evaporation step determine the final distribution of the residual nuclei. The parameter R , in the Rudstam formula¹⁰⁾, is related to ΔZ here, and has been approximated by $R = d' A_m^{-e'}$ for charge dispersion. The literature data for d' and e' are 11.8 ± 3.0 and 0.45 ± 0.07 ¹¹⁾, respectively, and the range shown by the two lines in Fig. 9 are well within the errors attached to d' and e' . In Fig. 10 the values of Z_p ,

more certain than the width ΔZ , are plotted against A_m . All the data quoted stay on a single straight line for A_m between 45~130 amu. The evaporation analysis⁹⁾ indicates that the Coulomb barrier influence is strong on Z_p . The barrier height and then Z_p are considered not to be proportional to the mass number, and Rudstam¹⁰⁾ and his followers¹¹⁾ approximated Z_p empirically by a form, $Z_p = SA_m - TA_m^2$. (Note that Fig. 4 of ref. 11 is a $(Z_p / A_t \text{ vs } A_t)$ plot, instead of a $(Z_p / A_m \text{ vs } A_m)$ plot, through the deduced S of 0.486 and T of 3.8×10^{-4} are not affected much by

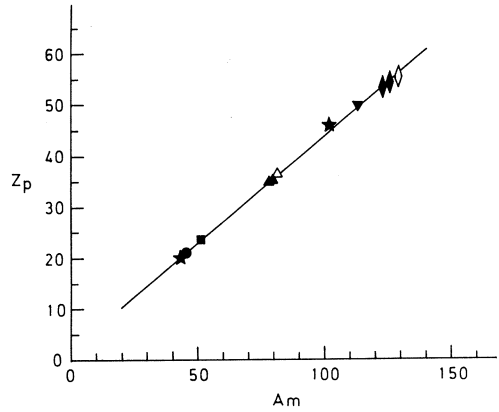


Fig. 10 Most probable Z (Z_p) at product mass A_m .

- ◇ $^{133}\text{Cs}, ^{139}\text{La} + 100 \text{ MeV} - r$
- ◆ $^{133}\text{Cs}, ^{139}\text{La} + 200 \text{ MeV} - r$
- ▼ $^{127}\text{I} + 250 \sim 900 \text{ MeV} - r$
- ★ $^{\text{nat}}\text{Ag} + 3, 29 \text{ GeV} - p$
- △ $^{\text{nat}}\text{Rb}, ^{\text{nat}}\text{Sr}, ^{89}\text{Y} + 100 \text{ MeV} - r$
- ▲ $^{\text{nat}}\text{Rb}, ^{\text{nat}}\text{Sr}, ^{89}\text{Y} + 200 \text{ MeV} - r$
- $^{59}\text{Co} + 0.3 \sim 1 \text{ GeV} - r$
- $^{51}\text{V} + 0.3 \sim 1 \text{ GeV} - r,$
 $250 \sim 400 \text{ MeV} - r, 3, 29 \text{ GeV} - p$
 $^{55}\text{Mn} + 0.3 \sim 1 \text{ GeV} - r$
 $^{59}\text{Co} + 0.3 \sim 1 \text{ GeV} - r$

that plot.) However, the result shown in Fig. 10 indicates that the A_m -dependence of Z_p can be well approximated with a form $Z_p = SA_m$. Actually the compiled values of S cluster around 0.5 ± 0.1 and those of T are close to zero¹¹⁾.

Another parameter, appeared in the Rudstam formula, is P which determines the slope of the ridge of the isotope distribution. The P values and the slopes in the present work are given together with the ones estimated for ^{133}Cs and ^{139}La for 100, 200¹¹⁾ and 250 MeV¹²⁾ in Table 5. The P 's were estimated from fitting of the calculated distributions to the observed ones and the slopes were obtained directly from Figs. 2, 3 and 4. The discrepancies are within uncertainties in fitting, but fairly large compared with those predicted by $P = 1460 E_o^{-8.1} \cdot A_t^{-0.89}$ for end point energy $E_o \leq 600$ MeV given by Jonsson and Lindgren¹¹⁾. Also one is hardly confident with the prediction of $P = 7.66 A_t^{-0.89}$, independence on energy, at $E_o > 600$ MeV, from a inspection of the compiled P shown in Fig. 1 of ref. 11. The same figure is reproduced by adding the present values and the

Table 5 The Slope of the Peaks of the Isotopic Distributions and the Parameter P of the Rudstam's Formula.

The slope (b) was obtained by fitting the peak height (Y) and mass (A_0) in Figs. 2, 3 and 4 in a form of $\ln Y = \ln a - b A_0$. The parameter P in bracket was estimated by fitting the calculated distributions to the experimental Xe pattern. For the other parameter values of S , T and R in the formula, see text.

Target	End Point Energy of Bremsstrahlung (MeV)		
	100	200	250
$^{85+87}\text{Rb}$	0.86 (~ 0.9)	0.41 (~ 0.45)	
$^{\text{nat}}\text{Sr}$	1.16 (1.12)	0.46 (0.48)	
^{89}Y	2.5 (-)	0.83 (0.7)	
^{133}Cs	1.21 (-)	0.38 (0.45)	0.35 (-)
^{139}La	1.35 (-)	0.60 (0.65)	0.40 (-)

others in Fig. 11. The dashed lines are the predicted variations for ^{51}V and ^{127}I . The target-mass-dependence of P is not clear except for ^{51}V and ^{127}I which are the best studied ones. Also it is not known why the energy-dependence of P changes at 600 MeV. A more systematic study on the P variations with A_t and E_0 , such as the ^{51}V and ^{127}I targets are required.

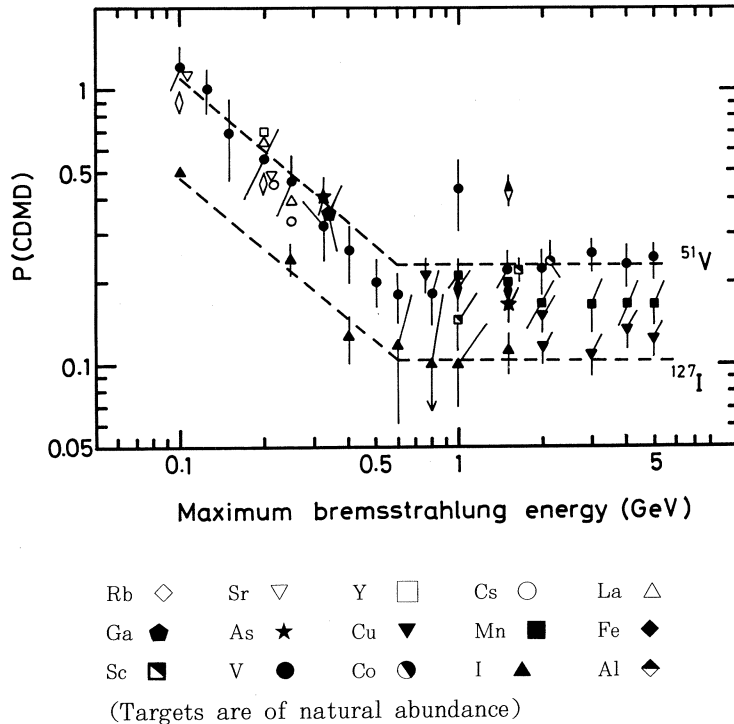


Fig. 11 Parameter P as a function of the end-point energy of bremsstrahlung.

4.4 Isomeric Ratios

Some isomeric yield ratios were obtained for the only-monoisotopic ^{89}Y target, and shown in Table 6. The yields for metastable and ground states obtained from the 5 min and 30 min irradiations are separately shown. No correction for the precursor decay is applied. The ratios given are of the weighted means of the yields from the two irradiations, because of no large differences in the ratios between the two. The spin and parity of ^{89}Y are $1/2^-$. Qualitatively, for the products closer to the target such as ^{87}Y (and ^{89}Y) the yield of the low spin state is higher

Table 6 Isomeric Yield Ratio ($^{87}\text{Y} + 100 \text{ MeV} - \tau$ and $200 \text{ MeV} - \tau$).

Nuclide	^{87}Y	^{86}Y	^{85}Y	^{85}Sr
Spin (I)	m	8 +	9 / 2 +	1 / 2 -
	g	4 -	1 / 2 -	9 / 2 +
100 MeV	5 min	(5.94±0.46) E-3	(5.59±0.44) E-4	(6.95±0.56) E-4
	g	(1.38±0.13) E-2	(1.91±0.17) E-3	(1.54±0.15) E-3
	m	(3.25±0.27) E-3	(2.67±0.22) E-4	(2.31±0.40) E-4
	g	(9.53±0.85) E-3	(1.10±0.09) E-3	(1.46±0.72) E-4
Yield Ratio (Y_m / Y_g)		0.38 ± 0.04	0.26 ± 0.02	1.58 ± 0.83
				0.48 ± 0.03
200 MeV	5 min	(2.28±0.19) E-3	(2.56±0.22) E-4	(3.39±0.84) E-4
	g	(6.35±0.53) E-3	(9.42±0.78) E-4	(8.47±0.84) E-5
	m	(2.67±0.22) E-3	(2.83±0.33) E-4	(1.30±0.11) E-3
	g	(8.20±0.78) E-3	(1.04±0.08) E-3	(3.82±0.40) E-3
Yield Ratio (Y_m / Y_g)		0.34 ± 0.02	0.27 ± 0.02	4.00 ± 1.07
				0.32 ± 0.03
$\frac{2I_m + 1}{2I_g + 1}$	5	17 / 9	5	1 / 5

Note : The yield ratios for ^{87}Y , ^{86}Y and ^{85}Sr are of the weighted means for 5 min and 30 min irradiation.

than the yield of the high spin state and for the products more distant from the target such as ^{85}Y and ^{85}Sr the yield ratios seems to be determined by the statistical weight in the products. No distinct energy dependence is observed, as reported for the ratio of ^{44}Sc from ^{45}Sc , ^{51}V , ^{55}Mn , Fe , ^{59}Co and ^{75}As targets¹³⁾ in contrast to the energy-dependent ratios of ^{132}La and ^{131}Ba from ^{139}La targets¹⁾ and of $^{119,121}\text{Te}$, $^{116,118,120}\text{Sb}$ and $^{110,115}\text{In}$ from ^{127}I target⁴⁾. There seems to be a mass dependency of the energy dependence of the isomeric ratios.

Acknowledgements

The authors wish to thank Drs. M. Yagi, K. Masumoto and the LINAC group members at the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, for their invaluable cooperations throughout these experiments. This work was supported by a Grant-in-Aid for Scientific Research of the Ministry of Education and Culture, Japan. Miss N. Fukushima is acknowledged for manuscript typing and drawings.

References

- 1) K. Sakamoto, H. Toramoto, Y. Hamajima, K. Okada and M. Dohniwa : Res. Rept. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **17** (1984) 81.
- 2) C. M. Lederer and V. S. Shireley : *Table of Isotopes* (J. Willey & Sons, N. Y., 1978) 7th ed.
- 3) G. Erdtmann and W. Soyka : *The Gamma-Rays of the Radionuclides, Topocal Presentations in Nuclear Chemistry*, ed. K. H. Lieser, (Verlag Chemie, Weinheim, N. Y., 1979) Vol. 7 .
- 4) G. G. Jonsson, and B. Persson : Nucl. Phys. **A 153** (1970) 32 ; see also G. G. Jonsson *et al.* : Phys. Lett. **26B** (1968) 508, Nucl. Phys. **A 107** (1968) 52, and *ibid.* **A141** (1970) 355.
- 5) V. di Napoli, F. Salvetti and M. L. Terranova : J. Inorg. Nucl. Chem. **40** (1978) 175 and refs. quoted therein.

- 6) B. Bülow, B. Johnsson, M. Nilsson and B. Forkman : Z. Phys. **A 278** (1976) 89.
- 7) L. Husain and S. Katcoff : Phys. Rev. **C7** (1973) 2452.
- 8) S. Katcoff, H. R. Fickel and A. Wyttenbach : Phys. Rev. **166** (1968) 1147
- 9) G. Rudstam : Nucl. Phys. **A 126** (1969) 401 .
- 10) G. Rudstam : Z. Naturforsch. **21a** (1966) 1027.
- 11) G. G. Jonsson and K. Lindgren : Phys. Scripta **7** (1973) 49, *ibid.* **15** (1977) 308 and refs. therein.
- 12) T. Kato and H. Tsai : J. Inorg. Nucl. Chem. **36** (1974) 1.
- 13) M. Eriksson and G. G. Jonsson : Nucl. Phys. **A 242** (1975) 507.

A Rapid Preparation Method for ^{39}Cl -labelled Alkyl Chlorides

Masuo Yagi, Yoshifumi Murano[†], Gunzo Izawa[†]
and Kazuyoshi Masumoto

*Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Mikamine,
Sendai 982, Japan*

[†]*Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University
Aramaki-Aoba, Sendai 980, Japan*

A rapid preparation method for short-lived, carrier-free and/or non-carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chlorides has been studied. The method involves (1) preparation of carrier-free ^{39}Cl -labelled silver chloride on surface-oxidized silver wool as a chlorinating agent for ^{39}Cl -labelling and (2) preparation of ^{39}Cl -labelled alkyl chlorides by connecting the above source to a radio-gas chromatograph as a precolumn. In order to examine the usefulness of the present method, preparations of 12 carrier-free and/or 7 non-carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chlorides were tried by using the corresponding halo-organics as reactants. Although preparation and purification of the labelled product in each case were sufficiently rapid and simple to allow production of the desired compounds, the carrier-free products for practical use could be prepared only when alkyl iodides were used as reactants.

§ 1. Introduction

The isotope exchange reaction has been extensively used as one of conventional techniques for preparation of organic-compounds labelled with radioactive isotope. In order to prepare non-carrier-free radioactive chloro-organic compounds by the above reaction in homogeneous or heterogeneous system, several metal chlorides labelled with radioactive chlorine, such as $\text{Li}^{36}\text{Cl}^{1)}$, $\text{Al}^{36}\text{Cl}_3^{2,3)}$, $\text{Cu}^{34\text{m}}\text{Cl}_2^{4)}$ and $\text{Sn}^{36}\text{Cl}_4^{5)}$, have been used as useful chlorinating agents.

In the heterogeneous system, however, it has the great advantage in that the

labelled product can be separated more easily from the labelled starting material than that in the homogeneous system. Stöcklin^{6,7)}, Robinson⁸⁻¹⁰⁾ and Kleijin et al.¹¹⁾ have tried to prepare a wide variety of carrier-free ^{18}F -labelled fluoro-organic compounds in dynamic systems by using ^{18}F -labelled resin as a fluorinating agent, and demonstrated that this labelling technique is simple, fast and effective to obtain the above labelled products. In previous paper^{12,13)}, we have also reported that surface-oxidized silver wool effectively collects anhydrous carrier-free H^{18}F produced through the $^{20}\text{Ne}(\text{d}, \alpha)^{18}\text{F}$ reaction in a gas target system of circulatory neon containing small amount of hydrogen, and that the ^{18}F -labelled silver wool prepared as above can be used as a powerful fluorinating agent for syntheses of carrier-free ^{18}F -labelled alkyl fluorides by connecting it to a radio-gas chromatograph.

From the analogy with the above experimental results, in the present study, we have tried to investigate preparation of carrier-free ^{39}Cl -labelled silver chloride on the surface-oxidized silver wool as chlorinating agent, and syntheses of carrier-free and/or non-carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chlorides by connecting the above source to a radio-gas chromatograph as a precolumn.

§ 2. Experimental

2. 1 Reagent

Argon with a stated purity level greater than 99.5% and hydrogen in the highest purity available were obtained from the Takachiho Chemical Co. and used without further purification. The silver wool was purchased from Merck (No. 1506). All organic halides and other chemicals used were of guaranteed-reagent grade.

2. 2 Preparation of carrier-free ^{39}Cl -labelled silver chloride

The carrier-free ^{39}Cl -labelled silver chloride was prepared by using the surface-oxidized silver wool as a trap to collect H^{39}Cl which was produced by the $^{40}\text{Ar}(\gamma, \text{p})^{39}\text{Cl}$ reaction in the gas target system of circulatory argon containing 5% hydrogen¹³⁾.

The target chamber, made of quartz, 5 cm in diameter and 10 cm in length,

was placed horizontally on the center axis of bremsstrahlung, and cooled with running tap water. The column containing surface-oxidized silver wool was then connected to the outlet of chamber, and the system was evacuated to a pressure of 1×10^{-1} Pa in order to make it as free of air and moisture as possible. The silver-wool column was prepared freshly each time according to the same manner as described previously¹³⁾.

After hydrogen gas was first admitted to the system through a vacuum line to the desired pressure, normally 5×10^3 Pa, argon was introduced into the system to the desired pressure, normally 1×10^5 Pa, and then the gases were circulated at flow rate of $500 \text{ ml} \cdot \text{min}^{-1}$ by means of an oil-free diaphragm pump. In order to prevent simultaneous productions of ^{38}Cl and ^{38}S by the $^{40}\text{Ar}(\gamma, \text{pn})$ and the $^{40}\text{Ar}(\gamma, 2\text{p})$ reactions, most irradiations were carried out with 30 MeV bremsstrahlung at an electron beam current of $150 \mu\text{A}$ for an hour by the electron linear accelerator of Tohoku University. After irradiation, the remaining gases in the system were slowly evacuated through the vacuum line to the trap which was cooled by liquid nitrogen, and the silver-wool column was removed from the target system to use it as soon as possible.

2.3 Preparation of carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chloride

After the carrier-free ^{39}Cl -labelled silver-wool column prepared as above was connected immediately to the radio-gas chromatograph inlet, it was heated up to 200°C by using an electric furnace with temperature controller. In the analogy with the cases of ^{18}F -labellings, several alkyl bromides and iodides were used as reactants. When $1 \mu\text{l}$ of the reactant is injected by microliter syringe according to ordinary gas chromatographic procedure, ^{39}Cl -labelling is accomplished rapidly by passing through the gaseous reactant into the heated silver-wool column, and the labelled product is also separated effectively from the remaining reactant by the succeeding gas chromatograph.

Separation of the labelled product from the remaining reactant was carried out by the use of a $1.5 \text{ m} \times 3 \text{ mm}$ stainless steel column packed with 20% tricresyl phosphate on 60-80 mesh Celite 545 operated at $20\text{-}100^\circ\text{C}$, and at a helium carrier

gas-flow rate of $20 \text{ ml}\cdot\text{min}^{-1}$. The mass trace was measured by a thermal conductivity detector, while the radioactivity, i. e., the labelled product, was measured by continuous counting of the effluent from the gas chromatograph using an end-window gas-flow counter¹⁴⁾ under the following conditions. Injector ; 120°C , thermal conductivity detector ; 120°C and radiation detector ; 180°C . The ^{39}Cl -labelled product isolated as above was then collected in a small glass trap cooled by liquid nitrogen at the outlet of radiation detector when the labelled product was being eluted. The ^{39}Cl -labelled product was identified by comparing its retention time with that of the standard compound. The radiochemical yield of labelled product was determined from the ratio between the radioactivity due to the trapped eluate and that due to the ^{39}Cl -chlorinating source by measuring 250 keV gamma-ray of ^{39}Cl with a Ge (Li) detector connected to a multichannel pulse height analyzer.

2. 4 *Preparation of non-carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chloride*

Preparations of the non-carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chlorides were examined similarly by using several alkyl chlorides as reactants. In these cases, the ^{39}Cl -labelling is achieved by passing through the gaseous alkyl chloride into the heated silver-wool column, but the labelled product is eluted together with the remaining reactant by the succeeding gas chromatograph.

§ 3. Results and Discussion

3. 1 *Formation of carrier-free ^{39}Cl -labelled silver chloride*

The carrier-free ^{39}Cl can be produced effectively by using the $^{40}\text{Ar}(\gamma, \text{p})$ reaction which has previously been studied in detail in our laboratory¹⁵⁾. In a similar manner to the on-line processing of ^{18}F , anhydrous carrier-free H^{39}Cl produced by the above photonuclear reaction in a gas target system of circulatory argon containing 5% hydrogen was also collected on the surface-oxidized silver wool.

Distribution of the radioactivity collected on the silver-wool column was measured by using a NaI (Tl) detector equipped with a lead collimator of 5 mm in width. Collection of the carrier-free H^{39}Cl was completed within the first 2 cm on the column. From this, it was found that an increase of the column length has

practically no effect. On the other hand, the maximum recovery by the freshly prepared silver-wool column at the end of irradiation was found to be about 400 μCi (recovery yield : about 30%). This low recovery yield would be attributed to adsorption of the carrier-free H^{39}Cl on the walls of the target chamber¹⁵⁾.

The radionuclidic purity of ^{39}Cl -labelled silver wool obtained as above was ascertained by measuring the gamma-ray spectrum and by observing its decay. As a result, several photopeaks corresponding to ^{38}Cl and ^{39}Cl were found, and the contamination due to the former was estimated to be about 6% of the ^{39}Cl radioactivity at the end of irradiation.

3. 2 Dependence of ^{39}Cl -labelled product yield on the reaction temperature

Dependence of the ^{39}Cl -labelled product yield on the reaction temperature in the range of 120 to 220°C was studied

by using ethyl bromide as a reactant. The carrier-free ^{39}Cl -labelled ethyl chloride was well-eluted before the remaining reactant by the aid of the succeeding gas chromatograph. The relative yields of ^{39}Cl -labelled ethyl chloride are shown in Fig.1 as a function of the reaction temperature. As can be seen in the figure, the relative product yields showed a tendency to increase steeply with an increase in the reaction temperature.

On the other hand, the contact time of gaseous reactant with the ^{39}Cl -labelled

silver wool was estimated to be less than 0.4 sec on the basis of the gas flow rate due to the reactant and helium carrier gases.

3. 3 Preparation of carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chloride

The isotope exchanges of ^{39}Cl with alkyl halides were examined by the use of

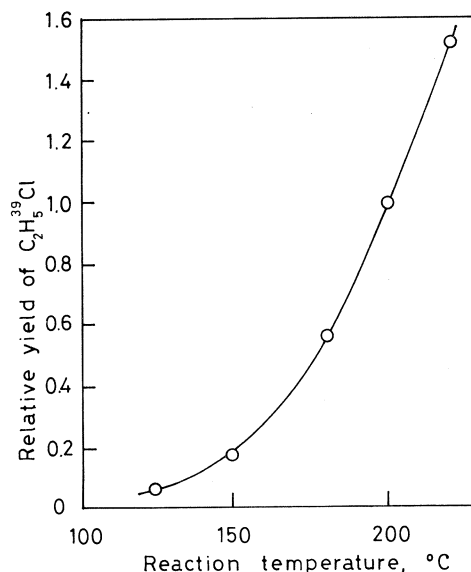


Fig. 1. Dependence of the ^{39}Cl -labelled ethyl chloride yield on the reaction temperature.

n-propyl chloride, bromide and iodide as reactants at a reaction temperature of 200°C. The results are shown in Table 1. The yields of ^{39}Cl -labelled n-propyl chloride

Table 1. Radiochemical yields of ^{39}Cl -labelled $\text{n-C}_3\text{H}_7\text{Cl}$ prepared from the corresponding $\text{n-C}_3\text{H}_7\text{X}$ (X=Cl, Br and I).

Reactant	Product	Pyrolysis (%)	Radiochemical yield (%)
$\text{n-C}_3\text{H}_7\text{Cl}$	$\text{n-C}_3\text{H}_7^{39}\text{Cl}$	0	0.03
$\text{n-C}_3\text{H}_7\text{Br}$	$\text{n-C}_3\text{H}_7^{39}\text{Cl}$	2	0.5
$\text{n-C}_3\text{H}_7\text{I}$	$\text{n-C}_3\text{H}_7^{39}\text{Cl}$	5	4.4

increased markedly in the order $\text{Cl} < \text{Br} < \text{I}$. In the cases of n-propyl bromide and iodide, the halogen exchanges are essentially irreversible because of the stability of C-Cl bond. Hence, the above order would be attributed to the rate of dehalogenation of the alkyl halides. In the case of n-propyl chloride, however, the ^{39}Cl -labelling proceeds fundamentally by the thermal isotope exchange reaction. From the above results, it is apparent that iodides are more favorable reactant than bromides for preparations of the carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chlorides.

In order to study further the usefulness of ^{39}Cl -labelled silver wool as a chlorinating agent, preparations of several carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chlorides were examined by using the corresponding bromo- and iodo-compounds. To avoid productions of the non-radioactive by-products due to pyrolysis in the reaction column, all examinations were carried out at a reaction temperature of 200°C. The results are summarized in Table 2. These radio-gas chromatograms showed that all eluted radioactivity peaks were given in the desired chloro-compounds. In some cases, however, the non-radioactive by-products due to thermal decomposition were also observed, but we have not determined the identities of these products. As a

Table 2. Radiochemical yields of carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chlorides prepared from the corresponding bromo- and iodo-compounds.

Reactant	Product	Pyrolysis (%)	Radiochemical yield (%)
CH_3I	$\text{CH}_3^{39}\text{Cl}$	0	5.9
$\text{C}_2\text{H}_5\text{Br}$	$\text{C}_2\text{H}_5^{39}\text{Cl}$	0	0.5
$\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$	$\text{C}_2\text{H}_5^{39}\text{Cl}$	2	4.3
$i\text{-C}_3\text{H}_7\text{Br}$	$i\text{-C}_3\text{H}_7^{39}\text{Cl}$	20	1.8
$i\text{-C}_3\text{H}_7\text{I}$	$i\text{-C}_3\text{H}_7^{39}\text{Cl}$	83	13.3
$n\text{-C}_4\text{H}_9\text{Br}$	$n\text{-C}_4\text{H}_9^{39}\text{Cl}$	5	0.5
$n\text{-C}_4\text{H}_9\text{I}$	$n\text{-C}_4\text{H}_9^{39}\text{Cl}$	16	4.5
$i\text{-C}_4\text{H}_9\text{Br}$	$i\text{-C}_4\text{H}_9^{39}\text{Cl}$	41	0.5
$s\text{-C}_4\text{H}_9\text{Br}$	$s\text{-C}_4\text{H}_9^{39}\text{Cl}$	96	1.3
$t\text{-C}_4\text{H}_9\text{Br}$	$t\text{-C}_4\text{H}_9^{39}\text{Cl}$	98	0.1
$\text{CH}_2\text{CHCH}_2\text{Br}$	$\text{CH}_2\text{CHCH}_2^{39}\text{Cl}_2$	15	4.3
CH_2Br_2	$\text{CH}_2\text{Br}^{39}\text{Cl} > \text{CH}_2^{39}\text{Cl}_2$	0	0.1
$1,1\text{-C}_2\text{H}_4\text{Br}_2$	$1,1\text{-C}_2\text{H}_4\text{Br}^{39}\text{Cl} > 1,1\text{-C}_2\text{H}_4^{39}\text{Cl}_2$	1	0.5
$1,2\text{-C}_2\text{H}_4\text{Br}_2$	$1,2\text{-C}_2\text{H}_4\text{Br}^{39}\text{Cl}$	0	0.2

matter of course, the yields of ^{39}Cl -labelled products were resulted in higher values with iodide compounds than with bromides.

3. 4 Double replacements by no-carrier-added ^{39}Cl

When dibromide compounds were used as reactants, the characteristic results were also obtained in the analogy with those obtained in the ^{18}F -labellings. In the case of 1,2-dibromoethane, only one radioactivity peak, which was assigned as ^{39}Cl -1,2-bromochloroethane (e. g., $\text{CH}_2\text{BrCH}_2^{39}\text{Cl}$), was found, whereas in the case of 1,1-dibromoethane, two radioactivity peaks, which were identified as

^{39}Cl -1,1-bromochloroethane ($\text{CH}_2\text{CHBr}^{39}\text{Cl}$) and ^{39}Cl -1,1-dichloroethane ($\text{CH}_3\text{CH}^{39}\text{Cl}_2$), were observed. A similar event was also found in the case of dibromomethane, in which ^{39}Cl -bromochloromethane ($\text{CH}_2\text{Br}^{39}\text{Cl}$) and ^{39}Cl -dichloromethane ($\text{CH}_2^{39}\text{Cl}_2$) were identified. Although the reproducibility of product yields in the latter two cases was invariably poor, productions of the dichloride compounds were always given in lower yields than those of monochlorides.

These findings suggest that bromine atoms bonded to the same carbon such as dibromomethane and 1,1-dibromoethane were replaced simultaneously by two ^{39}Cl atoms even in the carrier-free state, while bromine atoms bonded to different carbon such as 1,2-dibromoethane were hard to replace with two ^{39}Cl atoms. Although the individual product yields are very low, the above double replacements using silver chloride as a chlorinating agent are of very interest, but it is difficult to explain these reaction mechanisms.

3. 5 *Preparation of non-carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chloride*

Dependence of the ^{39}Cl -labelled product yield on the reaction temperature by the thermal isotope exchange reaction was studied using n-butyl chloride as a reactant in the range of 50 to 300°C. The labellings attempted at less than 100°C were unsuccessful even when the flow rate of helium carrier gas was decreased to less than 10 ml·min⁻¹. At more than 250°C, however, the labellings were found to be effective although the non-radioactive by-products due to thermal decomposition in the reaction column were observed in substantial quantities. As preliminary experiments, therefore, all labellings by the present method were carried out at a reaction temperature of 200°C. The radiochemical yields obtained are shown in Table 3. In these radio-gas chromatograms, it was demonstrated that the retention time of each radioactivity peak agreed with that of the mass peak due to the used reactant. Although the labellings gave the reproducible results, the radiochemical yields were only a few percent even in the most effective case. In order to obtain higher radiochemical yields than those resulted in the above preliminary experiments, it is required to increase the reaction temperature and contact time of the reactant, although the former will lead further the thermal decomposition of

the reactant.

Table 3. Radiochemical yields of non-carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chlorides by the thermal isotope exchange reaction.

Reactant	Product	Pyrolysis (%)	Radiochemical yield (%)
$i\text{-C}_3\text{H}_7\text{Cl}$	$i\text{-C}_3\text{H}_7^{39}\text{Cl}$	0	0.9
$n\text{-C}_4\text{H}_9\text{Cl}$	$n\text{-C}_4\text{H}_9^{39}\text{Cl}$	1	0.2
$i\text{-C}_4\text{H}_9\text{Cl}$	$i\text{-C}_4\text{H}_9^{39}\text{Cl}$	2	0.1
$s\text{-C}_4\text{H}_9\text{Cl}$	$s\text{-C}_4\text{H}_9^{39}\text{Cl}$	6	1.3
$t\text{-C}_4\text{H}_9\text{Cl}$	$t\text{-C}_4\text{H}_9^{39}\text{Cl}$	1	0.1
$\text{CH}_2\text{CHCH}_2\text{Cl}$	$\text{CH}_2\text{CHCH}_2^{39}\text{Cl}$	1	3.1

3.6 Efficacy of the present method

The efficacy of the present labelling method lies in the fact that the carrier-free and/or non-carrier-free ^{39}Cl -labelled alkyl chlorides can be prepared by a mild and fast way combining preparation and purification processes. Unfortunately, however, application of the present method is limited to volatile compounds.

Preparations of the ^{39}Cl -labelled products shown in Tables 2 and 3 were completed within 30-45 min after the end of irradiation. In previous papers^{12,13}, we have pointed out that the reaction column can be used repeatedly after both the labelled product and remaining reactant were eluted out. Throughout a series of the present experiments, several successive injections could be carried out successfully. In the labellings by nucleophilic substitution reactions as stated before, the radiochemical yields of carrier-free ^{39}Cl -labelled products decreased little by little, whereas in those by the thermal isotope exchange reactions,

such successive injections led to the decrease in the specific activity of the labelled product. These results are probably due to an exhaustion of the ^{39}Cl -labelled silver chloride formed on the surface of the silver wool. On the other hand, when increasing amounts of the reactant (5-10 μl) were injected in preparations of the carrier-free ^{39}Cl -labelled products, only a slight increase in the radiochemical yields of product was observed. This may be attributed to the violent variation in the gas-flow rate due to the reactant and helium carrier gases when the reactant was injected, and/or to the diffusion process of ^{39}Cl on the surface of silver wool because the diffusion of radiohalogen in the solid is the rate determining step¹⁶⁾. The used silver wool could also be reformed and re-used in the same manner as that handled in the ^{18}F -labellings¹³⁾.

References

- 1) P. B. D. Mare and C. A. Vernon : J. Chem. Soc. **1954**, 2504.
- 2) C. H. Wallace and J. E. Willard : J. Am. Chem. Soc. **72** (1950) 5275.
- 3) M. Blair and J. E. Willard : J. Am. Chem. Soc. **73** (1951) 442.
- 4) R. M. Lambrecht and A. P. Wolf : *Proc. Symp. New Devel. Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds* (IAEA, Vienna, 1973) Vol. 1, p. 275.
- 5) R. A. Howald and J. E. Willard : J. Am. Chem. Soc. **77** (1955) 2048.
- 6) G. Stöcklin : *Proc. Symp. Preparation and Biomedical Application of Labelled Molecules, Venice* (EURATOM Brussels, 1964) p. 481.
- 7) H. M. A. Karim and G. Stöcklin : J. Labelled Compounds and Radiopharmaceuticals **13** (1977) 519.
- 8) G. D. Robinson Jr. : *Proc. Symp. New Devel. Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds* (IAEA, Vienna, 1973) Vol. 1, p. 423.
- 9) G. D. Robinson Jr. : J. Nucl. Med. **14** (1973) 446.
- 10) G. D. Robinson Jr. : J. Nucl. Med. **16** (1975) 561.
- 11) J. P. De Kleijin, J. W. Seetz, J. F. Zawierko and B. Van Zanten : Int. J. Appl. Radiat. Isotopes **28** (1977) 591.

- 12) M. Yagi, G. Izawa and Y. Murano : Radiochem. Radioanal. Lett. **49** (1981) 173.
- 13) M. Yagi, Y. Murano and G. Izawa : Int. J. Appl. Radiat. Isotopes **33** (1982) 1335.
- 14) K. Kondo and M. Yagi : J. Radioanal. Chem. **56** (1980) 7.
- 15) M. Yagi, K. Kondo and A. Yamadera : Int. J. Appl. Radiat. Isotopes **30** (1979) 123.
- 16) H. Elias : *Advances in Chromatography* (Marcel Dekker, Inc., New York, 1968) Vol. 7.

反跳インプラネーション による錯体生成機構の研究

—錯体混合系と混合配位子単一錯体系—

理学部化学

佐野正明・関根 勉・吉原賢二

§ 1. 緒 言

核反応で生ずる高エネルギー反跳原子を捕集体中にインプラネーション化合物を合成する方法は、通常の化学的合成法によっては合成困難な化合物を比較的容易に合成できるため、いくつかの適用例を生んだ。¹⁻⁴⁾ その合成機構についての研究例としては、 $^{235}\text{U}(n, f)$ で生ずる ^{99}Mo を $\text{Cr}(\text{CO})_6$ 中に打ちこみ生成する $^{99}\text{Mo}(\text{CO})_6$ の量を昇華法により調べたものがあるが⁵⁾ はっきりした結論は得られていない。最近、Rösslerら⁶⁾による K_2MCl_6 型の化合物を用いた研究では、格子間原子として存在する反跳原子が周囲の配位子を取り込む反応が重要な要因となることが示唆されている。しかしながら、配位子の結合方向が問題となる β -ジケトン錯体を用いた場合では、中心金属置換反応の方が優勢であるという結果が得られた。^{7,8)}

そこで今回は、その機構をさらに詳しく調べるために、鉄のアセチルアセトン錯体およびジベンゾイルメタン錯体の混合系に ^{51}Cr をインプラネーションした場合、また、その2種の配位子を分子内に同時に持つクロムの混合配位子錯体について実験を行った。

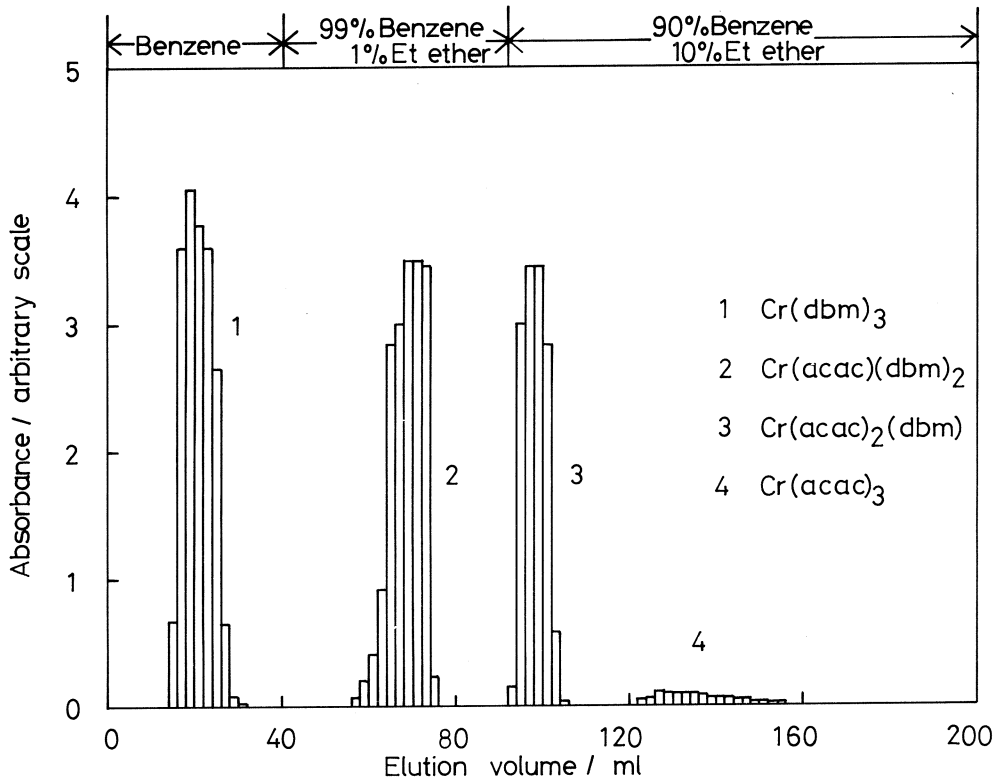
§ 2. 実 験

2.1 試 料

試料は鉄のアセチルアセトン(acac)錯体およびジベンゾイルメタン(dbm)錯体の混合系に平均粒径2ミクロンのクロム金属粉末を混ぜたペレットを用いた。またクロムを中心金属とした混合配位子錯体である $\text{Cr}(\text{acac})(\text{dbm})_2$ および $\text{Cr}(\text{acac})_2(\text{dbm})$ を用いた。

鉄錯体の混合系は、それぞれの錯体を少量のベンゼンに溶解し液体窒素温度下で冷却を行ったガラス壁面に滴下し凍結させたものをそのままの状態で減圧下においてベンゼンを除去して作成した。

$\text{Cr}(\text{acac})(\text{dbm})_2$ および $\text{Cr}(\text{acac})_2(\text{dbm})$ は、 $\text{Cr}(\text{acac})_3$ と同モル程度の $\text{H}\cdot\text{dbm}$ をエタノールに溶かし加熱することによって合成した。合成した錯体はシリカゲルカラムクロ



第1図 Elution curve for $\text{Cr}(\text{acac})_x(\text{dbm})_{3-x}$ ($X=0-3$).

マトグラフィによって分離・精製を行った。第1図に $\text{Cr}(\text{dbm})_3$, $\text{Cr}(\text{acac})(\text{dbm})_2$, $\text{Cr}(\text{acac})_2(\text{dbm})$, $\text{Cr}(\text{acac})_3$ の標準的な溶離曲線を示す。単離した錯体は、マススペクトロメトリー、および元素分析によって同定した。

2.2 照射

照射は東北大学原子核理学研究施設の 300 MeV 電子ライナックにより行った。これにより得られる最大エネルギー 50 MeV の制動放射線を約 7 時間、133~143 K での低温度において照射⁸⁾、また転換されていない電子は掃引磁場により除去した。

核反応は $^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$ ($T_{1/2} = 27.7 \text{ d}$) により反跳 ^{51}Cr 原子を作った。

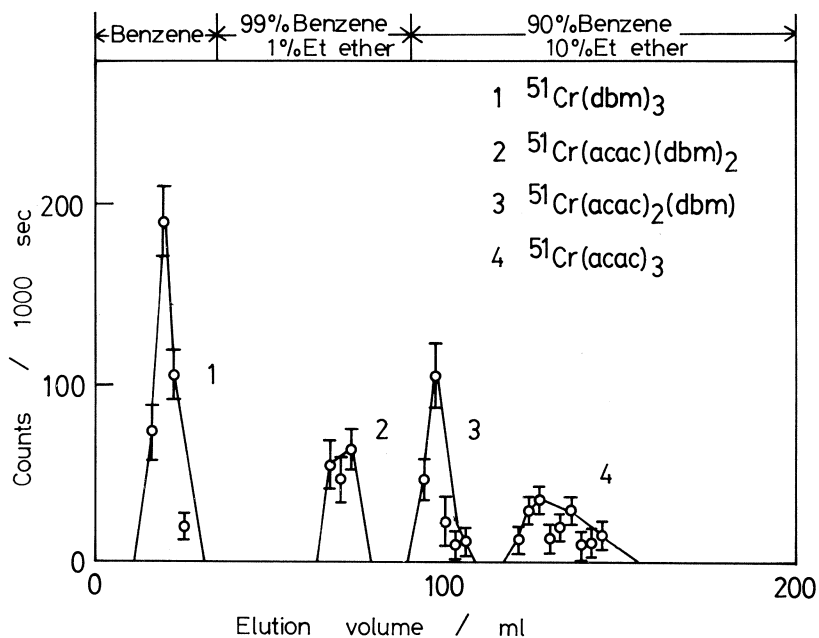
2.3 化学操作・測定

照射した試料は少量のベンゼンに溶解後、未反応の金属粉末を汙別し、シリカゲルカラム (11 mm ϕ \times 150 mm high) によりベンゼン・エチルエーテルの混合溶媒を用いて溶離を行った。この際フラクションコレクターを用いて一定量ずつ分取したものを、各フラクション毎に $\text{Ge}(\text{Li})\gamma$ 線スペクトロメーターを用いて放射能測定を行った。

§ 3. 結果・考察

照射した試料をシリカゲルカラムにより分離した際の溶離曲線の一例を第2図に示す。

acac, dbmの2種の鉄錯体の混合系(以下混合系試料と略称する)にクロム金属を混ぜ

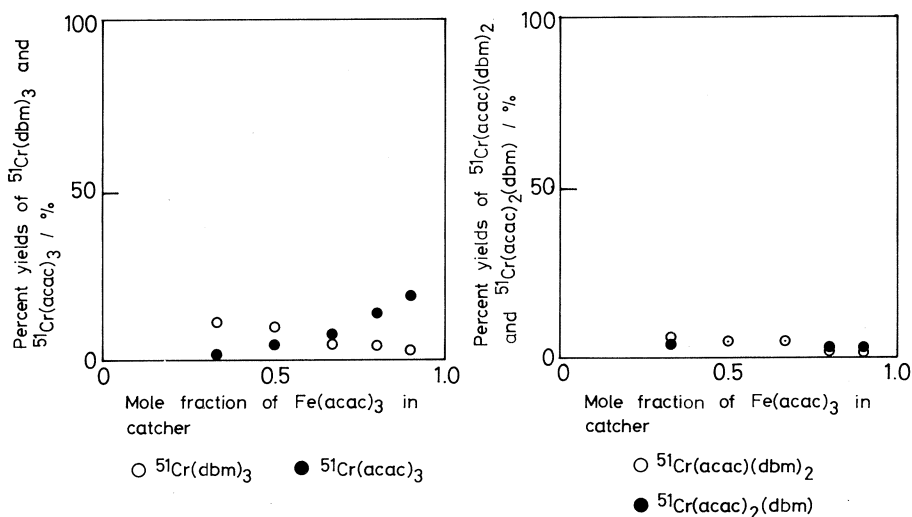


第2図 Elution curve for the γ -irradiated mixture of Cr and $\text{Fe}(\text{acac})_3$ - $\text{Fe}(\text{dbm})_3$.

