

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第 17 卷 第 2 号

1984 年 12 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

1. 「核理研研究報告」は核理研共同利用による実験報告及びそれに直接関連した研究報告等を掲載します。
2. 本誌掲載の論文に対しては原則として審査を行っておりません。
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の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2号 目次

I 原子核物理

- I-1 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}^*$ Highly Excited States(II) 251

(核理研, 教養部*)

佐々木 修, 取越 正己, 遠山 伸一, 小林 毅範

加賀谷 聡, 坪田 博明*, 庄田 勝房

- I-2 ${}^{12}\text{C}$ からの π^+ 中間子光生成の研究..... 259

(核理研, 教養部*)

小林 毅範, 佐々木 修, 遠山 伸一, 加賀谷 聡

取越 正己, 坪田 博明*, 庄田 勝房

- I-3 ${}^{13}\text{C}(e, \pi^+){}^{13}\text{B}^*$ に現われる強いスピントリフリップ転移(III) 269

(核理研, 教養部*, RPI**, ソウル大***)

佐々木 修, 取越 正己, 山崎 正晴, 遠山 伸一

小林 毅範, 加賀谷 聡, 庄田 勝房, 坪田 博明*

K. Min**, E. J. Winhold**, 成 百能***

- I-4 The E2 Giant Resonance in ${}^6\text{Li}$ Studied by (e, d) Reaction 273

(山形大教養, 核理研*, 情教センター**, 理学部物理***)

種市 宏, 上野 博昭, 庄田 勝房*

川添 良幸**, 塚本 龍男***

II 物性物理

- II-1 TbFe_2 中 ${}^{156}\text{Gd}$ の超微細磁場 285

(金研, 新潟大理学部*, 理学部物理**)

篠原 猛, 古沢 昭*, 林部 昭吾**

神山 崇, 金沢 正明**

- II-2 中性子散乱による Ti_5Si_3 水素化物中の水素の存在状態の研究 289

(金研, 核理研*)

川瀬 智博, 金子 尚史, 梶谷 剛, 山田 和芳*

平林 真

II-3 T-O-F Pulsed Neutron Diffraction of $\text{GeO}_2 - \text{Na}_2\text{O}$ Glasses.....	297
---	-----

(金 研)

上野 光明, 鈴木 謙爾

III 放射化学

III-1 自己遮蔽効果が無視できる試料系における安定同位体希釈放射化 分析法とその応用 — 環境試料中の Ca, Rb, Sr および Ce の光量 子放射化による同時定量.....	303
--	-----

(核理研)

八木 益男, 榎本 和義

III-2 種々の溶媒抽出系における無機およびメチルヒ素化学種の抽出挙動.....	313
---	-----

(理学部化学)

鈴木 信男, 佐藤 清記, 庄子 英利, 井村 久則

III-3 Kelex 100 乳化液膜によるウランの抽出と回収	323
--	-----

(選 研)

大木 淳子, 秋葉 健一

III-4 那須北帯・第四紀岩手火山におけるマグマの結晶分化作用.....	330
---------------------------------------	-----

(教養部, 理学部地学*)

石川 賢一, 吉田 武義*, 青木謙一郎*

III-5 那須北帯・南蔵王火山噴出物の地球化学的研究.....	346
----------------------------------	-----

(理学部地学)

酒寄 淳史, 吉田 武義, 青木謙一郎

III-6 東北日本・安達太良火山の地球化学的研究.....	356
--------------------------------	-----

(茨城大, 理学部地学*)

藤縄 明彦, 吉田 武義*, 青木謙一郎*

III-7 東北本州弧・第四紀森吉火山噴出物の微量化学組成.....	375
------------------------------------	-----

(理学部地学)

中川 光弘, 吉田 武義, 青木謙一郎

III-8	東北日本, 鳥海火山の地球化学的研究.....	382
	(理学部地学)	
	林 信太郎, 吉田 武義, 青木謙一郎	
III-9	東北本州弧・第四紀月山火山の地球化学的研究.....	391
	(理学部地学)	
	小泉 治彦, 吉田 武義, 青木謙一郎	
III-10	山形県・温海地域住吉崎岩床の地球化学的研究.....	402
	(理学部地学)	
	徐 紅, 吉田 武義, 青木謙一郎	
IV 加速器・測定器		
IV-1	150 MeV光子標識装置の製作(III) — 中性子検出器 —	417
	(核理研, 教養部*, メルボルン大**)	
	須田 利美, 守 和彦, 藤井 芳昭, 野村 和泉	
	寺沢 辰生, 今野 收, 鳥塚 賀治, 前田 和茂*	
	P. Harty**, G. O'keefe**	
IV-2	(e, e'p)実験装置(II).....	427
	(核理研, 教養部*, 情教センター**)	
	川原 英明, 田中 陽, 日野 威, 吉田 克久	
	菅原 真澄, 玉江 忠明, 坪田 博明*	
	宮瀬 晴久*, 川添 良幸**	

I. 原 子 核 物 理

${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+) {}^6\text{He}^*$ Highly Excited States (II)

核理研, 教養部*

佐々木 修・取越正己・遠山伸一

小林毅範・加賀谷 聡・坪田博明*

庄田勝房

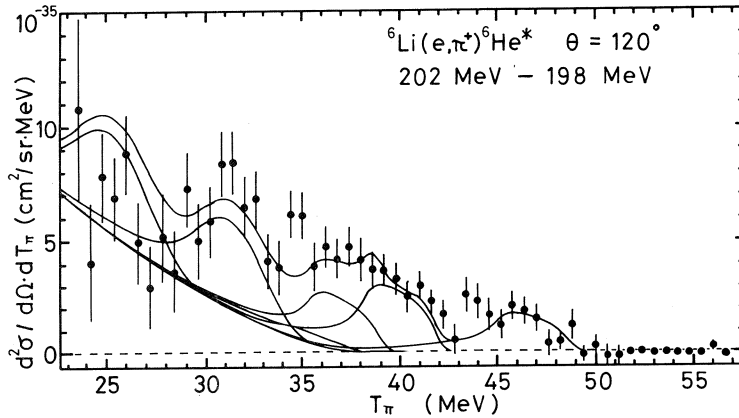
§ 1. 序

前々号¹⁾では入射電子エネルギー $E_e = 202 \text{ MeV}$ での ${}^6\text{Li}(e, \pi^+) {}^6\text{He}^*$ (終状態励起エネルギー $E_x \leq 28 \text{ MeV}$, 測定角度 $\theta = 30^\circ, 60^\circ, 90^\circ, 120^\circ, 150^\circ$) の実験結果について報告した。測定された (e, π^+) 反応エネルギー・スペクトルは least structure 法²⁾による解析によって仮想的な単色 γ 線による (γ, π^+) 反応エネルギー・スペクトルに焼き直され, その結果から quasi-free process (QFP) からのバックグラウンドの大きさ, 形の評価を行ない, また (e, π^+) 反応エネルギー・スペクトルと合せ, ${}^6\text{He}^*$ 高励起状態のエネルギー・レベルの特定を行なった。またこのようにして得られた QFP の大きさ, 形及び各エネルギー・レベルの位置を基に, (e, π^+) 反応エネルギー・スペクトルを QFP 及び ${}^6\text{He}^*$ 励起状態の各レベルからの寄与として χ^2 -fitting を行ない微分断面積を求めた。

今回は本年4月に行なわれた $E_e = 198 \text{ MeV}$, $\theta = 120^\circ$ での ${}^6\text{Li}(e, \pi^+) {}^6\text{He}^*$ 反応の実験結果及び以前の $E_e = 202 \text{ MeV}$ での結果を用い, photon-difference 法により解析を行ない, 以前の解析結果の再確認を行なう。また各レベルの微分断面積の角分布と DWIA による理論計算との比較を行なう。

§ 2. 実験と解析

入射電子エネルギー $E_e = 198 \text{ MeV}$, 測定角度 $\theta = 120^\circ$ で測定を行なった。実験及び least structure 法の解析方法については参考文献1) に詳しい。また photon difference 法の解析については参考文献3) に詳しい。以前の $E_e = 202 \text{ MeV}$, $\theta = 120^\circ$ での ${}^6\text{Li}(e, \pi^+)$ 反応エネルギー・スペクトルより今回の $E_e = 198 \text{ MeV}$, $\theta = 120^\circ$ でのエネルギー・スペクトルにパラメータ α を掛け差し引くことにより仮想的に単色に近い γ 線による ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+)$ 反応エネルギー・スペクトルが得られる。 α は測定した π^+ のエネルギーの最小値で差し引きで得られる光子のエネルギー・スペクトルが0になるように決定される。 $\alpha = 1.018$ での結果を第1図に示す。実



第1図 $\theta = 120^\circ$ での photon difference 法による解析結果。実線は QFPの寄与及び各レベルからの寄与を示す。

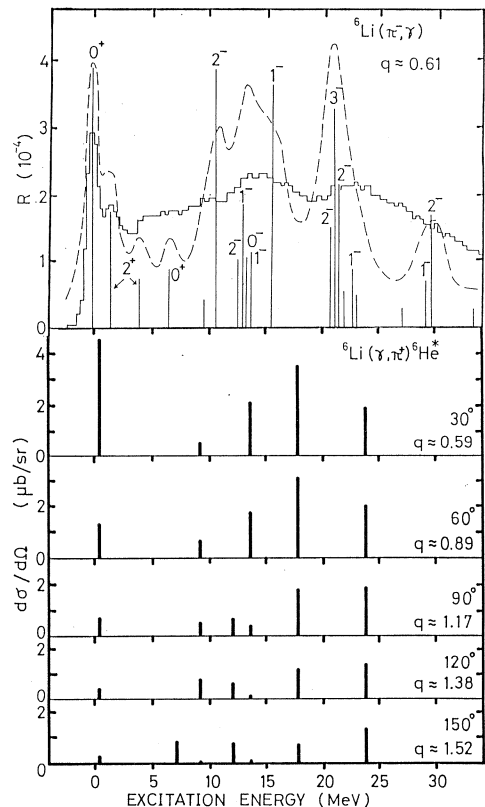
線は以前の $E_e = 202 \text{ MeV}$ での結果から得られた QFPの寄与及び g. s. + 1.8 MeV, 9 MeV, 12 MeV, 13.6 MeV, 17.7 MeV, 24 MeV のレベルからの寄与を示す。

§ 3. 結果及び考察

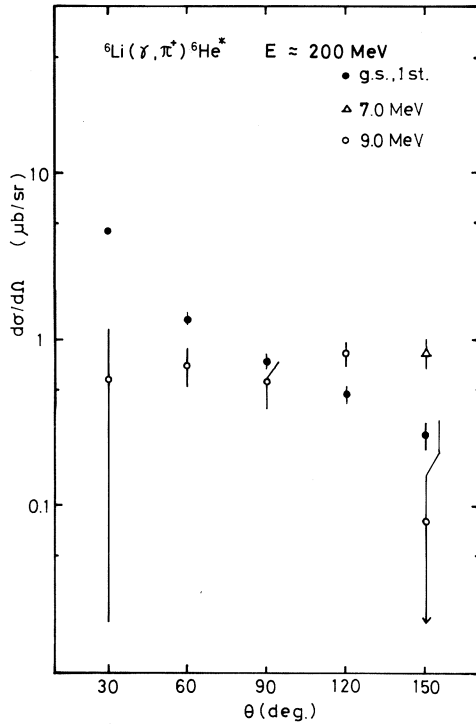
photon difference 法による解析結果は、以前の $E_e = 202 \text{ MeV}$ での結果と非常によく一致しており、以前行なわれた least structure 法及び χ^2 -fitting による解析の正統性が再確認できた。

${}^6\text{Li}(\pi^-, \gamma)$ のスペクトル⁴⁾及び Kissener らの殻模型による理論計算結果⁵⁾と我々の解析で得られた ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}^*$ の各レベルの強度分布を第2図に示す。また各レベルの角分布を第3～7図に示す。

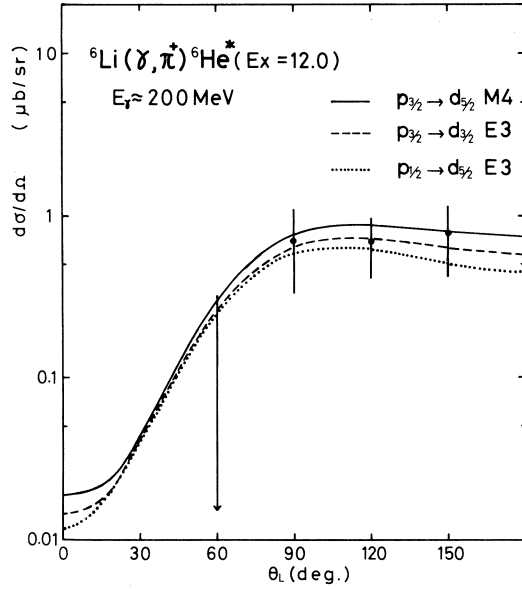
7及び9 MeVのレベルは他の実験では報告されておらず、エネルギー的にもこのレベルのパリティの正負の区別はつかない。



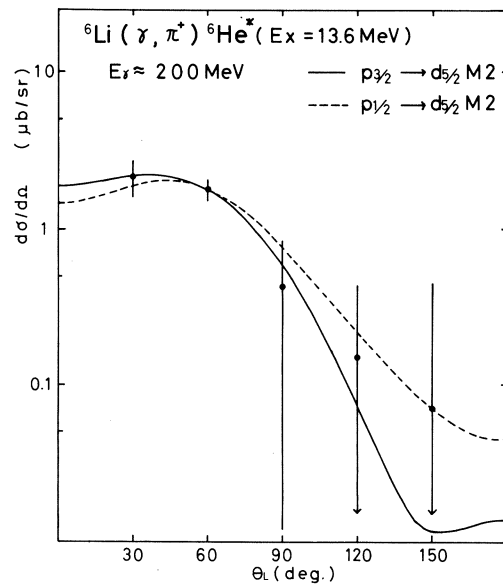
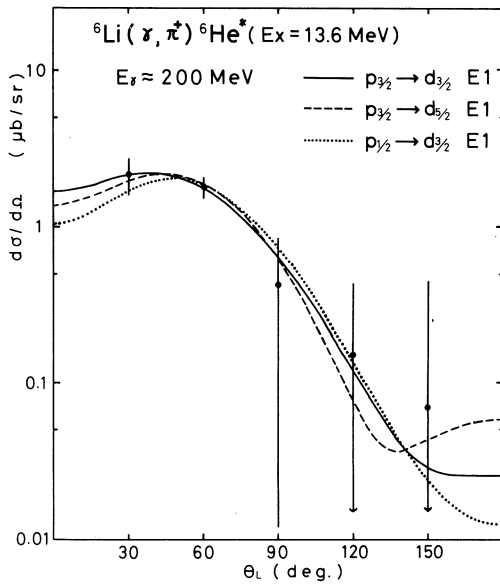
第2図 ${}^6\text{Li}(\pi^-, \gamma)$ 反応エネルギースペクトル及び ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}^*$ 反応の各角度でのレベルの微分断面積。 (π^-, γ) において破線は Kissener ら⁵⁾の理論計算値。縦軸は capture rate。運動量移行 q は $E_x = 13.6 \text{ MeV}$ での値 (fm^{-1})。



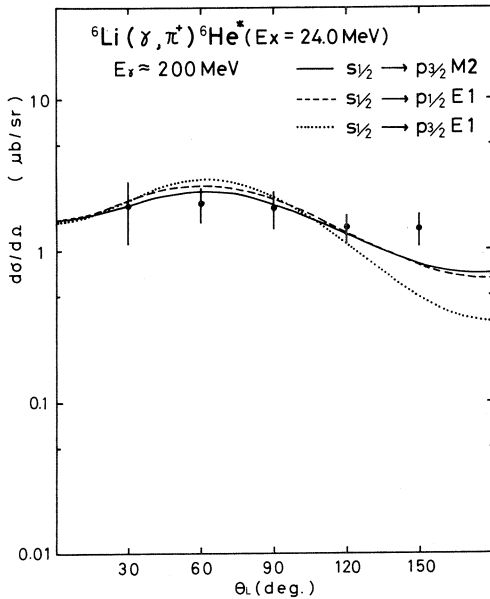
第3図 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}^*$ g. s. + 1 st., 7, 9 MeV の微分断面積。