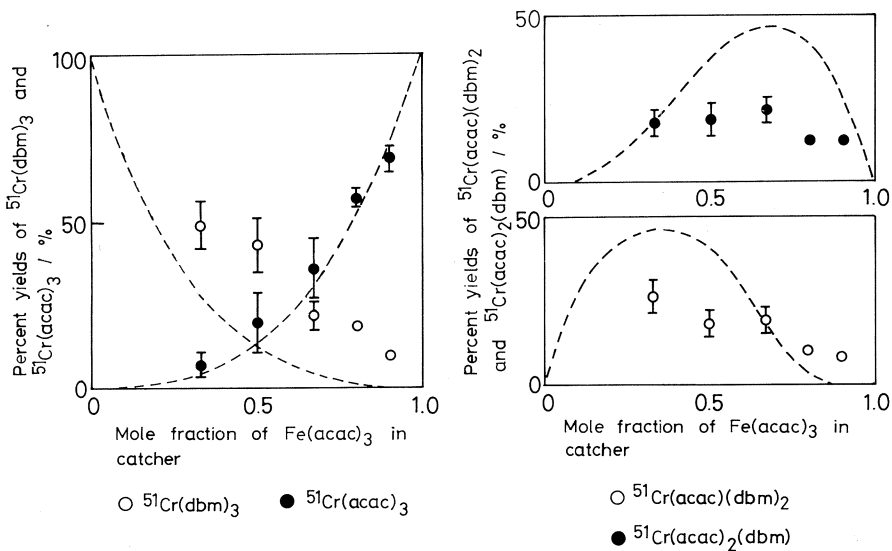
レットとした試料の場合には両端の1, 4のピークは中心金属置換生成錯体であり, 中央部の2, 3のピークは互いに配位子を1つずつ交換した形の混合配位子錯体である。混合配位子錯体の場合にも溶離位置はほとんど同様である。

3.1 混合系試料

混合系中の $\text{Fe}(\text{acac})_3$ のモル分率を変えた場合に全反跳生成物に対する中心金属置換生成錯体および混合配位子錯体の収率との関係を第3図に示す。この結果より中心金属置換生成錯体の生成に関しては混合系の成分比によりかなりの変化を示すことが認められるが, 混合配位子錯体の生成に関しては混合系の成分比による変化をさほど受けないように見える。また全反跳生成物のうち溶離成分だけ, すなわち $^{51}\text{CrL}_3$ (L: 親配位子の成分) の型の生成物について考える。この場合混合系中の $\text{Fe}(\text{acac})_3$ のモル分率と中心金属置換生成錯体および混合配位子錯体の収率との関係は第4図に示すようになる。この図に示されている破線は配位子がランダムに存在する系より任意に3つを選び出すことにより溶離成分が生成するとした場合に示



第3図 Percent yields of products vs. mole fraction of catcher complex. (Total radioactivity in the catcher is normalized to 100%).



第4図 Percent yields of products vs. mole fraction of catcher complex. (Total radioactivity in the eluate is normalized to 100%). Dotted line shows statistical distribution of the products.

すであろうと思われる統計的分布の計算値(以下統計的分布と呼ぶことにする)を示したものである。

中心金属置換生成錯体のうち見かけ上 $^{51}\text{Cr}(\text{acac})_3$ の生成に関してはこれにかなり近い値

を示しているが、 $^{51}\text{Cr}(\text{dbm})_3$ の生成に関しては $^{51}\text{Cr}(\text{acac})_3$ よりも生成量が多くなりのズレが認められる。さらに混合配位子錯体に関してはその生成がいずれも統計的分布を考えた場合とはかなり異ってきていることがわかる。

3.2 混合配位子錯体

第1表は混合配位子錯体を試料として照射した場合についての結果である。 $\text{Fe}(\text{acac})_3 - \text{Fe}(\text{dbm})_3$ のような混合系を扱う場合その混ざり方が問題になりうるが、混合配位子錯体の場合には分子内にacacとdbmが決まった割合で存在するため、混合状態の良否は全く問題にならないという利点がある。結果をみるといずれの場合も全反跳生成物については大部分がカラムに吸着されているが、溶離成分としては親錯体が大部分である。ここで溶離成分については先程と同様に統計的分布からのズレがかなり認められる。

第1表 Percent yields of the products in γ -irradiated $\text{Cr}(\text{acac})_x(\text{dbm})_{3-x}$ ($X=1, 2$).

target	products	percent yield/%		
		exp:*	exp:**	calc:***
	$^{51}\text{Cr}(\text{dbm})_3$	0.05 ± 0.03	0.70 ± 0.46	2.63
	$^{51}\text{Cr}(\text{acac})(\text{dbm})_2$	0.17 ± 0.11	2.48 ± 1.72	22.11
$\text{Cr}(\text{acac})_2(\text{dbm})$	$^{51}\text{Cr}(\text{acac})_2(\text{dbm})$	6.11 ± 0.65	91.78 ± 13.26	47.89
	$^{51}\text{Cr}(\text{acac})_3$	0.34 ± 0.15	5.05 ± 2.36	27.37
	Column	93.34 ± 1.74		
	$^{51}\text{Cr}(\text{dbm})_3$	0.39 ± 0.17	9.89 ± 4.70	27.37
	$^{51}\text{Cr}(\text{acac})(\text{dbm})_2$	2.18 ± 0.62	54.59 ± 18.95	47.89
$\text{Cr}(\text{acac})(\text{dbm})_2$	$^{51}\text{Cr}(\text{acac})_2(\text{dbm})$	0.79 ± 0.32	19.70 ± 8.91	22.11
	$^{51}\text{Cr}(\text{acac})_3$	0.63 ± 0.34	15.82 ± 9.06	2.63
	Column	96.01 ± 3.10		

* Total radioactivity in the sample is normalized to 100%.

** Total radioactivity in the eluate is normalized to 100%.

*** Statistical distribution.

ところで、これまで同様な研究をMüllerら⁹⁾がレニウム等を中心金属としたヘキサハロ錯体での(r, n)反応において行っているが、その生成物の分布に関しては統計的分布を示すことが知られている。しかし、本研究で配位子として用いた β -ジケトン類は、ハロゲン原子などとは異なり配位子としての結合に方向性が存在するために単純な統計的分布を示すモデルでは説明出来ない。

最後に本研究にあたり、御助力を賜った東北大学原子核理学研究施設の八木益男助教授、榎本和義助手ならびにマシングループの皆様に厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) K. Yoshihara *et al.*: *Radiochim. Acta* **29** (1981) 131.
- 2) T. Sekine and K. Yoshihara: *ibid.* **29** (1981) 139.
- 3) K. Yoshihara *et al.*: *ibid.* **30** (1982) 25.
- 4) K. Yoshihara: *J. Labelled Compds. Radiopharmaceuticals* **18** (1981) 130.
- 5) U. Zahn: *Chemical Effects of Nuclear Transformations in Inorganic Systems*, ed. G. Harbottle and A. G. Maddock (North-Holland, 1979) p. 355.
- 6) K. Rössler and L. Pross: *Radiation Effects* **48** (1980) 207.
- 7) T. Sekine and K. Yoshihara: *Radiochem. Radioanal. Lett.* **52** (1982) 311.
- 8) 関根 勉, 吉原賢二, 八木益男, 榎本和義: *核理研研究報告* **15** (1982) 219.
- 9) H. Müller: *J. Inorg. Nucl. Chem.* **31** (1969) 1579.

(銅, 亜鉛) フタロシアニン混晶系における中心金属の反跳挙動に対する外部雰囲気の影響

筑波大学化学系

荘司 準・沖 雄一・池田長生

The correlation of retention to the mole fraction was investigated in bremsstrahlung-irradiated copper and zinc phthalocyanine (CuPc and ZnPc) mixed crystals at -78°C and at around -130°C in the presence and in the absence of air. The retention-mole fraction diagrams for copper and zinc nuclides showed the linear relationship. At dry ice temperature, the slopes of the lines for ^{64}Cu and ^{67}Cu in vacuo showed the tendencies approaching to zero. In the more cooling cases, little influence of degasing was observed for copper nuclides, while the retention curves of zinc nuclides showed rather complicated features. Copper nuclides were, in general, less sensitive to atmospheric conditions than zinc nuclides. Major portions of the retention in the present systems were proved to be due to the processes insensitive to the external atmosphere.

§ 1. 序

熱中性子照射した金属フタロシアニン錯体^{1-3,8)}や、他の有機金属錯体⁴⁻⁷⁾中での反跳金属原子の熱アニーリング挙動に対し、外部雰囲気の影響のあることが見出され、これら“酸素効果”と呼ばれるものを説明するために、いくつかの反応機構のモデルも提出されている^{4,6,8)}。金属錯体の初期リテンション値に関して、実験的に外部雰囲気の影響が求められた報告例はないが、(コバルト, 銅)フタロシアニン混晶系における、各中心金属の初期リテンション値とモル分率の関係において見られる一定の差異⁹⁾を説明するのに、これら外部雰囲気に対する相関の差が適用できるのではないかと指摘されている¹⁰⁾。本研究者は、この点に関してはなお多くの実験的証明が必要であるとの観点に立ち、その一環として今回は制動放射線照射された(銅, 亜鉛)フタロシアニン混晶での、各生成核種のリテンション値とモル分率の関係に対する大気の有無の影響を実験的に追ってみた。

§ 2. 実 験

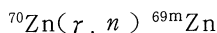
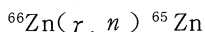
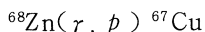
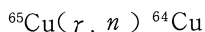
2.1 試料の調整

α 形混晶試料は既報¹¹⁾の方法により調製した。試料各 100 mg を真空ラインに接続した石英試料管中にとり、 10^{-5} Torr オーダーまで脱気した後、高純度水素を約 0.2 気圧になるように系内に導入した。次にこの水素を脱気し、もとの真空度に戻した。このようなサイクルを各試料につき最低 3 回繰り返した後、 10^{-5} Torr オーダーの真空度を保ったまま試料管を封じ、照射に供した。

2.2 照 射

試料を東北大学原子核理学研究施設の電子リニアックで、白金コンバーターによる最大エネルギー 50 MeV の制動放射線により、6～7 時間照射した。照射中試料はドライアイスおよび冷却窒素ガスによりそれぞれ -78°C および -130°C 以下に保たれた。

なお着目した光核反応は下記のものである。



2.3 化学分離および放射能測定

照射した試料は 2 次的効果をできる限り抑えるため、化学分離時までドライアイス中に保存された。各試料を Cu^{2+} および Zn^{2+} 担体 (各 1 mmol) を含む冷濃硫酸に迅速に溶解した後、溶液を碎氷上に注ぎ、析出したフタロシアニン錯体を汙取し、洗滌・乾燥させた。一方汙液と洗液を合したものは濃縮後一定容とし、ここからその一部を対応する沈殿部分の測定試料と体積が等しくなるように正確にとった。

放射能測定は Ge(Li) 半導体検出器と波高分析器を用いて行い、 γ 線スペクトル上で 1346, 185, 1116, 439 keV のピーク面積から、 ${}^{64}\text{Cu}$, ${}^{67}\text{Cu}$, ${}^{65}\text{Zn}$, ${}^{69\text{m}}\text{Zn}$ を減衰を考慮しつつそれぞれ定量した。

§ 3. 結果と考察

ドライアイス温度での初期リテンションとモル分率の関係を、大気圧下と減圧状態について、銅および亜鉛の各核種に関してそれぞれ第 1 図と第 2 図に示す。また -130°C 以下に冷却した場合について同様に第 3 図および第 4 図に示す。いずれの場合もリテンション—モル分率の

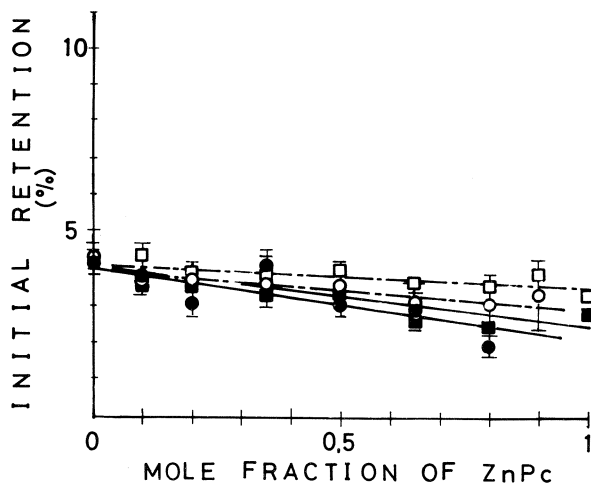
ダイヤグラムは直線関係を示した。図中の各直線はデータに対し最小自乗法を適用して求められたものである。ドライアイス温度では第1図に示すように、

^{64}Cu と ^{67}Cu についての減圧下でのリテンション値は大気圧下の対応する値に比較して、亜鉛フタロシアニン(ZnPc)のモル分率が増えるに従って高くなり、結果として減圧下の方が水平に近い直線となった。またさらに冷却した場合には(第3図)、

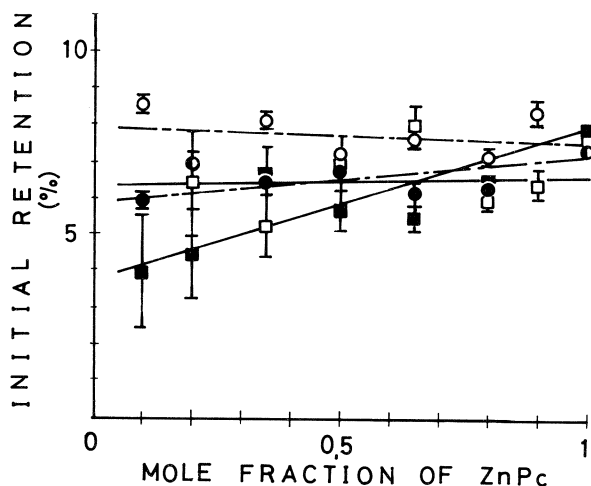
^{64}Cu 、 ^{67}Cu とも脱気による影響をほとんど示さなかった。一方亜鉛核種についての様相はかなり複雑で、まずドライアイス温度の場合(第2図)、 $^{69\text{m}}\text{Zn}$ は減圧にすると勾配が減少したが、 ^{65}Zn では減圧下で直線は大気圧の場合に比べわずかに勾配が減少しつつ上方に移動した。

-130°C 近辺では(第4図)、 $^{69\text{m}}\text{Zn}$ についての直線が減圧下で上方に平行移動し、一方 ^{65}Zn はほんのわずかに減圧下の方が直線の勾

配が小さくなっただけであった。一般的に言って、銅核種は外部雰囲気の影響を亜鉛核種は受けないと言える。これは CuPc と ZnPc の空気(即ち酸素と思われるが)に対する化学的性質の差によるものであろう。ドライアイス温度では、 -130°C 近辺よりもリテンション値は外部雰囲気に大きく左右される成分をより多く含み、特にこれは亜鉛核種について著しい。現在



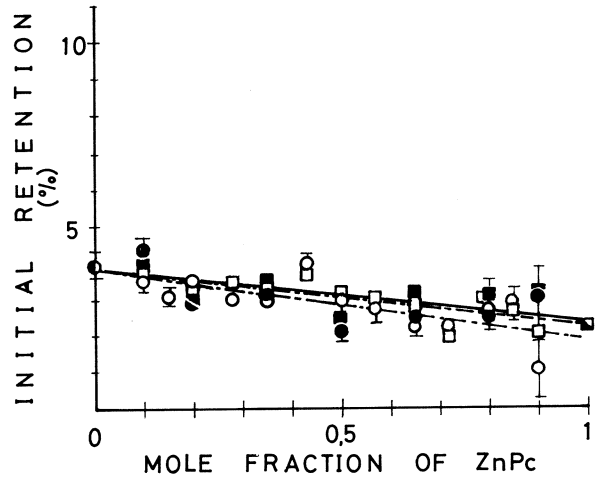
第1図 Initial Retentions for Copper Nuclides in Mixed Crystals of α -(Cu, Zn)Pc at -78°C .
 ● ^{64}Cu (Air), ○ ^{64}Cu (Vacuum),
 ■ ^{67}Cu (Air), □ ^{67}Cu (Vacuum).



第2図 Initial Retentions for Zinc Nuclides in Mixed Crystals of α -(Cu, Zn)Pc at -78°C .
 ● ^{65}Zn (Air), ○ ^{65}Zn (Vacuum),
 ■ $^{69\text{m}}\text{Zn}$ (Air), □ $^{69\text{m}}\text{Zn}$ (Vacuum).

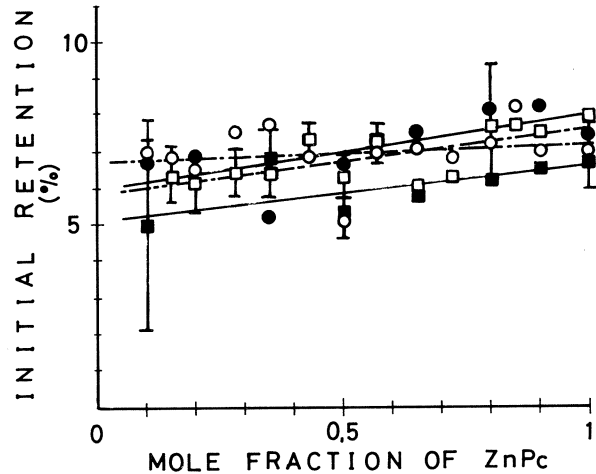
までのデータを概観してみると、リテンションとなる大部分の成分は外部雰囲気の影響を受けない過程に関係していると言える。この部分をさらに明確にしてゆくのが今後の課題と思われる。

本研究にあたり御援助を賜った東北大学理学部、八木益男助教授、榎本和義博士、吉原賢二教授、関根勉博士、ならびに核理研マシングループの方々に厚く感謝の意を表す。



第3図 Initial Retentions for Copper Nuclides in Mixed Crystals of α -(Cu, Zn)Pc at around -130°C .

—●— $^{64}\text{Cu}(\text{Air})$, —○— $^{64}\text{Cu}(\text{Vacuum})$,
—■— $^{67}\text{Cu}(\text{Air})$, —□— $^{67}\text{Cu}(\text{Vacuum})$.



第4図 Initial Retentions for Zinc Nuclides in Mixed Crystals of α -(Cu, Zn)Pc at around -130°C .

—●— $^{65}\text{Zn}(\text{Air})$, —○— $^{65}\text{Zn}(\text{Vacuum})$,
—■— $^{69\text{m}}\text{Zn}(\text{Air})$, —□— $^{69\text{m}}\text{Zn}(\text{Vacuum})$.

参 考 文 献

- 1) J. Shanker, A. Nath and M. H. Rao : Radiochim. Acta **3** (1964) 26.
- 2) E. Merz : Nukleonik **8** (1966) 248.
- 3) M. Pertessis and R. Henry : Radiochim. Acta **1** (1963) 58.
- 4) A. Nath, K. A. Rao and V. G. Thomas : Indian J. Chem. **2** (1964) 331.
- 5) R. I. Liu, A. S. Lefohn and C. S. Garner : J. Inorg. Nucl. Chem. **29** (1967) 1553.
- 6) J. Shanker, A. Nath and V. G. Thomas : J. Inorg. Nucl. Chem. **30** (1968) 1361.
- 7) K. A. Rao : Radiochim. Acta **12** (1969) 11.
- 8) M. D. Scanlon and K. E. Collins : Radiochim. Acta **15** (1971) 141.
- 9) O. Kujirai and N. Ikeda : Radiochem. Radioanal. Lett. **15** (1973) 67.
- 10) 鯨井 脩 : 博士論文, 東京教育大学 (1975).
- 11) H. Shoji, Y. Oki and N. Ikeda : Radiochem. Radioanal. Lett. **58** (1983) 347.

銅(II) - β - ジケトンキレートの 液 - 液分配係数の評価

理学部化学

井村久則・鈴木信男

Partition coefficients of $\text{Cu}(\text{tfa})_2$ and $\text{Cu}(\text{tta})_2$ were determined at 25°C in eleven organic solvents-0.10 M perchlorate systems. Their values were compared with those of the enols of respective β -diketones and evaluated by a modified equation based on the regular solution theory and by the scaled particle theory. In the liquid-liquid partition of the copper(II) chelates, their molecular size as well as specific solute-solvent interactions such as the direct coordination to the central metal were demonstrated to be of importance.

§ 1. 緒 言

溶媒抽出法は優れた分離法であり、放射性同位体の無担体分離における超微量の処理から、金属の精練や回収における多量の処理まで広範な応用が行われている。金属イオンの抽出性は抽出定数 (K_{ex}) によって表わすことができ、キレート系においては $K_{\text{ex}} = \beta_n K_{\text{D,M}} K_a^n K_{\text{D,R}}^{-n}$ と書き表わすことができる。ここで β_n は金属キレートの全生成定数、 $K_{\text{D,M}}$ はその有機相、水相間の分配係数であり、 K_a はキレート試薬の酸解離定数、 $K_{\text{D,R}}$ はその分配係数である。また n は β -ジケトン類では金属イオンの電荷に相当する。これらの諸定数のうち、 β_n と K_a は無機および分析化学の分野において様々な方法を用いて研究されている。一方、 $K_{\text{D,M}}$ と $K_{\text{D,R}}$ に関する系統的な研究は非常に少なく¹⁾、特に $K_{\text{D,M}}$ については信頼できる値も僅かである。

本研究では、中心金属として銅(II)をとりあげ、キレート試薬としては、先に報告したアセチルアセトン (Hacac)²⁾ の他に酸解離定数や金属イオンとの錯生成定数が類似の³⁾ トリフルオロアセチルアセトン (Htfa) とテノイルトリフルオロアセトン (Htta) を用い、種々の有機溶媒-水間の分配係数を放射性トレーサー-⁶⁷Cu を用いて求めた。得られた分配係数は修正した正則溶液論に基づいてキレート試薬の分配係数と比較し中心金属および配位子の役割につい

て考察した。さらに最近、単純な非電解質の液-液分配の予測にきわめて有力な方法であることが示された scaled particle 理論⁴⁾を用いて、正則溶液論による結果と比較を行った。

§ 2. 実 験

2.1. 試薬と装置

トリフルオロアセチルアセトンおよびテノイルトリフルオロアセトンはそれぞれ蒸留、真空昇華法により精製した。放射性トレーサー ^{67}Cu やその他の試薬の調製、また使用した装置は先に報告したものと同一である。²⁾

2.2 操 作

^{67}Cu でラベルした 10^{-7} – 10^{-4} M の銅(II)および所定 (pH 5–8) の pH に調整した 0.10 M の過塩素酸ナトリウムを含む水相と、 $(0.5-1) \times 10^{-1}$ M の β -ジケトンを含む有機相を $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ で 0.5–5 時間振とうする。遠心分離後、それぞれの相からの汚染に十分注意して両相より一定量を取り出し、NaI(Tl) 井戸型シンチレーションカウンターにて放射能を測定する。有機相と水相の放射能の比より銅(II)の分配比 (D) を求める。また水相の平衡 pH をガラス電極を用いて測定する。抽出平衡の達成は常に正逆抽出の結果が一致することにより確認した。

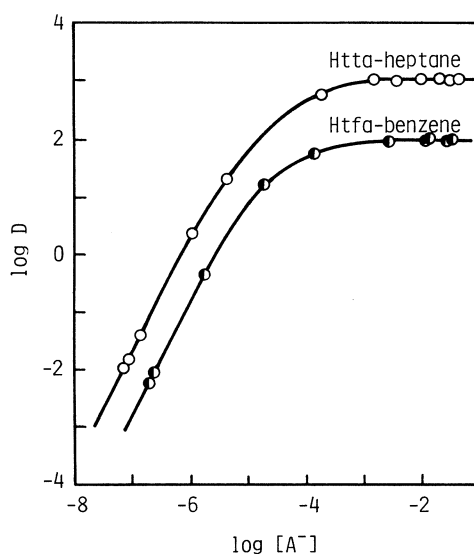
なお、 β -ジケトンの分配係数は pH 2–3 の水相を用いて分光光度法によって求めた。

§ 3. 結 果

第1図に典型的な例として Htfa-ベンゼン系と Htta-ヘプタン系の抽出曲線を示す。横軸の水相中の β -ジケトン陰イオン濃度は、水相の pH とそれぞれの酸解離定数、分配係数より計算によって求めた。銅(II)キレート of 分配係数は分配比のプラ

第1図 Distribution ratio of copper(II) vs. concentration of β -diketonate in an aqueous phase.

$[\beta\text{-diketone}]_{\text{init}}$
= 0.05–0.1 M, pH 5–8.



ト一な領域における極限值として求め、 $1 \times 10^{-6} - 4 \times 10^{-5} \text{M}$ の銅(II)濃度範囲で一定であることを確かめた。また、この抽出曲線から、 $\beta_2 = D / (K_{D,M} [A^-]^2)$ の關係を用いて、水相中の全錯生成定数 β_2 も求めることができ、トリフルオロアセチルアセトンとテノイルトリフルオロアセトンそれぞれ $10^{9.14}$ と $10^{9.24}$ であった。一方、Htta 系のベンゼンやクロロホルムなどの溶媒では、分配係数の値が大き過ぎてこの方法では正確に求められないことがわかったので、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、ドデカンの4種類のアルカン溶媒で銅(II)-テノイルトリフルオロアセトンキレートの分配係数と水相中の全錯生成定数をあらかじめ求めておき、他の溶媒系の分配係数を $K_{D,M} = D / (\beta_2 [A^-]^2)$ より計算した。4回以上の測定の前平均と標準偏差を β -ジケトンの分配係数⁵⁻⁷⁾ とともに第1表に示す。分配係数に対する溶媒の序列はほぼ一定しており、また銅(II)-テノイルトリフルオロアセトンキレートの値がきわ立って大きくなっている。

β -ジケトンは溶液中でケト、エノールの平衡混合物として存在しており、第1表の $K_{D,R}$ は見かけの分配係数と言える。本研究では金属キレートの分配係数とそれと類似の構造を持つエ

第1表 Partition coefficients of β -diketones and their copper(II) chelates at 25°C.

No. Solvent	Htfa	Cu(tfa) ₂	Htta	Cu(tta) ₂
1 Hexane	3.17 × 10 ^{-1a}	2.23 ± 0.05	4.79 ^b	(1.24 ± 0.11) × 10 ³
2 Heptane	(2.67 ± 0.00) × 10 ⁻¹	2.01 ± 0.02	3.72 ^b	(1.11 ± 0.05) × 10 ³
3 Octane	(2.39 ± 0.00) × 10 ⁻¹	1.58 ± 0.09	4.05 ± 0.28	(1.18 ± 0.07) × 10 ³
4 Dodecane	1.72 × 10 ^{-1c}	1.11 ± 0.12	3.19 ± 0.11	(8.03 ± 0.56) × 10 ²
5 Carbon tetrachloride	7.18 × 10 ^{-1a}	(1.77 ± 0.02) × 10	2.00 × 10 ^b	(3.71 ± 0.20) × 10 ^{4*}
6 i-Propylbenzene	(6.68 ± 0.01) × 10 ⁻¹	(2.40 ± 0.08) × 10	2.34 × 10 ^b	(9.10 ± 0.56) × 10 ^{4*}
7 Toluene	1.02 ± 0.02	(9.26 ± 0.09) × 10	4.02 × 10 ^b	(4.44 ± 0.07) × 10 ^{5*}
8 Benzene	1.28 ^a	(1.05 ± 0.03) × 10 ²	4.20 × 10 ^b	(3.08 ± 0.75) × 10 ^{5*}
9 Chloroform	1.95 ^a	(1.46 ± 0.02) × 10 ²	5.33 × 10 ^b	(1.73 ± 0.16) × 10 ^{5*}
10 Dichloromethane	2.51 ^a	(3.97 ± 0.19) × 10 ²	6.84 × 10 ^b	(5.98 ± 0.14) × 10 ^{5*}
11 Dibutyl ether		(5.25 ± 0.10) × 10		(1.67 ± 0.03) × 10 ^{5*}

*Calculated from $K_{D,M} = D / (\beta_2 [A^-]^2)$.

^aRef. 5, ^bref. 6, ^cref. 7.

ノールの分配係数 ($K_{D,E}$) を比較することによって, 中心金属の寄与について考察するために前報で示した式²⁾に従って $K_{D,E}$ を計算した。

第2図に種々の溶媒系における $K_{D,M}$ と $K_{D,E}$ をアセチルアセトンの結果²⁾ も含めて, それぞれの溶質のモル体積に対してプロットしてある。銅(II)キレート⁸⁾のモル体積はそれぞれ β -ジケトンと Zr(IV)キレートのモル体積⁸⁾ とから見積ったが, テノイルトリフルオロアセトンキレートについては最近報告された二価キレートの部分モル体積⁹⁾ と5%以内の誤差で一致していた。エノール, 銅(II)キレートともそれぞれの分配係数はモル体積の順序 ($acac^- < tfa^- <$

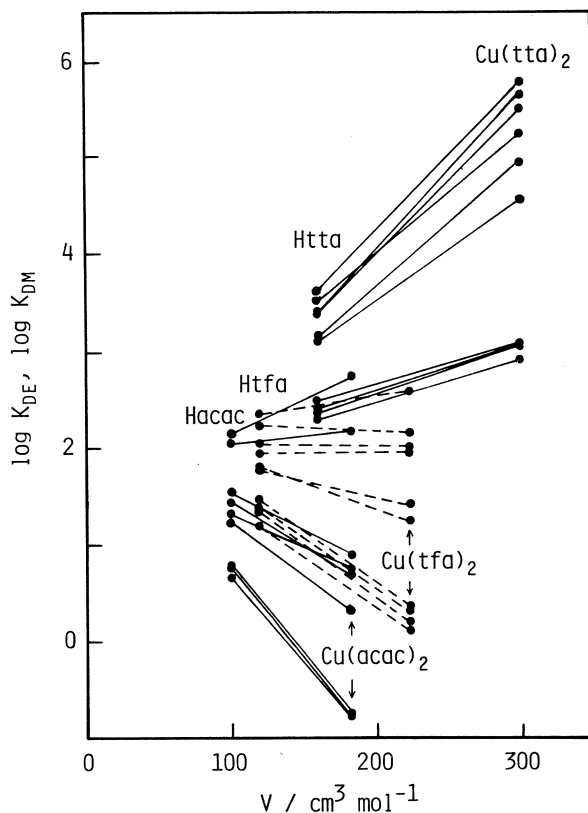
tta^-) となっているが, エノールとキレートを比較するとアセチルアセトンとトリフルオロアセチルアセトンではほとんどの溶媒でモル体積の大きなキレートの方が小さくなるという違いが見られる。

§ 4. 考 察

4.1 正則溶液論

モル分率で表わした溶質2の有機相, 水相間の分配係数 (K_{D2}°) は, 分子間の相互作用を表わす凝集エネルギー密度 (C) を用いて次のように書くことができる。

$$\ln K_{D2}^\circ = \frac{V_2}{RT} (C_{ww} - C_{oo} + 2C_{o2} - 2C_{w2}') \quad (1)$$

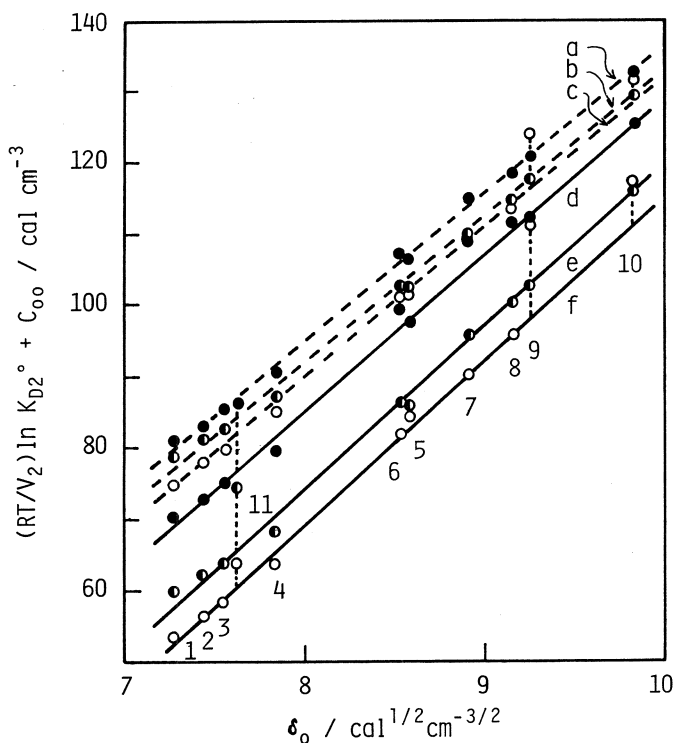


第2図 Partition coefficients of enols and the copper(II) chelates vs. their molar volume.

ここで添字w,oはそれぞれ水,有機溶媒を表わし, C_{w2}' は水との特殊な相互作用を含むパラメーターである。溶質と有機溶媒分子との相互作用が主として分散力によるものであれば $C_{o2} \approx \delta_2 \delta_o$ (δ は溶解度パラメーター) と幾何平均によって近似でき, (1)式は

$$\frac{RT}{V_2} \ln K_{D2} + C_{oo} = 2 \delta_2 \delta_o + C_{ww} - 2 C_{w2}' \quad (2)$$

と書き直すことができる。左辺を $\delta_o (= C_{oo}^{1/2})$ に対してプロットすれば直線関係が期待され, 傾きより δ_2 , 切片より $C_{ww} - 2 C_{w2}'$ を求めることができる。



第3図 Evaluation of partition coefficients based on the regular solution theory (see Eq. (2) in text). The number corresponds to that in Table 1. a Htta, b Htfa, c Hacac, d Cu(tta)₂, e Cu(tfa)₂, f Cu(acac)₂.

第3図にエノールおよびそれらの銅(II)キレートに対するプロットが示されている。溶質-溶媒間に特殊な相互作用が考えられるアセチルアセトン系のクロロホルムやジクロロメタン²⁾を除いて10種類の不活性溶媒については良好な直線関係が成立している。ところでいずれの銅

(II)キレートにおいても見られるブチルエーテルの直線からのずれは、前報でも述べたように中心金属へのブチルエーテルの配位結合という特殊な相互作用の結果であると考えられる。最小二乗法により決定されたそれぞれのパラメーターは、第2表の第2, 3のカラムに示されている。3種のエノールについては、 δ_2 , $C_{ww} - 2C_{w2}'$ とも近い値を示しており、有機溶媒、水に対する溶質-溶媒相互作用に大きな差がないことがわかる。一方、銅(II)キレートについてはいずれのパラメーターもその差は大きく、相互作用の大きさが違うことを示している。特にアセチルアセトンとトリフルオロアセチルアセトンキレートでは $C_{ww} - 2C_{w2}'$ が大きな負の値となり (C_{w2}' が大きい)、水との相互作用が大きいと考えられる。正則溶液論においては、(2)式で示されるように分配係数の有機溶媒による変化をほぼ定量的に評価することができるがこれはその有機溶液が簡単なモデルに近似できるためであり、もう一方の水溶液については定量的な評価は困難であると言える。

4.2 scaled particle 理論 (SPT)

SPT は特定の溶液モデルに基づいていないため、水も含めたあらゆる溶液に適用することができる。今、分配を両相への溶解の差として考えてみる。溶解は溶媒に溶質分子が入るための空孔を作る過程と、そこに入った溶質分子が回りの溶媒分子と相互作用する過程に分けて考えることができる。従って溶解の自由エネルギー変化 ($\Delta \bar{G}_s$) は、空孔形成の自由エネルギー (\bar{G}_c) と相互作用の自由エネルギー (\bar{G}_i) によって次のように書くことができる。

$$\Delta \bar{G}_s = \bar{G}_c + \bar{G}_i + RT \ln (RT/1000) \quad (3)$$

分配に伴う自由エネルギー変化は水相および有機相への溶解の自由エネルギー変化の差であるから、

$$RT \ln K_D = -(\Delta \bar{G}_{s,org} - \Delta \bar{G}_{s,aq}) \quad (4)$$

$$= (\bar{G}_{c,aq} - \bar{G}_{c,org}) + (\bar{G}_{i,aq} - \bar{G}_{i,org}) \quad (5)$$

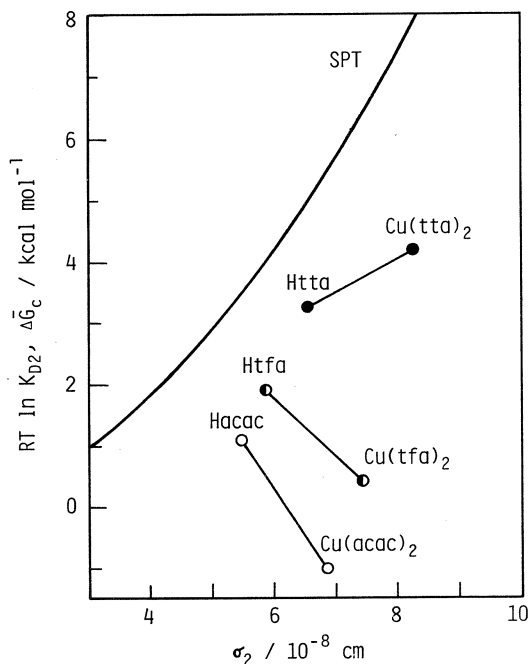
と書ける。⁴⁾ \bar{G}_c は SPT によって次の式から計算することができる。¹⁰⁾

$$\begin{aligned} \bar{G}_c = & -RT \ln (1-y) + RT \frac{3y}{1-y} \left(\frac{\sigma_2}{\sigma_1} \right) \\ & + RT \left[\frac{3y}{1-y} + \frac{9}{2} \left(\frac{y}{1-y} \right)^2 \right] \left(\frac{\sigma_2}{\sigma_1} \right)^2 + \frac{N_A y P}{\rho} \left(\frac{\sigma_2}{\sigma_1} \right)^3 \end{aligned} \quad (6)$$

ここで、 σ_1 , σ_2 はそれぞれ溶媒、溶質の分子直径、 N_A はアボガドロ数、 P は圧力、 ρ は溶媒の数密度であり、 y はパッキング率で $y = (\pi \rho \sigma_1^3) / 6$ で与えられる。溶質の分子直径 σ_2 は文献¹¹⁾より得られた相関関係、 $\sigma = 1.356 V^{1/2} - 0.8268$ を用いてモル体積より見積った。

第4図には、ヘプタン系について溶質の分子直径に対する分配の自由エネルギー変化と $\Delta\bar{G}_c (= \bar{G}_{c, aq} - \bar{G}_{c, org})$ が示されている。3種のエノールはSPTより計算された $\Delta\bar{G}_c$ に比較的近い所にプロットされており、(5)式からこれらの溶質と水およびヘプタンとの相互作用のエネルギーがそれほど大きく異なることがわかる。この結果はハロベンゼン類のような単純な有機化合物の分配の場合と類似している。⁴⁾ 一方、銅(II)キレートの場合は、SPTから予想される値よりかなり小さくなり水との相互作用がヘプタンとの相互作用よりはるかに大きいことを示している。そしてその傾向はアセチルアセトンとトリフルオロアセチルアセトン

キレートにおいて顕著に見られる。(5)式から $\bar{G}_{i, aq} - \bar{G}_{i, org}$ を $RT \ln K_D$ と $\Delta\bar{G}_c$ の差として計算し、第2表に示す。 $\bar{G}_{i, aq} - \bar{G}_{i, org}$ と正則溶液論から得られた溶質と水との相互作用の大き



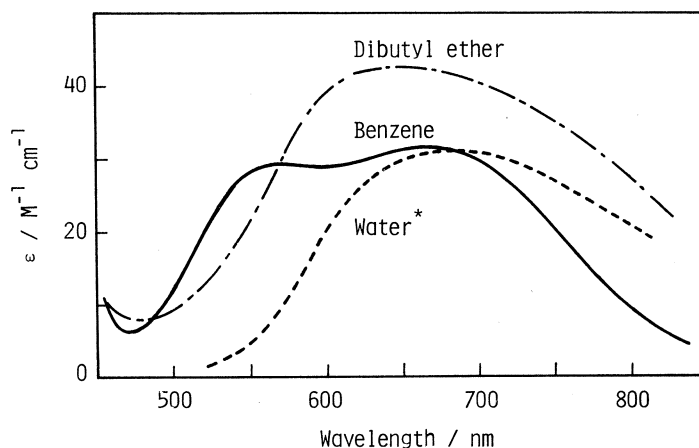
第4図 Comparison of cavity formation energy with transfer free energy of enols and their copper(II) chelates in heptane-water system.

第2表 Comparison of parameters obtained from the regular solution theory and the scaled particle theory (heptane system).

Solute	δ_2 (cal cm ⁻³) ^{1/2}	$C_{ww} - 2C_{w2}'$ cal cm ⁻³	$\bar{G}_{c, aq} - \bar{G}_{c, org}$ kcal mol ⁻¹	$\bar{G}_{i, aq} - \bar{G}_{i, org}$ kcal mol ⁻¹
Hacac	10.4	-77	3.69	-2.63
Htfa	10.0	-68	4.22	-2.33
Htta	10.2	-68	5.21	-1.98
Cu(acac) ₂	11.6	-116	5.76	-6.78
Cu(tfa) ₂	11.2	-104	6.64	-6.23
Cu(tta) ₂	11.0	-91	8.37	-4.21

さを表わすパラメーター $C_{ww} - 2C_{w2}$ との間に良い相関があり、いずれの理論からも同様の結論が得られることを示している。

前報では、銅(II)–アセチルアセトンキレートについて電子吸収スペクトルより中心金属と配位性溶媒との間の相互作用の存在を示したが、²⁾ここでは、より付加錯体を生成しやすいと考えられる銅(II)–トリフルオロアセチルアセトンキレートについて、ベンゼン、ジブチルエーテル、水溶液中における吸収スペクトルを測定した。第5図に見られるように、ベンゼン中のスペクトルは他の不活性溶媒中のものとはほとんど同じであるが、エーテル、水のような配位性溶媒中では予想通りスペクトルは大きく変化し、中心金属への溶媒分子の配位を示している。



第5図 Absorption spectra of $\text{Cu}(\text{tfa})_2$ in various solvents.
* $[\text{tfa}^-] = 0.013 \text{ M}$.

以上のように銅(II)キレートと水との相互作用の大きな原因が水分子の中心金属への配位結合であることがわかったが、最後にトリフルオロアセチルアセトンとテノイルトリフルオロアセトンキレートの比較を行ってみる。これらは、§3.で示したように水相中の全錯生成定数、そして有機相中の付加錯体生成定数も類似しており、³⁾水の配位についても同様であると考えられる。一方、第2表の結果からはテノイルトリフルオロアセトンキレートの方が水との相互作用が小さいと言えるが、そこに示されているパラメーターは分子の単位体積当たりの凝集エネルギーと水および有機溶媒分子に対する相互作用の差に相当するものである。分子サイズが大きく、有機溶媒との相互作用も大きいと考えられるテノイルトリフルオロアセトンキレートにおいては、分配に対する水の配位の影響は相対的に小さくなるものと解釈できる。

結論として、修正した正則溶液論とSPTを用いることによって、二価金属キレートの液-

液分配においては、キレート分子のサイズと中心金属への溶媒分子の配位が重要な因子であることがわかった。

本研究にあたり、御協力を賜った東北大学核理研、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へ厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) H. M. N. H. Irving: *Ion Exchange and Solvent Extraction*, ed. J. M. Marinsky and Y. Marcus (Marcel Dekker Inc., 1974).
- 2) 井村久則, 鈴木信男: 核理研研究報告 **16** (1983) 95.
- 3) D. D. Perrin: *IUPAC Chemical Data Series, Organic Ligands* (Pergamon, 1979).
- 4) H. Watarai, M. Tanaka and N. Suzuki: *Anal. Chem.* **54** (1982) 702.
- 5) T. Omori, T. Wakahayashi, S. Oki and N. Suzuki: *J. Inorg. Nucl. Chem.* **26** (1964) 2265.
- 6) K. Akiba, N. Suzuki and T. Kanno: *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **42** (1969) 2537.
- 7) H. Watarai, H. Ohshima and N. Suzuki: *Quantitative Structure-Activity Relationship*, in press.
- 8) E. M. Larsen, G. Terry and J. Leddy: *J. Amer. Chem. Soc.* **75** (1953) 5107.
- 9) M. Saito, R. Kuroda and M. Shibukawa: *Anal. Chem.* **55** (1983) 1025.
- 10) R. A. Pierotti: *Chem. Rev.* **76** (1976) 717.
- 11) E. Wilhelm and R. Battino: *J. Chem. Phys.* **55** (1971) 4012.

環境試料の内部標準法による 光量子放射化分析

核理研

梶本和義

§ 1. 序

放射化分析法は多元素同時定量の手段として活用されてきているが、他の機器分析法のようにいつでもどこでもできるものではないためにルーチン分析には適さない面がある。しかし、標準試料中の各元素濃度の公定値を得る作業においては重要な分析法のひとつとしてその役割を果たしてきた。標準試料は機器分析法での校正や分析値の評価を行う際に不可欠のものであり、いろいろの種類のもが各国・各研究機関で調製され配布されている。これらの公定値を得るための分析法は高い精度と正確さが必然的に要求されるから、放射化分析法が今後ともこのような役割を担っていくためには試料調製、照射および測定といった各分析操作で考えられる誤差要因を極力減らした定量法がさらに開発されていくことが必要といえよう。

放射化分析法ではこれまでにいくつかの定量法が提案されてきた。大別すると絶対法と比較法にわけられるが、絶対法は反応断面積、照射線束および検出効率等の絶対測定を必要とし実用的とはいえない。¹⁾ 比較法は試料および比較試料を放射化し生成放射能の比から定量するもので、通常の放射化分析法ではこちらが採用されている。定量値を得るためには試料および比較試料に照射された粒子の数およびエネルギースペクトルを正確に求める必要があり、これらは線束モニターを試料外に置くか、試料内の特定の元素をモニターにするかの二つの方法で測定されている。前者は、いわゆる比較法であり、その特殊な例として、試料と比較試料を同時に同一条件で照射できる場合にはモニターを省くことができる。後者は、いわゆる内基準法であり、試料内に適当なモニター元素がない場合にはそれを添加することによっても行うことができる。内基準法の特徴は試料内での自己遮蔽効果も含めて実効的な照射線量をモニターできるといふ点である。また、試料中の定量目的元素とモニター元素それぞれからの生成放射能の比を測定することによって目的元素を定量できるため、均一な試料であればその一部を照射すればいいとか、個々の照射試料を秤量する手間も省けるとか、放射能測定の際の試料と比較試料の形状、厚みおよび測定位置などの幾何効率がキャンセルされるといった付随的効果も生む。

また、比較法および内基準法それぞれについて比較試料をどうするかで二つの方法が考えられる。すなわち、試料と類似の組成のものを合成したりして用いる場合と試料そのものに定量目的元素を一定量添加して用いる場合である。前者の場合、比較法に用いるか、内基準法に用いるかによってその性格は異なってくる。比較法に用いられる比較試料は元素濃度が絶対濃度として正確にわかっていることが必要であるが、内基準法での比較試料は定量目的元素とモニター元素との相対濃度が正確にわかっているればよく、その調製は容易である。つぎに後者はいわゆる標準添加法と呼ばれ、分光干渉のあるような試料の吸光光度法ではしばしば用いられているが、放射化分析においてもマトリックス効果すなわち照射時の自己遮蔽効果や測定時におけるバックグラウンド放射能の影響があるような場合に有効である。

定量法についての以上の分類から、比較法でかつ比較試料が別個に要するもの(A)と標準添加法(B)^{2,3)} また内基準法でかつ比較試料が別個に要するもの(C)⁴⁻¹⁴⁾ と標準添加法(D)¹⁵⁻¹⁸⁾ の四つが考えられよう。

上記とは別に、内基準法の特殊な例として安定同位体希釈法がある。これは定量目的元素の濃縮同位体を試料に添加するもので、一つの元素で線量モニターと標準添加を兼ねている。この場合にも、比較試料に定量目的元素の化合物を使うか(E)^{19,20)} 試料そのものを使うか(F)²¹⁾ に分類できる。

これまで、各種の定量法について比較検討を行ってきたが、本研究では上記分類のうち定量法(D)について検討を加えることにした。定量法(D)は Leljaert ら²²⁾ によって提案され、“Internal Standard Method”(内部標準法)と名付けられたが、定量式の複雑さのゆえかほとんど応用されてこなかった。筆者らは最近新たな観点から以下のような定量式の導出を行いその特徴をあきらかにした。すなわち、定量目的元素 W_a g を含む試料に W_a^* g 標準添加し、定量目的元素および線量モニター用の内部標準元素からの生成放射能の比(通常は r 線のピーク面積比)を試料 (A_R) と標準添加試料 (A_R^*) について測定すれば、未知量 W_a g は

$$W_a = \frac{W_a^*}{(A_R^*/A_R) - 1} \quad (1)$$

で与えられる。(1)式であきらかなように、照射線束の補正は不要で、内部標準元素の量も定量に一切関係しない。標準添加量を試料 1 g あたりで求めておけば、 W_a は濃度で求まることになる。このように、内基準法の特色を備えているとともに、比較試料に試料そのものを用いるため各種のマトリックス効果をキャンセルできることから、環境試料のような複雑な組成を有する試料中の微量元素の定量には非常に有力な手段となることが期待される。

既に本法の適用例として国立公害研究所配布の Pepperbush の分析を行ったが,¹⁸⁾ 今回は公害研究所配布の環境標準試料 Pond Sediment および米国 NBS 配布の Estuarine Sediment 中の微量元素の定量に応用したので以下に報告する。

§ 2. 実 験

試料は国立公害研究所配布の NIES No. 2 Pond Sediment および米国 NBS 配布の SRM 1646 Estuarine Sediment を選んだ。定量目的元素は As, Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Pb, Rb, Sr, Y, Zn および Zr の 13 元素であり、各元素の標準溶液は高純度の金属または塩を酸に溶解して調製した。

試料は 110°C の電気オープン中で 4 時間乾燥した。乾燥減量は Pond Sediment で 10.3%, Estuarine Sediment で 1.8% であった。それぞれ約 1g をテフロンビーカーに秤りとり、あらかじめ適当な濃度比となるように調製した定量目的元素の混合溶液、4M 硝酸 2ml およびオルトケイ酸エチル 2ml を加えてマグネチックスターラーで良く攪拌した。ゲル化後、電気オープンおよび電子レンジ中で水分およびエチルアルコールを蒸発させたのち石英製蒸発皿に移し 400°C の電気炉中で 2 時間加熱・乾燥した。調製した標準添加試料および未処理の試料はアルミニウム箔で包装し、直径 10mm のペレット状に成型した。これらは石英管に封入後、30 MeV 制動輻射で 3 時間照射した。照射後各試料はアルミニウム箔で再包装し測定試料とした。照射および測定はこれまでと同様である。

§ 3. 結果と考察

3.1 標準添加

試料に定量目的元素を均一に混合するには溶液化するのが最も適しているといえる。しかしケイ酸塩の処理にしばしば利用されるフッ化水素酸を用いると、フッ素が残存し放射化によって ¹⁸F を生成するために短寿命核種の測定が妨げられる。アルカリ融解も同様、照射前の処理には適さない。しかし、試料粉末に定量目的元素の標準溶液を直接加えても均一に吸収されずまた器壁に溶液が付着することがある。そこで本実験では、試料粉末をシリカゲル中にドープする方法をとった。試料に 4M 硝酸とオルトケイ酸エチルを加えると最初は三層に分離するが、攪拌するにつれて混合しエマルジョンになり、粘性を増しながら約 1 時間で固化する。生成したゲルは試料を均一にとりこんだ状態で固化しているが、乾燥すると細かい粉末状に碎けるため、さらに均一性を向上させることができる。

3.2 内部標準元素

試料に照射された線量を精度良く見積るため内部標準元素には試料中に均一に含まれ、 r 線測定に適した核種を生成するものが選ばれる。さらに、照射粒子のエネルギー分布や照射中の線束密度の変動、測定の際の検出効率等を厳密に考慮すると、内部標準元素の条件として、核反応の励起関数が定量に利用する核反応のそれと近似していること、生成核種の半減期および r 線のエネルギーが定量に利用する核種のそれと近い値であることなどがあげられる。しかしながらこれらの条件を兼ね備えた元素を個々の定量目的元素について選ぶことは一般に困難であり、厳密さを要求するあまり、測定精度の低いものを内部標準に選んでしまったのでは意味がない。

これまでの内基準法は内部標準元素を一つ選び単一の r 線を利用する方法がとられてきたがこの場合定量精度は高いが系統誤差を含んでしまう可能性があった。そこで本実験では半導体検出器による高分解能 r 線スペクトロメトリーの特徴を生かし、環境試料中の主要成分であるNa, Mg, Ca, Ti, Mn および Fe の6元素を内部標準元素に選び、それぞれの元素から生成する核種のうち、定量目的元素から生成する核種と同時に測定できるものをモニターとして利用することにした。核反応は (r, n) および (r, p) 反応を含んでおり、生成核種からの r 線のエネルギーは100~1400 keVにわたっている。本実験では、定量に利用する核種からの r 線の測定に適した時期を選んで数回の測定を実施したが、それぞれの測定ラウンドで3核種3本の r 線から7核種12本の r 線をモニターに利用した。

3.3 妨 害

定量の際の妨害には、定量に利用する核種と同一の核種が他の元素からも生成して妨害となる場合と定量に利用する核種からの r 線のエネルギーが他の核種からの r 線のエネルギーと近接しているため検出器で分解できない場合が考えられる。

前者の核反応による妨害ではCrを ^{51}Cr で定量する場合にFeからも $^{56}\text{Fe}(r, \alpha n)^{51}\text{Cr}$ 反応によって ^{51}Cr が生成し妨害となる例がある。試料中の鉄の濃度および妨害反応のおこりやすさ²³⁾から換算して、Pond SedimentではCrの定量に4.1 ppm, Estuarine Sedimentでは2.1 ppmの正の誤差を与えることが見積られた。

r 線の重なりによる妨害としては、まずAsを ^{74}As (596 keV)で定量する場合のCaからの ^{43}K (594 keV)およびCoを ^{58}Co (811 keV)で定量する場合のCaからの ^{47}Ca (808 keV)の妨害があげられる。これらは、それぞれ ^{43}K および ^{47}Ca の減衰を待って定量できる。つぎに、Csを ^{132}Cs (668 keV)で定量する場合のIからの ^{126}I (666 keV), Nbを ^{92m}Nb (935

keV) で定量する場合の Fe からの ^{52}Mn (936 keV) および Zn を ^{67}Cu (185 keV) で定量する場合の Ga からの ^{67}Ga (185 keV) による妨害がある。これらは、定量に利用する核種と妨害となる核種の半減期に差がないため As や Co のようにはできない。幸い、妨害となる核種は複数の r 線を放出するため、あらかじめ、I, Fe および Ga を照射して妨害となる r 線と他の r 線のピーク面積比を求めておき、その値を使って補正することにした。

3.4 定量結果

Pond Sediment および Estuarine Sediment とも標準添加試料は 4 つに分けて照射し、それぞれについて定量を行った。まず、Pond Sediment 中のいくつかの元素について定量結果を示すことにする。

第1表 Photon activation analysis of Sr in NIES No. 2
Pond Sediment by internal standard method.

Internal Standard	This work ($\mu\text{g/g}$)			
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4
1st. Run				
^{24}Na (1369 keV)	115	107	114	117
^{47}Sc (159 keV)	105	114	109	123
^{56}Mn (835 keV)	111	109	114	112
2nd. Run				
^{24}Na (1369 keV)	110	107	112	116
^{47}Sc (159 keV)	106	104	115	115
^{56}Mn (835 keV)	108	106	111	119
Average	109 ± 4	108 ± 3	113 ± 2	117 ± 4

第1表に Sr の定量結果を示した。Sr は $^{88}\text{Sr} (r, n) ^{87\text{m}}\text{Sr}$ 反応を利用して定量される。 $^{87\text{m}}\text{Sr}$ は半減期 2.80 hr と比較的短寿命であり、照射終了後 1~4 時間の間に各試料とも 2 回測定した。それぞれの測定で、Mg からの ^{24}Na (1369 keV)、Ti からの ^{47}Sc (159 keV)、Fe からの ^{56}Mn (847 keV) が内部標準として利用できたため一試料につき 6 個の定量値が得られた。各試料での定量値の標準偏差は 4% 以内であり、主に内部標準に利用した r 線の計数誤差によるものであった。

次に、Ni の定量結果を第2表に示した。Ni は $^{58}\text{Ni} (r, n) ^{57}\text{Ni}$ 反応を利用して定量される。 ^{57}Ni は半減期 36.0 hr で、照射後 4~7 日が測定に適しており、内部標準には 7 核種 12 本

第2表 Photon activation analysis of Ni in NIES No. 2
Pond Sediment by internal standard method.

Internal Standard	This work ($\mu\text{g/g}$)			
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4
^{22}Na (1275 keV)	40.2	41.5	41.4	43.7
^{24}Na (1369 keV)	37.0	37.8	40.8	39.8
^{43}K (373 keV)	39.5	41.2	40.6	41.4
^{43}K (618 keV)	39.7	42.4	42.8	42.3
^{47}Ca (1297 keV)	39.6	42.9	39.6	41.0
^{46}Sc (889 keV)	39.2	40.1	40.3	38.9
^{46}Sc (1121 keV)	37.1	40.3	39.2	38.3
^{48}Sc (175 keV)	36.8	41.8	37.7	38.9
^{48}Sc (984 keV)	37.1	39.7	39.5	40.1
^{48}Sc (1037 keV)	38.4	39.5	39.1	40.7
^{48}Sc (1312 keV)	37.2	40.7	39.4	41.0
^{54}Mn (835 keV)	36.3	38.6	39.6	39.5
Average	38.2 ± 1.4	40.5 ± 1.5	40.0 ± 1.3	40.4 ± 1.5

第3表 Photon activation analysis of Pb in NIES No. 2
Pond Sediment by internal standard method.

Internal Standard	This work ($\mu\text{g/g}$)			
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4
^{22}Na (1275 keV)	109	106	103	110
^{24}Na (1369 keV)	100	97	102	100
^{43}K (373 keV)	107	105	101	103
^{43}K (618 keV)	107	108	106	106
^{47}Ca (1297 keV)	107	110	99	103
^{46}Sc (889 keV)	106	102	100	98
^{46}Sc (1121 keV)	100	103	98	96
^{48}Sc (175 keV)	100	107	94	98
^{48}Sc (984 keV)	100	102	98	101
^{48}Sc (1037 keV)	104	101	98	102
^{48}Sc (1312 keV)	101	104	98	103
^{54}Mn (835 keV)	98	99	99	99
Average	103 ± 4	104 ± 4	100 ± 3	102 ± 4

の r 線を利用することができた。下欄に示したように各試料の定量結果の標準偏差はいずれも 3～4% で有意差は認められなかった。同一核種でも ^{22}Na のように 1 本の r 線を利用する場合と ^{48}Sc のように 4 本の r 線を利用する場合が含まれているが、ここでは単純平均をとることにした。

第 3 表は Pb の例である。Pb は $^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$ 反応を利用して定量される。 ^{203}Pb は半減期 52.0 hr で ^{57}Ni と同時に測定できる。結果は Ni の場合と同様であった。この時期には、Cs, Nb, Zr および Zn も同時に測定される。

第 4 表 Photon activation analysis of Co in NIES No. 2
Pond Sediment by internal standard method.

Internal Standard	This work ($\mu\text{g/g}$)			
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4
^{22}Na (1275 keV)	27.9	28.8	27.6	27.0
^{46}Sc (889 keV)	26.8	28.6	27.6	28.1
^{46}Sc (1121 keV)	26.7	28.1	27.6	27.2
^{54}Mn (835 keV)	26.2	27.8	27.3	27.6
Average	26.9 \pm 0.7	28.3 \pm 0.5	27.5 \pm 0.2	27.5 \pm 0.5

第 4 表は Co の例である。Co は $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}$ 反応を利用して定量される。 ^{58}Co は半減期 70.8 d と比較的長寿命の核種であり、内部標準には Na からの ^{22}Na 、Ti からの ^{46}Sc および Mn からの ^{54}Mn が利用される。Co と同時に定量される元素には As, Ce, Cr, Rb および Y がある。長寿命核種の場合、長時間測定によって計数の統計誤差を小さくできるため、各試料での定量結果のばらつきは最も小さくなっている。このように、定量結果の精度と正確さには内部標準となる核種の r 線測定およびピーク面積の算出方法が大きな影響を与えることがわかる。

第 5 表に Pond Sediment の定量結果を公定値などとともに示した。右欄は各種分析法で得られた定量結果を範囲で示した。また、括弧内の数は分析した研究機関の数である。公定値および参考値の示された元素について、本実験の結果を比較するといずれの元素も非常に良く一致していることがわかる。他の元素についても再現性の良い値が得られており、信頼性は高いと考えられる。

NBS Estuarine Sediment についても Pond Sediment と同様の実験を行った結果、第

第5表 Concentrations of trace elements in NIES No. 2
Pond Sediment ($\mu\text{g/g}$).

Element	This work				Average	Certified value	Range (N)
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4			
As	10.2	11.3	10.2	10.0	10.4 ± 0.6	12 ± 2	10.3 - 13.5 (12)
Ce	35.3	35.5	35.7	36.9	35.8 ± 0.7		37.1 - 47.8 (6)
Co	26.9	28.3	27.5	27.5	27.6 ± 0.6	27 ± 3	23.1 - 29.4 (21)
Cr	75.7	76.4	75.1	79.7	76.7 ± 2.1	75 ± 5	44 - 87 (19)
Cs	3.69	3.61	3.68	3.65	3.66 ± 0.03		2.64 - 4.7 (9)
Nb	5.80	6.14	5.98	6.07	6.00 ± 0.14		
Ni	38.2	40.5	40.0	40.4	39.8 ± 1.1	40 ± 3	30.1 - 41.8 (10)
Pb	103	104	100	102	102 ± 2	105 ± 6	82 - 119 (13)
Rb	40.2	39.6	40.3	44.4	41.2 ± 2.2	42	37 - 50 (12)
Sr	109	108	113	117	112 ± 4	110	76 - 130 (8)
Y	24.6	24.6	24.4	25.5	24.8 ± 0.3		20 - 26.7 (3)
Zn	334	349	329	335	337 ± 9	343 ± 17	290 - 382 (20)
Zr	102	107	109	106	106 ± 3		102 - 132 (4)

第6表 Concentrations of trace elements in NBS SRM 1646
Estuarine Sediment ($\mu\text{g/g}$).

Element	This work				Average	Certified value
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4		
As	9.6	10.6	11.8	11.4	10.9 ± 1.0	11.6 ± 1.3
Ce	76.9	79.9	81.3	73.7	77.9 ± 3.4	80
Co	9.5	10.4	10.3	9.4	9.9 ± 0.5	10.5 ± 1.3
Cr	84.8	88.4	91.1	90.6	88.7 ± 2.8	76 ± 3
Nb	14.4	13.9	15.1	13.3	14.2 ± 0.8	
Ni	26.7	29.2	32.2	32.5	30.1 ± 2.1	32 ± 3
Pb	31.6	37.9	29.6	33.2	33.1 ± 3.6	28.2 ± 1.8
Rb	90.9	92.0	93.6	89.1	91.4 ± 1.9	87
Sr	151	148	150	147	149 ± 2	
Y	27.8	29.4	28.6	27.0	28.2 ± 1.0	
Zn	172	155	172	166	166 ± 8	138 ± 6
Zr	480	464	413	419	444 ± 33	

6表のような定量値が得られた。公定値の示された元素について、本実験の結果を比較するとCrおよびZnが高い値を示している。また、Pbは含有量が少なく、 ^{203}Pb の279 keV r 線の計数誤差のために各試料での定量値にバラツキがみられた。Zrは光量子放射化分析で精度良く定量できる元素であるが、含有量が多いにもかかわらず8%の偏差がみられた。それ故試料中での均一性について確める必要があるといえよう。Estuarine Sedimentは最近調製配布された標準試料であり、今後他の研究機関からの定量結果の発表を待って分析値の評価が進むと思われる。

以上、本研究では“Internal Standard Method”(内部標準法)を光量子放射化分析に適用し、環境試料中の13元素の定量を行った。高分解能 r 線スペクトロメトリーにより、主要成分元素から生成する核種のうち、定量に利用する核種と同時に測定できる核種を内部標準に選び、最高12本の r 線を使って定量を行うことができた。本法では、比較試料に試料そのものを利用するため各種のマトリックス効果をキャンセルできるという利点があるが、内部標準にする核種からの r 線の測定精度が定量結果に大きな影響を与えることになるため、その選定には慎重を期すべきといえよう。また、本研究のように複数の r 線をモニターに利用することは1本の r 線だけの場合に含まれるおそれのある系統誤差を小さくするうえで意味があるといえよう。

複雑な組成中の微量成分の分析などの場合、比較試料を調製し、さらに各試料の照射線量をモニターする必要がある比較法にくらべて、試料に定量目的元素を添加するだけでよく、照射試料の秤量や照射線量のモニターする必要のない内部標準法はより簡便でかつより正確な定量法として活用できることが示された。

参 考 文 献

- 1) F. Gurrardi, G. Guzzi and J. Pauly : Anal. Chem. **36** (1964) 1588.
- 2) F. Adams and J. Hoste : Talanta **10** (1963) 1243.
- 3) J. Kim and J. Hoste : Anal. Chim. Acta **35** (1966) 61.
- 4) 岡好良, 加藤豊明, 佐々木三千夫 : 日化 **84** (1963) 588.
- 5) Chr. Segebade, M. Kühn, B. F. Schmitt and R. Neider : J. Radioanal. Chem. **72** (1982) 665.
- 6) S. G. Chen and H. T. Tsai : J. Radioanal. Chem. **78** (1983) 263.

- 7) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **84** (1984) 369.
- 8) Y. Oka, T. C. Pung and T. Saito : Bull. Chem. Soc. Jpn. **43** (1970) 1083.
- 9) T. C. Pung, T. Kato and Y. Oka : Bull. Chem. Soc. Jpn. **44** (1971) 1031.
- 10) 岡好良, 加藤豊明, 佐々木三千夫 : 日化 **86** (1965) 70.
- 11) 岡好良, 加藤豊明 : 日化 **86** (1965) 835.
- 12) Y. Oka, T. Kato, H. T. Tsai and K. Nomura : Bull. Chem. Soc. Jpn. **41**
(1968) 329.
- 13) Y. Oka, T. Kato and H. T. Tsai : Bull. Chem. Soc. Jpn. **41** (1968) 2427.
- 14) S. G. Chen and H. T. Tsai : Radiochem. Radioanal. Lett. **51** (1982) 199.
- 15) G. Leliaert, J. Hoste and J. Eeckhaut : Anal. Chim. Acta **19** (1958) 100.
- 16) G. Leliaert, J. Hoste and J. Eeckhaut : Talanta **22** (1959) 115.
- 17) R. Gijbels and J. Hoste : Anal. Chim. Acta **41** (1968) 419.
- 18) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **83** (1984) 313.
- 19) C. Yonezawa and T. Komori : Anal. Chem. **55** (1983) 2059.
- 20) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. (in press).
- 21) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Chem. **79** (1983) 57.
- 22) G. Leliaert and J. Hoste, J. Eeckhaut : Nature **182** (1958) 600.
- 23) T. Kato, K. Masumoto, N. Sato and N. Suzuki : J. Radioanal. Chem. **32**
(1976) 51.

東北地方南部の更新世前期に活動した 火砕流の地球化学的研究

理学部地学

青木謙一郎・吉田武義・金 義沢

§ 1. はじめに

東北日本には第四紀後半(約100万年前～現在)に活動した主として安山岩類から成る成層火山群が広く分布している。これらの火山群の形成に先立ち、第三紀末葉から第四紀前半(約2～300万年～100万年前)にかけて莫大量のデイサイト質火砕流が噴出している。それら火砕流の代表的な分布地域は北海道の十勝と胆振、東北地方の八甲田、田沢、鬼首と白河-会津一帯であり、総噴出量は 4000 km^3 を越えると見積られ、成層火山群の 2000 km^3 をはるかに凌駕している。

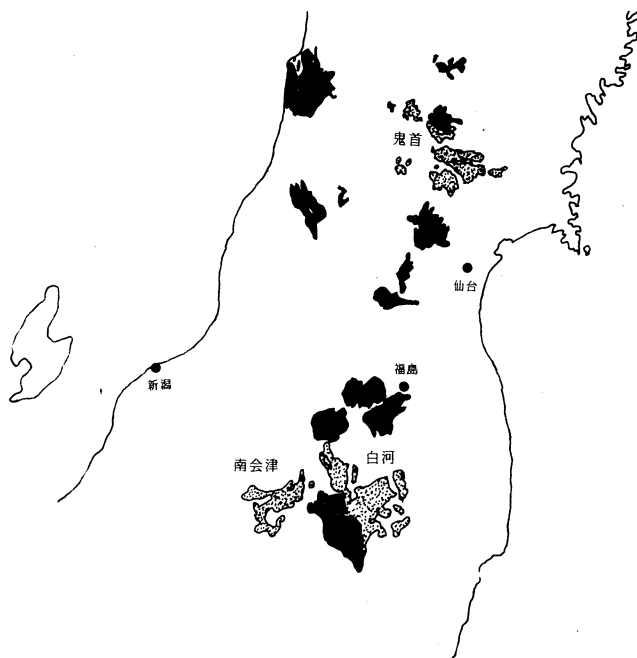
近年、これらの火砕流が重要視され、火山地質や絶対年代の研究がはじめられているが、岩石学的・地球化学的研究については皆無に近い状態にある。

島弧の火山活動において大量に噴出しているデイサイトなどの珪長質マグマの成因は岩石学や地球化学の分野では最も難しい研究課題の一つである。ここではデイサイト質マグマの成因を解明する手がかりの一環として東北地方南部に分布している第四紀更新世前期に噴出した火砕流の地球化学的研究を行った。その成果の要約を報告する。

§ 2. 分 布

東北地方に分布している更新世前期に活動したデイサイト質～流紋岩質の火砕流堆積物(pyroclastic flow deposits, PFD)については最近守屋¹⁻⁴⁾によって要約されている。それらによると、東北地方の背稜山地に沿って八甲田火山群の周辺一帯(八甲田火砕流)、田沢湖と八幡平火山群の周辺一帯(玉川溶結凝灰岩)、鬼首カルデラ東部地域(北川溶結凝灰岩)、郡山-白河と会津若松の間(白河溶結凝灰岩、須賀川溶結凝灰岩、甲子溶結凝灰岩など)と会津田島一帯である。この研究で取扱った研究試料は鬼首カルデラ東部域、白河-会津若松地域と会津田島地域のものである。それら火砕流の分布を第四紀後半に噴出した火山群と共に第1図に示した。

これらの火砕流は分布地域により、また flow unit によって細分された地層名が与えられて



第1図 更新世前期に噴出した火砕流の分布，黒色部分は更新世後期成層火山群。

いるが，本報告では便宜的に鬼首地域のものは鬼首火砕流，白河－会津若松地域のものは白河火砕流，会津田島地域のものは南会津火砕流と呼ぶことにする。

鬼首火砕流の噴出年代はK-Ar法によると2.7～1.7 Ma，十勝，八甲田，田沢や白河火砕流などよりやや古い時代を示し，これが事実であるとする，噴出時代は厳密には第四紀ではなくて第三紀鮮新世末葉である。主として鬼首盆地の東部および南東部に広く分布し，その噴出口は鬼首盆地（鬼首カルデラ）であるとの考えが強い。この火砕流は多数のflow unitから成るが，多くの場合非溶結の軽石流から構成され，カルデラの東部および南東部に流出しているものでは数枚のflow unitのうち一枚のみが弱溶結している。しかしカルデラの北東，栗駒火山南麓一帯には少くとも3枚のflow unitが認められるが，それらは溶結度が高く，柱状節理が発達し，溶岩流様の外観を示すことがある。

守屋¹⁻⁴⁾によると，白河火砕流は少くとも20枚以上の火砕流堆積物から成り，その総体積は1000 km³を越えると推定される。その噴出源は那須火山群と猪苗代湖の間にある羽鳥湖－湯本－下郷－甲子峠を結ぶ凹地（羽鳥カルデラ）と考えられるがさだかではない。活動時期はK-Ar年代によると1.6～1.1 Maである。一般に非溶結の軽石流が多いが，カルデラ西壁域と

推定される羽鳥湖付近のものは溶結度が高い。白河市付近で採石されている“白河石”は白河火砕流の弱溶結部分である。

南会津火砕流は会津盆地の南部、駒止高原一帯に広く分布し、体積は 200 km^3 を越えると見積もられている。少なくとも3枚以上の flow unit から構成され、溶結度はやや高い。K-Ar 年代は 1.8 Ma と 6 Ma の2つが報告されているが、層序的には $4 \sim 5 \text{ Ma}$ と推定され、この年代はこれまでに述べてきた火砕流よりは明らかに古い。南会津火砕流は鮮新世に活動したことになるが、ここでは第四紀前半に噴出した火砕流に一括した。

§ 3. 斑晶鉱物

鬼首と白河火砕流の全てと南会津火砕流の一部はデイサイトから構成されているが、南会津火砕流のうち駒止峠一帯に分布しているものは流紋岩である。これらの珪長質火山岩類は過斑晶質であって、すべて斑晶鉱物として石英を含み、斑晶鉱物の総量は $30 \sim 45 \%$ (石基またはマトリックスは $70 \sim 55 \%$)、その 80% 以上を石英や斜長石が占め、有色鉱物の量は少ない。

デイサイトの斑晶石英の量は $3 \sim 20 \%$ 、 10% 前後のものが多い。最も多い鉱物は斜長石であって $11 \sim 28 \%$ 、通常 $20 \sim 25 \%$ である。著しい累帯構造を示すが、 An_{30-60} のアンデシン～ラブラドライト組成のものが最も多く、時に An_{60-90} のラブラドライト～バイトウナイトが認められる。有色鉱物組み合わせはハイパーシン+オージャイト+鉄鉱物(磁鉄鉱±チタン鉄鉱)が最も多く、一部のものは少量のホルンブレンドを含んでいる。ホルンブレンドの量が増加するにつれてオージャイトの量が減少する傾向にある。ホルンブレンドが輝石よりも多いものは稀である。有色鉱物の量はハイパーシン; $5 \sim 0 \%$ 、オージャイト; $2 \sim 0 \%$ 、鉄鉱物; $3 \sim 0 \%$ 、ホルンブレンド; $4 \sim 0 \%$ である。

ハイパーシンは Fs_{34-45} と組成範囲が狭く、また $\text{Wo}_{1.6-2.8}$ と低いのが特徴である。オージャイトも組成範囲が狭く、 $\text{Wo}_{38-46} \text{En}_{41-36} \text{Fs}_{14-20}$ である。斜方・単斜両輝石は共に TiO_2 、 Al_2O_3 や Na_2O などの副成分の含有量が低い。ホルンブレンドは $\text{Mg}/(\text{Mg}+\text{Fe})$ が $0.56 \sim 0.67$ 、 $\text{Si} (\text{O}=22)$ が $6.7 \sim 7.2$ であってマグネシオ・ホルンブレンド領域に点示される。

流紋岩は極めて特徴的な鉱物組み合わせを示し、石英+斜長石+サニィディン+黒雲母+ホルンブレンド+カミングトナイト+鉄鉱物であって輝石を欠いている。この様な斑晶鉱物組み合わせは東北日本の火砕流からは見出されていない。斑晶の量は石英; $15 \sim 21 \%$ 、斜長石 $7 \sim 9 \%$ 、サニィディン; $0.2 \sim 1 \%$ 、黒雲母; $0.6 \sim 2.3 \%$ 、角閃石; $0.2 \sim 4.4 \%$ 、鉄鉱物; 0.3% である。斜長石は An_{11-43} のオリゴクレーヌ～アンデシンが多いが、時に An_{54-69} のラブラドラ

第1表 デイサイトー流紋岩の主成分化学分析値。

	1	2*	3*	4	5*	6*	7	8*	9	10	11	12*
SiO ₂	65.07	64.69	69.62	66.37	70.69	69.82	68.77	67.69	67.71	70.89	71.71	71.64
TiO ₂	0.54	0.68	0.42	0.38	0.45	0.43	0.46	0.57	0.57	0.50	0.43	0.47
Al ₂ O ₃	15.37	15.51	15.09	15.62	14.44	14.91	15.03	15.10	15.71	14.13	13.92	14.14
Fe ₂ O ₃	2.37	3.89	1.38	2.36	1.69	2.04	1.86	2.53	1.82	2.76	2.20	2.17
FeO	2.65	2.17	1.66	2.58	1.86	1.68	1.86	2.17	2.33	0.96	1.13	1.16
MnO	0.09	0.11	0.10	0.09	0.10	0.10	0.09	0.11	0.09	0.08	0.10	0.07
MgO	1.88	1.87	0.93	1.41	0.77	0.60	0.98	1.41	1.34	0.69	0.59	0.56
CaO	5.54	4.67	3.63	4.57	3.39	3.23	3.77	4.79	4.77	3.22	2.83	3.09
Na ₂ O	3.05	3.14	3.80	4.03	3.93	3.87	3.86	3.38	3.36	3.56	3.55	3.68
K ₂ O	1.37	1.57	1.25	1.12	1.53	1.40	1.31	1.42	1.51	2.01	2.20	2.27
H ₂ O ⁺	1.85	1.33	1.82	0.81	1.47	2.20	2.16	0.72	0.63	1.05	1.05	0.56
H ₂ O ⁻	0.01	0.00	0.00	0.36	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.00	0.00	0.09
P ₂ O ₅	0.13	0.16	0.14	0.19	0.12	0.10	0.16	0.19	0.06	0.15	0.14	0.08
Total	99.92	99.79	99.84	99.89	100.44	100.38	100.31	100.08	99.93	100.00	99.85	99.98
Analyst	K.A.	K.A.	K.A.	K.T.	K.A.	K.A.	K.A.	K.A.	K.A.	K.A.	K.A.	K.A.

1. Augite bearing hypersthene dacite (82070602), 溶結凝灰岩, 宮城県栗駒町三迫川行者滝の西 1.5 km.
2. Augite bearing hypersthene dacite (82070601), 火砕流中の本質礫, 栗駒町耕英開拓.
3. Hypersthene hornblende dacite (82070701), 最下部の軽石流中の軽石, 岩出山町池月駅の北 1 km.
4. Hornblende bearing augite hypersthene dacite, 溶結凝灰岩, 鳴子町川渡駅の北の崖 (Tanida⁵⁾).
5. Augite and hypersthene bearing hornblende dacite (82070702), 溶結凝灰岩の上の軽石流中の軽石, 池月駅の北 1.5 km.
6. Hornblende bearing augite hypersthene dacite (82070703), 最上部の軽石流中の軽石, 鳴子町川渡沢目木.
7. Augite bearing hypersthene dacite (82070704), 軽石流中の軽石, 岩出山町岩出山城跡.
8. Augite hypersthene dacite (82070906), 溶結凝灰岩中の本質レンズ, 福島県大信村増見石切場.
9. Augite hypersthene dacite (82100603), 軽石流中の軽石, 長沼町長沼.
10. Augite hypersthene dacite (82070902), 溶結凝灰岩, 天栄村羽鳥湖東岸.
11. Augite hypersthene dacite (82070903), 溶結凝灰岩, 天栄村羽鳥湖の東 2 km.

K.A. : 青木謙一郎, H.S. : 霜鳥洋, K.T. : 谷田勝俊⁵⁾.

Nos. 1~7 : 鬼首火砕流, Nos. 8~16 : 白河火砕流, Nos. 17~18 : 南会津火砕流,
Nos. 19~25 : 第四紀火山群.

第1表(続き)

13	14*	15	16*	17*	18*	19*	20*	21*	22*	23*	24*	25*
67.29	67.41	67.82	69.54	71.45	75.40	65.86	68.53	66.54	70.81	67.92	69.82	68.26
0.60	0.60	0.50	0.54	0.49	0.16	0.55	0.87	0.51	0.57	0.49	0.49	0.44
15.51	14.91	15.90	14.39	14.35	12.92	16.57	15.29	15.90	15.50	16.34	16.49	15.95
2.40	2.80	1.42	1.93	2.26	1.46	2.08	1.50	1.42	1.32	1.49	0.65	1.85
2.15	1.96	1.90	1.77	1.07	0.69	2.59	2.93	1.57	1.82	1.40	2.23	1.38
0.14	0.13	0.09	0.10	0.10	0.08	0.10	0.10	0.07	0.10	0.04	0.08	0.07
1.47	1.60	1.06	1.08	0.67	0.25	1.03	1.09	0.87	0.82	0.71	0.76	0.87
4.43	4.44	4.59	3.37	3.02	1.40	4.43	4.28	3.77	3.14	3.34	3.33	3.16
3.39	3.06	3.30	3.53	3.71	3.56	3.88	4.20	4.43	3.40	4.31	4.18	4.45
1.32	1.89	1.72	2.16	2.21	3.27	0.67	0.96	1.07	2.06	1.50	1.06	1.13
0.94	1.03	1.29	1.54	0.53	0.86	0.29	0.10	2.77	0.35	0.90	0.46	0.65
0.13	0.27	0.15	0.22	0.25	0.18	0.58	0.11	0.22	0.12	0.60	0.08	0.61
0.12	0.13	0.11	0.12	0.11	0.03	0.22	0.18	0.19	0.06	0.15	0.15	0.18
99.89	100.23	99.85	100.29	100.22	100.26	98.85	100.14	99.33	100.07	99.19	99.78	99.00
K.A.	K.A.	K.A.	K.A.	K.A.	K.A.	H.S.	K.A.	H.S.	K.A.	H.S.	K.A.	H.S.