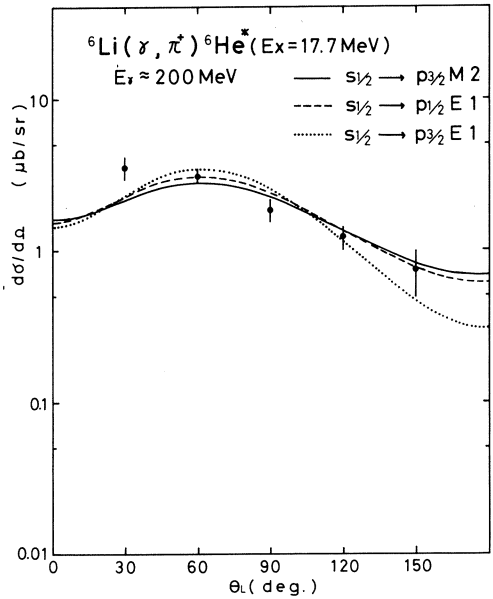
第4図 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}^*$ 12 MeV の微分断面積及びDWIAによる計算値。



第5 - a, b 図 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}^*$ 13.6 MeV の微分断面積及びDWIAによる計算値 (a 図: E 1 , b 図: M 2)



第6図 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}^*$ 17.7MeVの微分断面積及びDWIAによる計算値。



第7図 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}^*$ 24MeVの微分断面積及びDWIAによる計算値。

また我々の得たこのレベルの角分布ははっきりとした様相を示さない。 (π^-, r) の実験ではこの領域にわずかに構造が見えているが、 $\pi^- + {}^6\text{Li} \rightarrow r + {}^4\text{He} + 2n$ によるものとしてpole 模型によって解析を行なっている⁴⁾。しかしこのようなbreak up によるものがスペクトル上に鋭い構造として見えて来

るとは考えにくい。

$\Delta S = 0, 1$ 共に励起

する ${}^6\text{Li}(n, p)$ の

実験でもこの領域に

構造が見えている⁶⁾

また ${}^6\text{Li}(r, n)$ の実

験では ${}^6\text{Li}$ で $E_x =$

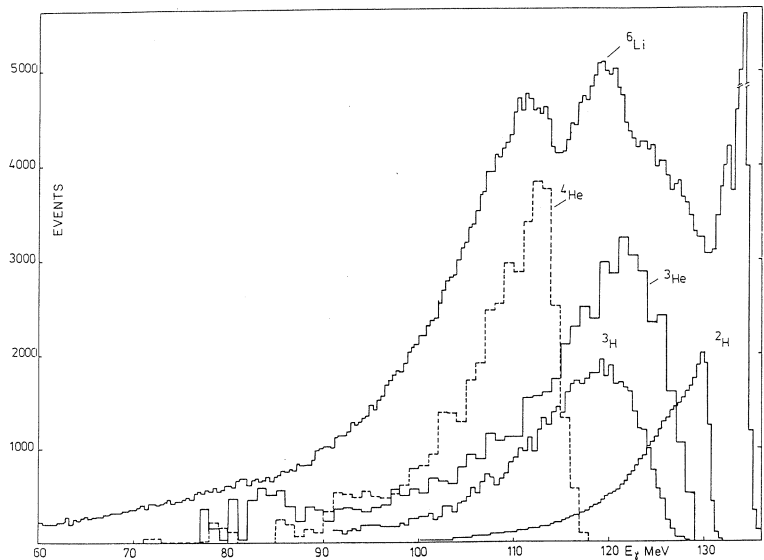
12MeV (${}^6\text{He}$ では E_x

≈ 8 MeVに対応)付

近に $\Delta S = 0$ のE1巨

大共鳴が観測されて

いる⁷⁾。しかし (r, π^+) ,



第8図 ${}^6\text{Li}, {}^4\text{He}, {}^3\text{He}, {}^3\text{H}, {}^2\text{H}(\pi^-, r)$ 反応エネルギースペクトル。

(π^- , r) 反応では $4S=0$ の転移は非常にわずかしき期待できない。 ${}^6\text{Li}$, ${}^4\text{He}$, ${}^3\text{He}$, ${}^3\text{H}$, ${}^2\text{H}$ による (π^- , r) 反応のスペクトルを第 8 図に示す。Gmitro ら⁸⁾は ${}^6\text{Li}$ (π^- , r) での $115 < E_\gamma < 130$ MeV のスペクトルの形は ${}^3\text{He}$, ${}^3\text{H}$ のスペクトルの形に似ており、このような ${}^3\text{H}+{}^3\text{H}$ のクラスター構造によるレベルが存在し得ると指摘している。実際 Thompson ら⁹⁾は ${}^3\text{H}+{}^3\text{H}$ のクラスターによる resonating group の計算を行っており、 $E_x=3.16$ MeV に ${}^1\text{S}(1^+)$, $E_x=6.20$ MeV に ${}^1\text{D}(2^+)$ のレベルを予想している。また Kissener らの殻模型の計算でも 2^+ , 0^+ のレベルを予想している (第 2 図)。しかし我々が得た角分布からは、統計不足のため結論を得るには到らない。

12MeV のレベルの微分断面積の角分布は後方ピーク (第 4 図), 13.6 MeV は前方ピーク (第 5 図), 17.7 MeV は後方下り (第 6 図) である。 ${}^6\text{Li}$ (π^- , r) によると 15MeV 付近を中心に幅の広い構造がみえる (第 2 図)。Kissener らの (π^- , r) の理論計算によると 15MeV 付近の構造は $1p$ 殻核子の $2s1d$ 殻への転移

$$|1p^1, (2s1d)^1 : {}^{33}L_J\rangle \quad (1)$$

及び $1s$ 殻核子の $1p$ 殻への転移 ($1p$ 殻内の 3 つの核子は SU_4 完全対称状態 [3])

$$|1s^{-1}, (1p^3[3]{}^{22}L_J) : {}^{33}L_J\rangle \quad (2)$$

によるものである。理論計算で予想される励起エネルギーは実験値と比べ少し小さめである。また ${}^7\text{Li}(n, d)^{10)}$, ${}^7\text{Li}(p, 2p)^{11)}$, ${}^7\text{Li}(r, p)^{12)}$ の pick up 及び knock out 反応でも $E_x=15$ MeV 付近に構造が観測されており、このことはこの付近に芯励起によるレベルが存在することを意味している。我々は Kissener らの理論に従い $4S=1$ の成分が大きい $p_{3/2} \rightarrow d_{5/2}$ (M4), $p_{3/2} \rightarrow d_{3/2}$ (E3), $p_{3/2} \rightarrow d_{5/2}$ (M2), $s_{1/2} \rightarrow p_{3/2}$ (M2), $p_{3/2} \rightarrow d_{3/2}$ (E1), $p_{1/2} \rightarrow d_{3/2}$ (E1), $s_{1/2} \rightarrow p_{1/2}$ (E1) の転移について DWIA の計算 (素過程振幅として CGLN,¹³⁾ π^- 原子核光学ポテンシャルとして SMC II¹⁴⁾ を用いた大坪計算コード) を行なった。結果を第 4 ~ 6 図に示す。またこれら以外の可能な転移についても計算を行ない、実験値を比較的良好に再現するものについては図に示す。計算の絶対値は実験値に規格化している。12MeV の角分布は E1, M2 の転移による計算では再現できず、 $1p \rightarrow 1d$ への E3 または M4 の計算が実験値をよく再現できる (第 4 図)。 $1p \rightarrow 2s1d$ の転移による E1 と M2 の計算は、前方大きく後方で非常に小さくなるという特徴を持ち、13.6 MeV の角分布をよく再現できる (第 5 図)。また芯励起 $1s \rightarrow 1p$ による E1 と M2 の計算は全体的に平らであるが 60° 付近で最大となり後方でもそれほど小さくならず、17MeV の角分布をよく再現する (第 6 図)。Eramzhyan ら¹⁵⁾ は Kissener らの (π^- , r) の計算と同様の波動関数を用いて $E_\gamma=200$ MeV での ${}^6\text{Li}(r, \pi^+){}^6\text{He}^*$

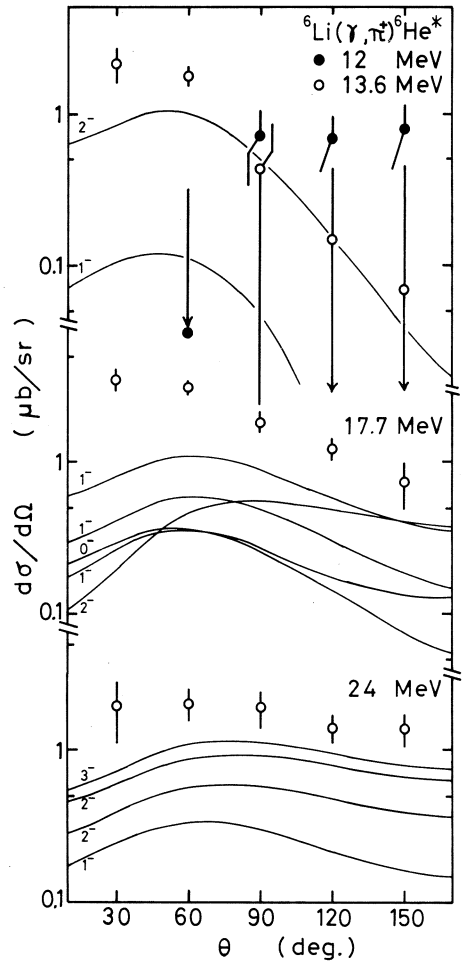
のDWIA計算を行なった。彼らの結果を第9図に示す。13.6, 17.7 MeV に関しては、彼らの計算は全体的に励起エネルギーが少し小さめではあるがDWIA計算値は実験値をよく再現している。しかし12MeVの角分布を再現できるような計算結果は得られていない。また前述の resonating group の計算によると ${}^6\text{He}$ の $E_x \approx 18\text{MeV}$ 付近に ${}^{33}\text{P}$ (2^- , 1^- , 0^-)のレベルを予想している⁹⁾。以前行なわれた ${}^{12,13}\text{C}$ (e , π^+) ${}^{12,13}\text{B}^*$ の実験においてM2及びstretched M4と思われるレベルが観測されている^{16, 17)}。またstretched stateはnon-stretched stateよりも比較的低い励起エネルギーに現われることが予想されている。12MeVはstretched M4, 13.6 MeVは $1p \rightarrow 2s1d$ によるM2の転移による可能性が強いと思われる。また17.7 MeVは $1s \rightarrow 1p$ の転移が主であるE1またはM2と思われる。

24MeVのレベルの角分布は、17.7 MeV に比べ平らであるが後方下りの傾向を示している(第7図)。Kissenerらによると ${}^6\text{Li}$ (π^- , r)で観測されている24MeV付近の構造は $1s \rightarrow 1p$ の芯励起によるものである。

$$|1s^{-1}, (1p^3 [21]^{22} L_J) : {}^{33}L_J \rangle \quad (3)$$

また ${}^7\text{Li}$ (n , d)¹⁰⁾, ${}^7\text{Li}$ (r , p)⁷⁾のpick up及びknock out反応でも $E_x = 24\text{MeV}$ 付近に構造が観測されている。更に第8図からもわかるようにこれらのレベルに対応する ${}^6\text{Li}$ (π^- , r)

での $E_T \approx 115\text{MeV}$ のスペクトルの形は ${}^4\text{He}$ のスペクトルの形と非常によく似ている。また単一粒子エネルギーから考えてもこの付近の構造は芯励起によるものであることがわかる。前述と



第9図 ${}^6\text{Li}(\gamma, \pi^+){}^6\text{He}$ 12, 13.6, 17.7, 24 MeVの微分断面積及びEramzhyanら¹⁵⁾によるDWIA計算値。計算値は上図から $E_x = 9 \sim 11\text{MeV}$ ($1^-: E_x \sim 10\text{MeV}$, $2^-: E_x \sim 11\text{MeV}$), $E_x = 12 \sim 16\text{MeV}$ ($2^-: E_x \sim 13\text{MeV}$, $1^-: E_x \sim 13\text{MeV}$, $0^-: E_x \sim 13\text{MeV}$), $E_x = 17 \sim 21\text{MeV}$ ($1^-: E_x \sim 13.5\text{MeV}$, $1^-: E_x \sim 15.5\text{MeV}$), $E_x = 20 \sim 25\text{MeV}$ ($2^-: E_x \sim 20.5\text{MeV}$, $3^-: E_x \sim 21\text{MeV}$, $2^-: E_x \sim 21\text{MeV}$, $1^-: E_x \sim 22.5\text{MeV}$)。

同様に単一粒子模型によるDWIAの計算を行なった。計算結果はいずれも実験値の傾向をほぼ再現している。またEramzhyanら¹⁵⁾によるDWIAの計算結果を第9図に示す。いずれの角分布もほぼ同様の形をしており実験値の傾向をよく説明している。また resonating groupの計算によると⁶Heの $E_x=25$ MeV付近に³³F(4⁻, 3⁻, 2⁻)のレベルを予想している。⁹⁾しかしKissenerらによる1p殻核子の[21]の配位からは³³Fの状態は出てこない。

以上のことから $A=6$ 体系においては、 $1\hbar\omega$ 励起によるGamow-Teller(GT)型巨大共鳴は $1p\rightarrow 2s1d$ の転移の外に $1s\rightarrow 1p$ の転移が存在し、これらの2つのモードがconfigurational splittingを起していることがわかる。また第2図及び第9図からもわかるように各レベルのエネルギー及び強度はKissener, Eramzhyanらの計算とよく一致している。

Bradyら⁶⁾は⁶Li(n, p)⁶He*の実験を行ない $E_x=15, 25$ MeV付近に2つの構造を観測している。彼らが行なった入射中性子のエネルギー($E_n=60$ MeV)では、 $\Delta S=1$ と $\Delta S=0$ の転移はほぼ同等に寄与する。彼らは $E_x=15, 25$ MeVへの転移を $\Delta S=0, \Delta l=1$ によるものとし、それぞれがGoldhaber-Tellerのエネルギー重み付総和則の24%, 46%を占め、(r, n)反応等で以前から知られている $E_x=7$ MeV付近のE1巨大共鳴を含めて全体で85%を占めているとしている。しかし彼らの得た結論は、我々の実験結果及び(π^-, r)の実験結果と矛盾する。(r, π^+), (π^-, r)反応によって励起されるレベルは、 $\Delta S=1$ によるものがほとんどであり、(n, p)反応で観測された構造にはかなり多くの $\Delta S=1$ の成分が存在すると思われる。

参 考 文 献

- 1) 佐々木修他：核理研研究報告 **16** (1983) 213.
- 2) B. C. Cook : Nucl. Instr. and Meth. **24** (1963) 256.
- 3) 小林毅範他：核理研研究報告 **16** (1983) 222.
- 4) H. W. Baer *et al.* : Phys. Rev. C **8** (1973) 2029.
D. Renker *et al.* : Phys. Rev. Lett. **41** (1978) 1279.
- 5) H. R. Kissener *et al.* : Nucl. Phys. **A 312** (1978) 394.
- 6) F. Brady *et al.* : Phys. Rev. Lett. **51** (1983) 1320.
- 7) B. L. Berman and S. C. Fultz : Rev. Mod. Phys. **47** (1975) 713.
- 8) M. Gmitro *et al.* : Soviet Journal on Particle and Nuclei **13** (1982) No.6,
private communication.
- 9) D. R. Thompson *et al.* : Nucl. Phys. **A 106** (1968) 591.

- 10) F. P. Brady *et al.* : Phys. Rev. C **16** (1977) 31.
- 11) R. K. Bhowmik *et al.* : Phys. Rev. C **13** (1976) 2105.
- 12) J. L. Mathews *et al.* : Nucl. Phys. **A 267** (1976) 51.
- 13) G. F. Chew *et al.* : Phys. Rev. **106** (1957) 1345.
- 14) K. Stricker *et al.* : Phys. Rev. C **22** (1980) 2043.
- 15) R. A. Eramzhyan : Private communication.
- 16) K. Min *et al.* : Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 464.
- 17) K. Min *et al.* : Phys. Rev. C **28** (1983) 464.