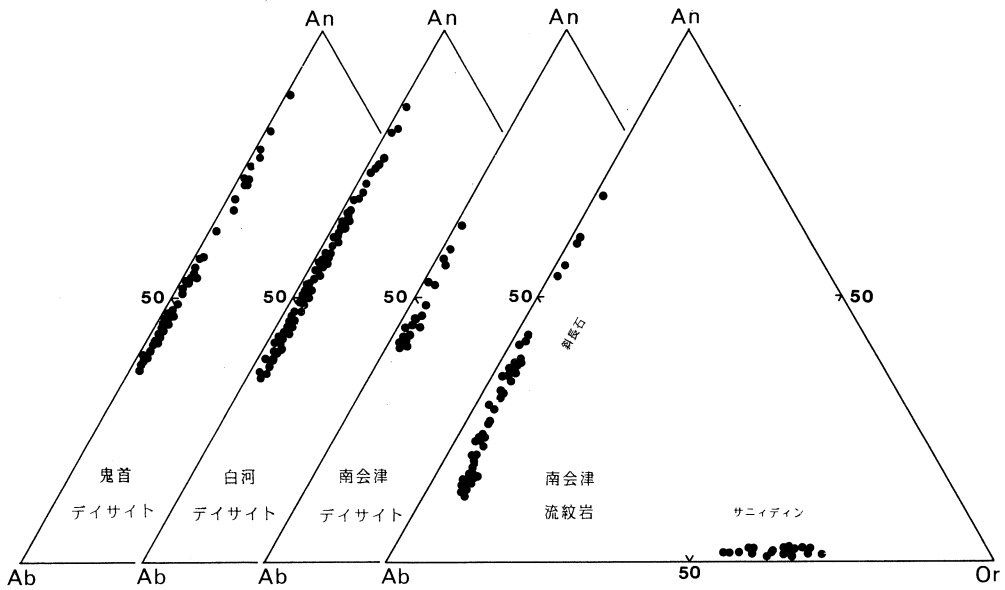
12. Augite hypersthene dacite (82100602), 溶結凝灰岩中の本質レンズ, 郡山市湖南町勢至堂峠.
13. Augite hypersthene dacite (82090106), 軽石流中の軽石, 会津若松市戸の口堰.
14. Augite hypersthene dacite (82090105), 軽石流中の軽石, 会津若松市強清水沓掛峠.
15. Augite hypersthene dacite (82090303), 軽石流中の軽石, 会津若松市漆沢.
16. Augite hypersthene dacite (82090107), 溶結凝灰岩中の本質レンズ, 会津若松市湯川.
17. Augite bearing hypersthene dacite (82090208), 溶結凝灰岩中の本質レンズ, 福島県田島町舟ヶ鼻峠の東南東3 km.
18. Biotite cummingtonite hornblende rhyolite (82090204), 溶結凝灰岩中の本質レンズ, 田島町針生駒止峠.
19. Hypersthene augite dacite, 溶岩, 恐山火山群北国山.
20. Augite hypersthene dacite, 溶岩, 十和田火山群御倉山.
21. Augite hypersthene dacite, 軽石流中の軽石, 十和田湖北西岸滝の沢.
22. Augite hypersthene dacite, 溶岩, 秋田焼山中央円頂丘 (Kawano and Aoki⁷⁾).
23. Hypersthene hornblende dacite, 溶岩, 鬼首高日向山.
24. Augite hypersthene dacite (82091902), 溶岩, 鳴子火山松ヶ峰.
25. Augite hypersthene dacite, 溶岩, 鳴子火山.

イトも認められる。サニイディンは Or_{55-70} の組成範囲を示し、An 成分は 2% 以下である。ホルンブレンドはデイサイトのものよりも鉄に富み、 $Mg/Mg+Fe$ は 0.58~0.43、Si は 6.6~7.1 であって、マグネシオ・ホルンブレンドとフェロ・ホルンブレンドの境界付近に点示される。カミングトナイトの $Mg/Mg+Fe$ は 0.46~0.50 であり、少量の TiO_2 、 Al_2O_3 、CaO や Na_2O を伴っている。珪酸塩鉱物の中で黒雲母が最も鉄に富み、また組成範囲が広く $Mg/Mg+Fe$ は 0.21~0.47 である。

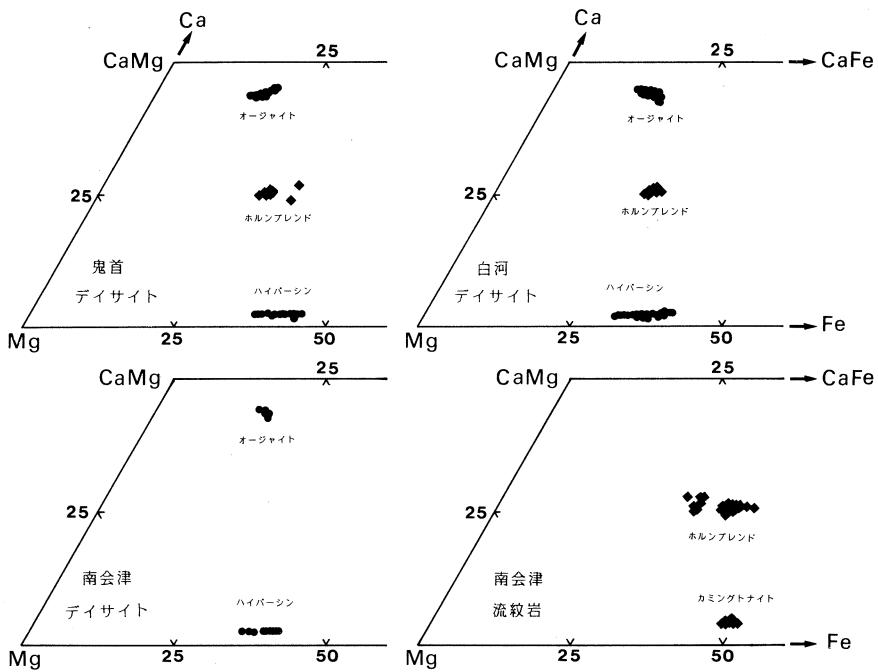
第 2, 3 図には鬼首、白河および南会津火砕流中の斑晶長石の An : Ab : Or 比と輝石と角閃石の Ca : Mg : Fe 比を示した。

第 2 表 デイサイトー流紋岩の微量成分化学分析値。

	2	3	5	6	8	12	14	16	17	18
Ba ppm	417	394	515	514	411	780	340	753	861	985
Ce	21.4	26.2	27.2	29.8	24.4	26.5	26.9	28.7	27.9	50.0
Co	15.8	5.6	4.5	2.8	9.2	3.5	9.5	4.5	5.0	2.2
Cr	55.0	114	131	95.3	61.9	40.0	32.2	14.3	24.5	38.2
Cs	0.64	2.72	1.24	0.96	2.09	3.05	2.15	3.69	2.71	2.20
Nb	4.6	4.7	5.2	4.9	4.1	4.5	4.1	5.9	4.4	8.3
Ni	30.1	72.8	79.2	65.4	32.8	18.9	13.0	5.7	15.4	23.2
Rb	40.1	27.5	33.8	32.0	45.6	69.4	55.4	65.2	60.8	105
Sc	15.6	11.7	15.2	15.6	14.9	8.9	19.1	13.9	11.0	5.5
Sr	215	188	180	180	204	163	182	174	155	66
Y	38.5	32.9	43.0	49.6	34.2	28.2	32.8	31.9	25.0	70.6
Zn	63	59	47.	42	54	46	68	60	34	39
Zr	133	134	150	160	112	128	120	137	128	92
	19	20	21	22	23	24	25			
Ba ppm	223	253	282	539	426	316	-			
Ce	17.4	24.6	27.5	24.4	26.0	20.8	18.6			
Co	10.3	2.9	1.8	6.6	4.9	5.9	3.8			
Cr	71.0	29.4	31.9	9.4	64.9	38.0	44.9			
Cs	0.46	0.35	1.13	3.08	1.37	0.96	0.82			
Nb	3.1	5.1	4.7	4.8	5.1	4.0	3.8			
Ni	38.3	14.5	12.0	3.7	39.5	23.0	26.8			
Rb	13.0	22.6	23.9	65.4	40.0	26.1	25.2			
Sc	21.8	15.8	12.0	13.0	7.7	14.3	11.5			
Sr	234	276	269	182	186	203	196			
Y	48.1	39.7	36.8	27.3	36.2	29.7	28.8			
Zn	94	71	71	29	52	38	52			
Zr	90	115	117	207	138	118	122			



第2図 デイサイトー流紋岩の斑晶長石の An : Ab : Or 比。

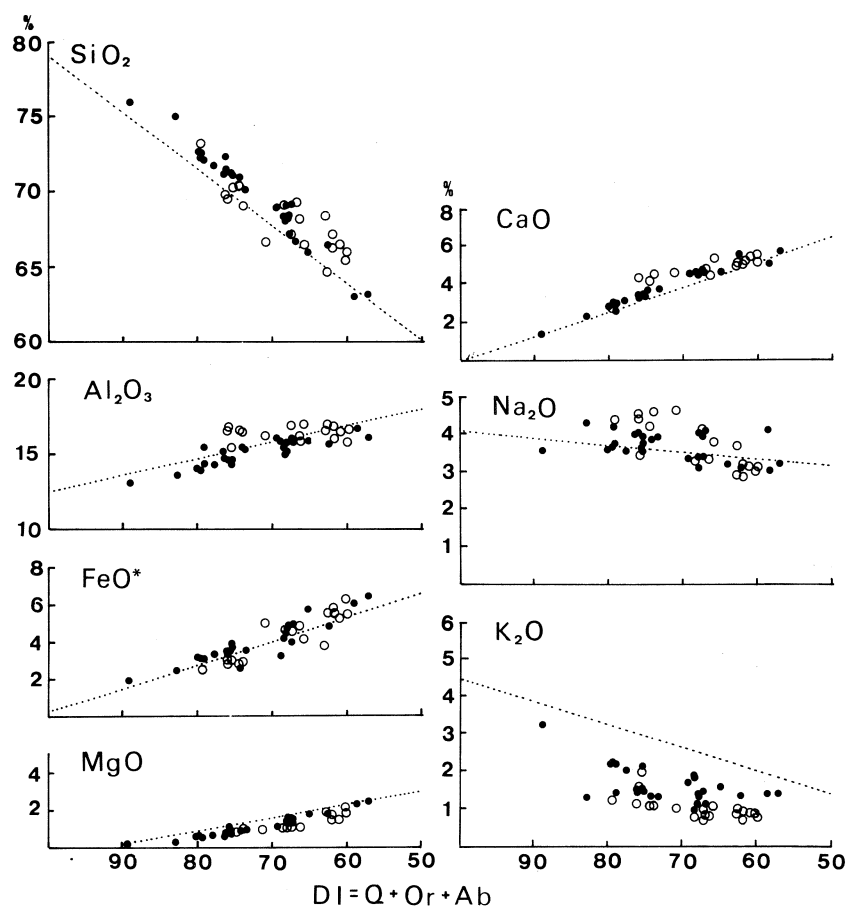


第3図 デイサイトー流紋岩の斑晶輝石と角閃石の Ca : Mg : Fe 比。

§ 4. 分析法と分析結果

分析試料の調製に際し、軽石流では大型軽石の中央部分、溶結凝灰岩では本質レンズ（軽石の溶結部分）を用いたが、本質レンズの小さいものまたは無いものでは溶結部分からできるだけ外来岩片を取り除いたものを用いた。

主成分酸化物については湿式分析法により定量した。微量元素13元素については東北大学理学部核理学研究施設において電子ライナックを利用し、30 MeV 加速電子を用いて光量子放射分析法により定量した。⁵⁾ 火砕流を構成するデイサイトー流紋岩の主成分と微量元素の分析結果はそれぞれ第1, 2表に示した。なお第四紀後半（更新世後期）に噴出した火山フロント



第4図 分化指数(DI)ー主成分酸化物組成変化図。黒丸：火砕流デイサイトー流紋岩，白丸：更新世後期デイサイト，点線：本邦花崗岩質岩類の変化曲線。⁸⁾ なお第1表のほか既発表デイサイト類も点示した。

沿いの火山群のデイサイトも比較のため加えた。

§ 5. 主成分酸化物

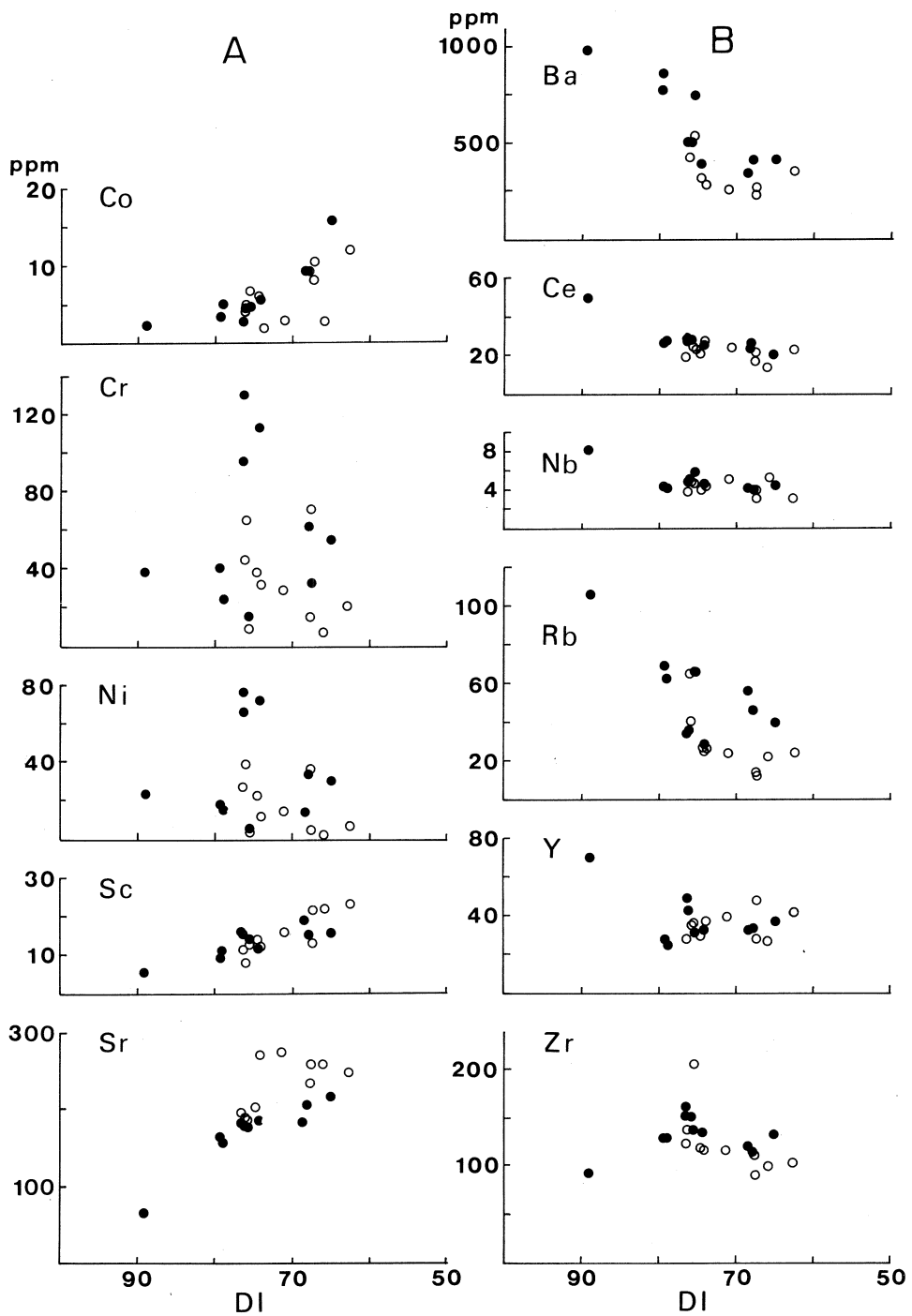
鬼首・白河・南会津火砕流を構成するデイサイト一流紋岩類の主成分酸化物は広い組成変化を示し、 SiO_2 は65～75%の範囲にあり、ノルムQは26.6～39.2%にも達する。更新世後期に噴出した火山群の溶岩流の多くが SiO_2 50～60%の玄武岩—安山岩類であるのと対照的である。鬼首、白河と南会津火砕流のうち駒止峠一帯の流紋岩を除くデイサイト類の化学組成はお互いに極めて類似している。またこれら火砕流とはほぼ同時期に噴出した八甲田や田沢地域のものとも総化学組成のみならず、斑晶鉱物の組み合わせや化学組成も極めて似ている。

第4図にはこれら火砕流のデイサイト一流紋岩類の分化指数(differentiation index, DI, ノルムQ + Or + Ab)と主要酸化物の間の組成変化図を示した。比較のため第四紀後半に玄武岩—安山岩類に伴って噴出したデイサイト類を点示し、本邦花崗岩質岩類の平均変化曲線を示した。⁸⁾ デイサイト一流紋岩類はDIの増加に伴って SiO_2 、 Na_2O と K_2O は連続的に増加し、 Al_2O_3 、 FeO^* 、 MgO と CaO は減少している。これらを花崗岩質岩類の平均変化曲線と比較すると、 MgO はやや少なく CaO はやや多い。最も大きな差異は K_2O であって明らかに少ない。しかしこれら火砕流のデイサイト一流紋岩類の K_2O は更新世後期に噴出したデイサイトよりも明らかに多い。このような典型的なインコンパティブル元素Kの含有量に明瞭に相違があることは、火砕流デイサイト一流紋岩類のマグマが花崗岩質岩や更新世後期のデイサイトのマグマとは成因に違いのあることを示唆している。

§ 6. 微量成分元素

よく知られているように一連の火山岩系列あるいはマグマ系列において結晶分化作用と共に液相からMgやCaなどと共に早期に選択的に取り去られる微量元素と、Kなどと共に晩期まで液相に濃集する元素がある。通常前者をコンパティブル、後者をインコンパティブル微量元素と呼んでいる。光量子放射法によって分析される微量元素のうちコンパティブル元素に属するものはCo, Cr, Ni, ScやSr, インコンパティブル元素はBa, Ce, Nb, Rb, YやZrである。第5図には分化指数DIとコンパティブルとインコンパティブル微量元素の関係を示した。

第5A図においてCo, ScとSrはDIの増加と共に減少している。しかしながら玄武岩マグマの結晶作用によって初期にかんらん石やスピネルに配分され、液相から取り去られる性質



第5図 分化指数(DI)-微量元素変化図。A: DI-コンパティブル元素, B: DI-インコンパティブル元素, 黒丸と白丸は第4図に同じ。

のあるCrとNiはDIとはなんら相関関係はなく、広い変化範囲を示すのが著しい特徴である。更新世後期のデイサイトも同様の傾向を示している。特に鬼首火砕流のものはCr 55～130, Ni 20～80 ppmと異常に高い。ソレイト系列デイサイトではCrとNiはそれぞれ10 ppm以下であり、同系列玄武岩—マフィック安山岩のそれらにこれらデイサイトはほぼ匹敵する。

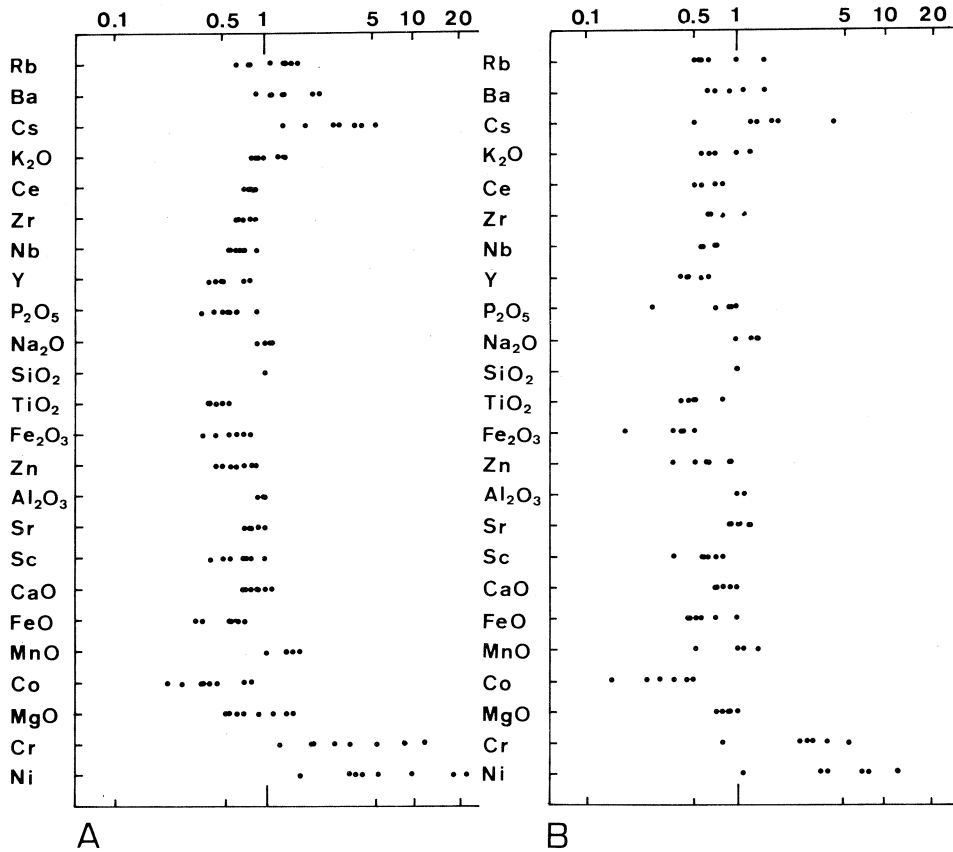
インコンパティブル元素においては(第5B図)Kとほぼ類似の結晶化学的挙動を示すBaとRbはDIの増加と共に連続的に増加し、火砕流のデイサイト—流紋岩類は更新世後期のデイサイト類よりもKと同様、一般に高い濃度を示している。一方Ce, Nb, YとZrはDIの増減と相関がなく、比較的狭い組成変化を示している。Nbの挙動は必ずしも明らかではないが、CeとYは主として燐灰石に、Zrはジルコンに配分される。これらの鉱物はマグマの組成がデイサイト質になると晶出するので多分DIとは明瞭な相関が認められないのであろう。

§ 7. ソレイト系列デイサイト規格化パターン

東北日本の火山フロントに沿って第四紀後半に噴出したソレイトおよびカルクアルカリ系列火山岩類が広く分布している。それらのうちソレイト系列玄武岩—安山岩—デイサイトは上部マントルかんらん岩が比較的浅いところで部分融解して生成した本源ソレイトマグマの主として結晶作用によって分化した系列であると考えられている。そこで成因が明らかであるソレイト系列デイサイト($\text{SiO}_2 = 68\%$)⁹⁾で規格化した火砕流デイサイトと第四紀後半のデイサイト(カルクアルカリ系列)の各酸化物と元素の濃集率を第6図にインコンパティブル元素からコンパティブル元素の順に配列した。なお火砕流流紋岩、第四紀後半デイサイトの一部(第1表, Nos. 2, 18, 19と21)はソレイト系列デイサイトとの $\text{SiO}_2\%$ の差が大きいため除外した。

火砕流デイサイトの最も大きな特徴はNiとCrが多いと同時にRb, Ba, Csなどが多く、カルクアルカリ系列火山岩類の性質を明瞭に示していることである。さらにCe, Zr, NbやYと同時に磁鉄鉱の分別作用によって取り去られる TiO_2 , Fe_2O_3 やFeOも少ない。第四紀後半デイサイトの濃度の割合も火砕流デイサイトほど顕著ではないが、ほぼ同様な傾向を示している。

火砕流を構成しているデイサイト質マグマの成因についてはほとんど明らかにされていない。もし玄武岩マグマの結晶分化作用によってデイサイトマグマが生成したと仮定すると、少なくとも玄武岩マグマはデイサイトマグマの10倍以上の量が存在しなければならない。しかしながら火砕流デイサイトが噴出した時期に、玄武岩が流出した地質学的事実または証拠は確認されて



第6図 ソレライト系列デイサイト規格化パターン。A：火砕流デイサイト，
B：更新世後期デイサイト。

いない。また火砕流デイサイトにみられるインコンパティブル元素 Rb, Ba, Cs, K とコンパティブル元素 Cr, Ni が共に多いことは玄武岩マグマの結晶分化作用によってはおこり得ない。今回行った主成分、微量元素の研究から火砕流を形成したデイサイトマグマの成因として次の2つの可能性が考えられる。1) 含水条件下における上部マントルかんらん岩の部分融解と2) 下部地殻はんれい岩あるいはマフィック組成の角閃岩の部分融解である。一の目瀉火山噴出物を構成している岩石はカルクアルカリ系列マフィック安山岩～中間組成の安山岩 ($\text{SiO}_2 = 53 \sim 60\%$) である。これらの安山岩類は上部マントルかんらん岩の水の多い条件下で部分融解によって生成したと考えられている。¹⁰⁾ そしてそれらの石基組成は Cr や Ni と共に K, Rb, Cs や Ba もソレライトマグマよりも高い。さらに一の目瀉安山岩マグマによって運搬されてきた下部地殻由来捕獲岩類の化学組成は島弧ソレライト～高アルミナ玄武岩質である^{11,12)}

東北日本の下部地殻の物質がその様な化学組成であると仮定すると、部分融解によってサリック組成のインコンパティブル元素と共に Cr や Ni の多い安山岩マグマが生成し得る。上部マントルあるいは下部地殻において生成した安山岩マグマが上部地殻内に到達し、ここにおいて結晶分化作用によって斜長石や輝石と磁鉄鉱が取り去られると火砕流を形成したデイサイトマグマは容易に生成される。1) と 2) のどちらの可能性が高いかは更にアイソトープ比や稀土類元素などを測定することによって明らかにされるであろう。

本研究にあたり、御協力を賜った東北大学理学部原子核理学研究施設の八木益男助教授、榊本和義氏ならびにライナックマシングループの皆様、東北大学サイクロトロン RI センターの藤田稔教授、山寺亮博士に深謝する。東北大学岩鉱教室の霜鳥洋氏には貴重なデータを使わせていただいた。また同氏ならびに金子信行、酒寄淳史、渡部均の諸氏には測定に際して協力していただいた。以上の方々に深く感謝する。

参 考 文 献

- 1) 守屋以智雄：日本地理学会予稿集 No. 14 (1978) 276.
- 2) 守屋以智雄：日本地理学会予稿集 No. 15 (1978) 104.
- 3) 守屋以智雄：日本地理学会予稿集 No. 16 (1979) 36.
- 4) 守屋以智雄：日本の火山地形，東大出版会 (1982) .
- 5) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku University **15** (1982) 224.
- 6) K. Tanida : Sci. Rep. Tohoku Univ., Ser. III **7** (1961) 47.
- 7) Y. Kawano and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **6** (1960) 409.
- 8) S. Aramaki, K. Hirayama and T. Nozawa : J. Geol. Soc. Japan **78** (1972) 39.
- 9) 吉田武義, 渡辺 均, 青木謙一郎：核理研研究報告 **16** (1983) 309.
- 10) K. Aoki and H. Fujimaki : Amer. Mineral. **67** (1982) 1.
- 11) K. Aoki : Contrib. Mineral. Petrol. **30** (1971) 314.
- 12) T. Tanaka and K. Aoki : J. Geol. **89** (1981) 369.

静岡県みかぶ帯・輝緑岩質分化岩床の地球化学的研究

理学部地学, 弘前大*, 仙台一高**

吉田武義・大貫仁*

花松俊一**・青木謙一郎

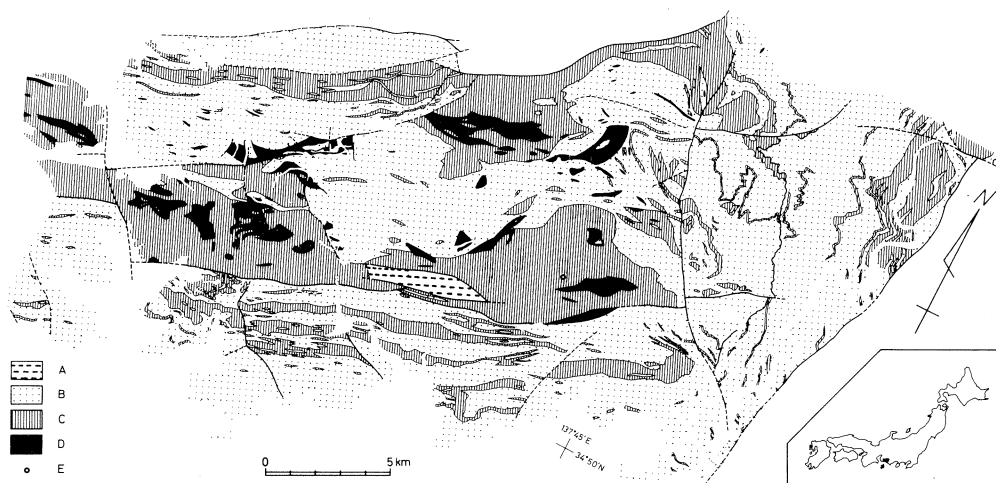
§ 1. はじめに

三波川変成帯のうち、みかぶ帯には、多様な苦鉄質、超苦鉄質貫入岩類が多量の苦鉄質火山岩類を伴って分布している。大貫¹⁾, Nakamura²⁾, 中山・加治³⁾らは、これらの超苦鉄質岩類と苦鉄質岩類とが同一マグマから派生したと考え、また初生マグマとしてピクライト玄武岩質なもの考えた。このような考えを検討するには、みかぶ帯においてどのような化学組成のマグマが存在したか、そして、そのマグマがどのような晶出分化作用を行ったかを明らかにする必要があるが、これらに関してはまだ不明な点が多く残されている。

マグマの晶出分化作用を調べるには、分化岩床の地球化学的研究が非常に有効である。本論では、静岡県みかぶ帯⁴⁻⁷⁾で発見された輝緑岩質分化岩床について地球化学的研究を行い、みかぶ帯を構成する火成岩を生成したマグネシウムに富む玄武岩質マグマの晶出分化過程を検討した。

§ 2. 観音山苦鉄質・超苦鉄質複合岩体

以下に述べる輝緑岩質分化岩床は静岡県浜名湖の北東方に位置する観音山複合岩体で発見された(第1図)。みかぶ帯に属する観音山複合岩体は多量の苦鉄質火山岩類とそれらを貫く苦鉄質～超苦鉄質岩類から構成される。複合岩体の北側には三波川帯の苦鉄質片岩、泥質片岩が南側には秩父古生層が分布している。観音山複合岩体構成岩石は、現在パンペリー石-アークチノ閃石相の変成作用を受けているが、その多くは本来の組織を明瞭に残しており、初生の鉱物組合せにもとづく岩石型を与えることができる。それらは、超苦鉄質貫入岩類、はんれい岩質ならびに輝緑岩質の貫入岩類、玄武岩質の塊状溶岩、枕状溶岩、ハイアロクラスタイト、そしてこれらと同質の碎屑岩⁸⁾である。周囲の地層と複合岩体との境界部にはしばしば超苦鉄質岩類の貫入が認められ、両者は一般には断層で接しているものと思われる。



第1図 Generalized geological map showing distribution of greenstones⁴⁻⁷⁾ and locality of the diabasic differentiated sill.

A: Idaira formation, B: pelitic and psammitic rocks, C: mafic rocks, D: ultramafic rocks, E: locality of diabasic differentiated sill.

§ 3. 輝緑岩質分化岩床

輝緑岩質分化岩床は複合岩体を南北に切る都田川沿いで、上下を苦鉄質火山岩類に挟まれて露出する。岩床の厚さは55cmにすぎないが、基底部に厚さ5cmを超える明瞭な結晶集積相を有する。この基底部は変質した自形～半自形かんらん石及び単斜輝石斑晶(2×2～0.2×0.15mm)と細粒の石基からなるマグネシウムに富む斑状玄武岩である。石基は主に0.15×0.05mm以下の単斜輝石、ときに長さ0.3mmに達する変質した斜長石であり、少量の緑泥石、アクチノ閃石及び曹長石を伴う。褐色のホルンブレンドが稀に石基中に認められる。僅かだが変質した斜長石中にハイドログランダイトがみられる。

岩床の中央部および上部は間粒状組織を呈する無斑晶状玄武岩である。構成鉱物は0.6×0.4mmに達する単斜輝石、アクチノ閃石をよく伴う蛇紋石-緑泥石集合体に完全に変質したかんらん石、曹長石化した斜長石、アクチノ閃石そしてクリノゾイサイトである。稀に褐色ホルンブレンドがみられる。微細な不透明鉱物とスフェーンを副成分鉱物として有する。岩床の最上部には明瞭な急冷部はみられず、現在の岩床と上部の岩石との境は断層の可能性が強い。

§ 4. 分析方法と分析結果

この輝緑岩質分化岩床における晶出分化作用による組成変化を検討するために9個の試料に

第1表 Chemical compositions of rocks from Mikabu diabasic sill.

No.	427-1	427-2	427-3	427-4	427-5	427-6	427-7	427-8	427-9
D.(cm)	1.4	4.7	9.2	20.9	25.1	33.0	47.0	52.2	54.0
wt.%									
SiO ₂	41.92	42.67	43.11	43.51	43.08	43.36	43.96	44.31	44.51
TiO ₂	1.30	1.37	1.34	1.40	1.33	1.33	1.41	1.32	1.32
Al ₂ O ₃	10.26	11.18	11.76	11.80	12.36	12.21	12.14	13.10	12.27
Fe ₂ O ₃	3.21	2.79	3.43	2.98	2.83	3.10	3.12	3.39	3.77
FeO	9.05	9.08	8.42	8.46	9.14	8.76	8.57	8.77	7.66
MnO	0.21	0.19	0.18	0.18	0.18	0.19	0.19	0.19	0.19
MgO	16.31	15.30	14.29	13.74	13.39	13.05	11.79	11.47	10.69
CaO	10.14	9.74	9.37	10.03	9.58	9.93	10.22	10.13	11.12
Na ₂ O	1.14	1.77	2.23	1.87	2.32	2.41	2.86	3.01	2.77
K ₂ O	0.04	0.06	0.04	0.08	0.03	0.04	0.09	0.02	0.06
H ₂ O ⁺	5.61	5.37	5.12	5.19	5.08	4.87	5.02	4.07	4.75
H ₂ O ⁻	0.33	0.26	0.36	0.31	0.34	0.43	0.32	0.14	0.37
P ₂ O ₅	0.11	0.12	0.13	0.11	0.14	0.13	0.11	0.14	0.12
Cr ₂ O ₃	0.18	0.15	0.14	0.13	0.13	0.12	0.11	0.10	0.11
NiO	0.09	0.07	0.06	0.06	0.06	0.05	0.05	0.04	0.04
Total	99.90	100.12	99.98	99.85	99.99	99.98	99.96	100.20	99.75
Recalculated analyses on water-free basis									
wt.%									
SiO ₂	44.65	45.17	45.66	46.14	45.57	45.82	46.48	46.18	47.11
TiO ₂	1.38	1.45	1.42	1.48	1.41	1.40	1.49	1.38	1.39
Al ₂ O ₃	10.93	11.83	12.46	12.51	13.07	12.91	12.83	13.66	12.99
Fe ₂ O ₃	2.88	2.95	2.92	2.98	2.91	2.90	2.99	2.88	2.89
FeO	10.13	9.61	9.56	9.13	9.74	9.58	9.34	9.73	9.08
MnO	0.22	0.20	0.19	0.19	0.19	0.20	0.20	0.20	0.20
MgO	17.37	16.20	15.13	14.57	14.16	13.79	12.46	11.96	11.30
CaO	10.81	10.31	9.93	10.63	10.13	10.49	10.80	10.56	11.76
Na ₂ O	1.21	1.87	2.36	1.98	2.45	2.55	3.02	3.14	2.93
K ₂ O	0.04	0.06	0.04	0.08	0.03	0.04	0.10	0.02	0.06
P ₂ O ₅	0.12	0.13	0.14	0.12	0.15	0.14	0.12	0.15	0.13
Cr ₂ O ₃	0.18	0.15	0.14	0.13	0.13	0.12	0.11	0.10	0.11
NiO	0.09	0.07	0.06	0.06	0.06	0.05	0.05	0.04	0.04
Total	100.01	100.00	100.01	100.00	100.00	99.99	99.99	100.00	99.99
ppm									
Sc	21.2	28.5	25.7	27.2	27.1	25.1	22.6	28.4	32.2
Cr	1212	1048	924	923	865	843	760	711	729
Co	82.2	80.7	78.5	71.4	72.2	69.8	68.2	69.9	62.0
Ni	677	549	500	464	451	412	371	348	323
Zn	38	66	69	78	76	79	58	74	80
Rb	0.8	2.6	1.0	1.6	1.7	2.4	0.8	n.d.	0.7
Cs	0.59	1.06	0.15	0.38	0.19	0.32	n.d.	n.d.	n.d.
Sr	16.6	17.9	22.1	18.7	43.5	38.7	98.8	155	170
Ce	6.3	6.8	2.6	2.1	5.5	6.0	8.0	5.1	5.7
Y	16.0	17.5	18.6	17.2	19.4	18.1	19.0	19.7	20.6
Nb	2.3	4.2	3.4	4.1	2.8	3.4	3.5	2.9	3.9
Zr	47.7	54.3	54.7	53.0	57.2	55.6	57.6	62.6	62.9

Analyst for major elements, H. Onuki. If Fe₂O₃ in wt. % is higher than (TiO₂+1.5), the 'excess' is converted to FeO as recommended by Irvine and Baragar¹⁰⁾

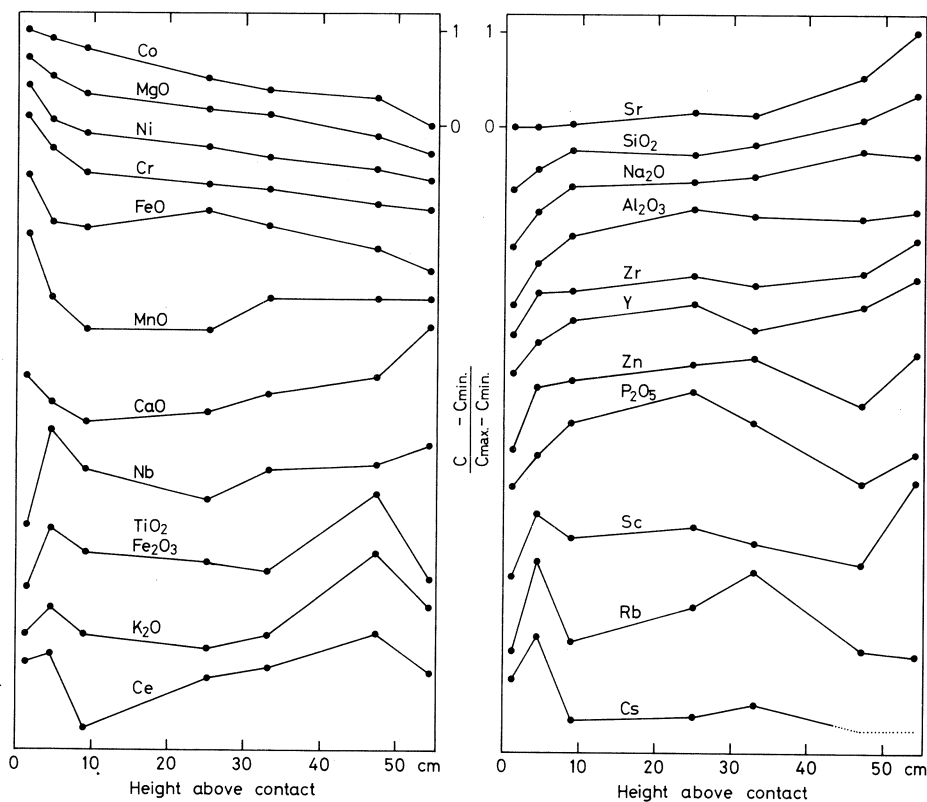
D.(cm): Height above contact.

ついて化学分析を行った。主成分元素は、湿式分析法により定量した。また、Sc, Cr, Co, Ni, Zn, Rb, Cs, Sr, Ce, Y, Nb, Zrの12微量元素については、東北大学原子核理学研究施設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⁹⁾。分析結果を、試料採取位置の岩床基底部からの距離とともに、第1表に示す。分析値の無水への再計算にあたってはIrvine & Baragar⁶⁾の方法に従った。以下の議論ではこの再計算値を使用した。このうち、No. 427-4とNo. 427-8は上下の値に対して異常な組成を持つので以下の議論では使用しなかった。これらの試料はMgOが17%から11%におよぶ組成変化を示している。

§ 5. 考 察

5.1 輝緑岩質分化岩床にみられる組成変化

輝緑岩質分化岩床における各分析元素の挙動を調べる為に、横軸に岩床基底部からの距離を

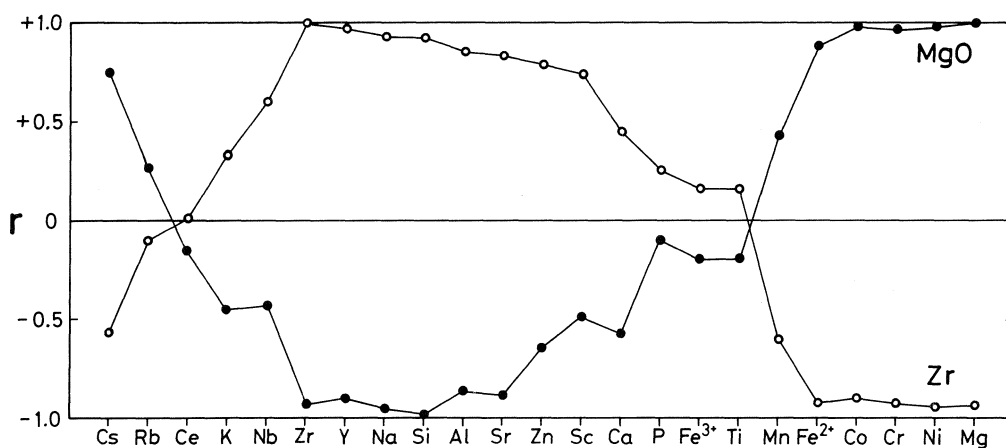


第2図 Variation of elemental concentrations versus the height above contact for the diabasic differentiated sill.

第2表 Correlation coefficients for 7 samples from Mikabu diabasic sill.

	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	FeO	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	Sc
SiO ₂	0.20	0.77	0.20	-0.95	-0.40	-0.98	0.61	0.92	0.51	-0.01	0.53
TiO ₂		0.21	1.00	-0.33	-0.30	-0.19	-0.22	0.39	0.79	-0.27	-0.18
Al ₂ O ₃			0.21	-0.73	-0.78	-0.85	0.08	0.93	0.15	0.55	0.46
Fe ₂ O ₃				-0.33	-0.30	-0.19	-0.22	0.39	0.79	-0.27	-0.18
FeO					0.49	0.89	-0.49	-0.88	-0.54	-0.00	-0.65
MnO						0.43	-0.63	0.07	-0.75	-0.47	
MgO							-0.55	-0.95	-0.45	-0.09	-0.48
CaO								0.28	0.39	-0.53	0.34
Na ₂ O									0.47	0.21	0.40
K ₂ O										-0.67	-0.09
P ₂ O ₅											0.37

	Cr	Co	Ni	Zn	Rb	Cs	Sr	Ce	Y	Nb	Zr
SiO ₂	-0.93	-0.93	-0.94	0.59	-0.35	-0.71	0.92	0.09	0.89	0.52	0.93
TiO ₂	-0.29	-0.04	-0.26	-0.06	0.09	0.00	0.04	0.44	0.12	0.45	0.17
Al ₂ O ₃	-0.95	-0.81	-0.92	0.85	0.05	-0.69	0.54	-0.09	0.88	0.37	0.86
Fe ₂ O ₃	-0.29	-0.04	-0.26	-0.06	0.09	0.00	0.04	0.44	0.12	0.45	0.17
FeO	0.87	0.81	0.90	-0.65	0.16	0.50	-0.82	-0.05	-0.85	-0.76	-0.92
MnO	0.62	0.31	0.56	-0.78	-0.23	0.38	-0.09	0.45	-0.68	-0.42	-0.60
MgO	0.97	0.98	0.98	-0.64	0.27	0.75	-0.88	-0.15	-0.90	-0.43	-0.93
CaO	-0.32	-0.63	-0.40	0.01	-0.48	-0.27	0.84	0.40	0.35	0.18	0.45
Na ₂ O	-0.99	-0.88	-0.98	0.69	-0.16	-0.74	0.71	0.06	0.89	0.48	0.89
K ₂ O	-0.40	-0.36	-0.42	-0.17	-0.28	-0.17	0.50	0.64	0.23	0.46	0.33
P ₂ O ₅	-0.26	-0.09	-0.22	0.72	0.44	-0.18	-0.22	-0.58	0.37	-0.03	0.26
Sc	-0.46	-0.47	-0.51	0.75	0.18	-0.03	0.53	-0.21	0.68	0.66	0.75
Cr		0.91	0.99	-0.73	0.14	0.75	-0.74	-0.04	-0.91	-0.46	-0.92
Co			0.94	-0.62	0.24	0.72	-0.89	-0.21	-0.85	-0.33	-0.89
Ni				-0.75	0.10	0.69	-0.79	-0.10	-0.90	-0.52	-0.94
Zn					0.37	-0.33	0.37	-0.29	0.76	0.55	0.79
Rb						0.63	-0.49	0.13	-0.23	0.34	-0.10
Cs							-0.60	0.22	-0.70	0.15	-0.57
Sr								0.24	0.78	0.38	0.83
Ce									-0.14	0.10	0.02
Y										0.44	0.97
Nb											0.60



第3图 Correlation coefficient patterns showing how MgO and Zr correlate with other elements in the diabasic differentiated sill.

とった組成変化図を第2図に、各元素間の相関係数を第2表に示した。第2図においては、各元素の濃度変化パターンを比較する為に、すべての元素について、岩床内での濃度変化幅を同一に規格化し、変化幅をそろえて表示してある。横軸に各元素を、縦軸にMgO及びZrに対する各元素の相関係数をとった相関係数パターンを第3図に示す。第3図から、分析元素はコンパティブル元素であるMgOと高い正相関を示し、インコンパティブル元素であるZrと高い逆相関を示すもの(Ni, Cr, Co, Fe^{2+}), Zrと高い正相関を示し、MgOと高い逆相関を示すもの(Y, Na, Si, Al, Sr), そしてこれらのいずれとも高い相関を示さないものに分類できることが分かる。高い相関を示さない元素の中にはK, Rb, Cs, Ce, NbというLIL元素が含まれている事は注目に値する。しかもこれらの元素の示す挙動は第2図からも明らかなようにかなり似かよっている。一般にはインコンパティブル元素として挙動するこれらの元素のここでみられる異常な挙動はおそらく輝緑岩質岩床が受けた変質あるいは低度の変成作用の影響によるものであろう。その他のMgO及びZrと高い相関を示さない元素としてはZn, Sc, Ca, P, Fe^{+3} , TiそしてMnがある。 Fe^{+3} がTiと全く同じ挙動を示すのは、全鉄の2

第3表 Calculated abundances of elements from regression curves in the Mikabu diabasic differentiated sill.

No. D. (cm)	1 0	2 5	3 10	4 15	5 20	6 25	7 30	8 35	9 40	10 45	11 50	12 55
wt. %												
SiO ₂	44.34	45.24	45.65	45.76	45.73	45.67	45.67	45.78	46.02	46.37	46.78	47.16
TiO ₂	1.41	1.41	1.42	1.42	1.42	1.42	1.42	1.42	1.42	1.43	1.43	1.43
Al ₂ O ₃	10.53	11.83	12.59	12.98	13.10	13.07	12.97	12.87	12.81	12.81	12.89	13.02
Fe ₂ O ₃	2.91	2.91	2.92	2.92	2.92	2.92	2.92	2.92	2.92	2.93	2.93	2.93
FeO	10.26	9.71	9.50	9.49	9.57	9.66	9.70	9.66	9.53	9.36	9.18	9.09
MnO	0.23	0.20	0.19	0.18	0.19	0.19	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
MgO	17.99	16.11	15.02	14.47	14.23	14.11	13.98	13.73	13.31	12.72	11.97	11.14
CaO	11.16	10.24	9.89	9.88	10.02	10.20	10.34	10.45	10.54	10.71	11.12	11.96
Na ₂ O	0.83	1.91	2.40	2.54	2.52	2.47	2.48	2.59	2.78	2.97	3.06	2.85
K ₂ O	0.04	0.04	0.04	0.05	0.05	0.05	0.06	0.06	0.06	0.06	0.07	0.07
P ₂ O ₅	0.12	0.13	0.14	0.15	0.15	0.15	0.14	0.14	0.13	0.12	0.12	0.13
Cr ₂ O ₃	0.19	0.15	0.13	0.13	0.12	0.13	0.13	0.12	0.12	0.11	0.11	0.11
NiO	0.09	0.07	0.06	0.06	0.06	0.06	0.06	0.05	0.05	0.05	0.04	0.04
Total	100.10	99.95	99.95	100.03	100.08	100.10	100.07	99.99	99.89	99.84	99.90	100.13
ppm												
Sc	21.6	25.3	27.9	29.1	28.9	27.6	25.5	23.3	21.9	22.3	25.8	34.0
Cr	1297	1041	910	859	851	857	858	844	813	771	737	734
Co	82.4	80.7	78.2	75.6	73.3	71.7	70.7	70.3	69.8	68.7	66.1	60.8
Ni	717	564	482	447	437	437	435	424	403	374	344	325
Zn	35	59	74	83	85	82	76	69	63	61	66	83
Rb	1.7	1.7	1.6	1.5	1.5	1.4	1.4	1.3	1.3	1.2	1.1	1.1
Sr	14.9	18.8	24.7	30.4	34.8	38.1	41.5	47.4	59.5	82.5	122	186
Ce	5.2	5.3	5.5	5.6	5.7	5.8	6.0	6.1	6.2	6.3	6.5	6.6
Y	15.2	17.6	18.9	19.4	19.4	19.1	18.7	18.3	18.2	18.6	19.5	21.0
Nb	3.1	3.2	3.2	3.3	3.3	3.4	3.4	3.5	3.5	3.6	3.6	3.7
Zr	46.3	52.8	56.3	57.7	57.7	57.0	56.0	55.4	55.5	56.8	59.5	63.9

D. (cm) : Height above contact.

価と3価の鉄への分配に際してTiの値を用いた為である¹⁰⁾。Ti, Mn, PがMgOと高い相関を示さないのはこれら元素の濃度が岩床内でほとんど変わらない為である。ScとZnの挙動については、はっきりしたことは言えない。

コンパティブル元素(MgO, Ni, Cr, Co)が一見比較的単調に岩床の基底部から上方に向かって減少するように見えるのに対して、インコンパティブル元素が示す組成変化曲線は明らかに途中で変曲点を有している。また、主成分であるCaOの濃度は一度急激に低下した後、徐々に増加する。これらの事実は、この岩床の示す組成変化が単純な晶出分化モデルで説明しうるものではないことを示している。

この輝緑岩質分化岩床における晶出分化作用を定量的に検討する為に、組成変化径路に対する曲線のあてはめを行った。Nb, TiO₂, Fe₂O₃, K₂O, Ce, Rbについては1次の多項式を、その他の元素については4次の多項式を用いた。Csについてはあてはめを行わなかった。第3表は、得られた式を用いて計算した、岩床基底部から5cmおきの化学組成である。

5.2 2段階の晶出分化作用

岩石記載から明らかのようにこの輝緑岩質岩床はその基底部に、ときにクロム鉄鉱を包有するかんらん石と単斜輝石からなる集積相を有しており、その上部では基本的には無斑晶質である。無斑晶質部分で系統的な組成変化が認められるということは、この岩床においては石基部分の固化に際して晶出分化作用が行われたことを示している。微斑晶として斜長石が認められることから、石基部分の固化に際しては斜長石が分別鉱物に加わったことが予想される。

第3表に示した岩床内での組成変化が現在確認できるかんらん石、かんらん石中に包有されるクロム鉄鉱、単斜輝石、斜長石の晶出分別によるものと考え、第3表のデータとこれらの鉱物の化学組成とを用いて、Wright & Doherty法¹¹⁾により、分別鉱物の組合せを検討しその量比を見積ることが可能である。この方法は、線形計画法と最小自乗法を用いて、未知数が N 個、式の数が M で、 $N < M$ の場合の最適解を求める方法である。得られる結果は、晶出鉱物の組成の取り方で異なり、一義的ではなく、解のうちのどれが正解かを選択する必要があるが、主成分を総て考慮にいれている限り、結果にそれほど大きな差異はない。第4表に、岩石記載と調和的で、しかも残差の小さい計算結果を示した。例えば、00-05は岩床基底部の組成のマグマから5cm上部の組成の残液を生成するのに必要な晶出鉱物の組合せと量比、ならびに残液の量を、残差2乗和とともに示している。残液の量が決ると集積相の組成を計算することができ、第4表の下にその結果を一緒に示した。得られた濃度がマイナスの場合、その値をゼロとしたので合計が100%を超えることがあるが、100%からのズレで示される計算誤差が5

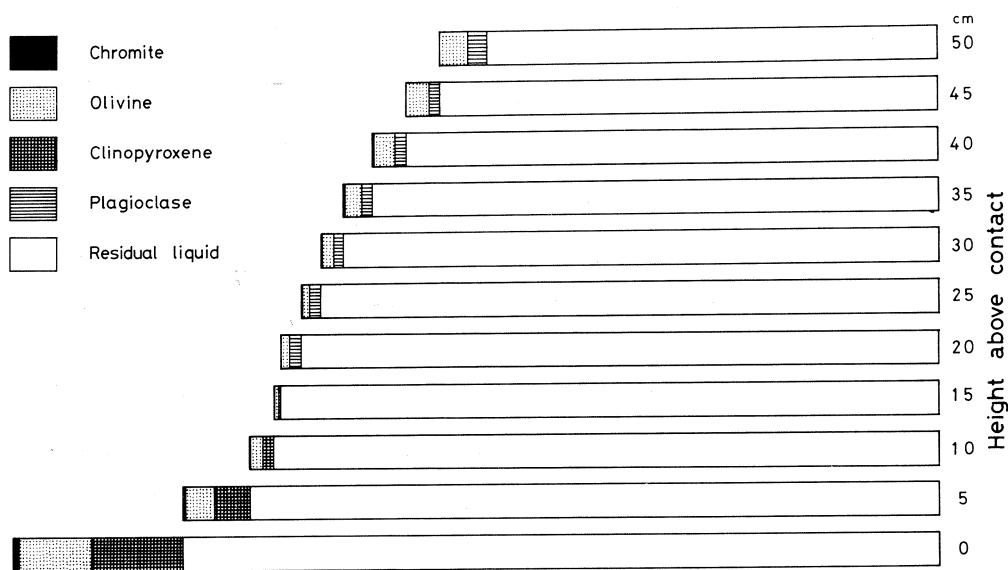
第4表 Results of mixing calculations¹¹⁾ based on 12 major elements and calculated compositions of cumulates using the percent of residual liquids.

No.	00-05	05-10	10-15	15-20	20-25	25-30	30-35	35-40	40-45	45-50	50-55
Cmt	0.57	0.22	0.01	-	-	0.01	0.03	0.05	0.06	-	-
O1	7.96	4.09	1.90	0.73	1.36	1.51	1.96	2.77	3.39	4.09	5.18
Cpx	9.89	4.67	1.56	-	-	-	-	-	-	-	-
Pl	-	-	-	0.11	1.63	1.68	1.60	2.06	2.22	2.47	4.46
Total	18.42	8.98	3.47	0.84	2.99	3.20	3.59	4.88	5.67	6.56	9.64
R.Liq.%	81.58	91.02	96.53	99.16	97.01	96.80	96.41	95.12	94.33	93.44	90.36
ΣR^2	2.089	0.304	0.009	0.011	0.002	0.003	0.005	0.046	0.040	0.008	0.047
Compositions of cumulates											
wt.%											
SiO ₂	40.35	41.08	42.59	49.30	47.68	45.67	42.72	41.10	40.20	40.53	43.22
TiO ₂	1.41	1.31	1.42	1.42	1.42	1.42	1.42	1.42	1.25	1.43	1.43
Al ₂ O ₃	4.77	4.13	1.74	-	14.07	16.09	15.65	14.04	12.81	11.67	11.67
Fe ₂ O ₃	2.91	2.81	2.92	2.92	2.92	2.92	2.92	2.92	2.75	2.93	2.93
FeO	12.70	11.84	9.78	0.05	6.65	8.45	10.77	12.19	12.36	11.92	10.02
MnO	0.36	0.30	0.47	-	0.19	-	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
MgO	26.32	27.16	30.32	42.80	18.12	18.04	20.69	21.92	23.13	23.40	19.75
CaO	15.23	13.79	10.17	-	4.18	5.97	7.39	8.70	7.71	4.87	3.25
Na ₂ O	-	-	-	4.90	4.14	2.17	-	-	-	1.69	5.03
K ₂ O	0.04	0.04	-	0.05	0.05	-	0.06	0.06	0.06	-	0.07
P ₂ O ₅	0.08	0.03	-	0.15	0.15	0.45	0.14	0.33	0.30	0.12	0.03
Cr ₂ O ₃	0.36	0.35	0.34	0.26	0.10	0.12	0.18	0.21	0.22	0.18	0.11
NiO	0.18	0.18	0.19	0.21	0.06	0.06	0.09	0.11	0.11	0.10	0.07
Total	104.71	103.02	99.94	102.06	99.73	101.36	102.23	103.20	101.10	99.04	97.78
ppm											
Sc	5.2	-	-	52.7	71.1	91.1	84.6	50.6	15.3	-	-
Cr	2431	2369	2329	1803	656	827	1234	1448	1512	1255	765
Co	89.9	106	151	347	125	102	81.4	80.1	88.1	106	116
Ni	1395	1395	1456	1627	437	498	730	833	885	801	522
Zn	-	-	-	-	182	264	264	186	96	-	-
Rb	1.7	2.7	4.4	1.5	4.8	1.4	4.1	1.3	3.0	2.6	1.1
Sr	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Ce	4.8	3.3	2.7	-	2.5	-	3.3	4.2	4.5	3.5	5.6
Y	4.6	4.4	5.0	19.4	29.1	31.2	29.4	20.3	11.5	5.8	5.4
Nb	2.7	3.2	0.4	3.3	0.1	3.4	0.7	3.5	1.8	3.6	2.7
Zr	17.5	17.3	17.4	57.7	80.4	87.3	72.1	53.5	33.9	18.3	18.3

%を超えることはない。

第4図は以上の結果を用いて、輝緑岩質岩床内での晶出鉱物の組み合わせ、その量比、残液量の変化を図示したものである。これらの結果から、次の事が言える。

- (1) 主要な晶出分別鉱物が、レベル15cmを境にして、それ以下ではかんらん石と単斜輝石であるのに対して、それより上部ではかんらん石と斜長石である。
- (2) レベル15cmから下部にゆくに従ってかんらん石、単斜輝石集積相の量は増加しており、基底部で最も多い。
- (3) レベル15cmからレベル20cmでは組成変化があまりなくレベル20cmから上方へと、晶出分別鉱物の量比が漸移的に増加している。最上部で最も晶出分別量が多いという事は、この部分が岩床の天井の、母岩と接して急冷した場所ではないことを示している。従って、母岩と接し



第4図 Variation in calculated modal compositions of cumulus minerals in the diabasic differentiated sill.

て急冷した部分は、おそらく、断層で切られて失われたのであろう。

(4) クロム鉄鉱はレベル10cm以下では必ず算出されるが、15cm以上では算出されないことがある。

結局、この輝緑岩質岩床を形成した初生マグマに最も近いのはレベル15cmの組成の液であり、この液はクロム鉄鉱を包有したかんらん石と単斜輝石を斑晶として有していたと考えることができる。このマグマが地下の割れ目に貫入する時あるいは貫入後、斑晶鉱物はすみやかに沈降し、岩床の下部に集積相を形成した。このマグマが冷却するにつれ、液からかんらん石や斜長石が晶出し、これらの鉱物を分別しながら岩床の固化が進行し、結果として、現在見られるような岩床内組成変化が形成されたと推定される。このような考えは岩床の岩石記載と調和的である。従って、この輝緑岩質岩床においては、ポリバリックな結晶分別作用が短期間のうちに相次いで行われたことになる。

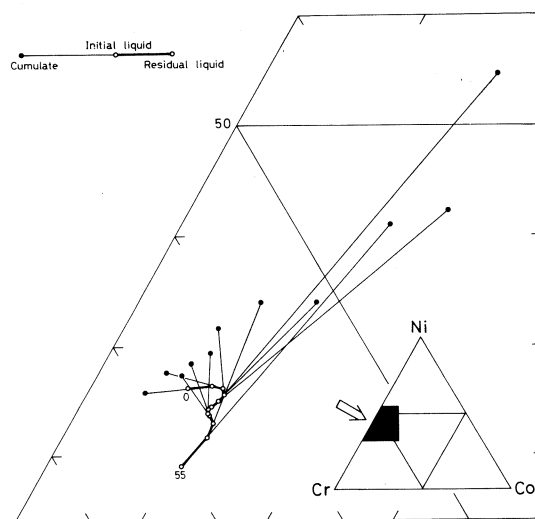
5.3 コンパティブル元素の挙動

Cr, Ni, Co はMgOと高い正相関を示し、岩床の基底部から上部へと、その濃度が低下している。第2図に示したような晶出分化に伴う組成変化パターンは、晶出鉱物あるいは鉱物群と液との間の元素の分配係数 ($D = C_{\text{mineral}} / C_{\text{liquid}}$) に依存している。Cr, Ni, Co などの遷移元素はいずれも、マグマから早期に晶出する苦鉄質鉱物中に選択的に濃集する代表的

なコンパティブル元素であるが、その分配係数の大小は、必ずしもイオン半径の差に従わず、特定の鉱物のある配位数をもつ位置に濃集する。従って、これら元素の含有量とその変化を調べることにより、マグマの分化に関与した鉱物の種類と量比を推定することが可能である。富樫¹²⁾も述べているようにNiはかんらん石に著しく濃集し、Coもかんらん石にやや濃集する。Crは輝石、磁鉄鉱、ザクロ石、クロムスピネルに濃集する。またCu、Tiは磁鉄鉱に濃集する。

かんらん石と輝石は代表的なマグマからの早期晶出鉱物であるが、輝緑岩岩床におけるこれらの鉱物の晶出分化への関与の様子をみる為に第5図を作成した。第5図はNi、Cr、Coを頂点にとった三角図に集積相と

液の組成を点示し、対応する組成を線で結んだものである。第5図から明らかなように、岩床基底部から上部への集積相と液の組成変化は単調ではない。液の組成は最初Cr比が減少し、Co比が増加する径路をとっているがレベル15cmからは、多少の変動をしながらもNi比が減少し、Cr比が増加する径路をとる。一方、集積相の組成は最初、対応する液よりCr比に富



第5図 Ni-Cr-Co diagram. Numbers 0 and 55 correspond to the compositions given in Table 3.

み、Co比に乏しい組成を持つが、次第にNi比とCo比に富んでくる。その後、集積相の組成はある範囲内でかなり変動するが、そのNi/Co比が液のNi/Co比よりも小さくなることはない。これらの事実も、先に述べた、かんらん石は総てのレベルで分別していたと考えられるのに対して、最下部で分別していた単斜輝石が、レベル15cm以上では分別に関与しなかったとする考えと調和的である。

5.4 インコンパティブル元素の挙動

Zr、YなどのLIL元素は玄武岩中の早期晶出鉱物において小さい分配係数を持ち、Rayleigh fractionationを仮定した場合は、 $C_l / C_0 = F^{(D-1)}$ に従って固化率(F)の増加、すなわちマグマの晶出分化の進行とともにその濃度(C_l)は指数関数的に増加する。本輝緑岩岩床においても、これらのインコンパティブル元素はMgO、Cr、Ni、Coなどのコンパティブル元素

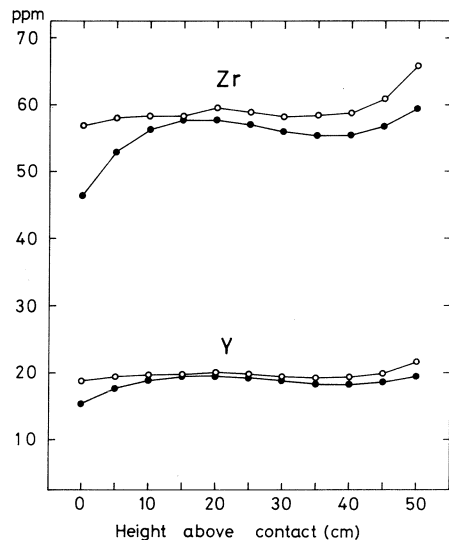
と高い逆相関を示し、岩床の上部になるにつれて、概して、その濃度が増加している。しかしながら、第2図からも明らかなように、その増加傾向は単調ではない。組成変化パターンを細かくみると、レベル10cm近くまでは比較的急激に濃度が増加し、その後、増加率が徐々に低下し、元素によってはレベル30cmを超えたところで一度濃度の低下が起る。そして、その後、最上部へと濃度が比較的急激に増加する。これらの元素の示す組成変化パターンのうち、レベル10cm以下の基底部分での変化は、この部分での、集積相の増加するパターンとよく対応している。集積鉱物相中には、これらLIL元素はあまり取り込まれないことから、もし分化物中において集積鉱物相が占める割合が高くなると、液中のLIL元素濃度が一定ならば、バルクの濃度は低下する。つまり、この輝緑岩岩床においてZrやYのようなインコンパティブル元素が示す異常な組成変化パターンは晶出鉱物相の集積によるインコンパティブル元素濃度の希釈効

第5表 Calculated abundances of Zr and Y from regression curves and the recalculated compositions(*) on phenocryst-free basis.

No. D.(cm)	1 0	2 5	3 10	4 15	5 20	6 25	7 30	8 35	9 40	10 45	11 50
Y	15.2	17.6	18.9	19.4	19.4	19.1	18.7	18.3	18.2	18.6	19.5
Y*	18.6	19.3	19.6	19.6	20.0	19.7	19.4	19.2	19.3	19.9	21.6
Zr	46.3	52.8	56.3	57.7	57.7	57.0	56.0	55.4	55.5	56.8	59.5
Zr*	56.8	58.0	58.3	58.2	59.5	58.9	58.1	58.2	58.8	60.8	65.9

果の結果と考えることが可能である。

このような考えを検討する為に各レベルにおけるバルクのインコンパティブル元素濃度を、それが総て液中に入っていると仮定して、液中での濃度を計算してみた。第5表はZr, Yについての計算結果であり、それを元の濃度とともに図示したのが第6図である。以上の操作によって補正した、インコンパティブル元素の濃度変化パターンは、バルク濃度の示すパターンに比べてよりRayleigh fractionationモデルから期待されるものに近く、沈積鉱物の濃集によるインコンパティブル元素濃度希釈モデル

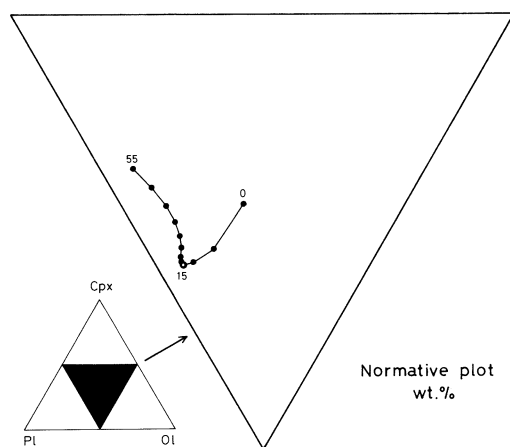


第6図 Variation diagram showing the differences between the calculated abundances from regression curves (black circles) and the recalculated compositions on phenocryst-free basis (open circles).

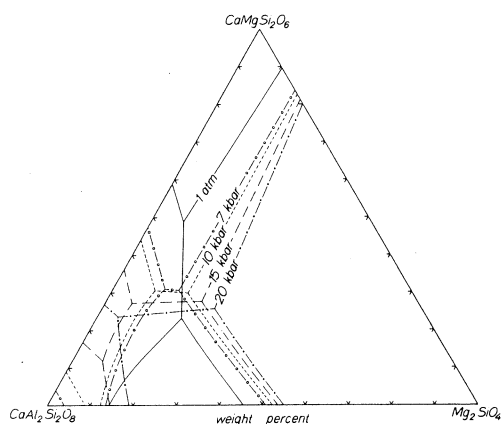
を強く支持している。レベル15cm以下で Na_2O や Al_2O_3 が示す濃度変化も、この考えでうまく説明できる¹³⁾。

5.5 OI-Cpx-Pl系による考察

先に得られた5cmおきの集積相と液相の組成変化をかんらん石(OI)-単斜輝石(Cpx)-斜長石(Pl)系にプロットしたのが第7図である。この図において、液は、岩床の下部では斑晶のかんらん石と単斜輝石が、そして上部では石基かんらん石と斜長石が分別する結果、V字型の組成変化径路を辿っている。斑晶鉱物としてみられた単斜輝石が石基ステージでは無くなり、かわりに斜長石が出現するのは単斜輝石の安定領域が石基ステージで狭まり、替りに斜長石の安定領域が広がったことを意味している¹⁴⁾。第8図はPresnall et al.¹⁵⁾によるDiopside-Forsterite-Anorthite系での圧力の変化にともなう liquidus boundary の移動を示した相図である。この相図からも、より高圧下でかんらん石と単斜輝石を晶出分別していたマグマが、低圧下にもたらされてかんらん石と斜長石を晶出し、結果として、V字型の組成変化径路が形成されることが分かる。



第7図 Differentiation trends of the diabaasic sill in weight proportions normative olivine:plagioclase:clinopyroxene. Numbers are height above contact.

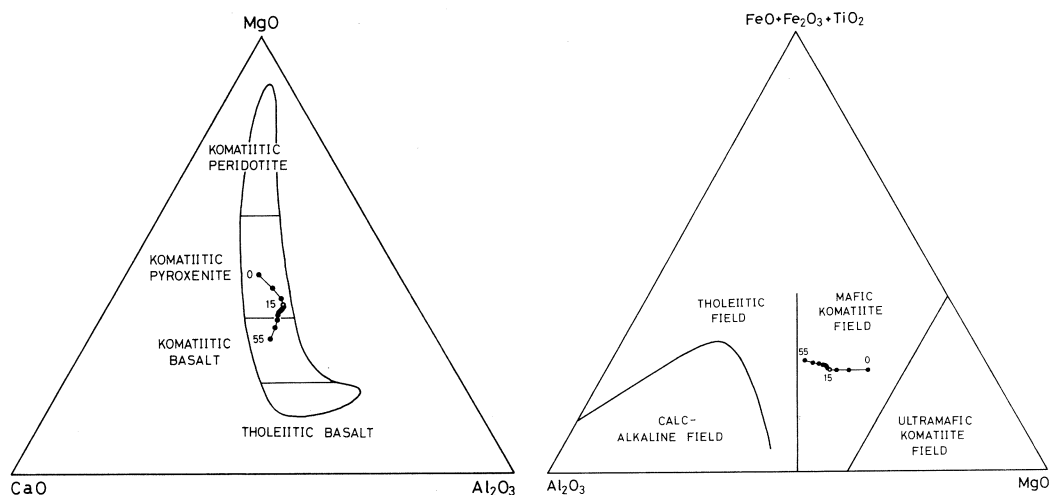


第8図 Composite diagram showing changes in liquidus boundary lines with pressure after Presnall et al.¹⁵⁾

5.6 マグマの岩石系列

以上の考察の結果、本輝緑岩質岩床を形成した初生マグマはレベル15cmでの組成であり、このマグマがより高圧下で晶出した斑晶鉱物を分別して生成したのが、それより下部の岩石であり、その場での冷却に伴い晶出した鉱物が分別して形成されたのがそれより上部の岩石であることが分かった。以下ではこのようなマグマの岩石系列について検討する。

レベル15cmでの岩石組成の最も特徴的なことはそのMgOが非常に多いことである。そこで、この組成を超苦鉄質マグマであるコマチアイトの組成と比較してみた（第9図 a¹⁶⁾, b¹⁷⁾）。これらの図において、本輝緑岩岩床を形成した初生マグマは、Komatiitic pyroxenite~Mafic komatiite field に点示され、コマチアイトに分類できる。但し、典型的なコマチアイトと比較した場合、このマグネシウムに富むマグマはよりSiO₂に乏しく、TiO₂に富む特徴を持っている。



第9図 Differentiation trends of the diabasic sill in MgO-CaO-Al₂O₃ diagram¹⁶⁾ (a: left) and Jensen plot¹⁷⁾ (b: right).

計算によって求められた各レベルでの化学組成（第3表）をSiO₂-Alkali図に示したが（第10図），すべてIrvine & Baragar⁶⁾のSubalkaline領域に点示される。そして、レベル15cm以下のかんらん石と単斜輝石を分別集積した部分は低アルカリソレイト領域に、初生マグマとその低圧下での分化物は高アルカリソレイト領域に落ちる¹⁸⁾。

従って、本輝緑岩質岩床を形成した初生マグマはコマチアイト組成を持った、高マグネシウム高アルカリソレイトであり、その低圧下での分化物も高アルカリソレイト組成を持つ。

このマグマが、より深部で晶出したクロム鉄鉱、かんらん石、単斜輝石を多量に分別集積すると、インコンパティブル元素は希釈されて、形成される岩石の組成は低アルカリソレライト領域側に落ちる。

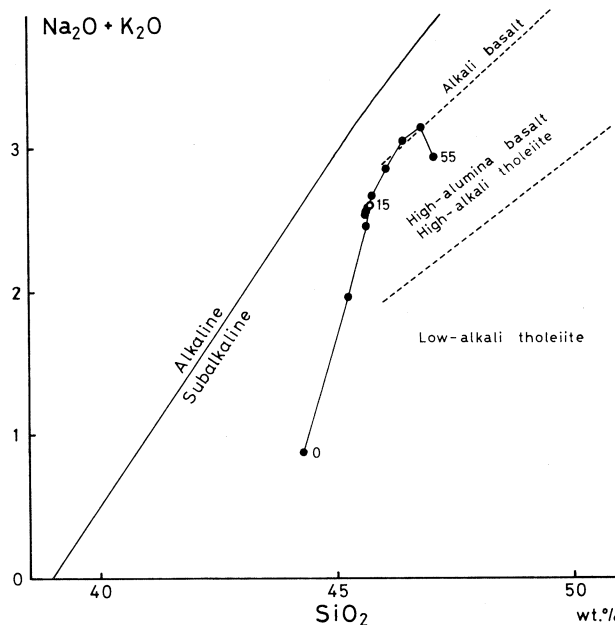
§ 6. さいごに

みかぶ帯には、多様な苦鉄質、超苦鉄質岩類が分布し、これらは単一の初生マグマからの分化物であると考えられている。本報告では静岡県浜名湖北東方の観音山苦鉄質超苦鉄質複合岩体から発見された輝緑岩質分化岩床の地球化学的研究を通して、みかぶ帯を構成する火成岩類を生成し

た初生マグマの化学組成ならびに、その晶出分化過程について考察し、次の結論を得た。

この輝緑岩質分化岩床を形成した初生マグマは、斑晶としてクロム鉄鉱、かんらん石及び単斜輝石を有するコマチアイト質高アルカリソレライトである。現在見られる岩床内組成変化は、斑晶鉱物が岩床形成時にすみやかに沈降して岩床基底部に集積相を形成し、その結果、無斑晶質となったマグマがかんらん石や斜長石を晶出分別しながら冷却固結して生じたものである。このような2段階晶出分化モデルは、主要なコンパティブル及びインコンパティブル微量元素の挙動を良く説明する。また、岩石中のインコンパティブル元素濃度はインコンパティブル元素をほとんど含まない斑晶鉱物が集積することにより低下し、その結果全岩化学組成が低アルカリソレライト領域にシフトする場合があることが明らかになった。

本研究にあたり、終始お世話になった東北大学核理研、八木益男先生、榎本和義先生ならび



第10図 Alkali-silica diagram for the diabasic differentiated sill. Solid line; boundary line between alkaline and subalkaline rocks after Irvine and Baragar¹⁰⁾. The dashed boundaries are the area of different rock series cited from Kuno¹⁹⁾. Numbers refer to analyses in Table 3.

にライナックマシングループの皆様，東北大学サイクロトロンR I センターの藤田稔先生，山寺亮先生をはじめ職員の方々に厚くお礼申し上げます。また測定に際して，東北大学岩鉱教室の霜鳥洋，金子信行，酒寄淳史，渡部均，小泉治彦の諸氏に協力していただいた。東北大学岩鉱教室の大沼晃助先生，藤巻宏和先生には本論をまとめるにあたり有益な御助言をいただいた。以上の方々に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) H. Onuki : J. Jpn. Assoc. Min. Petrol. Econ. Geol. **55** (1966) 39.
- 2) Y. Nakamura : J. Fac. Sci. Univ. Tokyo, Sec. II, **18** (1971) 1.
- 3) 中山，加治 : 地球科学 **33** (1979) 279.
- 4) 斎藤，儀見 : 5 万分の 1 地質図幅「秋葉山」および同説明書 (地質調査所，1954) .
- 5) 斎藤正次 : 5 万分の 1 地質図幅「三河大野」および同説明書 (地質調査所，1955) .
- 6) 武田，佃，徳田，原 : 「三波川帯」秀編 (広島大出版研究会，広島，1977) p. 107.
- 7) 猪俣道也 : 地球科学 **32** (1978) 336.
- 8) Y. Saito, T. Tiba and S. Matsubara : Mem. Natn. Sci. Mus. **12** (1979) 29.
- 9) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. 3. **15**-1 (1981) 101.
- 10) T. N. Irvine and W. R. A. Baragar : Can. J. Earth Sci. **8** (1971) 523.
- 11) T. L. Wright and P. C. Doherty : Geol. Soc. Am. Bull. **81** (1970) 1995.
- 12) 富樫茂子 : 岩鉱 **72** (1977) 45.
- 13) 阿部，青木 : 岩鉱 **62** (1969) 177.
- 14) H. S. Yoder and C. E. Tilley : J. Petrol. **3** (1962) 342.
- 15) D. C. Presnall et al. : Contrib. Min. Petrol. **66** (1978) 203.
- 16) N. T. Arndt, A. J. Naldrett and D. R. Pyke : J. Petrol. **18** (1977) 319.
- 17) D. M. Francis and A. J. Hynes : Earth Planet. Sci. Let. **44** (1979) 473.
- 18) 青木謙一郎 : 「地球の物質科学Ⅱ」久城・荒牧編 (岩波，1978) p. 153.
- 19) H. Kuno : *in Basalt*, ed. Hess & Poldervaart (Interscience, New York, 1968) 623.

北上山地，白亜紀深成岩類の地球化学的研究

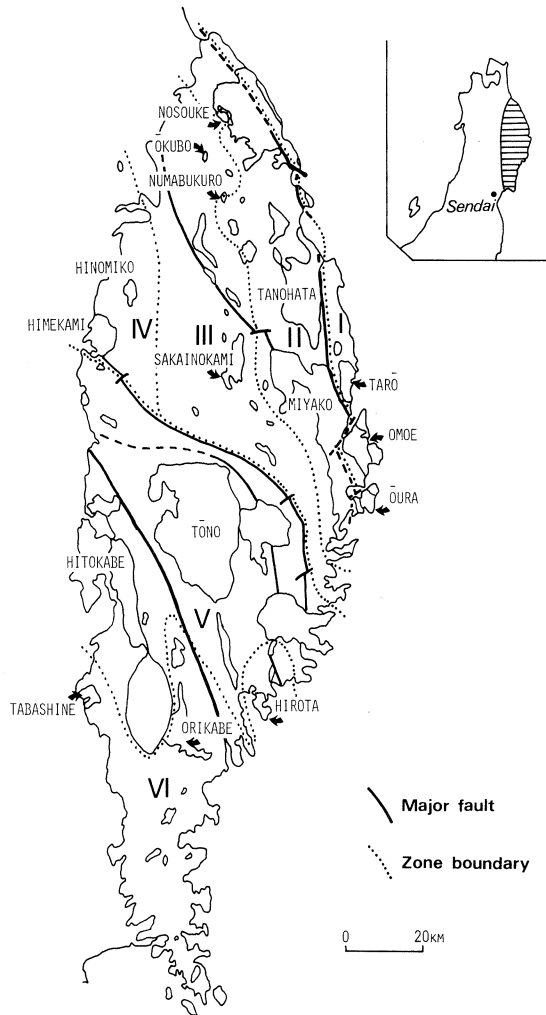
教養部，理学部地学*

蟹沢聡史・吉田武義*

石川賢一・青木謙一郎*

§ 1. はじめに

北上山地には白亜紀深成岩類が広く分布し，山地全体のほぼ1/4に相当する露出面積を有する(第1図)。これらの深成岩類は全体として花崗閃緑岩ないしトータル岩質で，やゝ苦鉄質のものが多く，狭義の花崗岩に属するものは少ない。また，比較的岩相変化に乏しく単調な岩体と，はんれい岩から花崗閃緑岩ないし花崗岩に至る広い岩相変化を示す岩体とがあり，特に小規模岩体では岩相変化にとむ場合が多い。K-Ar法およびRb-Sr法による放射年代は105~129Maを示す。^{1,2)} Sr初生値は0.704~0.705と低い値をもち， $\delta^{34}\text{S}$ は+1.0~+2.3を示すことなどから北上山地の花崗岩質岩類は本質的にはマントル起源であるとされている。³⁾ 最近の花崗岩類の分類に従えば，本地域の花崗岩質岩類はIタイプ⁴⁾，あるいは磁鉄鉱系列⁵⁾に属する。さらに本地域の白亜紀深成岩類は岩相の類似性，岩石学的特徴



第1図 Index map showing the Cretaceous plutonic bodies in the Kitakami Mountains, northeastern Japan.

第1表 List of analysed rocks.

No.	Specimen No.	Plutonic body	Rock name
Zone I.			
1.	72080107	Ōura	Olivine-clinopyroxene-hornblende gabbro
2.	75082204	Ōmoe	Hornblende gabbro
3.	72080102	Ōura	Hornblende-quartz gabbro
4.	72080403	Tarō	Hornblende-biotite granodiorite
5.	72080208	Ōmoe	Hornblende-biotite granodiorite
6.	72102702	Ōmoe	Hornblende-biotite granodiorite
7.	72082002	Ōmoe	Hornblende granodiorite porphyry
Zone II.			
8.	83082502	Tanohata	Phlogopite-and spinel bearing hornblende -clinopyroxene-olivine gabbro
9.	83082510	Tanohata	Phlogopite bearing spinel-olivine-hornblende gabbro
10.	83082605A	Tanohata	Biotite bearing hornblende gabbro
11.	72102601	Miyako	Hornblende-biotite tonalite
12.	72080406	Miyako	Biotite-hornblende granodiorite
13.	72080305	Miyako	Hornblende-biotite granodiorite
Zone III.			
14.	75082304	Sakainokami	Clinopyroxene-hornblende gabbro
15.	71092906	Ōkubo	Phlogopite bearing olivine-hornblende -orthopyroxene-clinopyroxene gabbro
16.	71092809	Nosouke	Orthopyroxene-hornblende-clinopyroxene -biotite-quartz diorite
17.	83082407	Numabukuro	Biotite and clinopyroxene bearing cummingtoni- te-hornblende-quartz gabbro
Zone IV.			
18.	71060709	Himekami	Orthopyroxene-olivine-clinopyroxene-biotite monzogabbro
19.	71K338'	Hinomiko	Olivine-clinopyroxene-biotite monzogabbro
20.	71K339	Hinomiko	Clinopyroxene-orthopyroxene-biotite monzogabbro
21.	71K343	Hinomiko	Hornblende-biotite granodiorite
Zone V.			
22.	83111903	Tōno	Phlogopite bearing spinel-orthopyroxene plagioclase-hornblende peridotite
23.	83111901	Tōno	Phlogopite bearing olivine-hornblende -clinopyroxene gabbro
24.	70080708	Tōno	Clinopyroxene bearing hornblende-biotite tonalite
25.	65081703	Hitokabe	Biotite-hornblende tonalite
Zone VI.			
26.	83071105	Tabashine	Olivine bearing biotite-clinopyroxene -hornblende gabbro
27.	83072701	Orikabe	Biotite-orthopyroxene-clinopyroxene-olivine -hornblende gabbro
28.	83072707	Tabashine	Clinopyroxene-hornblende gabbro
29.	67090103	Hirota	Clinopyroxene-hornblende-biotite granodiorite

および化学組成から I, II, III, IV, V および VI 帯に分帯され (第 1 図), VI 帯はさらに VIa, VIb に分けられている⁶⁾。今回はこれらの岩石について, 共存するはんれい岩類も含めて, 主成分分析と光量子放射化分析等を用いた微量成分分析を行い, I ~ VI 帯間の深成岩類の地球化学的特徴, さらに北上山地全体の特徴を明らかにすることを目的とした。

§ 2. 分析試料の岩石学的記載

北上山地の深成岩類は黒雲母と角閃石を含む花崗閃緑岩ないしトータル岩を主体とするが, 少量のはんれい岩～閃緑岩類を伴うことが普通である。また, IV 帯の岩体はカリ長石にとむモンゾニ岩, モンゾ閃緑岩, モンゾはんれい岩を伴うという著しい特徴がある。これらのはんれい岩類は捕獲岩状にとり込まれているか, あるいは花崗閃緑岩～トータル岩類に貫ぬかれている。これらのはんれい岩類と主体をなす花崗閃緑岩～トータル岩とが成因的に関連があるか否かは重要な検討課題である。そこで今回は, 各帯毎に 7 ~ 4 試料を選び, 主成分と微量成分の定量を行った。各試料は第 1 表に示す通りで, これから明らかなように分析した岩石の鉱物組

第 2 表 Mineral compositions of some analysed gabbroic rocks.