^{12}C からの π^+ 中間子光生成の研究

核理研, 教養部*

小林毅範・佐々木 修・遠山伸一
加賀谷 聡・取越正己・坪田博明*
庄田勝房

§ 1. 序

閾値付近での π 中間子の光生成は, 主にスピノン-アイソスピン反転モードを通して起こる。一方, 運動量移行・エネルギー移行の大きな領域においては, 電子散乱で見られるように準自由過程(QFP)が大きく寄与すると考えられ, 我々の実験するエネルギー領域でQFPがどの程度の寄与を示すかは興味ある問題である。近年MacDonaldらは, フェルミ気体模型を使った π 中間子の光生成の計算で(3.3)共鳴付近の r 線の全吸収断面積が比較的良好に説明できることを示した¹⁾

今回我々は, MacDonaldらの用いたフェルミ気体模型を用いて, $T_\pi \leq 50\text{MeV}$ のエネルギー領域でどの程度フェルミ気体的な描像が成立するのかを調べた。

前回の報告²⁾では, 30° と 110° について報告したが, 今回は昨年10月と今年4月に行なった実験データを加え $30^\circ, 70^\circ, 110^\circ, 150^\circ$ についてPhoton Difference Method(PDM)を用いた解析結果とフェルミ気体模型との比較を行なう。

§ 2. 実験

実験は東北大学核理研300 MeV電子線型加速器によって得られる電子線を用いて行なった。実験方法の詳細は他の文献³⁾に譲り, ここでは入射電子エネルギー等の実験条件を示すにとどめる。

第1表 実験条件。

標 的	natural ^{12}C	202 mg/cm ²
入射エネルギー	200 MeV, 205 MeV	
測定角度	$30^\circ, 70^\circ, 110^\circ, 150^\circ$	

§ 3. 解析

MacDonald らのフェルミ気体模型と比較する際、運動量移行をはっきりと規定する必要があり、その意味でも単色 r 線による実験が望まれる。そこで我々は、PDM によって単色に近い r 線による π^+ 中間子の光生成スペクトルを得ることにした。PDM, また (e, π^+) エネルギースペクトルの導出法については前回の報告に詳しい。また絶対値は、 ${}^1\text{H}(r, \pi^+)_n$ の断面積を Adamovich ら⁴⁾ の結果に規格化することによって求めた。

§ 4. フェルミ気体模型

(r, π^+) 反応のエネルギースペクトルをフェルミ気体模型を用いて表わすと、

$$\frac{d^2\sigma(\vec{k}, \vec{q})}{d\Omega dT_\pi} = \frac{Z}{\frac{4}{3}\pi k_f^3} \int d\vec{p} n_p(\vec{p}) \frac{d\sigma(\vec{k}, \vec{p})}{d\Omega} \delta(p_0 + r_0 - p'_0) \theta(|\vec{p} + \vec{r}| - k_f^n) \quad (1)$$

ただし

Z 標的核の原子番号

$n_p(\vec{p})$ 核内の陽子の運動量分布

$k_f^{p(n)}$ 陽子(中性子)のフェルミ運動量

$\frac{d\sigma(\vec{k}, \vec{p})}{d\Omega}$ 核内の陽子の (r, π^+) 反応の断面積

$$\theta(x) = \begin{cases} 1 & x > 0 \\ 0 & x \leq 0 \end{cases}$$

$\vec{k}(k)$ 入射光子の運動量(エネルギー)

$\vec{q}(q_0)$ π^+ 中間子の運動量(エネルギー)

$\vec{r}(=\vec{k}-\vec{q})$ 運動量移行

$r_0(=k-q_0)$ エネルギー移行

となる。以後は縮退したフェルミ気体を考えることにし、 $n_p(\vec{p})$ を次のステップ関数で表わすことにする。

$$n_p(\vec{p}) = \theta(k_f^p - p)$$

MacDonald らは、素過程の断面積に Blomqvist - Laget の導いた振巾 ($|BL|^2$)⁵⁾ を用いて

$$\frac{d^2\sigma(\vec{k}, \vec{p})}{d\Omega dT_\pi} = \frac{1}{\frac{4}{3}\pi k_f^3} \int d\vec{p} \frac{m^2}{p_0 p'_0} |BL|^2 \delta(p_0 + r_0 - p'_0) \theta(k_f^p - p) \theta(|\vec{p} + \vec{r}| - k_f^n) \quad (2)$$

と表わしている。さらに、反応の振巾は始状態の陽子の運動量にあまり敏感でないと仮定し反

応の振巾の部分積分の外に出すことにより,

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma(\vec{k}, \vec{p})}{d\Omega dT_\pi} &= |BL|_{\langle \vec{p} \rangle}^2 \frac{1}{\frac{4}{3}\pi k_f^3} \int d\vec{p} \frac{m^2}{p_0 p_0'} \delta(p_0 + r_0 - p_0') \theta(k_f^p - p) \theta(|\vec{p} + \vec{r}| - k_f^n) \\ &\equiv |BL|_{\langle \vec{p} \rangle}^2 I_0(r, r_0) \end{aligned} \quad (3)$$

ここで、反応の振巾はある適当な始状態の陽子の運動量 $\langle \vec{p} \rangle$ について評価される。従ってスペクトルの形は、運動量移行とエネルギー移行の関数 I_0 (相対論的フェルミ気体応答関数) によって決定される。

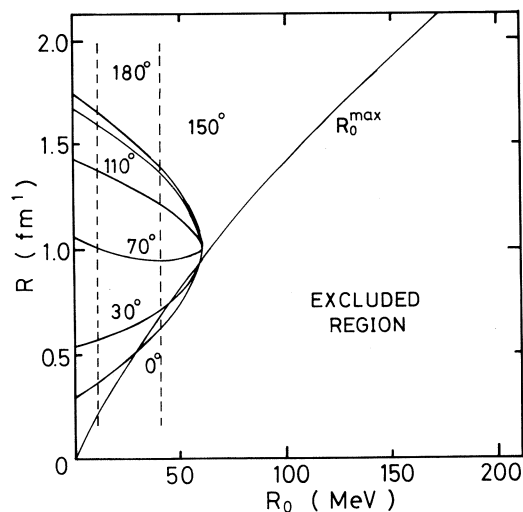
$$\begin{aligned} I_0(r, r_0) &= \frac{1}{\frac{4}{3}\pi k_f^3} \int d\vec{p} \frac{m^2}{p_0 p_0'} \delta(p_0 + r_0 - p_0') \theta(k_f^p - p) \theta(|\vec{p} + \vec{r}| - k_f^n) \\ &= \frac{1}{\frac{4}{3}\pi k_f^3} \frac{2\pi m^2}{r} (k_{f_0}^p - p_{L0}) \end{aligned} \quad (4)$$

ただし

$$\begin{aligned} k_{f_0} &= k_f^2 + m^2 \\ p_{L0} &= \begin{cases} k_{f_0}^n - r_0 \equiv p_{10} & p_{10} > p_{20} \\ -\frac{r_0}{2} + \frac{r}{2} \sqrt{1 + \frac{4m^2}{r^2 - r_0^2}} \equiv p_{20} & p_{20} > p_{10} \end{cases} \\ r_0^{\max} &= \sqrt{k_{f_0}^2 + r^2 + 2k_f r - k_{f_0}} \end{aligned} \quad (5)$$

$$r_0^{\min} = \begin{cases} \sqrt{k_{f_0}^2 + r^2 - 2k_f r - k_{f_0}} & \text{for } r > 2k_f \\ 0 & \text{for } r \leq 2k_f \end{cases} \quad (6)$$

第1図に、運動量移行エネルギー移行平面での kinematic loci を示す。入射光子エネルギーを決定すると、運動学的に許される領域は各角度毎に一意に決定されるが、(5)式で示される r_0^{\max} (エネルギー移行の最大値) の存在によって形成される禁止領域に入った部分は除かれる。第1図では、 $r < 2k_f$ であり r_0^{\min} による禁止領域は現われていない。また、第2,3図は運動量移行(r)一定の条件の下での応答関数とエネルギー移行の関係を示した図であり、フェルミ気体模型に従え



第1図 運動量移行(R)—エネルギー移行(R_0)平面での kinematic loci。

ば、この条件で実験を行なった場合の π 中間子のエネルギースペクトルの形を表わしている。 $r=1.4 \text{ fm}^{-1}$ ($< 2k_f$) の場合には、Pauli blocking により直線的に立ち上がる(第2図)。 $r=2.8 \text{ fm}^{-1}$ ($\approx 2k_f$) の場合には、反応後の核子は全てフェルミ球の外に叩き出され、応答関数は釣鐘形になる(第3図)。

以上はPauli 原理の効果のみを考えた最も簡単なフェルミ気体模型による結果であるが、より現実的な模型にするためには、反応に関係しない、いわゆる“spectator nucleon”の影響を光学ポテンシャルを用いて取り入れることが考えられる。

まず、核子に対する光学ポテンシャルとしては、電子の準弾性散乱で Brieva - Dellafiore⁶⁾ が用いた運動量依存性を持ったポテンシャル

$$V_n = A + Bp^2$$

を導入する。 p_0 と p の関係は自由核子の場合と異なり、

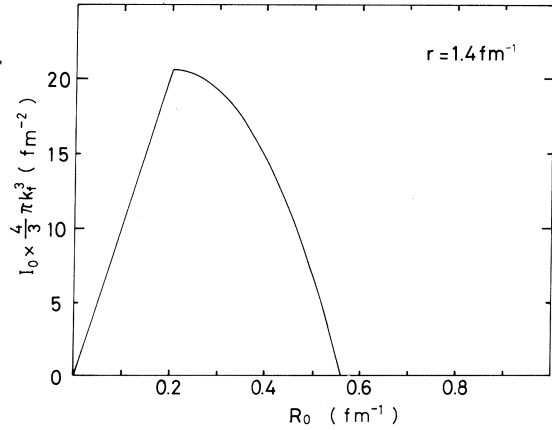
$$p_0 = \sqrt{m^2 + p^2} + V_n$$

となる。核子に対して非相対論的な近似を用いることにして、

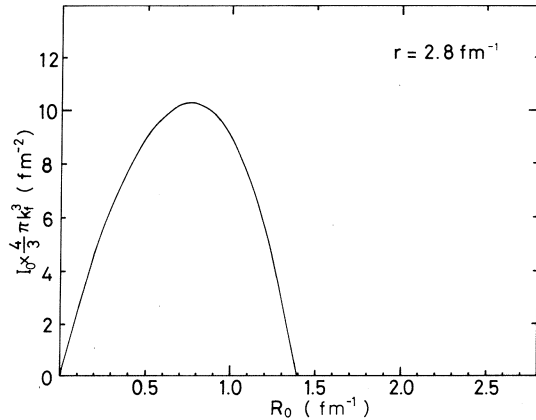
$$\begin{aligned} p_0 &= m + \frac{p^2}{2m} + A + Bp^2 \\ &= m + A + \frac{p^2}{2m^*} \end{aligned}$$

とし、有効質量 m^* を導入する。この結果、(1)式の δ 関数は、

$$\delta(p_0 + r_0 - p'_0) \rightarrow \delta\left(\frac{p^2}{2m^*} + r_0 - \frac{(\vec{p} + \vec{r})^2}{2m^*}\right)$$



第2図 運動量移行一定 ($r=1.4 \text{ fm}^{-1}$) のときの応答関数 (I_0)。



第3図 運動量移行一定 ($r=2.8 \text{ fm}^{-1}$) のときの応答関数 (I_0)。

と変化する。従って、 m^* を用いることにより π 中間子のスペクトルは低エネルギー方向に伸びることになる。

有効質量を用いることは、核子に対する1体ポテンシャルの中に、核子の束縛ポテンシャルの状態依存性を現象論的にくり込むことである。しかし、得られた表式中の m を m^* で全て置き換えるのは危険である。実際、磁気能率の部分に表われる m を m^* に置き換えたものを使ったmagnetic currentによる電子散乱の計算値は実験値よりもかなり大きくなることが知られている。⁷⁾

次に、 π 中間子に対する“spectator nucleon”の影響の評価について考える。これには、SMCの光学ポテンシャル⁸⁾を用いて評価することが考えられるが、ここではもう少し簡単に評価する方法をとることにする。

核物質中での π 中間子の運動量 q_m は、 π 中間子の伝播に対する分散式を用いて、

$$\begin{aligned} q_m &= q^2 + 4\pi\rho f(q_m^2) \\ &= q^2 + 2q_0 V_\pi(q_m^2), \end{aligned}$$