Sp.No.	Ol.(Fo %)	Cpx.(mg-value)	Opx.(En %)	Amph.(mg-value)	Pl.(An %)
Zone I					
72080107	74-75	0.88-0.91	-	0.73-0.86	96-99
72080102	-	-	-	0.57	n.d.
Zone II					
83082502	64-65	0.81-0.82	-	0.71-0.74	92-93
83082510	55-61	-	-	0.63-0.70	92-98
Zone III					
75082304	-	0.74-0.84	-	0.59-0.67	38-61
71092906	74-77	0.72-0.80	69-71	0.64-0.69	78-85
Zone IV					
71060709	61-63	0.71-0.74	67-70	-	48-53
Zone V					
83111903	74-75	-	76-77	0.73-0.79	88-92
83111901	64-65	0.73-0.78	-	0.63-0.67	85-91
Zone VI					
83071105	74-75	0.69-0.85	-	0.52-0.68	53-91
83072701	57-59	0.66-0.75	64-66	{ 0.45-0.70* 0.16-0.30**	62-80

* Inclusion within clinopyroxene. ** Interstitial crystal.

合せは多岐にわたっている。遠野岩体に伴われるはんれい岩類の一部には大部分がカンラン石からなり、MgO 30%に達するカンラン岩もみられる。また第2表には今回分析したはんれい岩類中の苦鉄質鉱物と斜長石のEPMA分析による組成範囲を示した。この結果から明らかのように、カンラン石の組成はFo77-55で、Feにとむものであり、個々の試料中での組成範囲は狭い。カンラン石と共存する斜長石はⅢ、Ⅳ、Ⅵ帯のものを除くとAn成分にとんでおり、これらの岩石はすべて角閃石と安定に共存している。このようなAn成分にとんだ斜長石とカンラン石の組合せはLesser Antilles⁷⁾やPeninsular ranges⁸⁾の花崗岩類と共存するはんれい岩類にみられるものと同じである。Ⅲ、ⅣおよびⅥ帯のはんれい岩中でカンラン石と共存する斜長石はかなりAb成分にとんでいるか、あるいは広い組成範囲をもっていて、他の帯のはん

第3表 Major and trace element analyses of the Cretaceous plutonic rocks from the Kitakami Mountains, northeastern Japan.

	Zone I							Zone II					Zone III		
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
wt. %															
SiO ₂	42.98	46.94	50.32	68.01	70.81	69.11	74.28	44.76	38.48	42.83	61.93	65.32	67.44	46.95	46.03
TiO ₂	0.22	1.17	1.07	0.60	0.43	0.50	0.54	0.35	0.75	1.18	0.66	0.66	0.42	1.06	0.69
Al ₂ O ₃	21.39	17.21	18.07	15.23	15.07	15.57	13.25	18.07	22.41	18.15	17.16	16.86	17.07	11.65	16.10
Fe ₂ O ₃	1.56	1.76	3.13	1.38	0.85	1.10	1.05	1.38	5.95	4.85	2.58	2.02	1.39	2.95	4.21
FeO	4.84	7.65	6.16	2.32	1.89	2.17	0.79	5.70	8.70	8.62	3.53	1.95	1.20	7.27	6.72
MnO	0.10	0.20	0.15	0.10	0.07	0.09	0.04	0.12	0.16	0.23	0.12	0.07	0.05	0.20	0.19
MgO	10.42	8.20	5.43	1.26	0.93	1.04	0.52	10.55	8.92	6.75	2.76	1.64	0.90	10.88	9.68
CaO	14.37	11.28	10.56	3.04	2.82	3.54	1.43	16.07	12.45	12.38	5.48	4.41	3.89	13.35	14.47
Na ₂ O	0.88	2.12	2.22	3.82	3.97	4.02	4.37	0.74	0.71	1.69	3.05	4.05	4.91	1.83	0.82
K ₂ O	0.09	1.12	0.71	2.90	2.59	2.26	3.21	0.30	0.07	0.82	2.11	2.14	1.76	0.59	0.14
H ₂ O+	2.65	1.75	1.52	1.04	0.70	0.58	0.45	1.11	1.56	2.09	0.91	0.65	0.68	2.74	0.80
H ₂ O-	0.09	0.08	0.06	0.13	0.05	0.03	0.18	0.14	0.12	0.15	0.08	0.09	0.09	0.21	0.05
P ₂ O ₅	0.04	0.19	0.34	0.25	0.23	0.21	0.12	0.08	0.06	0.18	0.21	0.21	0.17	0.23	0.06
Total	99.63	99.67	99.74	100.08	100.41	100.22	100.23	99.37	100.34	99.92	100.58	100.07	99.97	99.91	99.96
mg-value	0.747	0.608	0.517	0.383	0.381	0.365	0.344	0.727	0.528	0.476	0.454	0.435	0.393	0.657	0.617
ppm															
Ba	265	275		621	738	545	1259				296	470	369	268	
Ce	0.4	13.1	15.8	40.8	51.4	40.7	40.4	5.8	1.6	14.8	32.6	36.8	31.7	25.8	1.1
Co	57.1	39.3	29.0	7.8	5.3	5.6	3.5	39.3	62.9	51.9	17.1	10.6	5.7	47.2	43.6
Cr	138		31	1	2	3	1	232		1	6	2	2	201	13
Cs		1.59	1.51	3.10	1.22	0.36	0.18	0.82		0.56	2.10	1.88	1.58	0.30	
F	12	296	229	392	389	360	425	362	71	486	480	422	487	395	111
Nb	0.7	4.2	3.6	10.0	12.6	10.1	11.6	1.0		3.0	8.0	6.9	5.0	5.1	1.5
Ni	80		18	13	6	14					16	10	4		
Rb	1.0	42.0	16.7	64.6	65.9	50.7	62.4	5.9	2.6	19.2	65.7	51.7	38.2	9.1	2.5
Sc	17.7	38.9	29.1	7.3	12.6	9.8	9.5	27.1	12.2	24.4	12.9	8.2	6.5	45.2	24.7
Sr	219	294	326	296	226	247	172	507	554	661	455	759	907	434	469
V	179		228	80	44	89	59	121	368	412	101	41	32	354	383
Y	2.1	20.0	16.5	21.9	29.0	24.7	32.0	6.4	1.7	13.5	16.1	8.6	6.2	21.8	8.5
Zn	40	73	74	51		74		38		102	65	61	51		81
Zr	3.2	61.2	39.7	163	159	158	172	16.2	6.0	31.2	111	102	116	47.7	9.9

れい岩類とは異なっている。単斜輝石および角閃石類の組成変化に比して、斜方輝石の変化幅は狭い。はんれい岩類の角閃石はツェルマク閃石～パーガス閃石質であるが、花崗閃緑岩～トータル岩中のものはAlに乏しいホルンブレンドである。

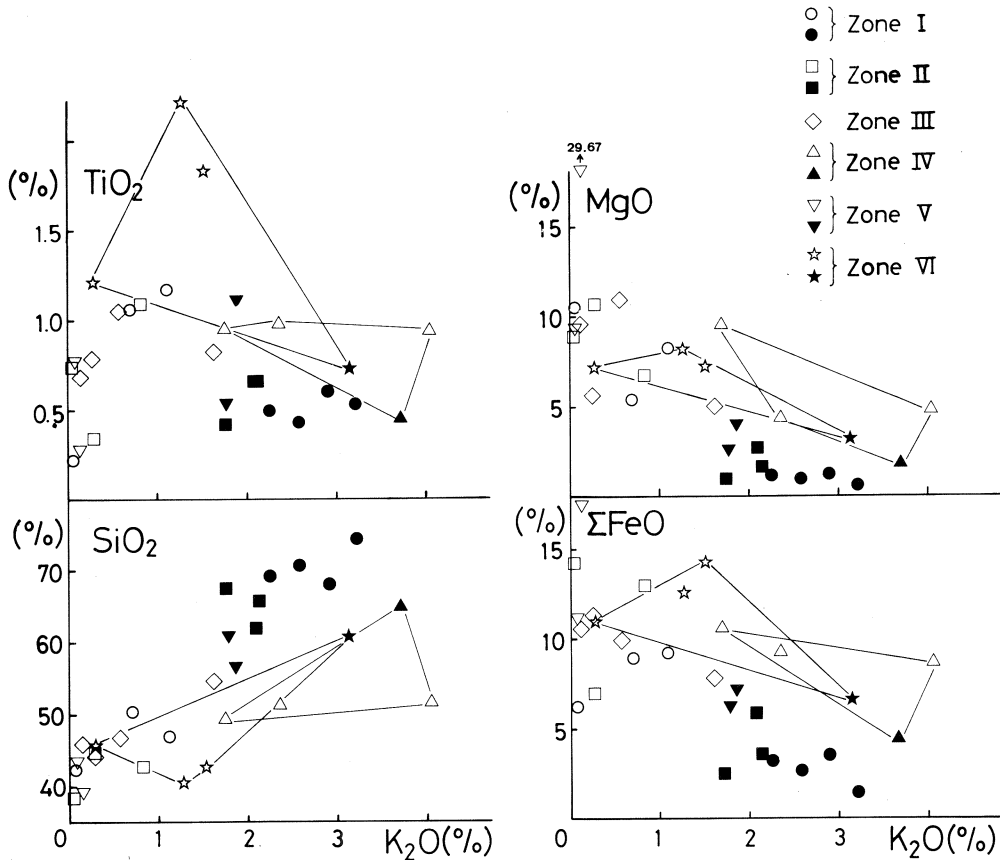
§ 3. 岩石の分析方法と分析結果

主成分酸化物については湿式分析法により定量した。微量成分のうちBa, Ce, Co, Nb, Rb, Sc, Sr, Y, Zn およびZrについては東北大学理学部原子核理学研究施設の電子ライナックを利用し、30 MeV 加速電子を用いて光量子放射化分析法により定量した。一部の試料についてはCr, Ni も同方法で定量した。Crについては比色定量法, またNi, V については有機溶

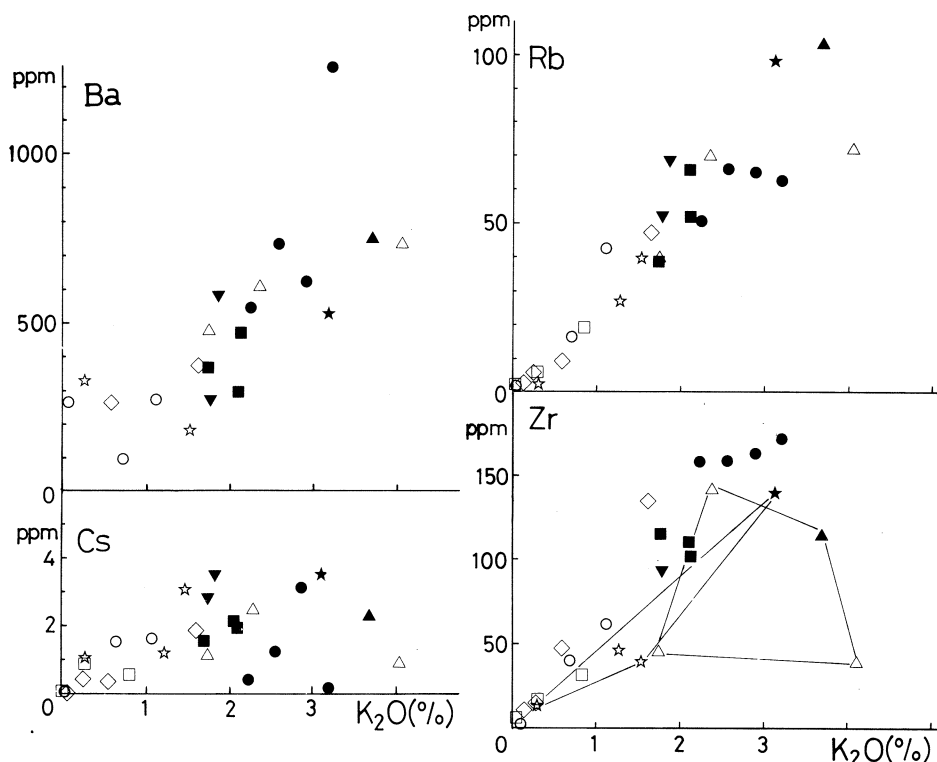
第3表 (続き)

	Zone III			Zone IV				Zone V				Zone VI		
	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29
wt. %														
SiO ₂	54.64	44.46	49.03	53.04	51.21	64.40	39.12	43.53	56.52	60.66	40.27	45.65	42.50	60.60
TiO ₂	0.82	0.79	0.95	0.92	0.98	0.43	0.28	0.78	1.11	0.54	2.21	1.21	1.84	0.73
Al ₂ O ₃	16.85	20.62	12.69	16.64	16.44	15.42	5.76	18.49	17.71	17.63	15.72	18.06	14.28	15.62
Fe ₂ O ₃	2.49	4.83	3.76	2.22	2.71	2.21	3.19	4.06	1.84	2.49	2.72	3.58	3.24	2.62
FeO	5.58	6.95	7.31	6.65	6.83	2.32	14.79	7.41	5.48	3.87	10.06	7.73	11.22	4.18
MnO	0.16	0.24	0.21	0.20	0.18	0.12	0.28	0.17	0.13	0.14	0.18	0.20	0.18	0.11
MgO	5.01	5.76	9.55	4.87	4.34	1.84	29.67	9.35	3.92	2.51	8.09	7.03	7.13	3.03
CaO	8.81	12.24	11.32	7.06	9.88	4.77	4.04	14.38	7.09	5.56	13.00	12.55	13.83	5.72
Na ₂ O	2.85	1.45	2.23	2.73	3.28	3.69	0.54	0.70	3.25	3.81	1.77	2.13	1.32	3.10
K ₂ O	1.61	0.28	1.74	4.05	2.38	3.69	0.16	0.09	1.86	1.79	1.28	0.29	1.55	3.17
H ₂ O+	0.80	2.13	0.65	0.84	1.01	0.62	2.34	0.69	0.98	0.82	3.57	1.32	2.52	0.79
H ₂ O-	0.04	0.16	0.13	0.11	0.18	0.10	0.16	0.03	0.05	0.02	0.16	0.12	0.07	0.05
P ₂ O ₅	0.20	0.25	0.62	0.66	0.53	0.21	0.04	0.07	0.22	0.16	0.82	0.36	0.37	0.17
Total	99.86	100.16	100.19	99.99	99.95	99.82	100.37	99.70	100.16	100.00	99.85	100.23	100.05	99.89
mg-value	0.528	0.471	0.610	0.495	0.450	0.425	0.747	0.597	0.490	0.418	0.532	0.529	0.470	0.448
ppm														
Ba	380		486	731	603	746			580	271		334	600	526
Ce	43.0	17.2	43.3	50.9	52.8	47.8			41.0	18.5	27.3	5.4	18.5	36.9
Co	28.9	30.5	45.3	28.3	30.9	9.2			23.0	15.4	48.2	42.7	56.5	18.4
Cr	22	8	228	84	57	22	191	9	5	2	8	29	13	27
Cs	1.87	0.38	1.19	0.83	2.40	2.26			3.44	2.76	1.19	1.02	3.08	3.47
F	488	301	586	658	754	389	109	101	486	304	1671	295	270	576
Nb	7.5	4.5	3.6	4.4	9.5	10.7			8.1	4.7	6.3	0.9	1.2	7.0
Ni				46	24	9								
Rb	47.3	6.0	39.2	71.7	69.7	103			68.4	52.1	26.7	2.5	39.8	98.8
Sc	16.5	29.4	26.4	16.5	29.3	8.2			20.2	12.7	34.8	27.0	42.6	16.9
Sr	436	460	1220	930	858	952			500	563	857	1046	841	454
V	228	241	334	165	184	95			178	83	438	316	503	162
Y	19.7	18.2	22.7	21.7	26.2	16.7			22.6	14.3	31.6	14.5	18.6	19.6
Zn	100	82	49	95	87	50			83	64	102	86		56
Zr	136	15.8	47.1	37.3	142	114			203	93.8	47.8	13.2	38.2	139

媒抽出後に比色定量法, Fについてはイオン電極法によりそれぞれ分析した。分析結果は第3表に示す通りであり, これから明らかなように北上山地の白亜紀深成岩類は非常に広範な化学組成をもっており, 一見, 明瞭な規則性がみられない。しかしながら, 主成分のなかのインコンパティブル元素の代表であるカリウムの酸化物との関係を見ると, 第2図のように主成分では SiO_2 がIV帯とVI帯を除き正相関を示す。IV帯のアルカリはんれい岩類を伴う岩体のものは明らかに SiO_2 に対して K_2O にとむ。VI帯の岩石もやゝそれに近い傾向を示す。Ba, Cs, Nb, Rbなどのインコンパティブル元素も K_2O と正相関を示す(第3図)。ZrについてはIV帯を除くとやはり同様であるが, IV帯のZrのみは明らかに K_2O にとみZrに乏しい位置にプロットされる。Sr含有量はI帯172~326ppm(平均254ppm), II帯455~907ppm(同641ppm),



第2図 K_2O -major oxides variation diagram. Open symbols: gabbro and peridotite, Solid symbols: quartz diorite~granodiorite.



第3図 K_2O -incompatible trace element variation diagram. Symbols are the same as those in Fig. 2.

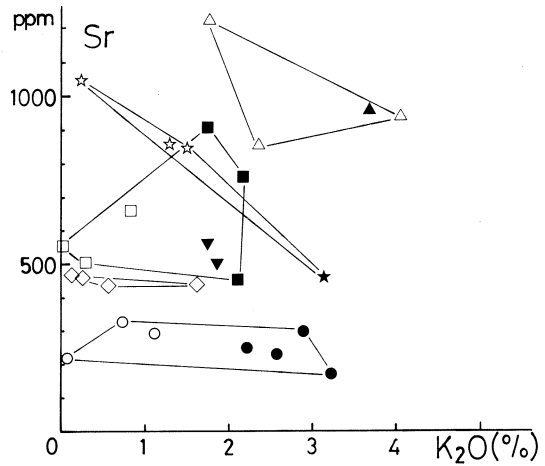
Ⅲ帯 434~469ppm (同 450ppm), Ⅳ帯 858~1220ppm (同 990ppm), Ⅴ帯 500~563ppm (同 532ppm), Ⅵ帯 454~1046ppm (同 800ppm) と各帯毎に異なり, 帯の中ではほぼ一定で K_2O あるいは SiO_2 の増加によってもあまり変化しない。Ⅵ帯のみはやや減少傾向を示す(第4図)。北上山地の深成岩類中の K, Rb, Sr については既に 300 個以上の試料について片田・金谷によって報告されており⁹⁾, 分化と共に Rb は増加し, Sr は逆の傾向を示すことが知られている。また, 田野畑, 宮古, 遠野などの大きな岩体では K_2O , Rb, Sr 含有量, K/Rb 比に関して累帯構造が認められている。Sr に関する彼等の結果では, 分化とともに減少傾向を示すものの, その程度は小さく, ほぼ一定とみなすこともできる。そして, 今回の結果と同様に各帯毎の含有量に特徴があり, Ⅰ帯の Sr 含有量は低く, Ⅳ帯のそれは高いことが示されている。K/Rb 比は Ⅰ帯から Ⅳ帯に向ってわずかながら増加傾向がみられる。今回の結果では測定数が少いために明瞭な傾向はつかめない。Ⅳ帯のアルカリはんれい岩類は他の帯のはんれい岩類に比べて Rb,

Ba, K, Ce, Sr, P および F にとむ。
また、山地全体を通じて、花崗閃緑岩
～トータル岩中の Ce, Y, Nb, Zn, Zr
含有量はオーストラリアの I タイプ花
崗岩類のそれにはほぼ一致している¹⁰⁾。

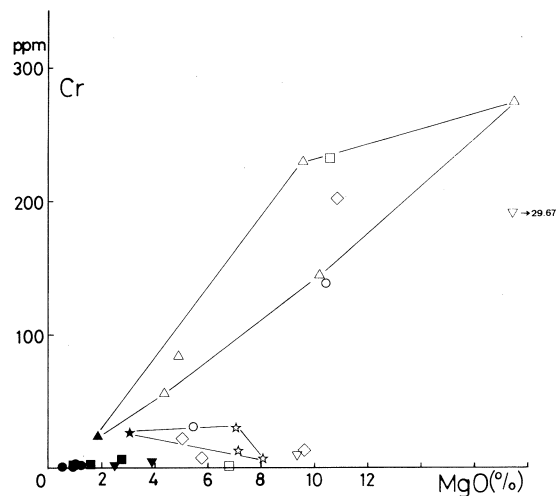
遷移元素についてみると、Sc, V お
よび Co は ΣFeO と TiO_2 の挙動に近く、
I, II, III 帯のはんれい岩では K_2O 又
は SiO_2 との関係で一旦増加し、その後
単調に減少する。これは、これらの帯
のはんれい岩では MgO の多い場合に
磁鉄鉱のモードが少なく、やゝ分化の

進んだ岩石に磁鉄鉱の多いことと
調和的である。但し、IV 帯と VI 帯
のものでは I, II, III 帯とやゝ異
なった傾向を示し、単調に減少す
る。Cr は一般に分化の初期鉱物中
に選択的に濃集することが知られ、
本地域でも SiO_2 47% 以下で MgO
10% 以上の岩石に多量に含まれる
が、 MgO が 10% 以下になると急
激に減少して 30ppm 以下になる
(第 5 図)。但し、IV 帯のアルカ
リはんれい岩類では他の帯に比べ
て減少の程度がやゝ遅れ、ほぼ直

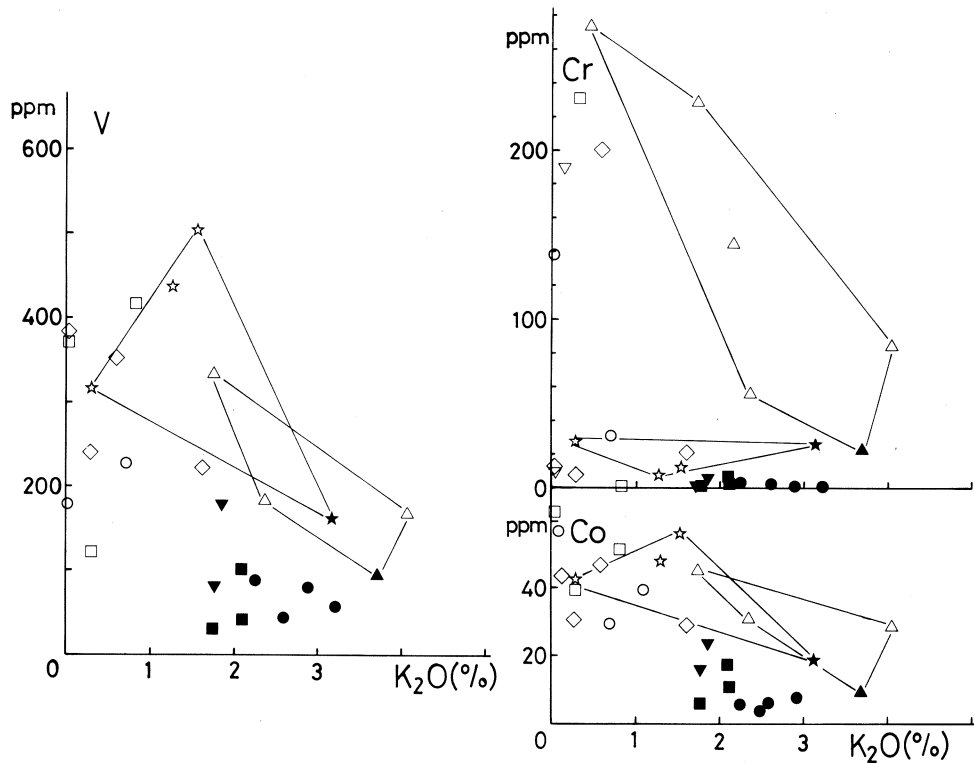
線的に変化する。このことは $\text{Cr}-\text{K}_2\text{O}$ の関係でも同じであり(第 6 図)、IV 帯を除いた岩石
では K_2O 0.6% 以下のはんれい岩に濃集し、その後はほぼ一定の値を示すが、IV 帯の岩石では
 K_2O の増加に伴い、ほぼ直線的に減少する。I, II, III および V 帯のはんれい岩中で MgO に
とむものには、しばしばスピネルが存在するので、この中にとり込まれて急速に除去されたも
のと考えられる。これに対して IV 帯の場合は単斜輝石の分別によるものといえる。Ni について



第4図 $\text{K}_2\text{O}-\text{Sr}$ variation diagram.
Symbols are the same as those in Fig. 2.



第5図 $\text{MgO}-\text{Cr}$ variation diagram.
Symbols are the same as those in Fig. 2.



第6図 K_2O -compatible trace element variation diagram. Symbols are the same as those in Fig. 2.

は分析値が少ないので明確なことは言えないが、ほぼCrと似たパターンを示すので、IV帯ではカンラン石の分別による効果と考えられる。Coは各帯における差は認められず、 SiO_2 の増加に伴い単調に減少する。しかし、 K_2O との関係ではVやScに近い。

§ 4. まとめ

北上山地の白亜紀深成岩類に関して地球化学的に検討した結果、これまで分帯されていたI～VI帯毎の特徴は微量成分にもあらわれており、地質学的関係、記載岩石学的特徴、主化学成分に基づいた分帯は本地域における深成岩マグマの本質的な性格にも起因すると考えてよい。Sr含有量は、はんれい岩から花崗閃緑岩を通じてあまり変化せず、それぞれの帯ではほぼ一定している。またI帯では最も低くIV帯で最も高い。IV帯の岩石は他の帯のものと比較してきわだった特徴を有している。すなわち、Rb, Ba, K, Ce, Sr, PおよびFなどのインコンパティブル元素にとみ、一方では同じインコンパティブルなZrのみがK-Zr関係では他の帯から外れ、

Zr/K₂O比が小さい。遷移元素もIV帯の岩石では他の帯の傾向と異り、特にCrの挙動はそれが著しい。すなわち、IV帯ではCrはK₂O、あるいはSiO₂の増加に伴い漸減し、単斜輝石による分別の効果が考えられる。IV帯を除く他の帯では、特にI、II、V帯でみられるように、ごく早期の段階でスピネルの晶出があり、Crがとり除かれ、以後Crは30ppm以下に急激に減少し、ほぼ一定となってしまったものと考えられる。TiO₂、ΣFeO、VおよびCoはK₂Oに対していずれもほぼ同じパターンを示し、はんれい岩中では分化にしたがって、最初磁鉄鉱のモードが増し、これに伴う増加の傾向がみられ、角閃石はんれい岩から花崗質岩では単調に減少する。IV帯の岩石は、はんれい岩から花崗閃緑岩にかけて、比較的単純な分化作用が行われたものであろう。また、地質学的にはI帯とVI帯の深成岩類はいずれも火山岩類を伴っており、岩相も比較的浅所侵入の岩体であるといわれ、類似した点が多いが、今回の結果では地球化学的にはやゝ異なっており、VI帯の岩石はむしろIV帯とその他の帯との中間的な性格を持っている。

本研究にあたり、御協力を賜わった東北大学理学部原子核理学研究施設の八木益男助教授、榎本和義博士ならびにマシングループの方々、東北大学サイクロトロンRIセンターの藤田稔教授、山寺亮博士ならびに職員の方々に深謝する。また、定量にあたり、東北大学理学部岩鉱教室の村田守博士、宮島宏、酒寄淳史、渡部均、金子信行、小泉治彦の諸氏に協力頂いた。厚く御礼申上げる。

参 考 文 献

- 1) 河野義礼, 植田良夫: 岩鉱 **57** (1967) 177.
- 2) K. Shibata *et al.*: Am. Assoc. Petroleum Geol., Studies in Geol., no. 6 (1978) 143.
- 3) K. Shibata and S. Ishihara: Contrib. Mineral. Petrol. **70** (1979) 381.
- 4) B. W. Chappell and J. R. White: Pacific Geol. **8** (1974) 173.
- 5) S. Ishihara: Mining Geol. **27** (1977) 293.
- 6) 片田正人: 地調報告 251号 (1974) 121.
- 7) R. J. Arculus and K. J. A. Wills: J. Petrol. **21** (1980) 743.
- 8) T. E. Smith *et al.*: J. Volcanol. Geoth. Res. **18** (1983) 249.
- 9) 片田正人, 金谷弘: 岩鉱 **75** (1980) 173.
- 10) W. J. Collins *et al.*: Contrib. Mineral. Petrol. **80** (1982) 189.

紀伊半島中部，大峯地域に分布する Sタイプ花崗岩の微量化学組成

理学部地学

村田 守・吉田武義・青木謙一郎

§ 1. はじめに

西南日本外帯花崗岩質岩は、従来1つの花崗岩岩石区として扱われてきた^{1,2,3)}。最近、この花崗岩質岩の鉱物組み合わせ・全岩化学組成・Sr同位体比から、内陸側のIタイプ花崗岩質岩^{4)*}と太平洋側のSタイプ花崗岩質岩⁴⁾とに細分されるようになった⁵⁾。両タイプ花崗岩質岩は互いに独立したマグマの発生と分化により生じたと考えられる^{7,8)}。

西南日本外帯花崗岩質岩に属する大峯花崗岩質岩は、奈良・和歌山・三重の三県にまたがり、東西約10 km・南北約40 kmの範囲に分布する。これらは、同時期(11.6~15.6 Ma)⁹⁾に活動した7つの小岩体(北から洞川・白倉・川迫・旭・天狗山・白谷・片川~椋呂岩体)からなる¹⁰⁾。その鉱物組み合わせ¹⁰⁾、全岩化学組成¹⁰⁾、O¹¹⁾・Sr¹¹⁾・S¹²⁾同位体組成から、これらの岩石は典型的なIタイプ花崗岩質岩(洞川・白倉)およびSタイプ花崗岩(川迫・旭・天狗山・白谷・片川~椋呂)からなることが明らかになった⁷⁾。

同一地域・同一時代にIおよびSタイプ花崗岩質岩が密接に分布する例は、現在のところ大峯地域においてのみ知られている。そこで両者の岩石学的性格を明らかにするために、大峯IおよびSタイプ花崗岩質岩の岩石学的記載が行なわれてきた。上述のデータの他に、珪酸塩・酸化・硫化鉱物化学組成^{7,8)}、希ガス組成⁹⁾および希ガス同位体組成⁷⁾が明らかにされた。本報では、光量子放射化法等により、大峯Sタイプ花崗岩の微量化学組成が明らかにされる。なお、大峯Iタイプ花崗岩質岩のそれは、村田ら¹³⁾によって報告されている。

§ 2. 分析試料の岩石学的記載

川迫・旭・天狗山・白谷岩体を構成する岩石は、主に優白色の細粒斑状花崗岩である。片川~椋呂岩体は、優白色の花崗斑岩または石英斑岩からなる。これらの岩石の鉱物組み合わせを第1表に示した。

* 本報では、IおよびSタイプ花崗岩質岩という語は、記載岩石学的分類として用いられる。この分類法の問題点については、文献6, 7)を参照されたい。

Table 1. Constituent minerals of the Ohmine granitic rocks.

		pl	or		qz	cpx	opx	ho	bi	ms	po	py	cp	aspy	il	rt	cd	sill	gar	sp	co
		ph	gm	ph	gm	ph	gm														
I-type	Dorogawa	++	+	-	+	-	+	r	+	+	+	-					-	-	-	-	-
	Shirakura	++	+	++	+	+	+	-	+	+	+	-					-	-	-	-	-
S-type	Kose	+	+	++	+++	+	-	-	-	+	+						+	-	-	-	-
	Asahi	++	+	++	+++	+	-	-	-	+	+						-	-	-	-	-
	Tenguyama	+	+	++	+++	+++	-	-	-	+	+						+	+	-	+	+
	Shiratani	+	+	++	+++	+++	-	+	-	+	+						+	+	+	+	+
	Katago-Mukuro	+	+	++	+++	+++	-	-	-	+	+						-	-	-	-	-

pl stands for plagioclase, or : orthoclase, qz : quartz, cpx : clinopyroxene, opx : orthopyroxene, ho : hornblende, bi : biotite, ms : muscovite, po : pyrrhotite, py : pyrite, cp : chalcopyrite, aspy : arsenopyrite, il : ilmenite, rt : rutile, cd : cordierite, sill : sillimanite, andalusite and fibrolite, gar : garnet, sp : green spinel, co : corundum, ph : phenocryst, gm : groundmass, ++ : abundant, + : present, r : rare, - : absent.

川迫・旭・天狗山・片川～椋呂岩体は岩相変化に乏しく、その構成岩石の苦鉄質鉱物（黒雲母+緑泥石）のモードは11.2～2.2%である。一方、白谷岩体では、岩相変化が認められ、優黒色（苦鉄質鉱物モード21.7%）で石基に石英・正長石微文象連晶のよく発達する斑状花崗岩から優白色（苦鉄質モード3.2%）で微文象連晶のあまり発達しない斑状花崗岩まで変化する。この変化は漸移的であり、鉱物組み合わせに違いはみられない。

大峯Sタイプ花崗岩は、各岩体を構成する岩石間の鉱物組み合わせおよび組織に大きな差異はみられない。また、これらの全岩主要化学組成もなめらかな曲線上的変化を示す。これらの岩石を最も岩相変化に富む白谷花崗岩で代表し、大峯Iタイプ花崗岩質岩と比較したのが第2表である。両者では、鉱物組み合わせ・全岩主要化学組成・Sr同位体比の他に、O・S同位体比および鉱物化学組成が大きく異なるのが分る。

川迫・天狗山・白谷花崗岩には、 Al_2SiO_5 鉱物・ザクロ石・コーディエライト等のアルミナに富む鉱物が、普遍的ではないが特徴的に認められる。これらは、捕獲岩類、周囲の被貫入岩類およびIタイプ花崗岩質岩には認められない。これらアルミナに富む鉱物の一部は、地下20 km・700°Cの条件で泥質堆積岩類の部分熔融により大峯Sタイプ花崗岩質マグマが生じた際の難溶性残滓と考えられる⁷⁾。この難溶性残滓と考えられるアルミナに富む鉱物クロットは、白谷岩体を構成する SiO_2 に乏しい花崗岩(ST1, ST2, ST3)にのみ認められる。

Table 2. Characteristic features of the Ohmine I- and S-type granitic rocks.

	I - type		S - type
	Dorogawa	Shirakura	Shiratani
K-Ar age (Ma)	11.6 - 12.1	14.2	14.7 - 15.6
H or M	hornblende	hornblende	muscovite
A/CNK	0.83 - 1.03	0.94 - 0.96	1.03 - 1.21
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ I_0	0.7051 - 0.7058	0.7049	0.7083 - 0.7086
$^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ (‰)	7.2 - 7.6	7.4	10.5 - 11.2
$^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ (‰)	-3.6	-2.7	-16.2
$^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ (‰)	-16.6	-15.8	-
biotite	Al poor	Al poor	Al rich
pyrrhotite	Ni detectable	Ni undetectable	Ni undetectable
S (ppm)	138	11	1338
CO ₂ (ppm)	280	80	1530
Ni (ppm)	19 - 46	2 - 4	3 - 10

A/CNK, mole $\text{Al}_2\text{O}_3 / (\text{CaO} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O})$.

§ 3. 微量化学組成

主要化学組成は、湿式重量分析法により定量した¹⁰⁾。Ba・Ce・Co・Cr・Cs・Nb・Ni・Rb・Sc・Sr・Y・Zrは東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックを利用し、30 MeV 加速電子を用いて、光量子放射化分析法¹⁴⁾により定量した。また、Niはイソプロピルエーテルによる有機溶媒抽出法後比色法¹⁵⁾により、Fはイオン電極法¹⁶⁾により求めた。一部のCo・Crは、山形大学理学部において原子吸光法により¹⁷⁾、一部のRb・Srは岡山大学温泉研究所において質量分析計により定量された¹⁸⁾。

光量子放射化分析、Fおよび比色法によるNiの定量に用いた粉末試料は、試料作成時のステンレス鉢による汚染の影響が小さく無視できる¹⁵⁾のために、湿式重量分析を行なったのと同じ粉末試料が用いられた。一方、原子吸光法および質量分析法による分析に用いた粉末試料は、同一露頭から得られた岩石から新たに作られたものである。

光量子放射化法により得られた分析結果を主要化学組成¹⁰⁾とともに第3表に示す。同表には異なる分析法により得られた分析値をも併記した。JB-1を分析した場合のBa・Cs・Scの相対偏差は21~31%であるのに対し、他の元素のそれは6%以下である¹⁹⁾。

Table 3. Chemical analyses of the Ohmine S-type granitic rocks.

	K 1	T 2	ST1	ST2	ST3	ST4	ST8	ST10	KM1
(wt %)									
SiO ₂	72.71	75.79	68.97	69.84	70.48	71.05	74.61	75.98	73.59
TiO ₂	0.16	0.12	0.38	0.44	0.34	0.35	0.16	0.12	0.23
Al ₂ O ₃	14.18	13.25	15.73	14.45	14.13	14.26	13.54	13.30	13.48
Fe ₂ O ₃	0.62	0.22	0.52	0.83	0.50	0.40	0.21	0.27	0.46
FeO	1.91	0.89	3.15	3.38	2.86	2.94	1.20	0.85	1.77
MnO	0.05	0.04	0.06	0.08	0.05	0.03	0.03	0.02	0.05
MgO	0.45	0.14	0.96	1.11	1.20	0.92	0.22	0.20	0.33
CaO	1.34	0.45	1.94	2.83	2.32	1.75	0.82	0.92	1.27
Na ₂ O	3.28	3.20	3.66	3.39	3.38	3.43	2.95	3.11	3.14
K ₂ O	4.18	5.00	3.22	2.33	3.66	3.54	5.41	4.55	4.11
H ₂ O ⁺	0.75	0.86	0.86	0.46	0.66	0.79	0.55	0.43	0.93
H ₂ O ⁻	0.22	0.25	0.22	0.38	0.11	0.25	0.20	0.19	0.26
P ₂ O ₅	0.20	0.03	0.19	0.10	0.10	0.04	0.03	0.03	0.03
Total	100.05	100.24	99.86	99.62	99.79	99.75	99.93	99.97	99.65
(ppm)									
Ba	430	230	450	610	630	570	730	680	460
Ce	31	18	46	65	45	59	38	40	32
Co	3	2	5	6	7	5	1	2	2
Cr	9	tr	19	18	32	22	15	7	9
Cs	14	10	8	7	8	6	6	7	3
Nb	8	8	9	14	11	10	8	8	10
Ni	6	tr	8	4	13	14	4	2	3
Ni ¹⁾	9	3	7	6	9	10	4	3	7
Ni ²⁾	na	na	na	na	10	na	na	na	na
Rb	207	227	142	112	142	137	182	202	179
Rb ³⁾	na	na	na	na	141.3	na	159.4	na	na
Sc	3	3	13	11	10	9	5	2	7
Sr	102	22	146	152	141	142	77	80	129
Sr ³⁾	na	na	na	na	143.4	na	80.4	na	na
Y	24	28	32	41	31	43	38	35	32
Zr	94	63	230	314	247	292	126	105	130
F ⁴⁾	1074	1164	1216	1042	1077	891	962	729	1121

¹⁾ colorimetry analysis, ²⁾ atomic absorption analysis,

³⁾ mass spectrometry analysis, ⁴⁾ ion-electrode analysis;

na: not analyzed; tr: trace.

K1: biotite granite, 5 km SE of Kitazumi, Kose mass ;

T2: biotite granite, 5 km ENE of Ochiyama, Tenguyama mass ;

ST1: biotite granite, 7 km WSW of Ikehara, Shiratani mass ;

ST2: biotite granite, 7 km WSW of Ikehara, Shiratani mass ;

ST3: biotite granite, 7 km WSW of Ikehara, Shiratani mass ;

ST4: biotite granite, 7.5 km WSW of Ikehara, Shiratani mass ;

ST8: biotite granite, 6 km WNW of Ikehara, Shiratani mass ;

ST10: biotite granite, 5 km SW of Ikehara, Shiratani mass ;

KM1: granite porphyry, 12 km WSW of Ikehara, Katago-Mukuro mass.

微量化学組成変化図を第1図に示した。横軸には無水に再計算した SiO_2 wt %が、縦軸には各微量成分 (ppm) がとられた。全岩の SiO_2 wt %が増加するにつれて、Ce・Co・Cr・Sc・Sr・Zrは減少、Nb・Niは微減するのに対し、Rbは増加する。これらの微量化学組成は、全岩主要化学組成と同様に、なめらかな曲線上の変化を示す。このことは、大峯Sタイプ花崗岩が同一起源マグマから由来したという考え¹⁰⁾を支持している。

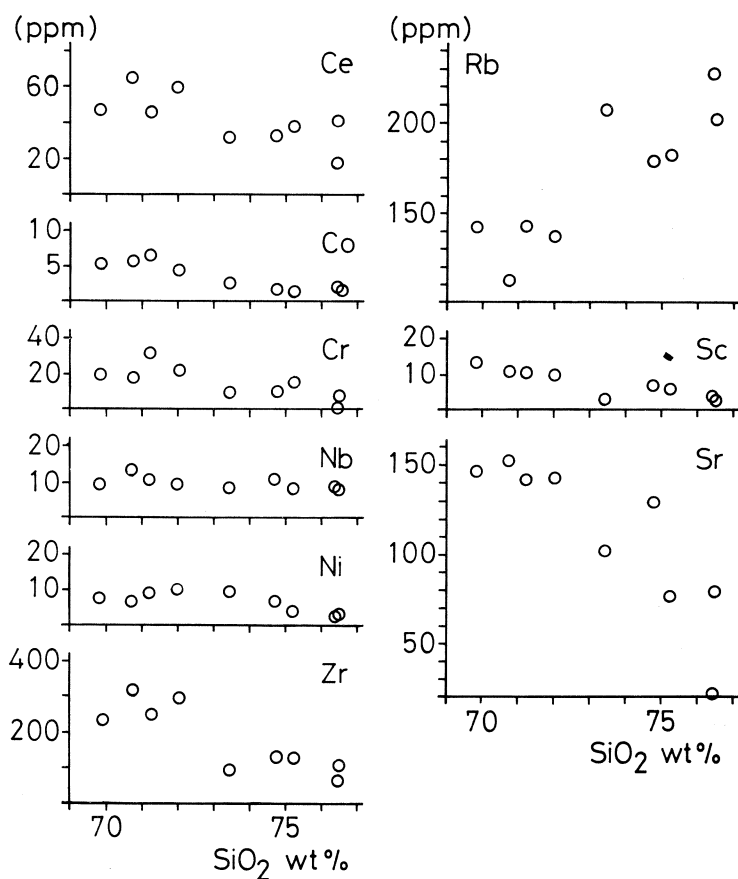


Fig. 1. SiO_2 -trace element variation diagram.

Iタイプに属する白倉花崗岩の全岩主要化学組成は、 SiO_2 の変化に乏しく、組成変化径路は明らかではない¹⁰⁾。この岩石の全岩主要化学組成は、同じIタイプに属する洞川花崗岩質岩よりも、むしろ大峯Sタイプ花崗岩の組成変化の延長に近い。しかしながら、白倉花崗岩の微量化学組成¹³⁾と大峯Sタイプ花崗岩のそれとを比較すると、白倉花崗岩のCr・Ce・Ni・Rb・Sc・Zr等の元素は、Sタイプ花崗岩のそれらの組成変化径路の延長上の組成を有さず、両

者は微量化学組成の変化径路から区別される。したがって、全岩主要化学組成および微量化学組成から、大峯Iタイプ花崗岩質岩とSタイプ花崗岩とは明瞭に区別することができる。

本研究を進めるにあたり、東北大学原子核理学研究施設八木益男助教授・榊本和義氏、東北大学サイクロトロンRIセンター藤田稔教授・山寺亮博士、東北大学教養部蟹澤聰史教授には実験操作上の御便宜を図っていただいた。岡山大学温泉研究所上田晃博士および山形大学理学部田中久雄博士は、未公表分析値の引用を許可された。光量子放射化分析にあたり、東北大学理学部金子信行、霜鳥洋、小泉治彦の各氏および東北大学教養部石川賢一博士の御援助を得た。以上の方々に感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 柴田秀賢：藤本治義教授還暦記念論文集（1958）420.
- 2) N. Ôba : J. Geol. Soc. Japan **68** (1962) 162.
- 3) S. Ishihara : Mining Geol. **27** (1977) 293.
- 4) B. W. Chappell and A. J. R. White : Pacific Geol. **8** (1974) 173.
- 5) M. Takahashi, S. Aramaki and S. Ishihara : Mining Geol. Spec. Issue No. 8 (1980) 13.
- 6) 村田 守：総研「我国の累帯深成岩体の形成機構およびその地質構造論的意義に関する総合的研究」成果中間報告書（1984）p. 35.
- 7) 村田 守：岩鉱 **79** (1984) 印刷中.
- 8) M. Murata, T. Itaya and Y. Ueda : Contrib. Mineral. Petrol. **84** (1983) 58.
- 9) T. Itaya, K. Nagao, M. Murata and K. Ogata : *Proc. 5th International Conference on Geochronol. Cosmochronol. Isotope Geol.* (1982) p. 164.
- 10) 村田 守：岩鉱 **77** (1982) 267.
- 11) 岡本康成, 本間弘次 : MAGMA No. 67 (1983) 143.
- 12) 上田 晃：私信.
- 13) 村田 守, 吉田武義, 青木謙一郎：核理研研究報告 **16** (1983) 294.
- 14) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **15-1** (1981) 101.
- 15) 村田 守：博士論文 東北大学 (1982).

- 16) 蟹澤聰史：岩鉞 **73** (1978) 26.
- 17) 田中久雄：私信.
- 18) 岡本康成：修士論文 岡山大学 (1983).
- 19) T. Yoshida and K. Aoki : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **16**
(1983) 160.

Ⅳ. 加 速 器 ・ 測 定 器

スリットによって散乱された 電子によるビームダクトの発熱

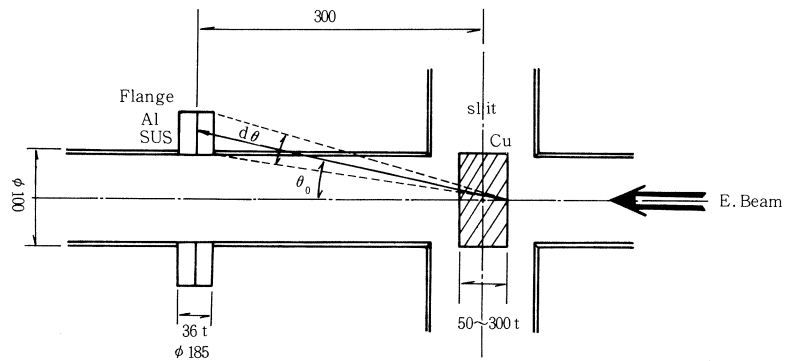
核 理 研

今野 収・須田利美・菅原真澄

§ 1. 序

電子リニアックには実験上の要請からビーム偏向系にスリットやコリメーターを必要とする。これらの装置で散乱された電子ビームによって後方にあるビームダクトが発熱する。

次期加速器計画の電子リニアックは、最大エネルギーが4 GeV、平均電流が $100\mu\text{A}$ を予定している。このような高エネルギー電子によって発生する二次電子の発生過程と、現在のスリット(第1図)と同形のものを使用した場合に予想される発熱量を計算したので簡単に説明する。又、このための基礎資料を得るために現在の300 MeV電子リニアックにおいて、スリット後方のダクトがどの程度発熱しているかを測定し、今後ダクト等の設計をどのようにすべきかを検討する。



第1図 スリット形状図。

§ 2. 解析方法

電子ビームのスリット中におけるカスケード・シャワーの発生過程とスリット後方にあるフランジの温度上昇について説明する。

高エネルギーに加速された電子がスリットに入射すると制動輻射と対創生により急激に電子と光子数が増加する。これらの過程で広がった電子はスリットを通過した後、その後方にあるフランジを通過しそこでエネルギーを失い、その結果フランジの温度が上昇する。ここではスリットの材質を銅、フランジの材質をアルミニウムとステンレス鋼とし、スリットは完全に

閉じていると仮定する。スリットの厚みを変えた時(50～300 mm)のフランジの温度上昇の割合を電子エネルギーが220 MeVの場合と1～4 GeVの場合について計算した。

上記のカスケード・シャワーの理論と計算法について簡単に説明する。先ず理論では次の量を定義している。

$\pi(E, t) dE$ …………… 深さ t で $E \sim E + dE$ のエネルギーの電子数

$\gamma(E, t) dE$ …………… 深さ t で $E \sim E + dE$ のエネルギーの光子数

(ここで深さ t は放射長を単位とする)

カスケード・シャワーの理論はこれらを決定することに尽きる。ここでは Carlson と Oppenheimer による拡散方程式¹⁾を用いた方法を使う。

深さ t で $\pi(E', t) dE'$, $\gamma(E', t) dE'$ の状態にある時, 次の dt 進む間に $E \sim E + dE$ である電子と光子の数の変化は次の諸量で表わせる。

(1) 電子数の変化

- ① $E' (> E)$ の光子が対創生とコンプトン効果を通して $E \sim E + dE$ の電子を作る過程。

その確率を $\phi_{r\pi}(E', E)$ とすると電子数の変化は

$$dEdt \int_E^{\infty} \gamma(E', t) \phi_{r\pi}(E', E) dE'$$

- ② 物質中の電子と衝突し, エネルギーが $E' (> E)$ の電子が $E \sim E + dE$ になる。また制

動輻射によりエネルギーを失って $E \sim E + dE$ になる過程。その確率を $\phi_{\pi\pi}(E', E)$ とすると

$$dEdt \int_E^{\infty} \pi(E', t) \phi_{\pi\pi}(E', E) dE'$$

- ③ 制動輻射, 衝突により $E \sim E + dE$ の電子がエネルギーを失う過程。その確率を

$\mu_{\pi}(E)$ とすると

$$-\pi(E, t) \mu_{\pi}(E) dEdt$$

同様に

(2) 光子数の変化

- ① $E' (> E)$ の電子の制動輻射により $E \sim E + dE$ の光子が作られる過程。その確率を

$\phi_{\pi\gamma}(E', E)$ とすると

$$dEdt \int_E^{\infty} \pi(E', t) \phi_{\pi\gamma}(E', E) dE'$$

- ② $E' (> E)$ 光子がコンプトン効果で、 $E \sim E + dE$ の光子になる過程。その確率を $\phi_{\gamma\gamma}(E', E)$ とすると、

$$dEdt \int_E^{\infty} r(E', E) \phi_{\gamma\gamma}(E', E) dE'$$

- ③ $E \sim E + dE$ の光子が対創生、コンプトン効果でエネルギーを失う過程。その確率を $\mu_{\gamma}(E)$ とすると

$$-r(E, t) \mu_{\gamma}(E) dEdt$$

以上から次の拡散方程式が得られる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \pi(E, t)}{\partial t} = & -\pi(E, t) \mu_{\pi}(E) + \int_E^{\infty} r(E', t) \phi_{\gamma\pi}(E', E) dE' \\ & + \int_E^{\infty} \pi(E', t) \phi_{\pi\pi}(E', E) dE' \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial r(E, t)}{\partial t} = & -r(E, t) \mu_{\gamma}(E) + \int_E^{\infty} \pi(E', t) \phi_{\pi\gamma}(E', E) dE' \\ & + \int_E^{\infty} r(E', t) \phi_{\gamma\gamma}(E', E) dE' \end{aligned} \quad (2)$$

$\pi(E, t)$, $r(E, t)$ を求めるには、この連立微分方程式を解ければよい。これを解くために次の近似をする。コンプトン効果と衝突によるエネルギー損失を無視する。この近似により得られた解は、エネルギーが十分高ければこれらの効果を考慮して数値的に解いた結果のよい近似になっている。¹⁾ 一方この方程式からはカスケード・シャワーの拡がりは求められない。

次にカスケード・シャワーの拡がりについて簡単に説明する。²⁾ 一般に十分エネルギーが高い場合、制動輻射と対創生等によるシャワーの拡がり、電子の物質中での多重散乱による拡がりよりも小さい。そこで、ここでは多重散乱によりカスケード・シャワーは拡がっていくと考える。

エネルギー E の電子が物質中を dt 進む時に多重散乱によって拡がる角度の2乗平均 $\langle \theta^2 \rangle$ は

$$\langle \theta^2 \rangle = \left(\frac{E_s}{E} \right)^2 dt \quad (E_s = 21 \text{ MeV})$$

で与えられる。

カスケード・シャワーの場合、多重散乱による拡がりの $\langle \theta^2 \rangle_{av}$ は

$$\langle \theta^2 \rangle_{av} = 0.55 \left(\frac{Es}{E} \right)^2 \quad (3)$$

が得られる。²⁾

実際の計算時には、ガウス分布を仮定して $\langle \theta^2 \rangle_{av}$ から分布関数を求め、エネルギーごとにフランジ方向へのシャワーの拡がりの確率を計算した。シャワーの拡がりについてはスリットの厚さが数輻射長しかない場合には、多重散乱の関係式を使うことは非常に粗い近似になるが、今回は上記の関係式を用いて計算した。

計算すべき量は $\pi(E, t) dE$, $r(E, t) dE$, そしてシャワーの拡がり $\langle \theta^2 \rangle_{av}$ とこれから決定できるガウス分布関数である。

エネルギー E_0 の電子が1個スリットに入射した時、スリットの厚さを t_0 とするとスリット後方で電子の個数は

$$N_{\pi} = \int_0^{E_0} \pi(E, t_0) dE$$

となる。これらのうちフランジ方向へ飛んでいく電子の数は、(3)式で計算することができる。

スリット後方の電子の分布として、ガウス分布 $f(\theta)$ (規格化してある)は

$$f(\theta) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{\theta^2}{2\sigma^2}}$$

を仮定すれば $\langle \theta^2 \rangle_{av} = \sigma^2$ だからフランジ方向 θ_0 へ飛ぶ電子の確率は、電子のエネルギーが E の時

$$f(\theta_0) d\theta_0 = \frac{1}{\sqrt{2\pi\langle \theta^2 \rangle_{av}}} e^{-\frac{\theta_0^2}{2\langle \theta^2 \rangle_{av}}} d\theta_0$$

となる。 $\langle \theta^2 \rangle$ は明らかに E の関数であるから以後 $\langle \theta^2(E) \rangle_{av}$ と書くことにする。

$\theta_0 \sim \theta_0 + d\theta_0$ 方向にあるフランジを通過する電子数 N は

$$\begin{aligned} N &= d\theta_0 \int_0^{E_0} f(\theta_0) \pi(E, t_0) dE \\ &= d\theta_0 \int_0^{E_0} \frac{1}{\sqrt{2\pi\langle \theta^2(E) \rangle_{av}}} e^{-\frac{\theta_0^2}{2\langle \theta^2(E) \rangle_{av}}} \pi(E, t_0) dE \end{aligned}$$

で与えられ、これからフランジの温度上昇が計算できる。

Rossi は(1), (2)式を解いて $\pi(E, t)$, $r(E, t)$ の具体的な形を与えている。¹⁾ それらは E について非常に滑らかな関数であるので、内挿法で $\pi(E, t_0)$, $r(E, t_0)$ を求め、以下の計算に使用した。

計算は 1 MeV おきに $\pi(E, t_0)$ を求め、これに確率 $f(\theta_0)d\theta_0$ を乗じて 0 から E_0 までの和をとった。

計算を簡単にするためにフランジ中における電子のエネルギー損失は電子のエネルギーに依らずほぼ一定と仮定してフランジの材質がアルミニウムの時には $2(\text{MeV cm}^2/\text{g})$, ステンレス鋼の場合には $1.8(\text{MeV cm}^2/\text{g})$ のエネルギー損失とした。この値に各材質の密度とフランジの厚さ 3.6 cm をかければ、フランジ中のエネルギー損失は

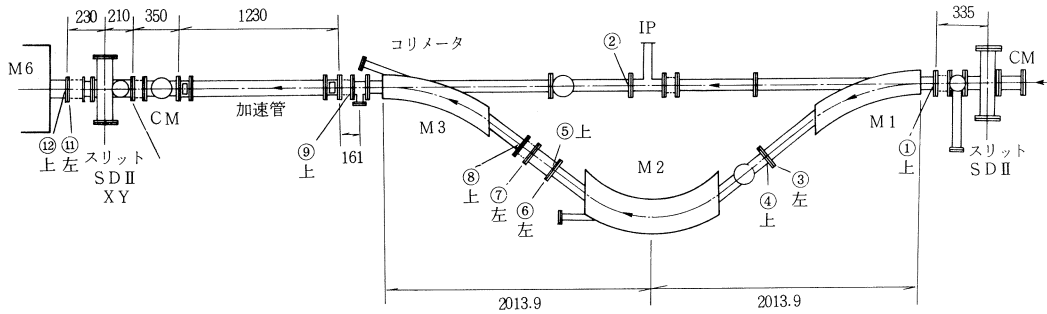
$$\Delta E_{Al} = 19 \text{ MeV}$$

$$\Delta E_{SUS} = 51 \text{ MeV}$$

となる。この値によるダクトの温度上昇の目安として、熱伝導率と放射熱を無視したときのフランジの 1 秒間における温度上昇を求める。この計算結果を後の実験結果と共に示す。

§ 3. 実験方法

ダクトの温度測定は、電子線散乱実験が行われた時のビーム調整時から実験終了時までを利用して連続測定を行った。今回の実験では第 2 図に示すように加速管列の後方に位置するスリット S D II から偏向電磁石 M 6 迄のエネルギー圧縮系 (E C S 系) の各フランジの温度を測定した。フランジの温度がスリットによる散乱電子によるものか、ビームの位置変動によるものを判別するために第 2 図に示す 12 箇所のフランジにクロメル-アルメル (C A) 熱電対を取り付けた。C A 熱電対はフランジのリーク溝に差し込んで固定しただけなので、熱接触は不十分であるがフランジの発熱状態の傾向を知ることができた。フランジの温度測定は E C S 系を使用した実験 ($E_0 = 190 \text{ MeV}$) と不使用 ($E_0 = 220 \text{ MeV}$) の 2 回に分けて行った。



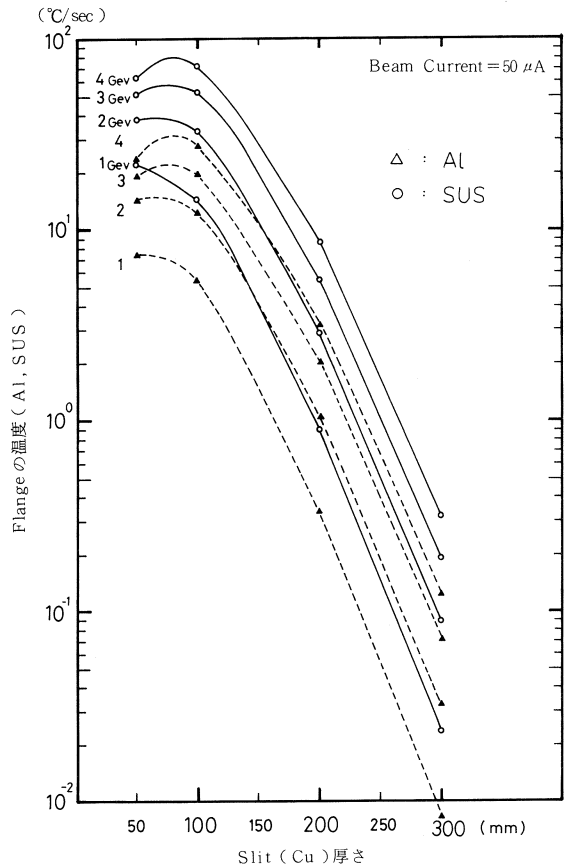
第2図 CA熱電対による温度測定。
 図中の番号(上, 左)は熱電対による温度測定箇所を示す。

§ 4. 実験結果

4.1 計算結果

計算は 300 MeV 電子リニアックで使用されているスリット(第1図 SD II)について行った。エネルギーを 220 MeV と 1~4 GeV とした時に、ビーム電流とスリットの厚さの関数としてスリット後方のフランジの1秒間の温度上昇の計算をした。実際にはフランジ材からの熱伝導と熱放射を考慮しなければならないから、この計算値通りになることはないが、前述のように、一応の目安になると考えられる。

フランジの材質がアルミニウムとステンレス鋼の場合について計算した結果を第1表と第3図に示す。



第3図 Slit (Cu) によって散乱された電子による Flange の温度上昇 (°C/sec)。
 Beam Current が 100 μA の時は温度上昇率は約 2 倍となる。

なお、第3図においてスリットSDIIからの散乱電子が後方のスリットSDIIXY付近に与える影響についても計算を試みた。SDIIからSDIIXYまでの距離を $L=660\text{cm}$ とし、 $E_0=220\text{MeV}$ 、 $I_0=100\mu\text{A}$ 、スリットの厚さ $=5\text{cm}$ とした時、この位置にあるフランジが1秒間に上昇する温度 Δt は

$$\Delta t = 2.32 \times 10^{-2} \text{ }^\circ\text{C/sec}$$

となり、第1表(1)の場合に比較して小さい。これは実測結果と矛盾するが、この原因については考察で述べる。

第1表 現有スリットにおけるフランジの温度上昇($^\circ\text{C/sec}$)とスリットの厚さの関係

1) $E_0=200\text{MeV}$ でのフランジの温度上昇

ビーム電流 スリット (μA) (cm)	10		50		100	
	Al	SUS	Al	SUS	Al	SUS
5	4.12×10^{-2}	2.72×10^{-1}	2.06×10^{-1}	1.36	4.12×10^{-1}	2.72
10	1.41×10^{-2}	9.31×10^{-2}	7.05×10^{-2}	4.66×10^{-1}	1.41×10^{-1}	9.31×10^{-1}

($^\circ\text{C/sec}$)

2) $E_0=1\sim 4\text{GeV}$ でのフランジの温度上昇

フランジ：ステンレス

エネルギー	ビーム電流	スリットの厚さ (mm)			
E_0 (GeV)	I_0 (μA)	50	100	200	300
1 GeV	50	2.27	1.45	0.091	0.00234
	100	4.55	2.91	0.183	0.00468
2 GeV	50	3.89	3.33	0.289	0.00899
	100	7.78	6.66	0.578	0.0180
3 GeV	50	5.19	5.27	0.551	0.0193
	100	10.4	10.5	1.10	0.0386
4 GeV	50	6.30	7.22	0.861	0.0327
	100	12.6	14.4	1.72	0.0654

($^\circ\text{C/sec}$)

フランジ：アルミニウム

		スリットの厚さ (mm)			
エネルギー	ビーム電流	50	100	200	300
1 GeV	50	0.857	0.54	0.0344	8.83×10^{-4}
	100	1.71	1.10	0.0689	1.77×10^{-4}
2 GeV	50	1.45	1.26	0.108	0.00339
	100	2.91	2.52	0.216	0.00679
3 GeV	50	1.96	1.99	0.208	0.00727
	100	3.91	3.98	0.416	0.0145
4 GeV	50	2.38	2.72	0.325	0.0123
	100	4.77	5.44	0.651	0.0246

(°C/sec)

4.2 測定結果

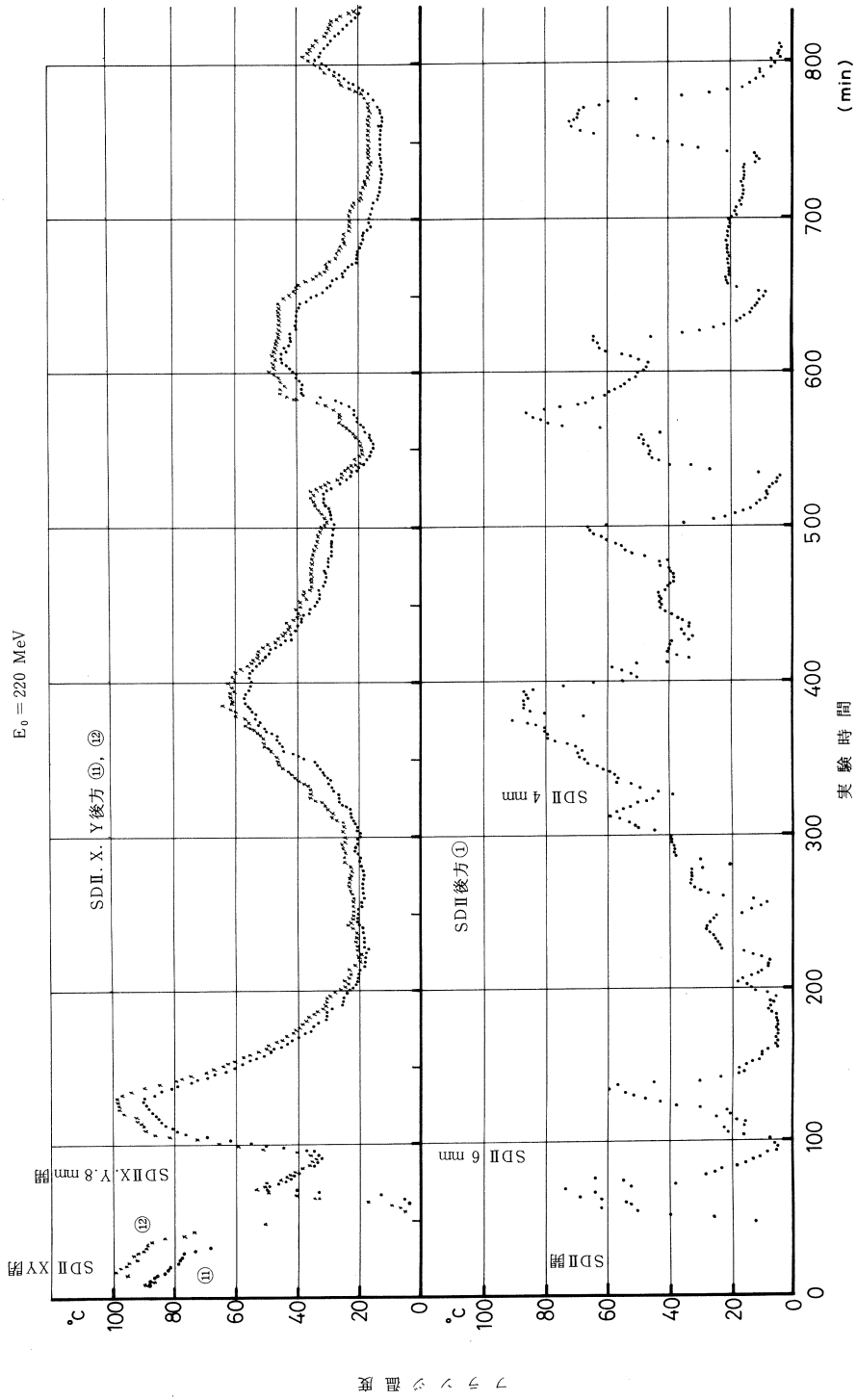
温度測定は先に示した第2図の①～⑫の箇所に取り付けたC A熱電対を用いて行なった。実験中に温度の上昇が観測された場所はS D II後方の①とS D II X Y付近の⑩⑪⑫だけで、当所予想したM 3後方のコリメーター⑨の温度上昇は見られなかった。これらの結果は第4図、第5図に示す。

○ $E_0 = 220$ MeV (E C S 不使用)での測定結果

測定結果は第4図に示す。ビーム軌道はS D IIから加速管を通して直線にS D II X Yへと進む。この実験ではS D II, S D II X Y後方のフランジ①と⑪⑫(第2図参照)の温度上昇が観測された以外にはフランジの温度上昇は見られなかった。この実験でS D IIが8 mm開, S D II X Y閉の状態でのフランジ⑪⑫の温度は100 °Cにも達した。第4図からも判るようにスリット後方のフランジ温度は, スリットの開度によって大きく変化しているのが良く判る。この実験ではビームの強度をS D IIの開度によって調整したので, 図の※印の所で①の温度が上下しているのが見られ, 少し遅れて⑪⑫の上昇が測定された。この実験でのビーム電流は正確に測定されていないが, 大体50 μ A程度と考えられる。

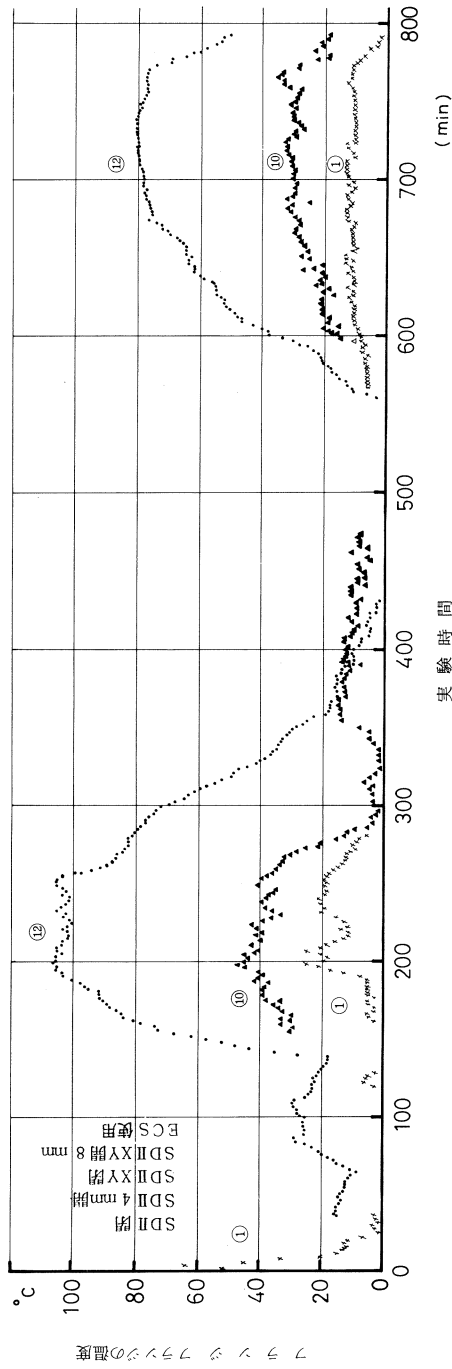
○ $E_0 = 190$ MeV (E C S 系使用)での測定結果

測定結果は第5図に示す。この実験でのビーム軌道はS D II～E C S系(M 1, M 2, M 3)～加速管～S D II X Yを通る。熱電対の位置は⑪を除いて220 MeVの時と同じである。⑪はM 3後方のコリメーターフランジに移設した。この測定ではスリット後方にあ



第4図 $E_0 = 220 \text{ MeV}$ での湿度上昇測定 (ECS不使用)
 ※ ビーム電流強度をSDIIの開度により調節している。

$E_0 = 190 \text{ MeV}$



第5図 $E_0 = 190 \text{ MeV}$ での温度上昇測定 (ECS系使用)。

る①⑫のほかはSDII XY手前に位置するフランジ⑩の温度上昇が見られた。この日の実験はSDII = 10 mm, SDII XY = 8 mm開で行われた。SDIIを10 mmに開いた時には①温度は $E_0 = 220$ MeV (SDII = 8 mm)の時の値よりも大幅に低くなっている。これはスリットSDIIによる散乱電子が減少していると判断出来る。この時のビーム電流は前と同様に約50 μ A程度であった。

§ 5. 考 察

計算結果は先に述べたようにフランジ材の熱伝導率(A1: 5.7×10^{-1} cal/cm \cdot s \cdot °C, SUS: 3.6×10^{-2} cal/cm \cdot s \cdot °C)と熱放射を考察しなかったので測定値に直接比較出来ないが、各部の相対的な温度上昇の一応の目安と考えれば良い。現在のスリット後方における発熱状態は計算結果の傾向と一致している。一方ECS系を使った実験($E_0 = 190$ MeV)では、SDII XY手前のフランジ⑩の温度上昇が観測された。これは計算からは予測されない。これについては次の2点が考えられる。

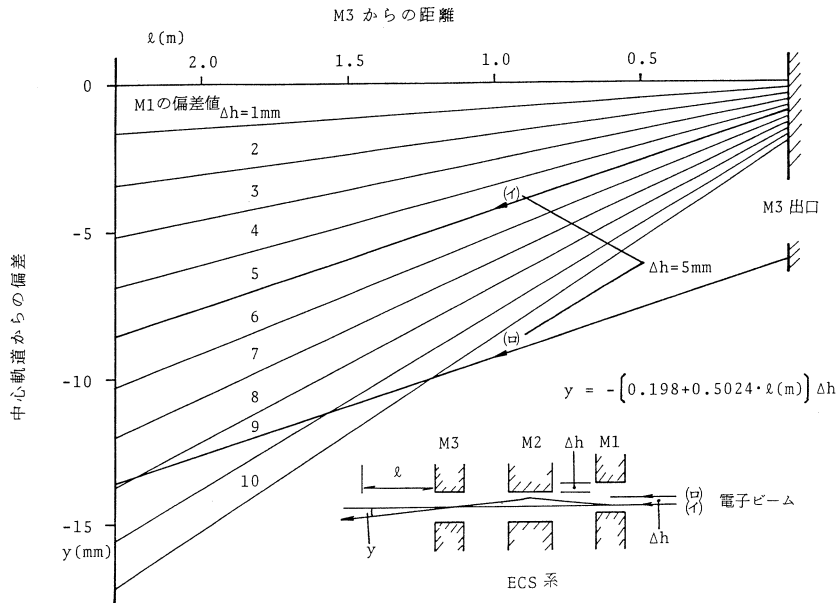
- (1) ECS系に入射する電子ビームの軌道を高く、又は低くなるようなビーム調整や電源変動等による軌道の変化があれば、ECS系を出た後に電子ビームが後方のコリメーターや加速管等(内径約20 ϕ)に当たる可能性がある。これによって発生した散乱電子によってフランジが発熱する。
- (2) 上記と同様な結論になるが、仮定として次のような場合が考えられる。

仮にECS系のマグネットM1~M3のどれかに上下位置変動があった場合について検討して見る。第2図においてM1がM2, M3に較べて高くなっていると仮定する。これを基にして軌道の変化を計算し、まとめたのが第6図である。この図においてビームがM2, M3の中心(図中イ)を通過した場合を考える。マグネット間の高低差 Δh を仮に5 mmとすれば、M3から出た電子ビームは図のイ線にそってビーム軌道が“ズレ”ことになる。

次にM1の中心(ロ)にビーム軌道がある場合を考える。先と同様にM1とM2, M3間の偏差を $\Delta h = 5$ mmとすれば、M3を出たビームは(ロ)の軌道へ全体が移行した“ズレ”を生じる。

以上の点から、仮にマグネット系の位置変動があれば電子ビームの中心軌道に大幅な“ズレ”が生じ、加速管等に当たって広がりフランジが発熱すると考えられる。

このように考えれば、フランジ⑩の発熱原因がスリットによるものでないという説明が出来る。



第6図 ECSマグネット間の高低差によるビーム軌道偏差。

§ 6. ま と め

次期加速器計画ではスリットを多段にしてある程度厚くしたとしてもスリット後方の発熱は避けられない。アルミ合金材はステンレス鋼と比較した場合、先に記した通り熱伝導率が約16倍良好であり、残留放射能の半減期⁴⁻⁶⁾と放出ガス量⁷⁾の点で真空材料として優れている。これらの点を考慮すればビームダクトの材質としてアルミ合金材を使用することは有益であると考えられる。

参 考 文 献

- 1) B. Rossi : *High Energy Particles*(Prentice-Hall, Englewood Cliffs, 1952).
- 2) B. Rossi and K. Greisen : *Rev. Mod. Phys.* **13** (1941) 240.
- 3) 山崎文男編 : 放射線 (1973) [共立出版 実験物理学講座 26]
- 4) 榊本和義, 今野 收, 八木益男 : 核理研研究報告 **15** (1982) 170.
- 5) 今野 收, 藤川辰一郎, 榊本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **16** (1983) 180.
- 6) 今野 收, 藤川辰一郎, 榊本和義, 八木益男 : 軽金属 **34** (1984) 22.
- 7) 成島勝也, 石丸 肇 : 真空 **26** (1983) 353.

(e , e' p) 実験装置

核理研, 教養部*, 情教センター**

日野 威・田中 陽・川原英明

菅原真澄・玉江忠明・坪田博明*

宮瀬晴久*・川添良幸**

§ 1. 序

我々は、1982年より、パルスビーム・ストレッチャーを利用した同時計数型電子散乱実験用の実験装置の製作を開始した。

ここでは、実験装置の概略と昨年度行なわれた実験の結果を報告するとともに、今後の問題点を述べる。

§ 2. 同時計数型電子散乱

本実験装置は主として、共鳴状態の研究用として製作されたものである。共鳴状態の研究において、従来の電子散乱と比較して、同時計数型電子散乱は、次の様な利点がある。

1. 散乱電子との同時計数を r 線以外の他の放出粒子ととる場合、弾性散乱からのラディエーションテイルは自動的に取り除かれることになる。
2. さまざまなチャンネルに崩壊する放出粒子を測定することにより、放出粒子のアイソスピン選択性を利用して、共鳴のアイソスピン依存性に関する情報が得られる。
3. 放出粒子の角度分布を測定することにより、多重極巨大共鳴の分離の際に、補助的に用いることができる。たとえば、E0共鳴の場合、反応平面内での角度分布はフラットになる。
4. 放出粒子の散乱平面外の角度分布より、縦成分のマトリックスと横成分のマトリックスの干渉項が測定できる。
5. 反応機構についての情報が得られる。また、反応の終状態を指定した実験は、よりくわしい核模型との比較ができる。

また、従来の光核反応と比較すると、次の様な利点がある。

1. E1巨大共鳴以上の高励起状態を研究する場合、直接、励起エネルギーをおさえることができるので、イールドカーブから導きだした断面積のような不安さがない。
2. 移行運動量を変化させることができるので、多重極巨大共鳴の研究に適している。

このように、同時計数型電子散乱は、従来の実験にはなかった特徴をそなえている。しかしながら、共鳴領域を対象とした同時計数型電子散乱は、これまで、あまり実験されていない¹⁾。

ここでは、同時計数型電子散乱のくわしい説明はしないが、詳しくは、参考文献²⁾を参照されたい。

§ 3. (e, e' p) 実験装置の概略

入射電子線は、パルスビーム・ストレッチャーにより得られる連続ビームを用いる。入射電子線は、散乱槽に導れ、標的に照射される。散乱電子は、二重集束型磁気スペクトロメーターにより、運動量分析される。運動量分析された電子は、焦点面上に設置された多線比例計数管 (MWPC) によって検出される。

標的核から放出される陽子等の荷電粒子は、散乱槽内に設置された表面障壁型半導体検出器 (SSD) により検出される。

検出器からの信号は、NIMモジュール・CAMACモジュールにより、簡単な処理をされ、計算機にとりこまれる。

以下、装置の各部について説明する。

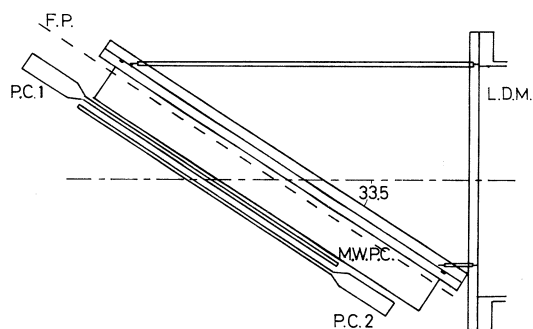
3.1 散乱電子検出系 (MWPC)

散乱電子の検出器は、多線比例計数管 (MWPC) を用いている。この MWPC は、通常の電子散乱実験用に製作されたものであるが、他に報告されていないので、ここで、簡単に説明する。

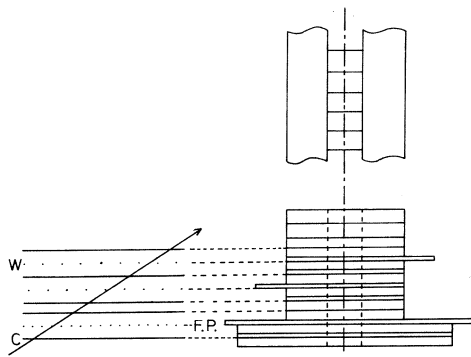
MWPC システムは、3 層の比例計数管とバックアップ用の 2 層のプラスチックシンチレーターからなる。

第 1 図は、MWPC システムを LDM に取りつけた時に横から見た図である。第 2 図は、比例計数管の投影図である。

比例計数管からの信号は、LeCroy 社の PCOS II の Chamber Card により、増幅され、波高弁別される。この Chamber Card は一枚の基板に 32 チャンネ



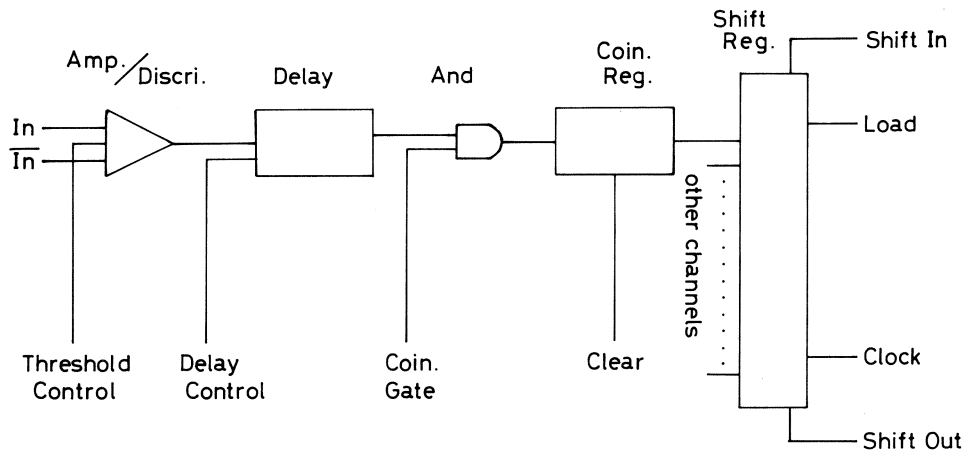
第 1 図 MWPC システムを大型電子線スペクトロメーターに取りつけたところを横から見た図である。電子は、フォーカル・プレーン (F. F.) に対して 33.5° の角度で入射する。P. C. 1, P. C. 2 はプラスチックシンチレーターの略である。MWPC システムの運動量受容量 (momentum acceptance) は約 5% である。



第2図 信号線の間隔は、一層目が2 mm、2層目、3層目が4 mmである。焦点面(F.P.)上に一層目の信号線が並んでいる。入射電子の方向を矢印で示している。
C：カソード、
F.P.：焦点面、
W：信号線。

ル分の回路がついている。増幅、波高弁別、同時計数用のゲート機能をもっており、データ転送用のレジスターが組み込まれている。(第3図)

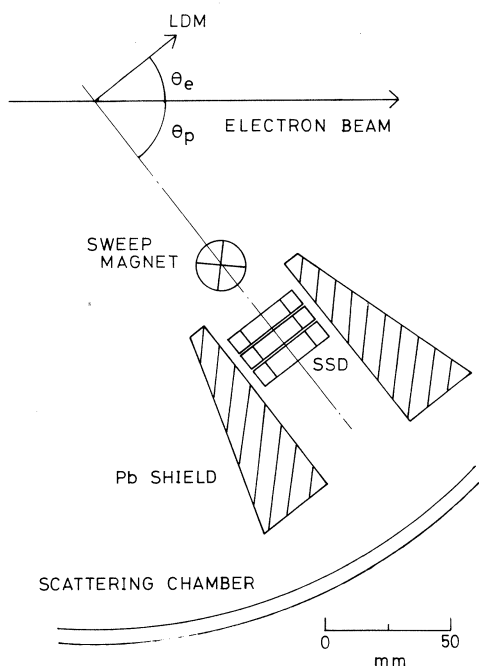
Chamber Cardから、転送されたデータは、MWPCエンコーダーにより処理されるが、くわしくは、データ収集系のところで述べる。



第3図 PCOS II Chamber Card ブロック図。

3.2 荷電粒子検出系

標的核から放出された荷電粒子は、散乱槽内に設置された表面障壁型半導体検出器(SSD)を用いる。SSDはORTEC社の全空乏層型；表面積 300 mm^2 ；有感層の厚さ $50 \mu\text{m}$ のもの1枚と 1 mm のもの2枚を重ねて用いる。粒子弁別とエネルギーの決定は、 $\Delta E - E$ 検出器法³⁾を用いる。SSDの周囲は鉛でシールドしており、低エネルギーの電子がSSDに入射しない様に、SSD前方には、 1 kG の永久磁石が設置されている(第4図)。



第4図 散乱槽上から、SSD付近を見た図である。

また、MWPCシステムのプラスチックシンチレーターとSSDとの時間スペクトルを測定している。実験中に用いているゲートは150 nsec程度であるが、このタイムスペクトラムを測定していることにより、実験後の解析で、時間分解能を30 nsec程度にできる。

この他に、MWPC処理回路のパイルアップをモニターするためのデータと、同時計数した事象の個数を測定している。

CAMACモジュールに入ったデータは、パラレルブランチハイウェイを通して、実験室から測定室に送られ、計算機にとり込まれる。

§ 4. 実験結果

現在まで実験により、荷電粒子検出系(SSD)、プラスチックシンチレーターとSSDとのタイムスペクトルの計算機への取り込みは確実にこなわれていることが確認された。MWPCのスペクトルについては、高圧電源の故障のため、今回はデータを得られなかった。以下に、得られた結果を示す。

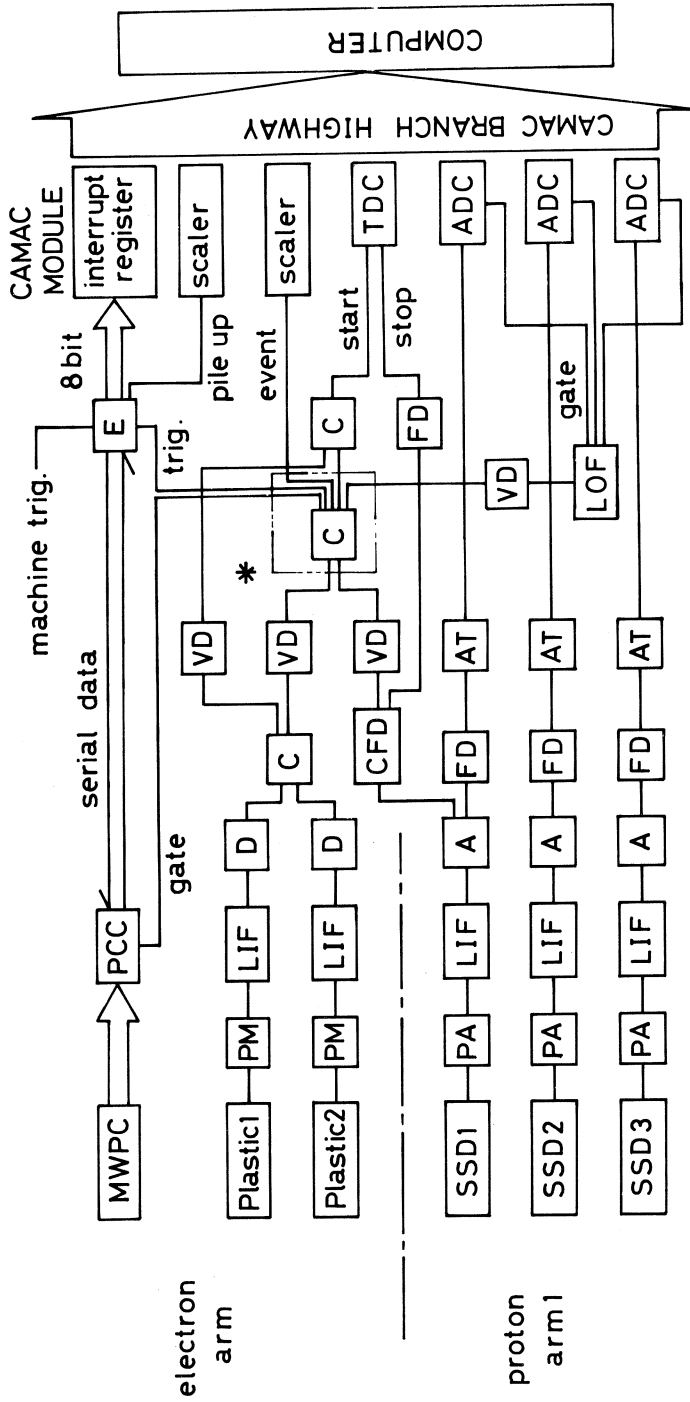
3.3 データ収集系

各検出器からCAMACモジュールまでのブロック図を第5図に示す。

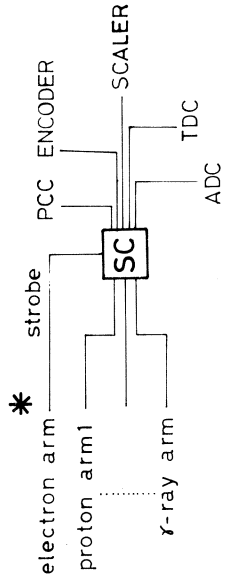
MWPCシステムのバックアップ用プラスチックシンチレーターとSSDで、散乱電子と放出荷電粒子の速い同時計数をとる。この同時計数信号をマスターゲートとMWPCエンコーダーのトリガーに用いる。

MWPCエンコーダーは、MWPC3層の間での同時計数を行い、放電した芯線的位置を8ビットのデータに変換する。8ビットに変換されたデータにCAMAC interrupt registerに入る。

各SSDからの信号は、増幅された後、信号を適当な波高値を調節されて、CAMAC ADCに入る。



PCC : PCOS II Chamber Card,
 E : MWPC エンコーダー,
 PM : 光電子増倍管,
 LIF : linear fan in out,
 D : discriminator,
 C : coincidence,
 VD : variable delay,
 FD : fix delay,
 CF : constant fraction discriminator,
 PA : pre amplifier,
 A : amplifier,
 AT : attenuator,
 LOF : logic fan in out,
 TDC : time digital converter,
 ADC : analog digital converter,
 SC : strobe coincidence.