ただし

ρ 核子の密度

f π -nucleon 前方散乱振幅

V_π π 中間子に対する光学ポテンシャル

と表わすことができる。ここで、核子気体中での π 中間子の屈折率を

$$n = q_m / q$$

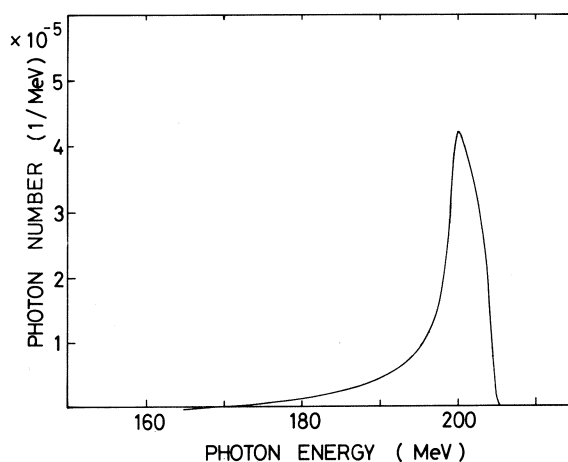
とすると、

$$n^2(q_0) = 1 + \frac{4\pi\rho}{q^2} f(q_m^2)$$

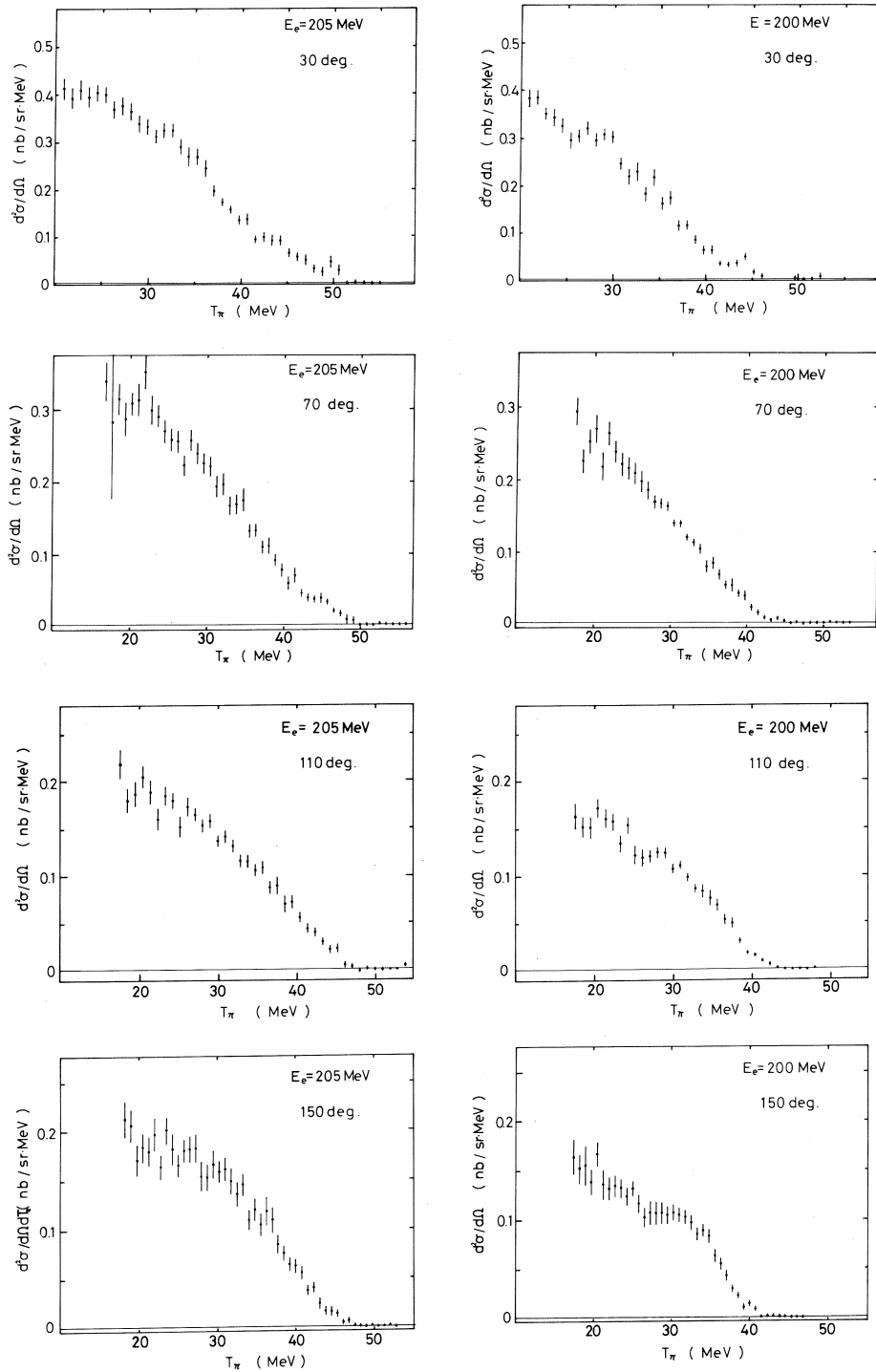
したがって、

$$q_m = q \operatorname{Re} n.$$

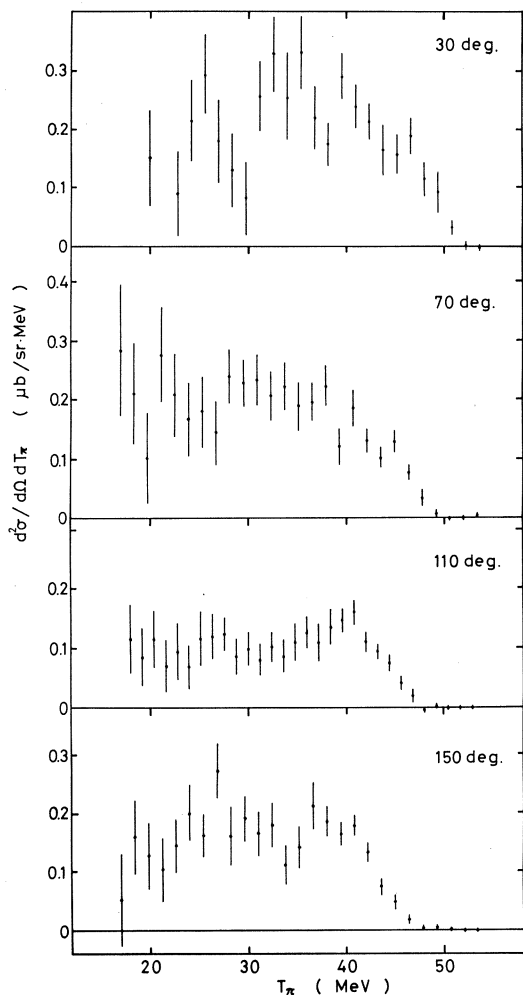
これにより、フェルミ気体模型の計算において $q (= (q_0^2 - m_\pi^2)^{1/2})$ を q_m で置き換えることにより、“spectator nucleon”の影響を取り入れることができる。



第4図 PDMによって得られた光子スペクトル。



第5図 $E_e = 200$ MeV, 205 MeVにおける π^+ 中間子エネルギースペクトル。



第6図 PDMによって得られた π^+ 中間子スペクトル。

5.2 フェルミ気体模型との比較

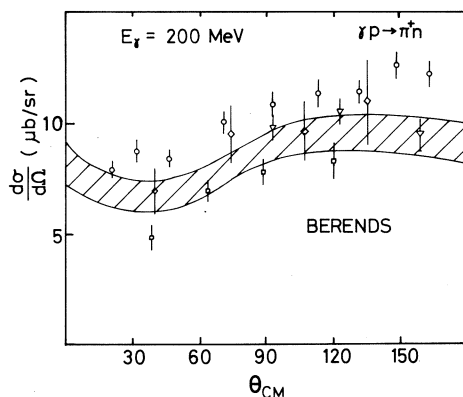
フェルミ気体模型によるエネルギースペクトルは(1)式で与えられる。我々はそれらをもとに Berends らによる $p(r, \pi^+)n$ 反応の断面積の理論値を用いて計算をおこなった (Berends らの計算値と実験値の比較を第7図に示す)。第4図で示される光子スペクトルを ϕ とすると、フェルミ気体模型による (r, π^+) 反応のエネルギースペクトルは、

$$\frac{d^2\sigma(\vec{k}, \vec{q})}{d\Omega dT_\pi} = \frac{Z}{\frac{4}{3}\pi k_f^3} \int d\vec{p} \frac{d\sigma(\vec{k}, \vec{p})}{d\Omega} \phi(k) \delta(p_0 + r_0 - p'_0) \theta(k_f - p) \theta(|\vec{p} + \vec{r}| - k_f)$$

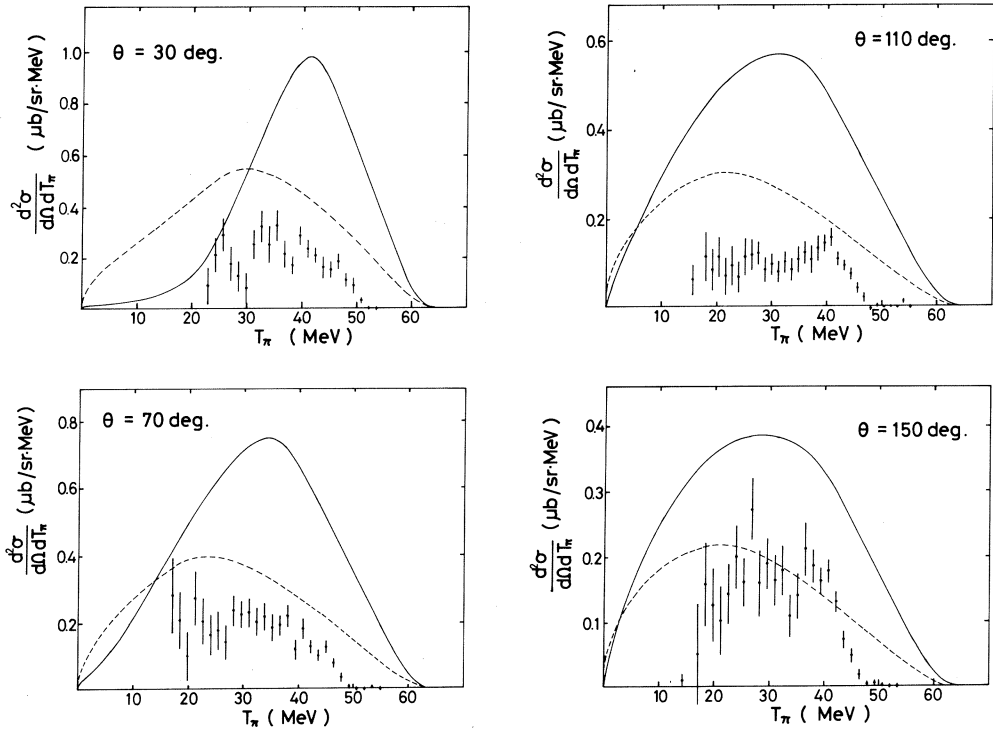
§ 5. 結果及び考察

5.1 結果

第4図にPDMによって得られた光子スペクトルを示す。第5図では実験で得られた (e, π^+) のスペクトルであり、第6図で第5図に示されたスペクトルからPDMによって (r, π^+) 反応に変換されたスペクトルである。PDMにおける difference factor (α) は、測定した π^+ のエネルギー領域で photon spectrum の負の寄与が表われず、同時にできる限り鋭いピークを得るという条件から $\alpha = 1.03$ という値を用いた。



第7図 $E_\gamma = 200$ MeV における (r, π^+) 反応素過程断面積。斜線部は Berends らによる理論値。

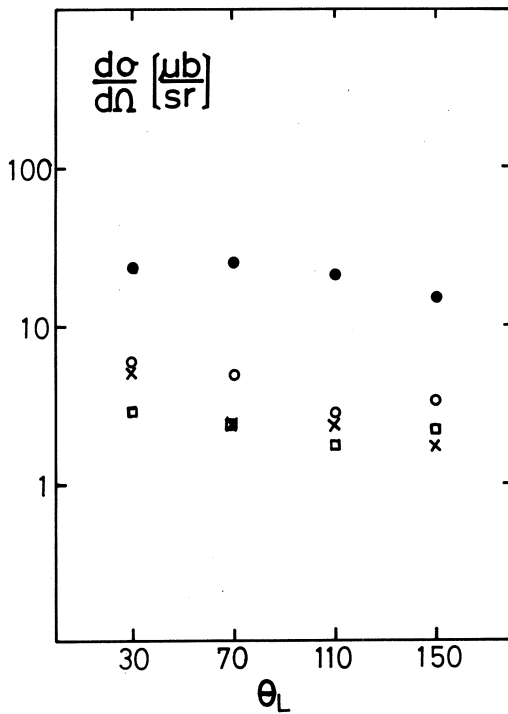


第8図 フェルミ気体模型による計算。\$E_r \approx 200\$ MeV, 実線は \$m^* = m\$, 破線は \$m^* = 0.65 m\$ を用いたもの。

$$= Z \left[\frac{d\sigma}{d\Omega} \frac{k}{q} \frac{p_0 p'_0}{m^2} \right]_{\langle \vec{p} \rangle = 0} \frac{q}{k} \phi(k) I_0(r, r_0) \quad (7)$$

\$p(r, \pi^+)n\$ の断面積には \$k = \bar{k}\$ (ただし \$\phi(k) = \phi(k)_{\max}\$) の値を用い, 入射 \$r\$ 線のスペクトルの影響に対しては, \$q/k\$ の補正のみを行なった。第8図の実線は(7)式で示されるPauliの禁止則のみを考慮したもの, 破線はそれに有効質量を導入した計算結果である。

全角度に渡って絶対値, 立ち上がりの位置



第9図 \$^{12}\text{C}(r, \pi^+)\$ 反応の角分布。●はフェルミ気体模型を用いた計算値。○は今回得たスペクトルを積分したもの。×これまでのデータを加え合わせたもの。□今回のデータから \$E_x = 7\$ MeVまでの準位の寄与を加え合わせたもの。

ともに大きく違っている。これは先端付近では残留核の核構造の影響が大きく表われる筈であり、核子を全く相関のない (Pauli の禁止則のみを考える) 自由粒子と考えるフェルミ気体模型を用いた結果である。角分布 (第 9 図) を見ると、計算値の方は 50° 付近を頂点とするゆるい凸形を示すが、実験値の方は 110° 付近で谷になるような傾向を示す。これとこれまでに報告された $^{12}\text{C}(r, \pi^+)^{12}\text{B}^*$ の角分布^{3), 9), 10)} を合計したもの (第 9 図の \times または \square) とを比較すると、得られたスペクトルは discrete level の寄与をかなり受けていることがわかる。

破線の計算で用いた有効質量 ($m^* = 0.65m$) は、核理研で実施された準弾性電子散乱から得られた値¹¹⁾ を用いた。有効質量を用いた結果は絶対値もスペクトルの形もより実験値に近づく傾向にある。特に 150° の $T_\pi \leq 30\text{MeV}$ の領域では比較的よく再現しているようであり、ここでは QFP が比較的大きな寄与をしている可能性がある。

今回の計算では、 π 中間子に対する終状態相互作用 (FSI) は考慮しなかった。これはこのエネルギー領域での π 中間子の平均自由行路が非常に長く¹²⁾ ($\lambda_0 \geq 2R \approx 5\text{fm}$; $R = \text{核半径}$) π 中間子の吸収はほとんど考えなくてよいと考えられるからである。

§ 6. まとめ

今回実験で得られたスペクトルとフェルミ気体模型を用いた計算さらにこれまでに報告された $^{12}\text{C}(r, \pi^+)^{12}\text{B}^*$ の断面積を比較すると、我々の実験したエネルギー領域では、QFP はあまり大きな寄与をしていないようである。このことをさらにはっきりとさせるためには、運動量移行一定の条件の下で実験し得られるスペクトルの形とフェルミ気体模型の応答関数の形との比較を行えば、より容易に結論を見い出せると考えられる。また、今回解析の際 PDM を用いたが、構造が見えやすくなるという点から、軽い核の様にエネルギー準位が広い場合には有効な解析手段となることが期待できる。

参 考 文 献

- 1) W. M. MacDonald *et al.* : Phys. Rev. C **19** (1979) 455.
- 2) 小林毅範他 : 核理研研究報告 **16** (1983) 222.
- 3) K. Shoda *et al.* : Nucl. Phys. **A 350** (1980) 377.
- 4) M. I. Adamovich *et al.* : Sov. J. Nucl. Phys. **7** (1968) 360.
- 5) I. Blomqvist and J. M. Laget : Nucl. Phys. **A 280** (1977) 405.
- 6) F. A. Brieva and A. Dellafiore : Nucl. Phys. **A 292** (1977) 445.

- 7) R. Rosenfelder : Ann. Phys. **128** (1980) 188.
- 8) K. Stricker *et al.* : Phys. Rev. C **19** (1979) 929.
- 9) 取越正己 : 博士論文 東北大学 (1982).
- 10) K. Min *et al.* : Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 1384.
- 11) H. Ogino : private communication.
- 12) A. M. Bernstein : *Intermediate Energy Nuclear Physics*, ed. R. Bergère *et al.*
(World Scientific, 1982) 144.

$^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}^*$ に現われる 強いスピントリップ転移 (III)

核理研, 教養部*, RPI**, ソウル大***

佐々木 修・取越正己・山崎正晴

遠山伸一・小林毅範・加賀谷 聡

庄田勝房・坪田博明*・K. Min**

E. J. Winhold**・成 百能***

§ 1. 序

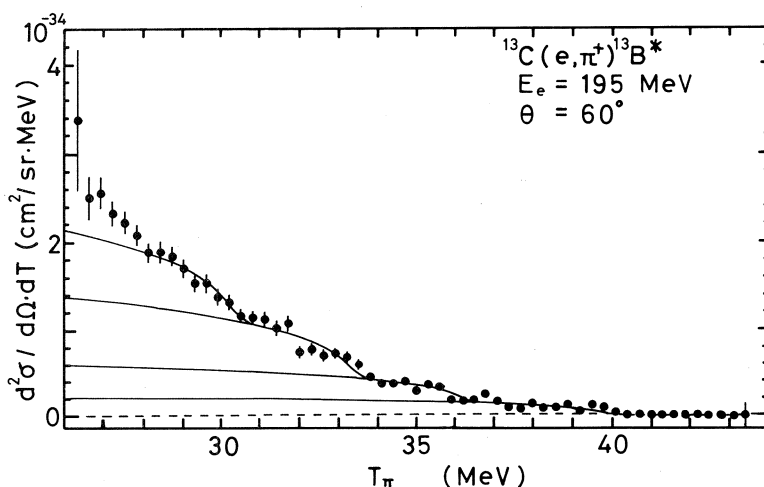
以前の号¹⁾において $^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}$ 反応により放出された π^+ 中間子の測定結果を測定角度 $\theta = 30^\circ \sim 150^\circ$ (20° 間隔で7点)について報告した。 ^{13}B の励起エネルギー $E_x = 6.4$ MeVに強いスピントリップ転移が観測され, ^{13}C の 180° 電子散乱²⁾, $^{13}\text{C}(\pi^-, \gamma)^{13}\text{B}^{3)}$ 及び $^{12}\text{C}(e, \pi^+)^{12}\text{B}^{*4)}$ の実験結果との比較よりM 2及びM 4転移によるものと結論された⁵⁾。また前方での測定結果によると $E_x \approx 9$ MeV付近に新たに構造が観測された。この9 MeV付近の構造を目的に1983年5月に $\theta = 90^\circ, 110^\circ$ での再実験, 1984年2月には $\theta = 30^\circ, 50^\circ$ 及び新しい点として 60° での再実験が行なわれた。得られたデータは以前のデータと共に解析が行なわれ, χ^2 -fittingにより励起エネルギーレベル, 微分断面積が決定された。

§ 2. 解析, 結果及び考察

解析に際してはquasi-free processからの寄与はないと仮定し, またすでに報告されているg.s., 3.48 MeV, 6.4 MeVのレベルのエネルギーは固定として9 MeV付近の第4番目のレベルのエネルギー及び各レベルの微分断面積を自由パラメータとして χ^2 -fittingによりレベルのエネルギーの決定を行なう。その結果誤差の範囲をone standard deviationと仮定すると 30° では $9.11 \leq E_x \leq 9.56$ MeV, 50° では $8.95 \leq E_x \leq 9.39$ MeV, 60° では $9.11 \leq E_x \leq 9.67$ MeV, 70° では $9.47 \leq E_x \leq 9.90$ MeV, 90° では $9.86 \leq E_x \leq 10.25$ MeV, 110° では 6.4 MeV $\leq E_x$ となり角度により多少異なる結果が得られた。そこで全角度の (e, π^+) 反応スペクトルを励起エネルギーをそろえて合計し, その結果から χ^2 -fittingによりレベルのエネルギーを決定した。その結果第4番目のレベルとして $E_x = 9.4 \pm 0.1$ MeVと決定された。この励起エネルギーを用い再度各レベルの微分断面積のみを自由パラメータとして χ^2 -fittingにより微分