第5図 データ処理・転送系のブロック図。

4.1 荷電粒子検出系

SSDを標的方向から順にSSD1, SSD2, SSD3とする。SSD1の厚さは $50\mu\text{m}$, SSD2, SSD3の厚さは 1mm である。

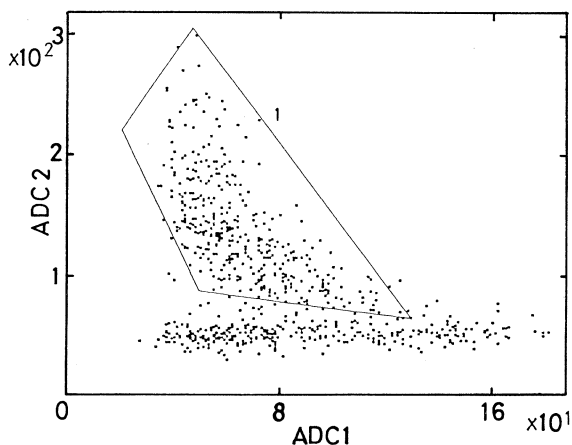
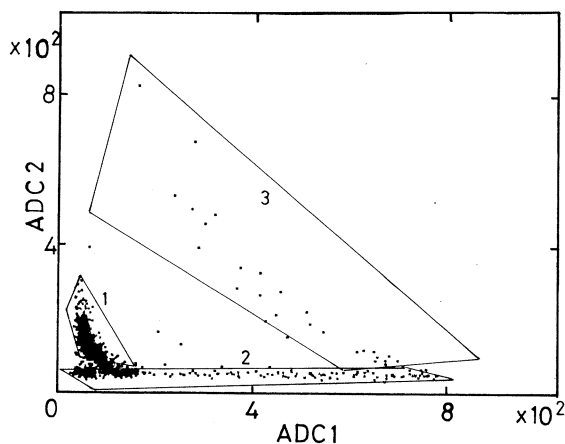
第6図は、SSD1の波高値を横軸に、SSD2の波高値を縦軸にとったものである。この図を見るとわかるように、データはいくつかの領域に分かれる。 $\Delta E-E$ 検出器法では、SSD1を通過し、SSD2内で止まった荷電粒子は、第6図のようなグラフにデータをプロットすると、ほぼ、双曲線上にデータがのることが知られている。以下で、各領域について、さらに、詳しく議論する。

第6図における領域1内にふくまれるデータだけについて、SSD1 \times SSD2 の異なる山に分布を示したのが第7図である。

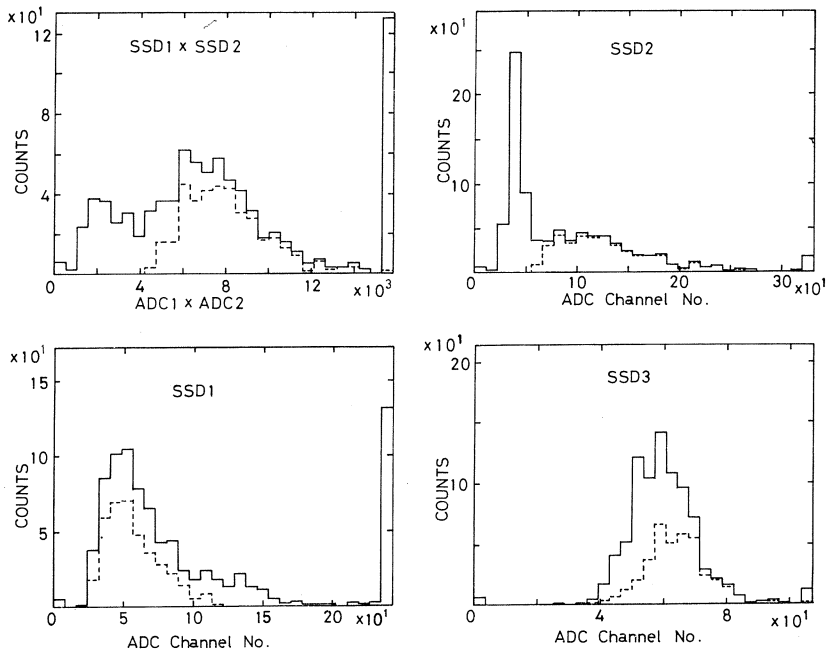
第6図の領域2内のデータについて同様にグラフをとったものが第8図である。

領域1と領域2のデータは、SSD1 \times SSD2 の異なる山に対応していることから、領域2の

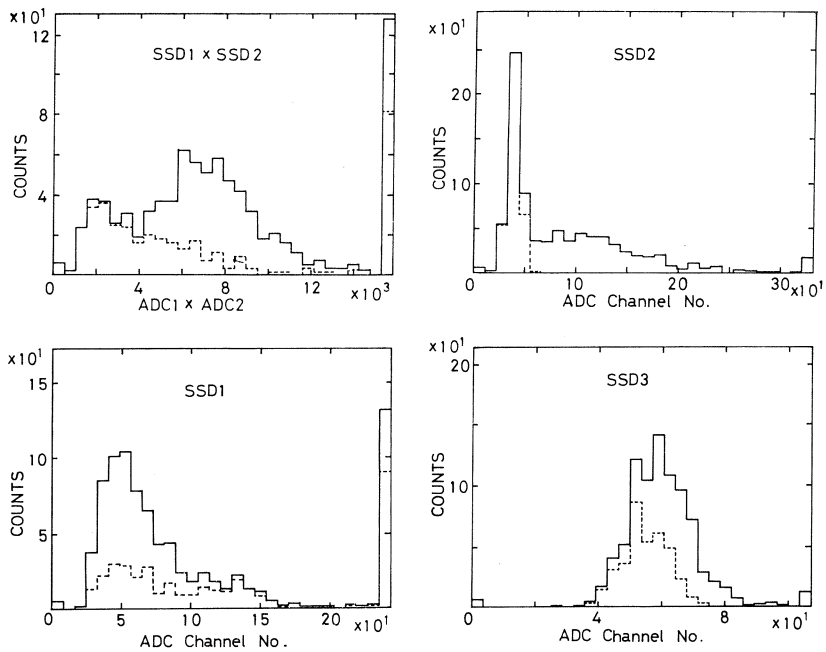
データは電子等のバックグラウンドもしくはSSD1内で止まった荷電粒子と推測される。また、領域1内のデータは1種類の荷電粒子と考えられる。第6図の位置関係から、領域1内のデータは陽子、領域3内のデータは α 粒子であると推測できる。今後、くわしい解析を進める予定である。



第6図 横軸はSSD1のADC channel, 縦軸はSSD2のADC channelである。



第7図 実線は全領域のデータ、点線は領域1のデータをプロットしたもの。左上は、SSD1のADC channelとSSD2のADC channelを掛けた数値を横軸にとったものである。他は、各SSDの波高分布である。



第8図 領域2のデータについて、第7図と同様にグラフをプロットしたものである。

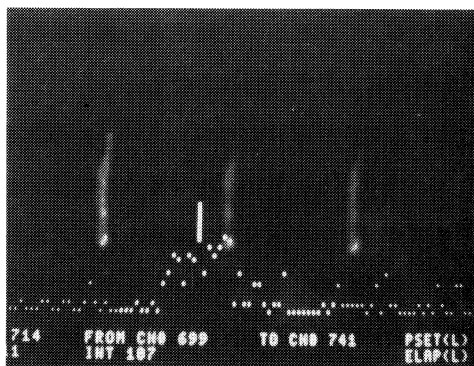
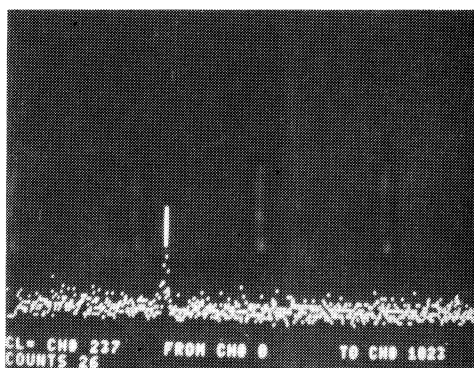
4.2 タイムスペクトル

プラスチックシンチレーターとSSD1とのタイムスペクトルを第9図に示す。偶然事象とは識別できる、物理的事象を示すピークが見られる。ピークの間は30 nsec程度である。

4.1で述べた方法で、SSDのバックグラウンドを除いてやれば、S/N比も向上することが期待できる。今後さらに、解析を進める予定である。

§ 5. 今後

今回は、散乱電子のスペクトルを得ることはできなかったが、現在、MWPCエンコーダーを、もっと、測定状況がモニターできるように改良中であり、今後の実験で得られる予定である。また、現在、荷電粒子の角度分布が一度に3点ほど測定できるように計画中である。荷電粒子アームの他にも、 r 線アームを設置するための予備実験を開始している(第5図)。



第9図 MWPC システムのプラスチックシンチレーターとSSD1とのタイムスペクトル。下図は、上図の横軸を引き延ばしたもの。

参 考 文 献

- 1) S. S. Hanna : Nucl. Phys. **A 358** (1981) 229.
- 2) W. E. Kleppinger and J. D. Walecka : Ann. Phys. **146** (1983) 349;
D. Drechsel and H. Überall : Phys. Rev. **181** (1968) 1383.
- 3) 野中 到: 実験物理学講座 原子核 (共立出版) p.104.

マイクロ・ロボットによる放射線計測の自動化

核理研

榎本和義・武藤正勝・八木益男

§ 1. 序

ラジオアイソトープ取扱施設では、トレーサー実験、放射化学分析、放射化分析あるいは放射線安全管理業務のための各種放射線測定を通常実施している。また、これら施設で使用されるラジオアイソトープは多種にわたることが多く、それぞれの核的性質に応じてガンマ線やベータ線、時にはアルファ線等を検出測定する必要にせまられ、半導体検出器、シンチレーション検出器、GM検出器等特色ある放射線検出器を適宜用いることによって、それらの定性的あるいは定量的計測が行なわれる。

これらの放射線計測においては一般の機器分析における測定とはかなりその様相を異にし、粉末、ペレット、フォイル等様々な固体そして液体、またときには気体までも測定したり、ラジオアイソトープ固有の半減期を長期にわたって測定したり、また微弱放射能を最良のSN比で検出するため昼夜分たず測定したりすることを余儀なくされる。それゆえ、このような放射線計測の自動化はその開発がかなり遅れ、一部医学、生物学、薬学等の分野におけるトレーサー実験で特定核種専用放射線検出器の自動化が、液体シンチレーション・カウンタあるいはオートウエル・カウンタ等の開発で行なわれたにすぎない。しかしこれら核種による測定では、試料は必ず溶解し、特定バイアル等に移し測定しなければならないという面倒な手続きを強制し、不特定試料に対しては万全なものとはいいがたい面を持っている。

一方従来は、研究者自身が上記機種に採用されている試料自動交換器を開発することは極めて困難な状況にあったが、最近産業ロボットとは異なったマイクロ・ロボットが安価に市販されるようになり、それが可能となってきた。これらはパーソナル・コンピュータとの結合で多様な動作をさせることができ、いろいろな自動化が容易に実現出来るのではないかという期待感をいだかせるものである。

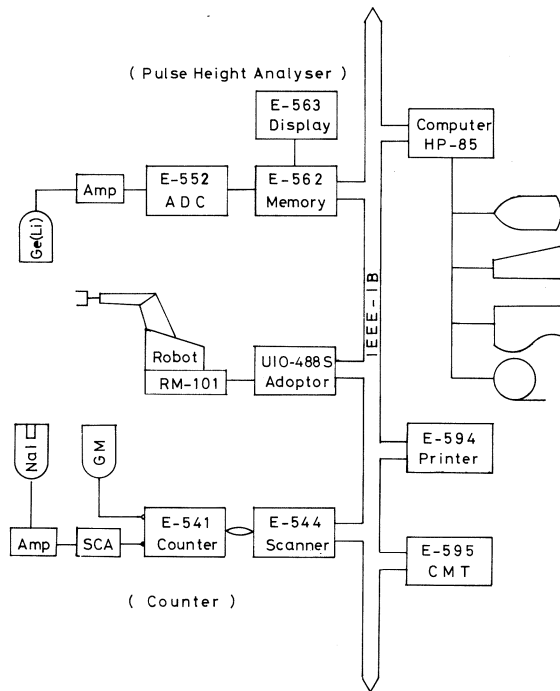
この汎用マイクロ・ロボットとしては、人間の腕の機能をもったものが市販されており、これを利用すれば多種多様な試料でも、あらゆる放射線検出器に対して所定のジオメトリで再現性良く試料をセットし測定し交換することが可能となり、複雑な放射線計測分野におけるラボラトリ・オートメーション化を簡易かつ安価に実現してくれるものと期待される。

そこで、従来用いていた手動操作による放射線計測システムに、この汎用マイクロ・ロボットを導入し、その自動測定化を実現することを試みた。

§ 2. 計測システムの構成

自動計測システムのブロック・ダイアグラムは第1図に示されている。システム・コントローラはYHP社製パーソナル・コンピュータHP-85であり、HP-IB (IEEE-IB)には、各種測定機器、IO機器およびマイクロ・ロボットが接続されている。マイクロ・ロボットは三菱電機製ムーブマスターRM-101で、端末用インターフェイス・ユニットであるMCIエンジニアリング社製UIO-488Sを介してパーソナル・コンピュータ (HP-85) で制御される。放射線計測に必要な入出力機器はここでは日本原子力事業製が用いられた。

放射線計測のうち半導体検出器〔Ge(Li)またはSi(Li)〕、シンチレーション検出器〔NaI(Tl)〕からのパルス波高分析は、



第1図 自動計測システムのブロック・ダイアグラム。

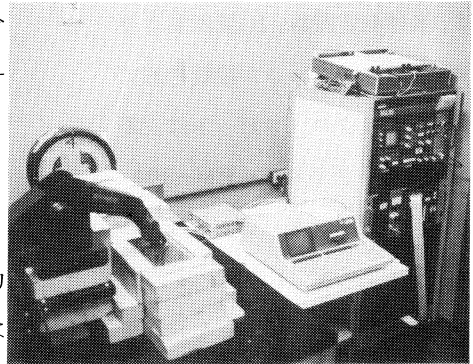
ADC (E-552) とプロセス・メモリ (E-562) によって行われる。

プロセス・メモリ (E-562) はそれ自体コントローラとしての機能を持っており、独立の測定器としても使用できる。また、シンチレーション検出器やGM管からのパルス・カウントはデュアル・カウンタ/タイマ (E-541) によって行われる。このデュアル・カウンタ/タイマ (E-541) はディジーチェーンによってカウンタ・スキャナ (E-544) に接続されており、パーソナル・コンピュータ (HP-85) からカウンタ・スキャナ (E-544) を介して制御される。パーソナル・コンピュータ (HP-85) 自身プリンタやカートリッジ・マグネチック・テープレコーダを内蔵しているが、プロセス・メモリ (E-562) からのデータ転送に時間がか

かるため別プリンタ（E-594）やカートリッジ・マグネチック・テープ（E-595）に一旦出力される。

パルス波高分析か、パルス・カウント測定かによって専用のプログラムをパーソナル・コンピュータ（HP-85）にロードし、ロボットと多重波高分析システムあるいはロボットとカウンタ・システムを連動させることになる。

多重波高分析システムの全景を第2図に示した。中央がパーソナル・コンピュータ（HP-85）で、左下はマイクロ・ロボット、右側は波高分析器やI/O機器およびそれに附属する各種モジュール類がラックに組み込まれている。



第2図 多重波高分析システムの全景。

§ 3. 自動計測プログラム

ここでは一例として多重波高分析システムの自動計測プログラムについて述べる。このプログラムは

(1) “Autost” および(2) “MOVE” で構成されている。自動計測プログラム “Autost” では、パーソナル・コンピュータ（HP-85）の電源投入後、内蔵のカートリッジ・マグネチック・テープから自動的にロードされスタートする。その際、タイム・アウト処理によってバス上の各モジュールのチェックが実行される。チェック終了後、ファンクション・キーの説明が第3図のように示され、各ファンクション・キーの操作で日時のセット（k1）、測定条件の入力（k2）、ロボットへの移動位置のデータの出力（k5）および測定開始（k4）等が行われる。検出器と試料との距離を変えるには動作手順変更のためのファンクション・キー（k3）を利用する。

一方、通常とは異なったタイプの試料を測定する場合には、ファンクション・キー（k8）によって、ロボット動作位置指定用のプログラム “MOVE” を利用する。この “MOVE” は

```

84/ 4/20    10:20:18
SELECT KEY
** FUNCTION KEY MENU **
k1. SET DATE & TIME
k2. SET COUNTING CONDITION
k3. CHANGE STEPS TO MOVE
k4. MEASUREMENT START
k5. READ & SEND P-DATA
k7. RETURN TO HOME POSITION
k8. MOVE MASTER CONTROL

-----
P-DATA   NEST   MOVE
CLOCK   INJT   STEP   START

```

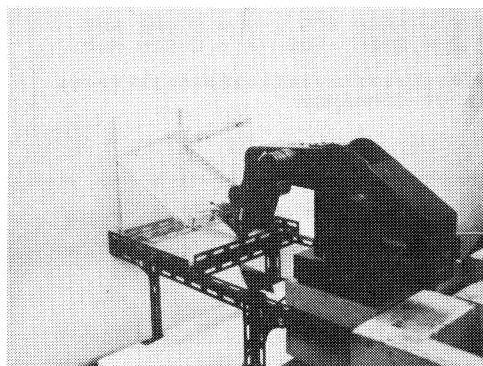
第3図 プログラム “Autost” でのファンクション・キー割当ての表示。

“Autost”とチェーンで結ばれており、それにはロボットに位置を学習させ、内蔵のカートリッジ・マグネチック・テープにデータを保存したり、ディスプレイに表示するための各種コマンドが用意されている。ロボットの動作位置決めが終了したら“Autost”に戻り、試料交換の動作手順を入力し測定を実行する。

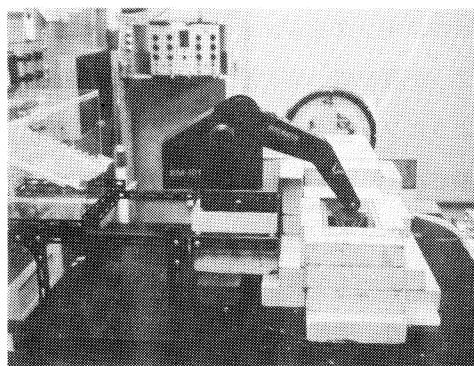
“Autost”ではバスに接続された各種機器からの割込み（サービス・リクエスト）が多用されている。このなかでは、ロボットでのエラー発生が最優先される。このロボットの場合はエラー解除は電源を一旦OFFする必要があるため、その時は測定を一時中断して試料がセットされていないのに測定を開始したり、同じ試料を何度も測定したりすることのないようにしなければならない。エラー発生時には第3図の状態に戻るから、ファンクション・キー（k7）でロボットを原点復帰させたうえで電源OFFによってそのエラーを解除する。その他の割込みとしては、プリセット値に達したり、プリンタ等へのデータ出力が終了した場合に利用される。

測定条件の入力では、パーソナル・コンピュータ（HP-85）のタイマ機能（TRUE TIME）もしくはプロセス・メモリ（E-562）のプリセット機能（LIVE TIME、プリセット・カウント）のいずれを使うかの選択、使用メモリ領域、プリンタへの出力の要・不要、カートリッジ・マグネチック・テープのファイル・ナンバの指定、そして測定回数等がセットされる。

測定開始のキーを押すと、まずロボットは動作手順に従って定位置に置かれた測定試料をつかみ（第4図）、鉛シールド内の放射線検出器の所定位置にそれをセットし、その状態を持続する（第5図）。ついでプロセス・メモリ（E-562）に測定開始のコマンドを送り、パーソナル・コンピュータ（HP-85）内蔵プリンタおよび別のプリンタ（E-594）に試料ナンバ



第4図 ロボットが測定試料をつかむところ。



第5図 検出器に試料をセットしたところ。

と測定開始日時を記録する。測定が終了したら終了時刻が同様に記録され、データはカートリッジ・マグネチック・テープ（E-595）に出力される。この際、プリンタ（E-594）へはガンマ線スペクトルデータのうち指定領域だけが出力される。その出力例が第6図に示されている。測定終了とともに試料は重力式試料交換ラックに戻され、ロボットは定位置に置かれた次の試料を再びつかみ同様測定を繰り返す。すべての試料を測り終るとロボットはホーム・ポジションに原点復帰し、第3図の状態となって次の測定シリーズを待機する。

前述のプログラム“MOVE”はパーソナル・コンピュータ（HP-85）によってロボットを自在に動かすためのもので、プログラムがロードされると第7図のように表示される。ロボット固有のコマンドをキーボードからキーインして直接コントロールすることができるとともに、プログラム専用のコマンドで動作位置をカートリッジ・マグネチック・テープにストアしたり（Q）、読みだしたり（R）、ロボットへ送ったり（B）、ディスプレイに表示して変更を加えたり

（An）するとともに、ロボットの各関節を実際に作動させながらそれぞれの動作位置を決定する（Z）ことができる。この“Z”をキーボードから入力すると、まず1回のファンクション・キー操作での移動ステップ数を聞いてくる。つぎに第8図(a)のようにファンクション・キーの割当てが表示されキー(1)~(3)および(5)~(7)を押すことで、ロボットの腰、肩、腕の各関節が動かされ、キー(4)を押すと表示は第8図(b)の

ようになり、手首の回転、上下そして手（指）の開閉が行われる。所定の位置に達したらキー(8)を押して第7図の表示に戻し、ロボットに現在位置を記憶させるためのコマンド（En）を入力する。ロボット内に記憶されたこのデータは読みだせず、また電源OFFによって消えてしま

```

*** RUN NO. 1 ***
[ DATE ] 84/04/20
[ START ] 10:40:30
[ END ] 10:45:34

0
300
500
73 63 76 79 71
90 91 113 109 455
1051 1557 983 299 123
50 61 41 63 45
1165
34 27 28 39 30
40 161 654 836 236
27 15 17 18 14
1265
16 22 12 19 21
10 26 106 459 725
290 37 4 6 5
1320
10 0 15 13 9
13 13 12 21 36
147 659 800 249 24
0 0 1 0 0
0 0 0 0 2

```

第6図 プリンタ（E-594）へのデータ出力例。

```

*****
[ ROBOT CONTROL COMMANDS ]
H,N,En,Pn,Mn,I,F,C,Sn,Tn
[ HP-85 CONTROL COMMANDS ]
An -> DISP POS.  B -> SEND POS.
R -> READ POS.   Q -> STORE POS.
Z -> DIFF POS.  X -> CHAIN PGM.
*****
INPUT COMMAND?

```

第7図 プログラム“MOVE”での使用コマンドの表示。

```

INPUT SPEED ( NORMAL IS 1 )?
1

-----
WST-LR  SDR-DN  ELB-DN  GO-COM
WST-RR  SDR-UP  ELB-UP  NEXT

```

第8図(a) ロボット関節の遠隔作用に
割当てられたファンクション
・キーの表示

```

-----
HO-LR   HO-UP   OPEN   GO-COM
HO-RR   HO-DN   CATCH  RETN

```

第8図(b) ロボット手(指)の遠隔操
作に割当てられたファンクシ
ョン・キーの表示。

うため、同時にパーソナル・コンピュータ(HP-85)にも同じデータを記憶させておく。

各実験者はそれぞれの測定形態を決め、その試料専用の試料交換ラックを準備すれば、以上二つのプログラム“Autost”と“MOVE”によってロボットの動作位置決めを行なうことができ、一回この位置決めを行っておけば、いつでも各実験種目ごとの自動測定システムとして機能させることができる。

§ 4. 本システムの特徴とその応用

本システムは標準デジタル・バス(IEEE-IB)の採用によって、システムの拡張、変更、更新が自在にでき、容易にラボラトリー・オートメーション・システムを実現できた点にその特徴を見出すことができる。特にバス上に汎用マイクロ・ロボットを導入したことで、従来自動測定には不適と思われていた試料の自動計測化が極めて簡便かつ安価に実現され、研究の省力化が実際に達成されたことは評価されよう。

この汎用マイクロ・ロボットの利用はここで試みたような単なる試料交換だけにとどまらず多方面への利用が考えられる。ロボット自身外部機器をコントロールできるコマンドを有して

いるため、モータ、リレーあるいは各種センサーを接続することによって、いろいろの機能を付加することができ、自動サンプリング、混合、秤量等の作業も実施させることができよう。また、天秤やpHメータ等に標準デジタル・バス（IEEE-IB）を装備させることによってバスにそれら各種化学用計測機器を直接接続しロボットと連動させることも可能となり、研究の省力化に役立たせられよう。一方、高放射性物質の取扱いで放射線被曝を伴うような場合には、コントローラからコマンドを送りつつマニピュレータとして利用することも可能で、コールド・ランで一回学習させておけば正確な操作を繰返し実行させることができよう。

しかし、この汎用マイクロ・ロボットにも(1)エンコーダを内蔵していないこと、(2)動作速度が遅いことがその難点として指摘される。現在のところこれらの点で特に支障は生じていないが、多数の試料をルーチン測定する場合とか、短時間内に多数の試料を測定したい場合にこれらは不利となる。例えば上述した多重波高分析システムにおいては試料交換に3分を要し、100試料測定ではなんと5時間が試料交換に費やされることになる。またその際微妙な負荷のためにステッピング・モータが僅かに空すべりを起した場合には、100回反復による位置のずれは非常に大きなものになってしまう恐れがある。それ故より速い信頼性ある作動を望む場合には(1)および(2)が更に改善された上位機種を選定が必要であろう。

最近の放射線検出器、計測機器、IO機器および小型計算機の発達は、数年で様相が一変する位著しい。しかし、本システムの場合はすべてモジュール化された機器を用いており、部分的な更新、増設で今後の多くの要望にも安価に対応でき、学習機能を備えたロボットとして常にラボラトリ・オートメーションの一翼を担うものと期待される。既に大学においても研究の省力化の波は否応なしに押しよせている折から、今後このようなロボットの多方面への応用が積極的に図られるべきであろう。

V. 加速器・データ処理装置稼動状況

昭和58年度マシン報告

核理研マシングループ

一戸 隆・栗原 亮・高橋重伸

柴崎義信・浦澤茂一

概 況

大きな故障もなく、マシンタイムの消化は順調であった。

実施状況

第2実験室を使用するグループが増え、実験準備のため、マシン停止日をもうけなければならなかった。結果は第一表に示す。

保守状況

ECS系の真空リークはほとんどなくなった。

主な改造，更新は次の通り。

- クライストロンパルサーNo.4とNo.5にde Qing回路を付けた。
- 加速部のQ mag. 電源を更新した。
- 電子銃のエミッション電流を安定化した。

第1表 マシンタイム実施状況。

課 題	前 期		後 期		昭和58年度		備 考
	割当	実施	割当	実施	割当	実施	
es(小山田)	8	8			8	8	
es(藤 平)	5+1*	6	4	4	9+1*	10	
es(斎 藤)	8	8	6	6	14	14	
es(斎 藤)			1	1	1	1	
es(鳥 塚)			2	2	2	2	
es(川 添)			4	4	4	4	
es(堀 田)			1+1*	1	1+1*	1	次年度繰越し(実施済)
rπ(庄 田)	8	8	5	5	13	13	
rπ(庄 田)	6	6	4	4	10	10	
rπ(Min)	4	4	6	6	10	10	
rπ(成)			6	6	6	6	
Tag(p)	18	18	8	8	26	26	
Tag(n)	6	6	4	4	10	10	
e, e'p(菅原)	6	6	12	12	18	18	
rp(上 野)			6	6	6	6	
rp(宮 瀬)			4	4	4	4	
rp(Thompson)	4	0			4	0	4シフト返上
ND	18+2**	18	18	18	36+2**	36	
RI・物性	20	19	19	19	39	38	次年度繰越し(実施済)
SSTR	4	3	4	4	8	7	次年度繰越し
Tag			6	6	6	6	
MWPC	2	2			2	2	
SEM	2	2			2	2	
π-Mag	2	2			2	2	
SSD			1	1	1	1	
計	121+1+2**	116	121+1*	121	242+2+2**	237	

* 前年度末実施分

** 前年度繰上げ実施

データ処理装置稼動状況

核理研計測グループ

小山田正幸・窪田健雄

佐藤正幸・武藤正勝

§ 1. データ処理装置

今年度はデータ処装置（OKITAC-50/60）の利用効率のアップを図る為に今までの単独利用システムから、対話形式の複数利用システムに変更した。対話用ターミナルは4台でバッチ処理を含めて5人の同時利用が可能となった。又これを機会に研究棟2階にターミナル室を新たに設け、前記ターミナル2台と大計用ターミナル2台（1,200 bps, 300 bps）を設置して利用者の集中をさせた。

第1表に用途別利用実績表を示す。表には現われていないが、O-4500の本体電源部とLPにトラブルが発生して居ります。予算的な問題もありますが何んらかの対策を立てたいと考えて居ります。

第1表 昭和58年度・用途別利用実績表。

(単位：時間)

機種 用途 月	OKITAC-4500				OKITAC-50/40				OKITAC-50/60			
	データ 集積	データ 処理	保守 故障	月合計	データ 集積	データ 処理	保守 故障	月合計	リモート バッチ	データ 処理	保守 故障	月合計
4	59	0	3	62	212	15	9	236	9	91	0	100
5	0	0	4	4	281	45	2	328	36	74	5	115
6	24	0	7	31	122	105	0	227	7	177	0	184
7	66	0	5	71	340	41	45	426	16	300	0	316
8	0	0	6	6	0	48	90	138	9	167	6	182
9	85	0	1	86	46	140	17	203	4	269	0	273
10	22	70	3	95	86	92	2	180	1	192	1	194
11	48	0	5	53	147	71	5	223	2	176	5	183
12	49	42	2	93	206	60	12	278	1	204	2	207
1	36	95	3	134	123	93	6	222	4	161	6	171
2	43	34	6	83	299	41	4	344	0	124	5	129
3	36	0	5	41	195	30	5	230	0	174	5	179
合計	468	241	50	759	2,057	781	197	3,035	89	2,109	35	2,233
月平均	39	20.1	4.2	63.3	171.4	65.1	16.4	252.9	7.4	175.8	2.9	186.1
%	61.7	31.7	6.6		67.8	25.7	6.5		4.0	94.4	1.6	

Ⅵ. 論 文 リ ス ト

論文リスト

核理研共同利用の成果を核理研研究報告以外の学術雑誌に掲載された論文(1983年1月~12月)の題目を集録しました。

I 原子核物理

1. Isoscalar High-Energy Octupole Resonances in ^{92}Zr in Inelastic Electron Scattering.
T. Saito, Y. Fujii, K. Saito, Y. Torizuka, T. Tohei and J. Hirota:
Phys. Rev. C **28** (1983) 652.
2. Pion Angular Distribution in $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{13}\text{B}_{g.s.}$.
K. Shoda, M. Yamazaki, M. Torikoshi, H. Tsubota, K. Min,
E. J. Winhold and A. M. Bernstein: Phys. Rev. C **27** (1983) 443.
3. Photopion Angular Distribution from $^9\text{Be}(e, \pi^+)^9\text{Li}(g.s.)$.
K. Shoda, M. Yamazaki, M. Torikoshi, O. Sasaki, H. Tsubota and
B. N. Sung: Nucl. Phys. **A403** (1983) 469.
4. Isovector M2 and M4 Excitations via $^{12,13}\text{C}(\gamma, \pi^+)$.
K. Shoda, M. Torikoshi, M. Yamazaki, O. Sasaki, H. Tsubota,
E. J. Winhold, K. Min and B. N. Sung: Contribution paper to
International Conference on Nuclear Physics, Florence 1983.
5. Study of Isovector Spin-Isospin Mode Analog Giant Resonances in the
Photopion Reactions $^{12,13}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{12,13}\text{B}$.
K. Shoda, M. Torikoshi, M. Yamazaki, O. Sasaki, H. Tsubota,
K. Min, E. J. Winhold and B. N. Sung: Contribution paper to
Conference on the Highly Excited States and Nuclear Structure,
Orsay 1983.
6. Isovector Spin-Isospin Mode Analog Giant Resonances in ^{13}B by $^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}$.
K. Min, E. J. Winhold, K. Shoda, M. Torikoshi, M. Yamazaki,
O. Sasaki, H. Tsubota and B. N. Sung: Phys. Rev. C **28** (1983) 464.

7. Photo π^+ Production from ^{16}O .
K. Shoda, M. Yamazaki, M. Torikoshi, O. Sasaki, H. Tsubota
B. N. Sung : J.Phys. Soc. Japan **52** (1983) 3355.
8. Photo-Pion Studies at Tohoku.
K. Shoda : *Proc. Medium-Energy Photoproton Workshop, Melbourne, 1983*, ed. M. N. Thompson, p. 175.
9. Charged Photo-Meson Production from Nuclei.
K. Shoda : *Proc. 3rd French-Japanese Symposium on Nuclear Physics*,
ed M.Sakai and Y. Kawazoe (Maison Franco-Japonaise 1983) p. 65.
10. Identification of E2 Strength Distribution in ^{65}Cu by the (e, p_0) Reaction.
H. Miyase, H. Tsubota, Y. Kawazoe and T. Tsukamoto : Phys. Rev.
Lett. **50** (1983) 821.
11. The Photodisintegration of ^{24}Mg .
P. J. Pyan, M. N. Thompson, K. Shoda and T. Tanaka : Nucl. Phys.
A 411 (1983) 105.
12. The Current Tohoku Program-A Photon Tagging System for Intermediate
Energy Photonuclear Experiment.
T. Terasawa, K. Mori, Y. Fujii, T. Suda and Y. Torizuka, K. Maeda,
P. Harty and M. N. Thompson : *Proc. Medium-Energy Photoproton
Workshop, Melbourne, 1983*, ed. M. N. Thompson p. 163.

II 物性物理

1. アモルファス固体材料.
鈴木謙爾 : ぶんせき **10** (1983) 753.
2. Hydrogen and Deuterium Atoms in Amorphous Zr-Ni Alloys.
H. Kaneko, T. Kajitani, M. Hirabayashi, M. Ueno & Suzuki :
J. Less-Common Metals **89** (1983) 237.
3. Structure and Properties of Amorphous Metal Hydrides.
Kenji Suzuki : J. Less-Common Metals **89** (1983) 183.

4. On the Change in Coordination of Ge Atoms in $\text{Na}_2\text{O} - \text{GeO}_2$ Glasses.
M. Ueno, M. Misawa and K. Suzuki : *Physica* **120 B** (1983) 347.
5. Position Sensitive Neutron Detectors Using ^6Li Glass Scintillators.
N. Niimura, K. Yamada, T. Kubota, A. Matsumoto and S. Hoshino :
Physica **120 B** (1983) 104.
6. ^6Li ガラスシンチレーター中性子位置検出器.
新 村 信 雄 : 日本結晶学会誌 **24** (1983) 396.
7. 原子・分子の強制運動を追跡する.
新 村 信 雄 : プロメテウス **7** (1983) 36.
8. Position Sensitive Neutron Detectors Using $^6\text{Li} - \text{Glass}$ Scintillators
and Fibre Optic Encoding.
N. Niimura, K. Yamada, T. Kubota, A. Matsumoto and S. Hoshino :
Nucl. Instrum. & Methods **211** (1983) 203.

Ⅲ 放射化学

1. Stable-Isotope Dilution Activation Analysis, Determination of Ca, Zn
and Ce by Means of Photon Activation.
K. Masumoto and M. Yagi : *J. Radioanal. Chem.* **79** (1983) 57.
2. Vertical Distribution of Elements in Sediment Cores from the Japan Sea.
T. Kato, M. Endo and M. Kato : *Mar. Geol.* **53** (1983) 277.
3. Hot Atom Chemistry of Copper and Zinc Phthalocyanine Mixed Crystals.
H. Shoji, Y. Oki and N. Ikeda : *Radiochem. Radioanal. Lett.* **58**
(1983) 347.
4. Photoluminescence and Electrical Properties of Undoped and Cl - Doped
ZnSe.
S. Satoh, M. Isshiki and K. Igaki : *Jpn. J. Appl. Phys.* **22** (1983) 68.
5. Electric Properties of ZnSe.
S. Satoh, M. Isshiki and K. Igaki : *Jpn. J. Appl. Phys.* **22** (1983) 1167.

6. 光量子放射化分析法による日本海深海堆積物の諸元素存在度分布.

加藤豊明, 角谷博樹, 加藤道雄, 鈴木信男 : 日化 **1983**, 49.

7. 火山岩の化学組成と成因的考察—ニアムラギラ火山を例として—

青木謙一郎 : 月刊 地球 **5** (1983) 565.

8. 火成岩試料の光量子放射化分析.

吉田武義, 榎本和義 : 月刊 地球 **5** (1983) 587.

IV 加速器・測定器

1. 150MeV Pulse Stretcher of Tohoku University.

T. Tamae, M. Sugawara, O. Konno, T. Sasanuma, T. Tanaka,
M. Muto, K. Yoshida, M. Hirooka, Y. Shibazaki, K. Yamada,
T. Terasawa, M. Urasawa, T. Ichinohe, S. Takahashi,
H. Miyase, Y. Kawazoe, S. Yamamoto and Y. Torizuka :
IEEE Trans. Nucl. Sci **NS-30** (1983) 3235.

2. Future Plans for the Tohoku Linac.

Y. Torizuka : *Proc. Medium-Energy Photoproton Workshop, Melbourne, 1983*, ed. M. N. Thompson p.137.

3. The 150 MeV Pulse Stretcher at Tohoku University.

M. Sugawara : *ibid.* p. 151.

4. Status Report, Tohoku Linac and Stretcher.

T. Saito : *Proc. the Spectrometer Workshop, Williamsburg, 1983*.

編 集 委 員

齋 藤 悌二郎 (委員長) 寺 沢 辰 生
山 田 和 芳 榊 本 和 義

核 理 研 究 報 告 第 17 卷 第 1 号

1984年6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 17 Number 1 June 1984

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