第1表 $^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}^*$ χ^2 -fittingによる解析結果。

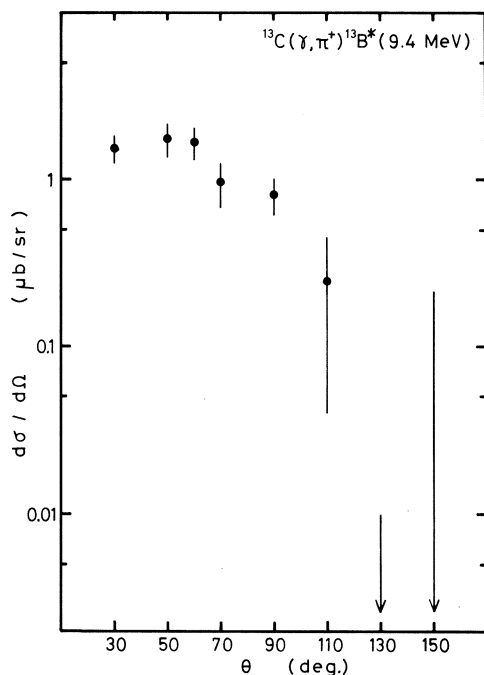
測定角度 deg.	$(d\sigma/d\Omega)$ g. s.	$\pm \Delta(d\sigma/d\Omega)$		$(\mu\text{b}/\text{sr})$	χ^2 -値
		3.48 MeV	6.4 MeV		
30°	0.90 ± 0.15	0.79 ± 0.25	1.52 ± 0.25	1.55 ± 0.30	1.59
50°	0.60 ± 0.08	0.79 ± 0.17	1.37 ± 0.25	1.78 ± 0.41	1.52
60°	0.33 ± 0.05	0.66 ± 0.13	1.48 ± 0.22	1.69 ± 0.38	1.65
70°	0.33 ± 0.09	0.41 ± 0.16	0.89 ± 0.20	0.97 ± 0.30	1.27
90°	0.29 ± 0.06	0.50 ± 0.11	0.89 ± 0.14	0.81 ± 0.20	0.78
110°	0.33 ± 0.08	0.39 ± 0.15	1.11 ± 0.18	0.25 ± 0.21	1.64
130°	0.29 ± 0.08	0.70 ± 0.18	1.11 ± 0.25	-0.49 ± 0.50	1.03
150°	0.32 ± 0.07	0.35 ± 0.14	1.47 ± 0.19	-0.21 ± 0.43	0.79

第1図 $\theta = 60^\circ$ での $^{13}\text{C}(e, \pi^+)^{13}\text{B}$ 反応エネルギースペクトル。実線は各レベルからの寄与を現わす。

断面積が決定された。結果を第1表に示す。ここで $E_x \leq 12\text{MeV}$ のデータのみを用いて χ^2 -fittingを行なった。用いた仮想光子はTiator-Wright⁶⁾である。60°でのスペクトルの例を第1図に、9.4MeVの角分布を第2図に示す。ここで誤差はone standard deviationと仮定した統計誤差のみである。g. s., 3.48, 6.4MeVの微分断面積については以前の解析と大きな違いはない。

g. s.に関する考察は文献7)に、3.48, 6.4MeVに関する考察は文献5)に詳しい。9.4MeV

の角度分布ははっきりとした前方ピークの形をしておりE 1 またはM 2 の転移によるものと想像される。 $^{13}\text{C}(\pi^-, \gamma)$ によると $E_x = 9 \sim 10 \text{ MeV}$ 付近に構造が観測できる³⁾。また $q > 1 \text{ fm}^{-1}$ 領域での 180° 電子散乱では対応する領域に構造を見ることはできない。以上のことは今回得られた我々の結果とよく一致している。理論的にはこの付近にM 2 の転移が予想されている⁸⁾。しかし ^{13}C に関しては現実的な理論計算が存在せず今後の理論解析が待たれる。



第2図 $E_x = 9.4 \text{ MeV}$ の微分断面積の角分布。

参 考 文 献

- 1) 取越正己他：核理研研究報告 **14** (1981)131；核理研研究報告 **15** (1982) 27.
- 2) R.Hicks *et al.*: *Proc. Workshop Nuclear Structure with Intermediate Energy Probes* (Los Alamos, New Mexico, 1980, Los Alamos National Laboratory Report No. LA-8303-C) p.292.
- 3) C. J. Martoff *et al.*: *Phys. Rev. C* **27** (1983) 1621.
- 4) K. Min *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **44** (1980) 1384.
- 5) K. Min *et al.*: *Phys. Rev. C* **28** (1983) 464.

- 6) L. Tiator and L. E. Wright : Nucl. Phys. **A 379**(1982)407.
- 7) K. Shoda *et al.* : Phys. Rev. C **27**(1983)443.
- 8) H. R. Kissener *et al.* : Nucl. Phys. **A 302**(1978)523.

The E2 Giant Resonance in ${}^6\text{Li}$ Studied by (e, d) Reaction

H. Taneichi, H. Ueno, K. Shoda[†],

Y. Kawazoe^{††}, and T. Tsukamoto^{†††}

*Department of Physics, Faculty of General Education,
Yamagata University, Kojirakawa, Yamagata 990, Japan*

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

^{††}*Education Center for Information Processing, Tohoku University,
Kawauchi, Sendai 980, Japan*

^{†††}*Department of Physics, Tohoku University, Aramaki aza Aoba
Sendai 980, Japan*

Angular distributions have been measured for the reaction of ${}^6\text{Li}$ (e, d) over the excitation energy range of 10 to 30 MeV. The deduced E2 strength by the virtual photon theory clearly indicates a very broad bump at 17.5 MeV which may be attributed to the deuteron decay component of the isoscalar giant quadrupole resonance in ${}^6\text{Li}$.

§ 1. Introduction

Since the pioneering investigation by Torizuka et al. utilizing the Tohoku University Electron Linear Accelerator^{1,2)}, the giant quadrupole resonance (GQR) has been experimentally identified systematically through the periodic table except for the very light nuclei ($A < 12$). A lot of works have been performed concerning this subject, and the centroid energies of the GQR have been confirmed to be around $60 \text{ MeV}/A^{1/3}$ for all of these nuclei. Among these, in a previous paper³⁾ we have reported the distribution of the E2 strength in ${}^{14}\text{N}$ concerning the (e, d₀) reaction. Generally speaking, in odd-odd nuclei the separation energies of the deuteron are considerably smaller than those of other particles, and the emitted deuterons are clearly distinguished. Furthermore, on the basis of the isospin selection rule, the isovector

excitations are strongly inhibited in the $^{14}\text{N}(e, d_0)$ reaction. By these two reasons, we were able to obtain the information on the isoscalar excitation in ^{14}N , which otherwise would have been hidden by the overwhelming E1 strength.

For the same reason, ^6Li nucleus is also expected to be a suitable candidate to study the isoscalar GQR by the electro- (or photo-) deuteron reactions. The Saskatchewan group has already measured and analyzed the $^6\text{Li}(e, d)$ cross sections at the energy region of $E_x < 16 \text{ MeV}^{4)}$, which is substantially below the expected GQR centroid energy. Their work, however, has confirmed that the reaction takes place predominantly through E2 excitation, and the virtual photon theory⁵⁾ works fairly well for the analysis of this reaction. This encourages us to use the (e, d) reaction for the investigation of the E2 strength in the higher excitation energy region in ^6Li , and to analyze the (e, d) data by the virtual photon theory to deduce the GQR strength.

Furthermore, recent paper by Brady et al.⁶⁾ clearly indicates the existence of giant dipole strength in ^6Li even at 29.5 MeV via (n, p) reaction. This result is also interesting to us for the study of the high energy nuclear excitation in ^6Li .

In section 2, we describe the experimental procedure and show the obtained differential cross sections with angular distributions. In section 3, we briefly present the method of deducing the multipole strengths. The E2 strength distribution evidently indicates a very broad bump around 17.5 MeV with the width of about 24 MeV (FWHM), which is attributed to the deuteron decay component of the GQR in ^6Li .

§ 2. Experimental Procedure and Results

2.1 *Experimental Procedure*

A thin foil of ^6Li target was bombarded with an electron beam from the Tohoku University Electron Linear Accelerator. The purity of the ^6Li isotope was 99.3% and the target thickness was about 20 mg/cm^2 . Emitted particles were analyzed with a Browne-Buechner-type broad-range magnetic spectrometer and detected by a ladder of 100 Si(Li) solid-state detectors set along the focal plane. Output pulses from each detector were pulse-height analyzed into 128 channels using a multiplexing system

and stored in the on-line computer.

Fig. 1 shows a typical example of the measured pulse-height spectrum, which shows clearly the large separation between deuterons and other particles. Protons and alphas do not appear in the pulse-height spectra in the present experiment because of their high threshold energies. Therefore, deuterons could be measured without ambiguity even though the counting rate of the deuterons is very small.

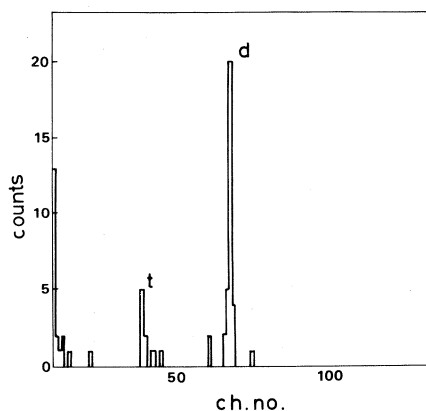


Fig. 1. Pulse-height spectrum of the charge-momentum analyzed particles from the ${}^6\text{Li}$ target.

2. 2 Differential Cross Sections at $\theta_d = 125^\circ$

Fig. 2 shows the measured double-differential electro-disintegration cross sections in the ${}^6\text{Li}(e, d)$ reaction for six incident electron energies of 14, 17, 20, 23, 26, and 29 MeV at $\theta_d = 125^\circ$. This angle was selected so as to maximize the yield, and consequently to make it easy to deduce the E2 strength distribution to study the GQR in ${}^6\text{Li}$.

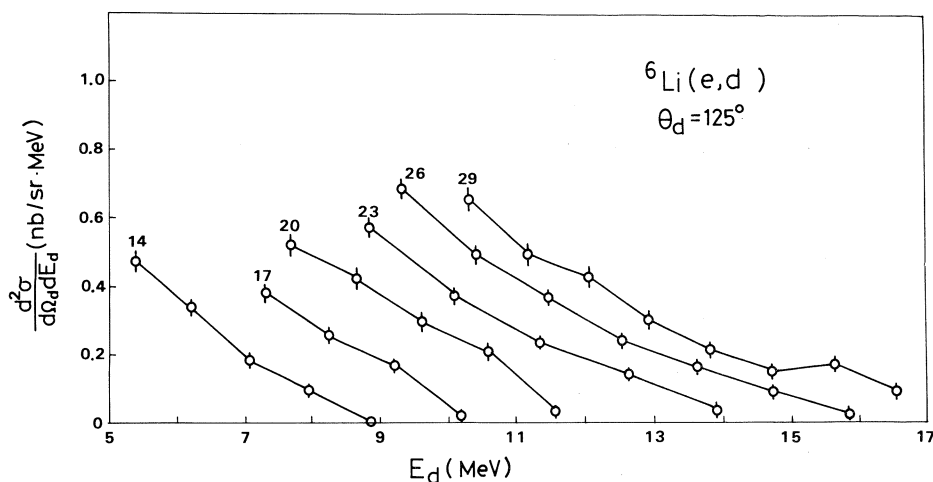


Fig. 2. Deuteron cross sections in the ${}^6\text{Li}(e, d)$ reaction.

The incident electron energies are shown in the figure in MeV. The deuteron energy is expressed in the laboratory frame.

2.3 Angular distributions

Angular distributions were also measured at 15 angles relative to the incident beam from 42° to 138° at four incident electron energies of 14, 20, 24, and 30 MeV. They are shown in Fig.3, Fig.4, Fig.5, and Fig.6, respectively.

We have also measured the ${}^6\text{Li}(e+\gamma, d)$ angular distribution by setting a Ta radiator before the ${}^6\text{Li}$ target. The cross section for the real photon bombardment is estimated by subtracting the (e, d) cross section from the $(e+\gamma, d)$ cross section.

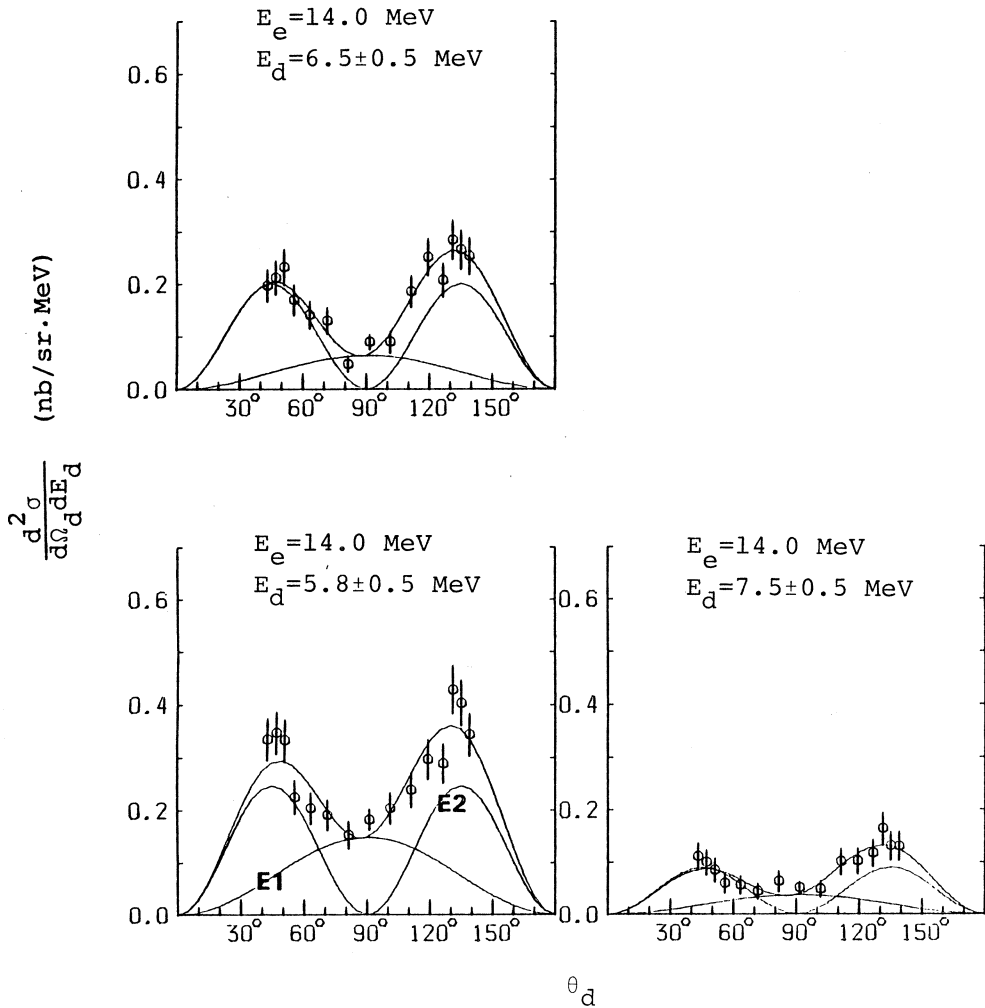


Fig. 3. Angular distributions of deuterons from the ${}^6\text{Li}(e, d)$ reaction at 14.0 MeV.

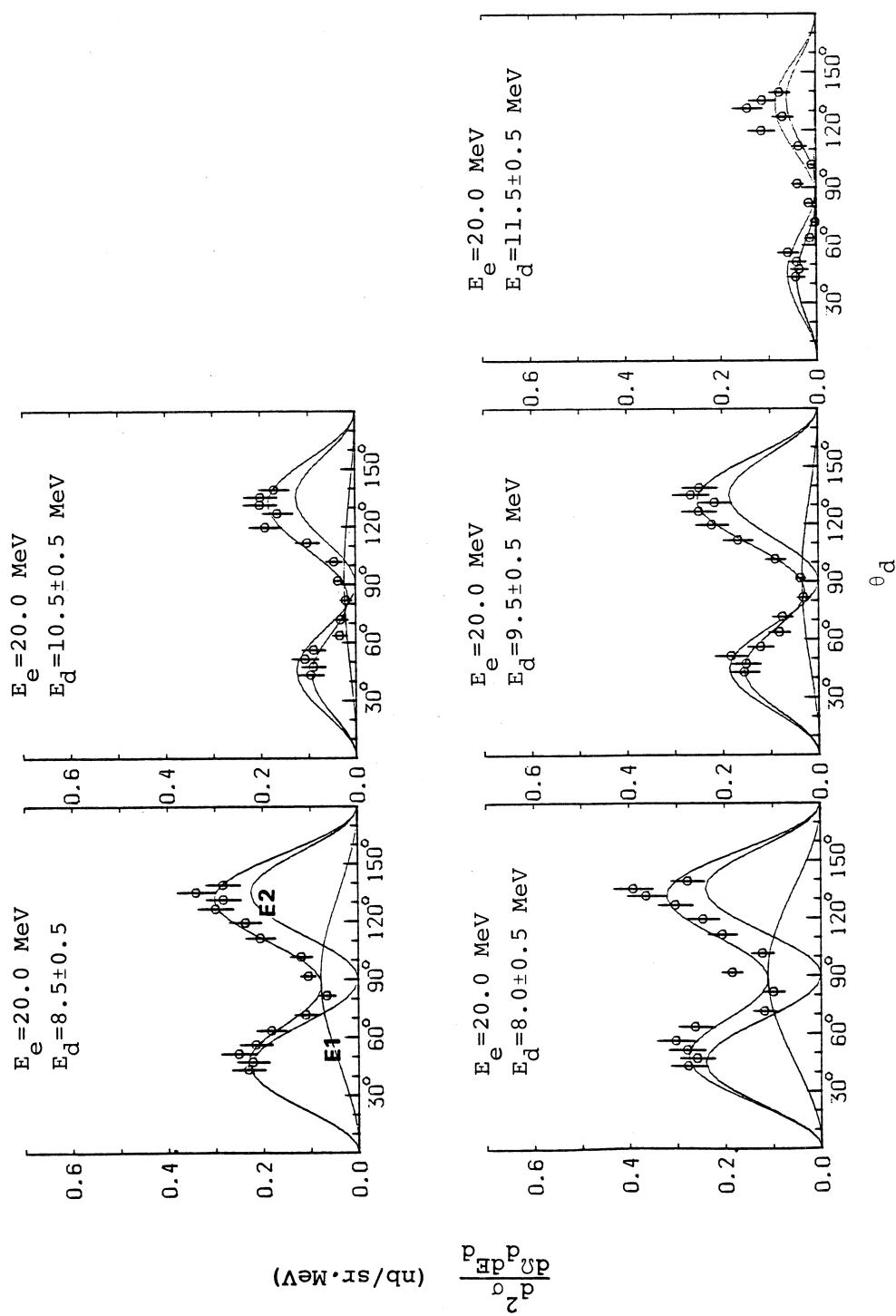


Fig. 4. Angular distributions from the ${}^6\text{Li}(e,d)$ reaction at 20.0 MeV.

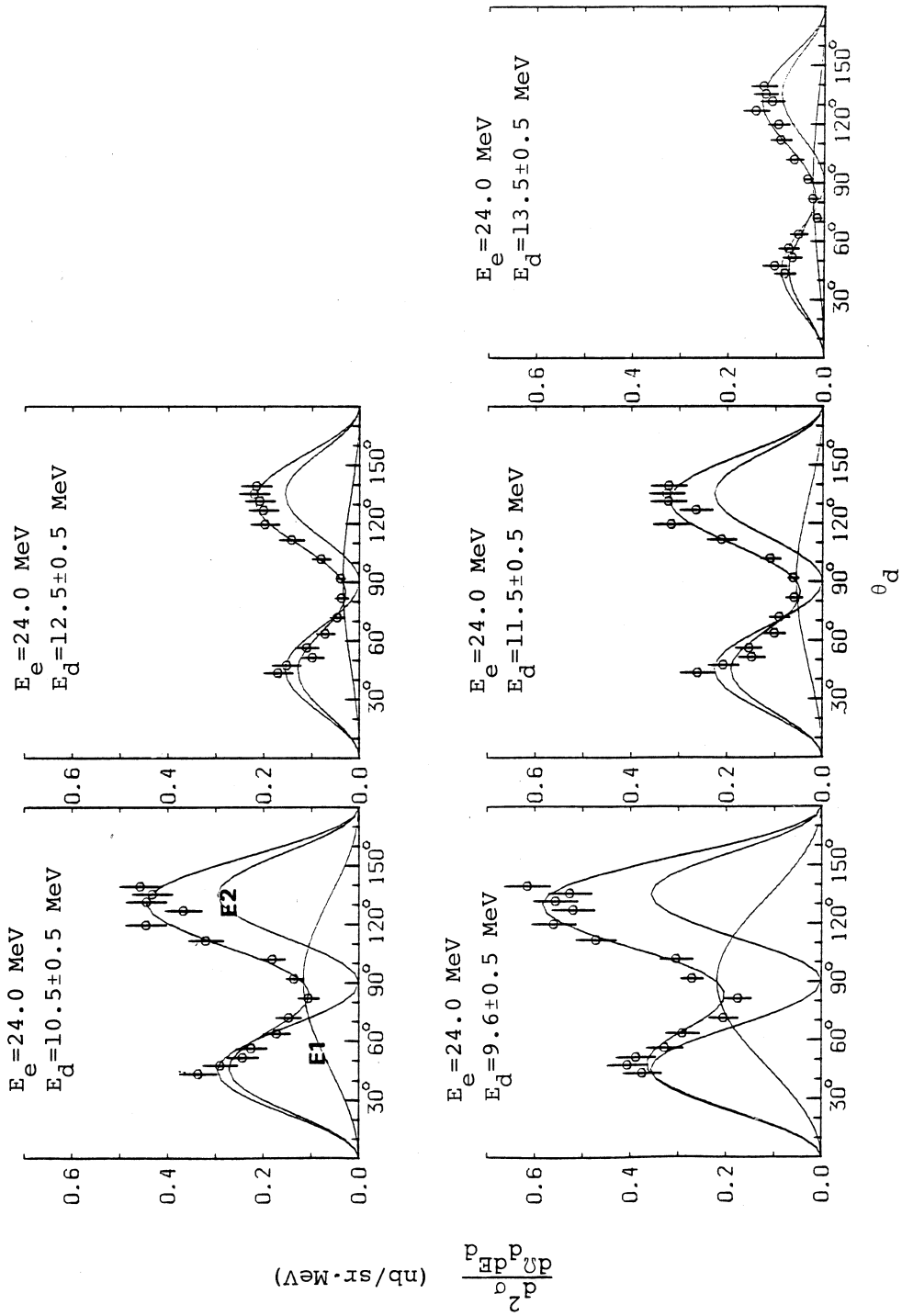


Fig. 5. Angular distributions from the ${}^6\text{Li}(e,d)$ reaction at 24.0 MeV.

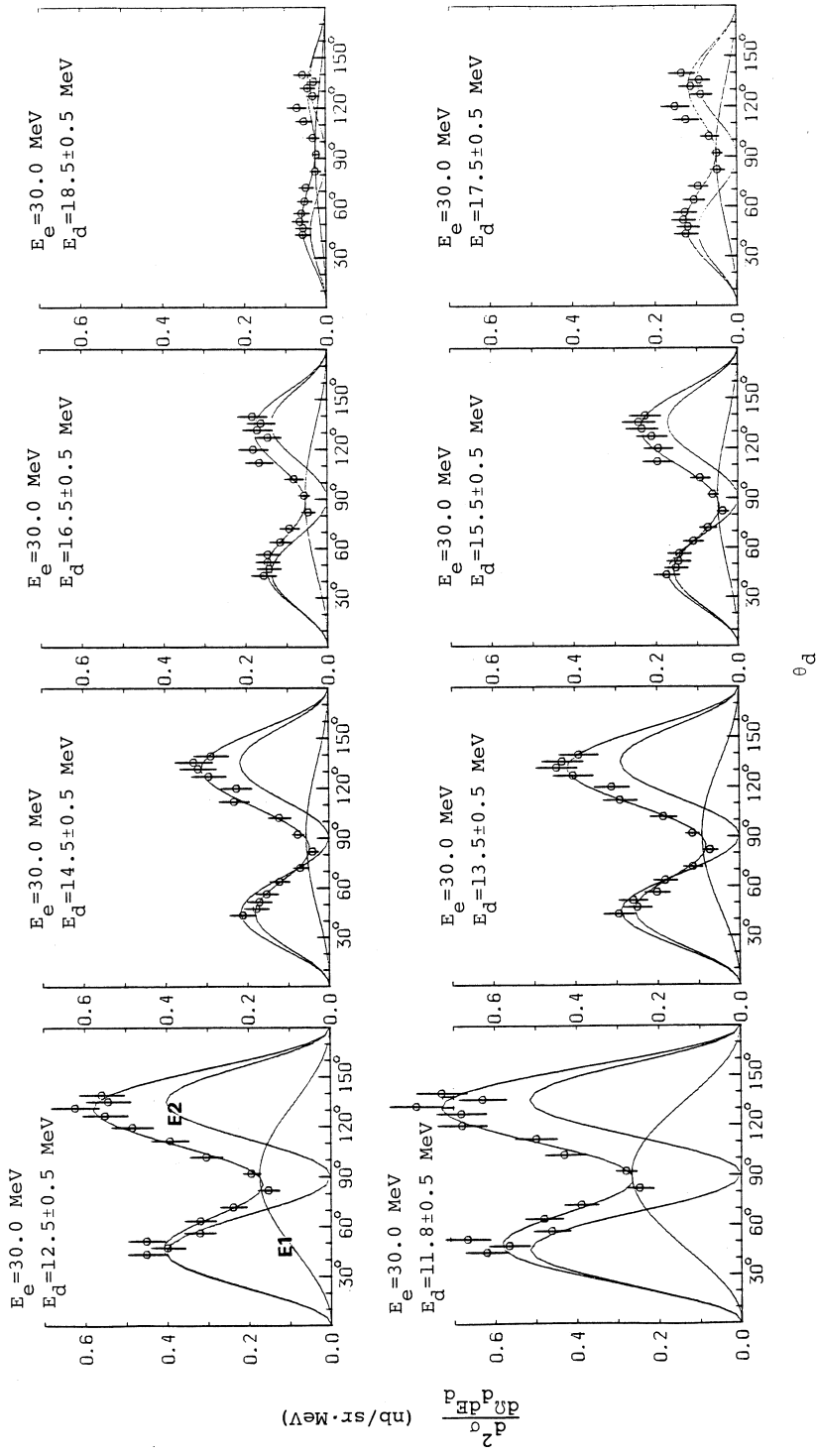


Fig. 6. Angular distributions from the ${}^6\text{Li}(e,d)$ reaction at 30.0 MeV.

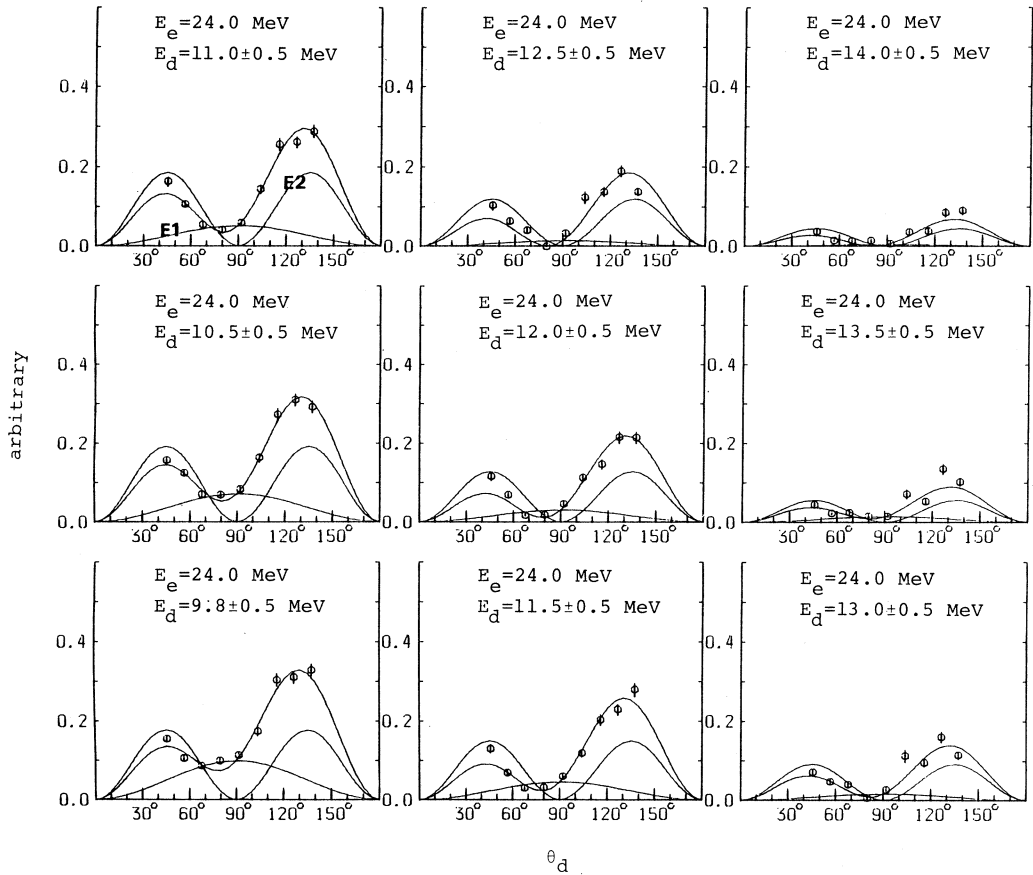


Fig. 7. Angular distributions from the ${}^6\text{Li}(e,d)$ reaction. It is the estimated (r,d) angular distributions by using the (e,d) and $(e+r,d)$ measurements at incident energy of 24 MeV.

This result is shown in Fig. 7. These angular distributions were fitted to a Legendre polynomial series of the form ;

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega_d dE_d} = \sum_{l=0}^4 A_l P_l(\cos\theta_d) \quad (1)$$

The determined values of the A_l coefficients are listed in Table 1.

All of the measured angular distributions have two peaks. One appears around 45° and the other at around 135° . This prominent shape suggests that the E2 interaction dominates in the reaction. Every curve, however, shows a little bit asymmetry

with respect to the reflection about 90° and the minimum occurs at a scattering angle somewhat less than 90° . The values of the coefficient A_3 of the Legendre polynomial series in Table 1 are related to this asymmetry, which is due to a weak E1-E2 interference. The existence of the E1 strength in ${}^6\text{Li}(e,d)$ reaction reflects the isospin impurity in ${}^6\text{Li}$.⁴⁾

Table 1. The values of the determined A_l coefficients in the Legendre expansions of the measured angular distributions.

E_e (MeV)	E_d (MeV)	A_0	A_1	A_2 (nb / sr · MeV)	A_3	A_4
14.0	5.3- 6.3	0.29 ± 0.02	-0.01 ± 0.03	0.22 ± 0.08	0.08 ± 0.06	-0.03 ± 0.08
	6.0- 7.0	0.16 ± 0.02	-0.02 ± 0.02	0.05 ± 0.06	0.06 ± 0.04	-0.16 ± 0.06
	7.0- 8.0	0.10 ± 0.01	-0.02 ± 0.02	0.08 ± 0.04	0.04 ± 0.03	-0.01 ± 0.04
20.0	7.5- 8.5	0.22 ± 0.03	-0.04 ± 0.04	0.06 ± 0.10	0.01 ± 0.07	-0.17 ± 0.10
	8.0- 9.0	0.18 ± 0.01	-0.03 ± 0.02	0.06 ± 0.05	0.05 ± 0.03	-0.17 ± 0.05
	9.0-10.0	0.13 ± 0.01	-0.04 ± 0.02	0.05 ± 0.04	0.08 ± 0.03	-0.16 ± 0.04
	10.0-11.0	0.09 ± 0.01	-0.05 ± 0.02	0.03 ± 0.04	0.06 ± 0.03	-0.12 ± 0.04
	11.0-12.0	0.05 ± 0.01	-0.04 ± 0.02	0.01 ± 0.06	0.03 ± 0.04	-0.06 ± 0.05
24.0	9.1-10.1	0.38 ± 0.02	-0.08 ± 0.03	0.14 ± 0.08	0.19 ± 0.06	-0.17 ± 0.08
	10.0-11.0	0.28 ± 0.02	-0.06 ± 0.03	0.18 ± 0.06	0.17 ± 0.04	-0.13 ± 0.06
	11.0-12.0	0.19 ± 0.01	-0.04 ± 0.02	0.16 ± 0.06	0.14 ± 0.04	-0.10 ± 0.05
	12.0-13.0	0.13 ± 0.01	-0.02 ± 0.01	0.11 ± 0.02	0.10 ± 0.02	-0.07 ± 0.02
	13.0-14.0	0.08 ± 0.01	-0.01 ± 0.01	0.05 ± 0.03	0.06 ± 0.02	-0.05 ± 0.03
30.0	11.3-12.3	0.48 ± 0.03	-0.03 ± 0.05	0.11 ± 0.12	0.19 ± 0.08	-0.37 ± 0.12
	12.0-13.0	0.36 ± 0.02	-0.06 ± 0.03	0.14 ± 0.07	0.17 ± 0.05	-0.26 ± 0.07
	13.0-14.0	0.24 ± 0.01	-0.07 ± 0.02	0.14 ± 0.05	0.14 ± 0.03	-0.17 ± 0.05
	14.0-15.0	0.17 ± 0.01	-0.05 ± 0.02	0.11 ± 0.04	0.11 ± 0.03	-0.13 ± 0.04
	15.0-16.0	0.13 ± 0.01	-0.03 ± 0.01	0.06 ± 0.03	0.09 ± 0.02	-0.12 ± 0.03
	16.0-17.0	0.11 ± 0.01	0.00 ± 0.02	0.01 ± 0.04	0.06 ± 0.03	-0.12 ± 0.04
	17.0-18.0	0.08 ± 0.01	0.02 ± 0.02	-0.02 ± 0.05	0.04 ± 0.03	-0.11 ± 0.05
	18.0-19.0	0.04 ± 0.01	0.02 ± 0.01	-0.02 ± 0.03	0.01 ± 0.02	-0.05 ± 0.03

§ 3. Analysis of the Data and Discussion

From the measured angular distribution data, we could deduce the E2 component in the ${}^6\text{Li}$ (e, d) cross section by using a well known formula as follows^{7,8,9)}. The measured cross section can approximately be expressed in the next expression,

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega_d dE_d} \cong |\sin\theta (c_1 + c_2 \cos\theta)|^2 \quad (2)$$

where $|c_1|^2$ and $|c_2|^2$ are proportional to the E1 and E2 strengths, respectively. The pure E1 and E2 cross sections are estimated by fitting the measured angular distribution to the expression (2). Dividing the measured counts by the virtual E2 photon number (for the actual process of the data analysis, see Appendix A.), we could in principle obtain the E2 strength in the (r , d) cross section. In this way, we can put together the experimental (e, d) cross sections, which are measured at different bombarding electron energies, into a unified (r , d) cross section. The result at 125° is shown in Fig. 4, which shows a very broad bump. This final excitation function is fitted to a Lorentz type resonance curve, the best fitted one of which is also shown by the solid line in Fig. 4. The centroid energy is 17.5 MeV and the width is 24.0 MeV. The common expression of the centroid energy of the GQR, $60 \text{ MeV}/A^{1/3}$, may not hold, because ${}^6\text{Li}$ is too light to be treated as a liquid drop or a nuclear matter. Since the estimated width is very wide, we conclude that the E2 strength spreads out very much in ${}^6\text{Li}$ and ordinary concept of the GQR is difficult to apply to this case.

To obtain the absolute scale of the presently estimated E2 excitation strength, we compare the result with the sum rule value. The E2 isoscalar energy-weighted sum is expressed as,¹⁰⁾

$$S = \int \sigma(E2) \frac{dE}{E^2} = 0.25 Z^2 A^{-1} \langle R^2 \rangle \quad (3)$$

where

$$\langle R^2 \rangle = \frac{3}{5} r_0^2 A^{2/3} = (2.57 \text{ fm})^2$$

we have integrated the above estimated E2 cross section from $E_x = 9$ to 29 MeV

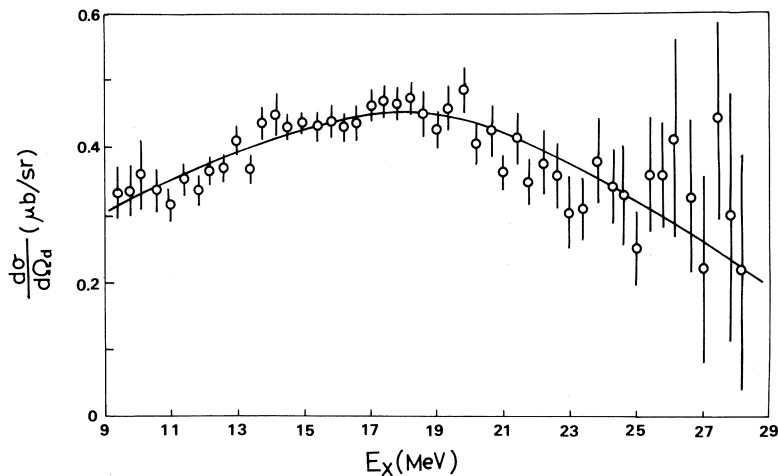


Fig. 4. The estimated E2 excitation function by the ${}^6\text{Li}(e, d)$ reaction. The solid curve is the best fitted Lorentz line.

and found that $S(\text{measured}) = 0.20 \mu\text{b}/\text{MeV}$, which exhausts about 8 % of the expected E2 sum in eq. (3).

Although more than 90% of the sum rule value may be distributed in the other channels than the deuteron decay, the present investigation has revealed that even for a very light nuclei of ${}^6\text{Li}$ the E2 strength exhibits a bump which corresponds to the GQR.

This paper is dedicated to Professor Torizuka on his 60th anniversary. The authors would like to thank the machine crew of the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University for their help in machine operation.

Appendix A.

As the cross sections in the ${}^6\text{Li}(e, d)$ reaction are very small, we are forced to use thick targets to shorten the beam time to a reasonable one. This causes large energy loss of the emitted deuterons in the target, and the shape of the double-differential electro-disintegration cross sections are significantly influenced. Fortunately, we may estimate the pure E2 contribution by the analysis of the measured angular

distributions. At the angle of 125° , the E2 contribution is expected to be about 60% of the observed counts. We have tried to find the (r, d) cross section by the following simulation method. First we assume that the cross section to be

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = b_0 + b_1 b_r + b_2 E_r^2 \quad (\text{A1})$$

then we imagine the target to be composed of 10–20 layers. Assuming that these layers are sufficiently thin, the spectrum of the emitted deuteron exhibits the form of the E2 bremsstrahlung. The emitted deuterons lose their energy in the subsequent layers. By summing the spectra by all the layers, we obtain an improved virtual photon spectrum, which takes the target thickness into account. We compare this calculated spectrum with the observed one by using the least-square method to deduce the coefficients b_0 , b_1 , and b_2 .

References

- 1) S. Fukuda and Y. Torizuka : Phys. Rev. Lett. **29** (1972) 1109.
- 2) M. Nagao and Y. Torizuka : Phys. Rev. Lett. **30** (1972) 1068.
- 3) H. Taneichi, H. Ueno, K. Shoda, Y. Kawazoe and T. Tsukamoto : Nucl. Phys. **A350** (1980) 157.
- 4) D. M. Skopik, E. L. Tomusiak, E. T. Dressler, Y. M. Shin and J. J. Murphy, II : Phys. Rev. **C14** (1976) 789.
- 5) W. C. Barber and T. Wiedling : Nucl. Phys. **18** (1960) 575.
- 6) F. Brady, G. A. Needman, J. L. Romero, C. M. Castaneda, T. D. Ford, J. L. Ullmann and M. L. Webb : Phys. Rev. Lett. **51** (1983) 1320.
- 7) B. F. Gibson and H. T. Williams : Nucl. Phys. **A163** (1971) 193.
- 8) J. M. Eisenberg : Phys. Rev. **132** (1963) 2243.
- 9) H. Miyase, H. Tsubota, Y. Kawazoe and T. Tsukamoto : Phys. Rev. Lett. **50** (1983) 821.
- 10) E. K. Warburton and J. Weneser : *Isospin in Nuclear Physics*, ed. D. H. Wilkinson (North-Holland, Amsterdam, 1969).

II. 物 性 物 理

TbFe₂中 ¹⁵⁶Gd の超微細磁場

金研, 新潟大理学部*, 理学部物理**

篠原 猛・古沢 昭*・林部昭吾**

神山 崇・金沢正明**

TbFe₂中に¹⁵⁹Tb(γ , 3n)¹⁵⁶Tb反応で作った微量な¹⁵⁶TbのEC崩壊を利用して¹⁵⁶Gdの超微細磁場を時間積分 γ - γ 摂動角相関法によって決めた。

§ 1. 緒 言

稀土類元素と3d遷移金属元素との金属間化合物は大変興味ある磁性を示すことから、これまで多くの金属間化合物について磁性の研究が行なわれてきている¹⁾。

本研究で取上げるラーベス構造(C15型)をとるTbFe₂はRFe₂(R:稀土類元素)化合物の一つであって、他のRFe₂との混晶系をも含めて磁化測定がなされている。R元素(Tb)とFeは磁気モーメントが反強磁性的に配列してフェリ磁性を示し、特長ある熱磁化曲線が観測されているが、FeとTbの磁気モーメントの値についてはまだ正確に決められていない^{2,3)}。⁵⁷Feのメスバウアー効果の測定⁴⁻⁷⁾; Tbの超微細磁場の測定^{8,9)}がなされているが、Tbが軌道角運動量をもつため磁化と超微細磁場の成因との関係の議論は今なおむづかしい。しかしGdは金属間化合物中で3プラスイオンとなり、軌道角運動量はゼロでスピ角運動量のみが磁化および超微細磁場に関与していると考えられるので、Gdをプローブとした研究はTbFe₂の磁性研究ひいてはRFe₂系の磁性研究に有意義な知見をもたらしてくれる。

既に我々は¹⁵⁶Gdが γ - γ 摂動角相関法による超微細構造の研究に適していることを示しているが¹⁰⁾、本実験ではTbFe₂中に生成させた微量な¹⁵⁶Tbの核壊変による¹⁵⁶Gdの超微細磁場を求め、以前に予測されていた磁氣的相互作用についての知見を得ることを目的とした。

¹⁵⁶₆₅Tb(T_{1/2} ~ 5.6 day)のdecay schemeは以前に示している¹⁰⁾。1511 keVを中間状態にして534 keV-1222 keVカスケード遷移を使用し、いずれもキュリー点以下の77 Kと室温にて外部磁場7.17 kOe中にて角相関実験を行った。

§ 2. 実験方法

試料はアークメルトにてTbとFe(共に純度99.9%)を混ぜて溶解をくり返し3度行い粉末

にしたものを用いた。X線回折により試料が単相であることを確かめた後、電子ライナックからの制動放射 r 線 ($E_{r\max} = 60 \text{ MeV}$) で照射し試料中に $^{159}\text{Tb}(\gamma, 3n)^{156}\text{Tb}$ 反応を起させた。測定用試料は照射後アルゴン雰囲気中 620°C にて5時間焼鈍した。

Ge(Li) 検出器は 70 cm^3 と 80 cm^3 の2台を使用し、測定回路、測定方法等は殆ど前回報告した通りである¹⁰⁾。

§ 3. 結果と考察

1222 keV r と 534 keV r をそれぞれゲートにした際の 534 keV と 1222 keV r 線の摂動角相関を 7.17 kOe 中で室温と 77 K にて測定した。

1222 keV r をゲートにした 534 keV r 線の摂動角相関の実験結果を第1図に示す。実験データを点で表わし、次式を用い最小二乗法で解析して得られる強度の角度変化を実線で示した。

$$W(\theta, H) = 1 + b_2 \cos(2[\theta - \Delta\theta_2]) + b_4 \cos(4(\theta - \Delta\theta_2)) \quad (1)$$

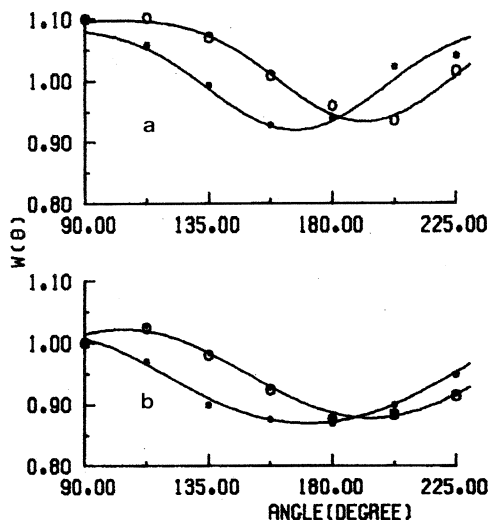
ここで、 $W(\theta, H)$ は有効磁場 (H_{eff}) の許における二つの Ge(Li) 検出器間の角度 θ での強度で、 $\theta = 90^\circ$ での実験値

で規格化した。 b_2 , b_4 は中間状態の寿命に関する常数である。最小二乗法にて $\Delta\theta_2$, b_2 , b_4 を求めた。534 keV r をゲートにした際の 1222 keV r 線についての解析結果と併せて第1表に示す。

77 K と室温で得られた $\Delta\theta_2$ を平均し、室温で $\overline{\Delta\theta_2} = 0.178 \pm 0.025$, 77 K で $\overline{\Delta\theta_2} = 0.212 \pm 0.019$ を得る。Gd が立方対称の結晶学的位置にあり且つ 1511 keV の level の寿命が 0.27 ns と短いため電場による影響を無視し、

$$\overline{\Delta\theta_2} = \omega_B \tau, \quad \omega_B \tau = \frac{\mu H}{\hbar I} = g \mu_N \frac{H}{\hbar} \quad (2)$$

に $\tau = 0.278 \pm 0.008 \text{ ns}$, $g = 0.78 \pm 0.10$ を代入して



第1図 $4-(E1, M2)4+(M1, E2)4+$ カスケード r による時間積分摂動角相関。1222 keV r をゲートにした 534 keV r 線強度の角度変化。○印磁場+, ●印磁場-, a) は 77 K, b) は室温での結果。点は実験点, 実線は(1)式に fit させた強度変化を示す。

第1表 最小二乗法で求めた $\Delta\theta_2$, b_2 , b_4 値。

a) 534 keV - 1222 keV カスケード。

Temp	H	$\Delta\theta_2$	b_2	b_4
293 K	+	$+0.244 \pm 0.023$	-0.076 ± 0.003	0
	-	-0.152 ± 0.015	-0.075 ± 0.003	0.005
77 K	+	$+0.204 \pm 0.019$	-0.080 ± 0.003	-0.014
	-	-0.234 ± 0.034	-0.080 ± 0.007	-0.014

b) 1222 keV - 534 keV カスケード

Temp	H	$\Delta\theta_2$	b_2	b_4
293 K	+	-0.167 ± 0.021	-0.080 ± 0.004	0.0108
	-	0.148 ± 0.012	-0.083 ± 0.002	0.0054
77 K	+	-0.113 ± 0.027	-0.079 ± 0.005	0.019
	-	0.295 ± 0.026	-0.070 ± 0.004	0.024

$$H_{eH} (\text{室温}) = +(170 \pm 24) \times 10^3 \text{Oe}$$

$$H_{eH} (77 \text{ K}) = +(202 \pm 18) \times 10^3 \text{Oe}$$

を得た。外部磁場 $H_{\text{ext}} = 7.17 \text{ kOe}$ 故、超微細磁場 $H_{\text{hyp}} = H_{eH} - H_{\text{ext}}$ の関係から

$$H_{\text{hyp}} (\text{室温}) = +163 \pm 24 \text{ kOe}$$

$$H_{\text{hyp}} (77 \text{ K}) = +195 \pm 18 \text{ kOe}$$

と求められる。TbFe₂ の熱磁化曲線^{2,3)}を見ると77 Kでの H_{hyp} は0 Kでの値と殆ど違わないと考えられるので、この77 Kの値を用いて以下議論する。4.2 KでのGdFe₂中のGdの $H_{\text{hyp}} = +450 \text{ kOe}$ ^{8,11)}, TbFe₂中Tbの $H_{\text{hyp}} = +3584 \text{ kOe}$ ⁹⁾と比較すると、(GdFe₂, TbFe₂ 共同結晶構造をもち格子常数は夫々7.389 Å, 7.348 Åである)本実験で求めたTbFe₂中Gdの $H_{\text{hyp}} = +195 \pm 18 \text{ kOe}$ は符号は一致しているが値が大きく異なっている。

Gdの磁気モーメントの値は4f電子スピンのみから生成されていて、化合物によらず殆ど一定と考えられているので¹⁾, このような違いは、これまでの H_{hyp} の研究から予測されている如く、Gdを取りまわっている周囲の磁性原子の影響によっていると考えられる。内殻s電子の偏極による成分 $H_{\text{hyp}}^{\text{core}}$ は他の化合物中Gdの値と同様-330 kOeと考えられるので、Tb格子, Fe格子からGd核位置に作られる磁場 ($H_{\text{hyp}}^{\text{N}}$) とGdスピン自身による伝導電子偏極に

よる成分 ($H_{\text{hyp}}^{\text{S}}$) との和は $H_{\text{hyp}}^{\text{N}} + H_{\text{hyp}}^{\text{S}} = +525 \text{ kOe}$ となるであろう。しかし、この値は Berthier 達のデータ⁹⁾ から予測される値 + 775 kOe より誤差以上に小さい。従って、Berthier 達の $H_{\text{hyp}}^{\text{N}}$ の値の見積り方法について疑問がもたれるが、詳細は今後追加されるデータと併せて考察する。

本実験を遂行するにあたりご援助いただいた八木、榎本の両氏およびマシングループの方々に厚く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) K. H. J. Buschow : Rep. Prog. Phys. **40**(1977)1179.
- 2) K. H. J. Buschow and R. P. van Stapele : J. Appl. Phys. **41**(1970)4066 ,
J. de Phys. **32**(1971) C 1-672.
- 3) E. Burgo : Z. Angew. Phys. **32**(1971)127.
- 4) M. P. Dariel , U. Atzmony and D. Lebenbaum : Phys. stat. sol. (b) **59** (1973)
615.
- 5) U. Atzmony and M. P. Dariel : Phys. Rev. B **10**(1974)2060.
- 6) S. A. Nikitin , V. A. Vasil'kovskii, H. M. Kovtun, A. K. Kupriyanov and
V. F. Ostrovskii : Sov. Phys. JETP **41**(1975)285.
- 7) S. I. Araujo and A. P. Guimaraes : J. Phys. F : Metal Phys. **10**(1980)1313.
- 8) V. A. Vasil'kovskii, N. M. Kovtun, A. K. Kupriyanov, S. A. Nikitin and
V. F. Ostrovskii : Sov. Phys. JETP **38**(1974)342.
- 9) Y. Berthier, P. A. B. Devine and R. A. Butera : *Nuclear and Electron
Resonance Spectroscopies Applied to Material Science* ed. E. N. Kaufmann and
G. K. Shenoy (Elsevier North Holland, 1981).
- 10) 篠原 猛, 吉沢 昭, 林部昭吾, 山口貞衛, 神山 崇 : 核理研研究報告 **11**(1978)72 ; **13**
(1980)116 ; **15**(1982)97 ; Hyp. Int. **12**(1982)297 ; J. Magn. Mat **31-34**
(1983)219.
- 11) K. Tamala, C. Czjzek, J. Fink and H. Schmidt : Solid State Comm. **24**
(1977)857.

中性子散乱による Ti_5Si_3 水素化物中の水素の存在状態の研究

金研, 核理研*

川瀬智博・金子尚史・梶谷 剛

山田和芳*・平林 真

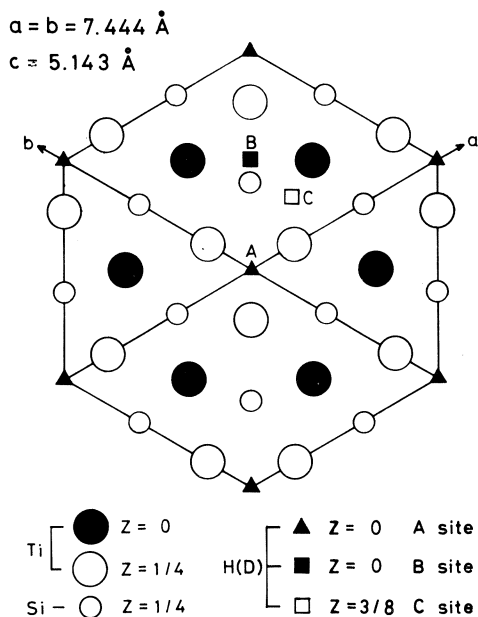
§ 1. 序 論

Ti 水素化物の高温 β 相 (bcc) は, 300°C 以下では CaF_2 型構造をもつ $r-TiH_2$ と $\alpha-TiH_x$ とに分離する¹⁾。 $\alpha-TiH_x$ (hcp) 中の水素については八面体位置 (*o-site*) を占めるとする説²⁾ が有力であるが, 四面体位置 (*t-site*) を占めるとする報告³⁾ もある。

Ti の水素化物だけでなく, 最近では実用的な見地から, Ti 系合金水素化物に関する研究がさかんに行われるようになった⁴⁾。しかし Ti-Si 系水素化物の構造に関する研究はまだない。

本研究においては金属間化合物 Ti_5Si_3 に水素を添加し, その存在状態を明らかにするため, 中性子非弾性散乱および粉末試料を用いた中性子回折実験を行った。

Ti_5Si_3 は格子定数; $a = 7.444 \text{ \AA}$, $c = 5.143 \text{ \AA}$ の六方晶であり, Mn_5Si_3 型 (空間群 $P6_3/mcm$) の結晶構造をもつ⁵⁾。Ti 原子は特殊等価位置 4 (*d site*) と 6 (*g site*) を占有し, Si 原子は 6 (*g site*) を占有する⁵⁾。第1図にその構造を示す。図に示したように, Ti 原子のみを含む層 ($Z = 0$, $\frac{1}{2}$) と Ti 原子, Si 原子の双方を含む層 ($Z = \frac{1}{4}, \frac{3}{4}$) が交互に積み重なった構造である。



第1図 Ti_5Si_3 の結晶構造。図では $Z < 1/2$ の原子のみが示されている。C軸を中心に 60° 回転し, C軸方向に $1/2$ だけ並進したところにさらに同数の原子が存在している。図中A, B, Cは等価でない3種類の *o-site* であり, $Ti_5Si_3H_{0.83}$ 及び $Ti_5Si_3D_{0.9}$ の水素ないし重水素の大部分はA siteを占めると考えられる。

§ 2. 実験方法

純度 99.7 wt% のスポンジ Ti をアーク溶解してボタンとした後、99.999 wt% の塊状 Si を加え、これをアーク炉で再溶解して Ti_5Si_3 のボタンを作製した。次にこのボタンを粉碎し、ジーベルツ型水素化装置を用いて 500 °C から室温までの温度範囲で水素ないしは重水素を吸収させ、 $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{H}_{0.83}$ 及び $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ を得た。

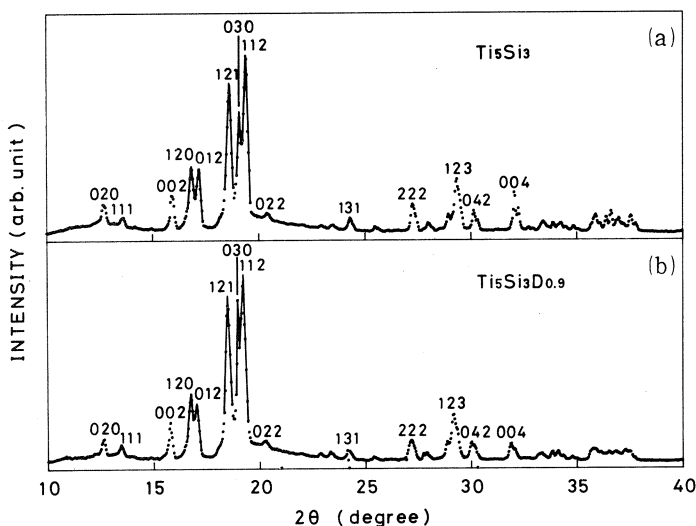
中性子非弾性散乱実験は、核理研のクリスタルアナライザーを用いて実施した。 $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{H}_{0.83}$ の粉末試料を 110 × 85 × 4 mm のアルミニウム製容器に入れ、室温において測定を行った。

粉末中性子回折は、日本原子力研究所東海研の JRR-2 原子炉に設置された中性子回折装置 KID と、核理研の多結晶用デバイ・シェラー型パルス中性子分光器^{6),7)} により、室温において測定を行った。原研での実験においては、 Ti_5Si_3 ないしは $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ の粉末を直径 15 mm の円筒型バナジウム製容器に入れ、90 秒毎に 0.1 度の間隔でステップスキャンを行った。また核理研においては、同じ試料を用いて、やはり直径 15 mm の円筒型バナジウム製容器に入れ、それぞれ約 12 時間測定した。さらに入射中性子強度で規格化を行うため、直径 10 mm のバナジウム棒を用いて約 6 時間測定した。

§ 3. 実験結果

3.1 粉末 X 線回折

重水素添加に伴う結晶格子の変化を調べる目的から粉末 X 線回折を行った。第 2 図(a)及び(b)



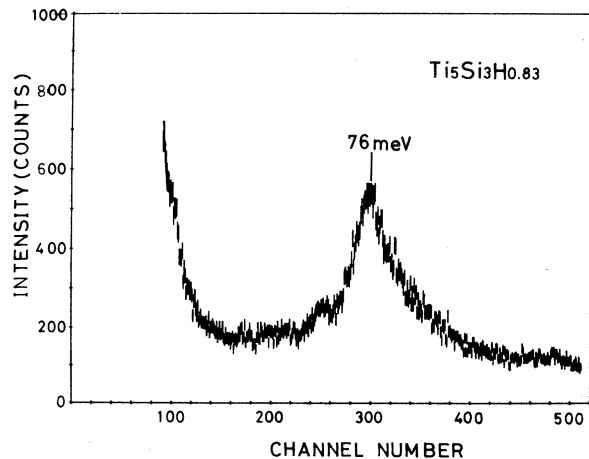
第 2 図 Mo K α 線 ($\lambda = 0.71073 \text{ \AA}$) による Ti_5Si_3 及び $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ 粉末の X 線回折強度分布。

はそれぞれ Ti_5Si_3 及び $Ti_5Si_3D_{0.9}$ の結果である。 $Ti_5Si_3D_{0.9}$ では 012, 030 のピークの強度に目立った変化が現われており, その他のピークの強度も多少変化している。これは $Ti_5Si_3D_{0.9}$ 結晶中の Ti 原子及び Si 原子が, Ti_5Si_3 結晶中における位置から多少変位していることを示している。しかしピークの位置に変化はなく, 金属原子の作る格子にはほとんど変化がないと考えられる。

3.2 中性子非弾性散乱

第 3 図に実験の結果得られた $Ti_5Si_3H_{0.83}$ の中性子非弾性散乱スペクトルを示す。水素の局在振動によるピークが 300 チャンネル付近に現われており, これは約 76 meV のエネルギー固有値に相当する。第 1 表に純 Ti 及び Ti 系合金水素化物における水素の局在振動のエネルギー固有値を示す。実験で得られた 76 meV という値は, 純 Ti 及び Ti 系合金水素化物において水素原子が *t-site* を占める時のエネルギー固有値より

かなり低く, *o-site* を占める時のエネルギー固有値に比較的近い。エネルギー固有値がこのように低い値を示すことから, 水素原子が Ti 原子あるいは Si 原子によって作られる比較的大きな空間, すなわち, *o-site* を占めることが示唆される。



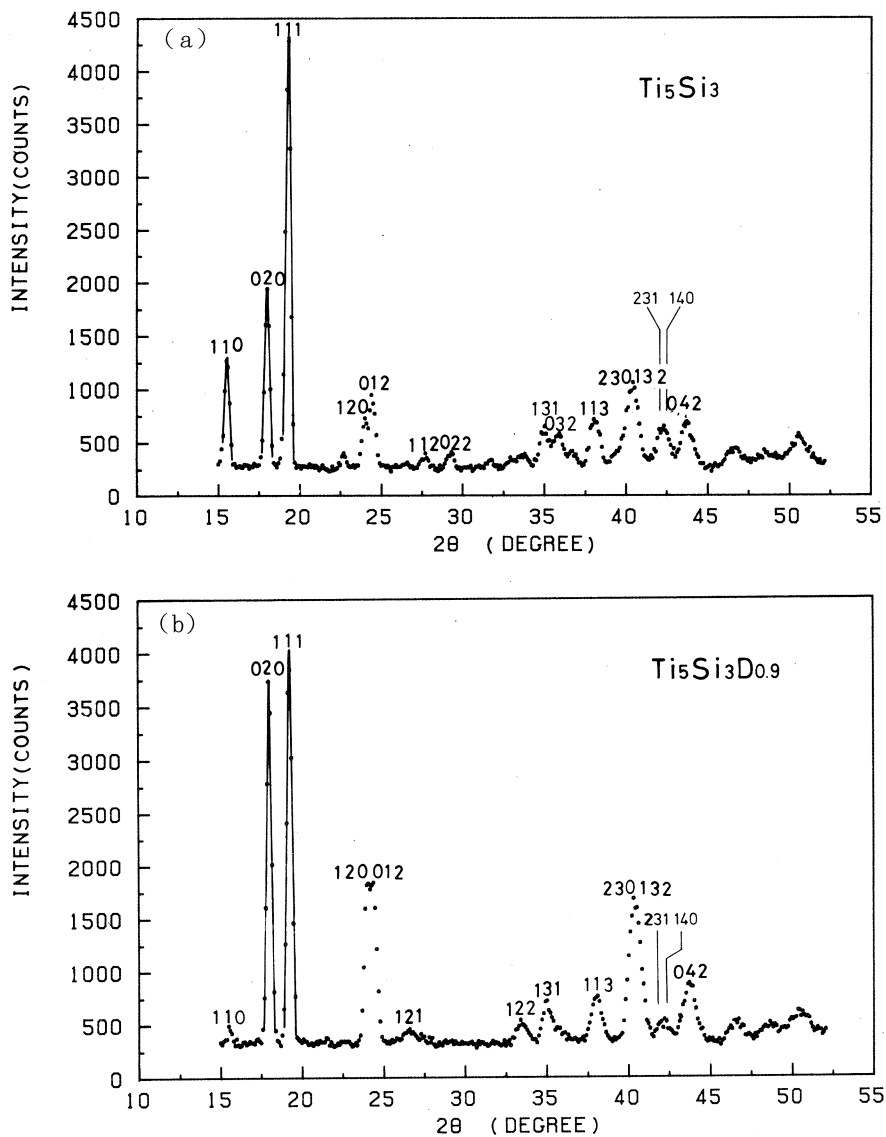
第 3 図 $Ti_5Si_3H_{0.83}$ に対して得られた中性子非弾性散乱の測定結果。横軸には時間軸がとられている。300 チャンネル付近のピークは, 約 76 meV のエネルギー固有値に相当する。

第 1 表 中性子非弾性散乱により測定された純 Ti 及び Ti 系合金水素化物における水素の局在振動のエネルギー固有値。

Specimen	Phase	Temperature (°C)	Hydrogen Position	Energy Eigenvalue (meV)	Reference
$TiH_{0.05}$	α	315	t	141	(3)
$TiH_{0.07}$	α	326	o	105.5	(2)
TiH_2	γ	Room Temp.	t	149	(8)
$TiO_{0.3}H_{0.1}$	α	20	o	86	(9)

3.3 定常炉における粉末中性子回折

第4図に定常炉における粉末中性子回折の結果を示す。(a)及び(b)はそれぞれ Ti_5Si_3 及び $Ti_5Si_3D_{0.9}$ の結果である。なおコリメーションは、第1コリメーター15′, 第2コリメーターopen, 第3コリメーター15′である。(a)及び(b)の結果は、ほぼ同量の試料を用い、1点の測定時間(90秒)も同じであることから、ほぼ同一の条件で測定されたと考えられる。そこで

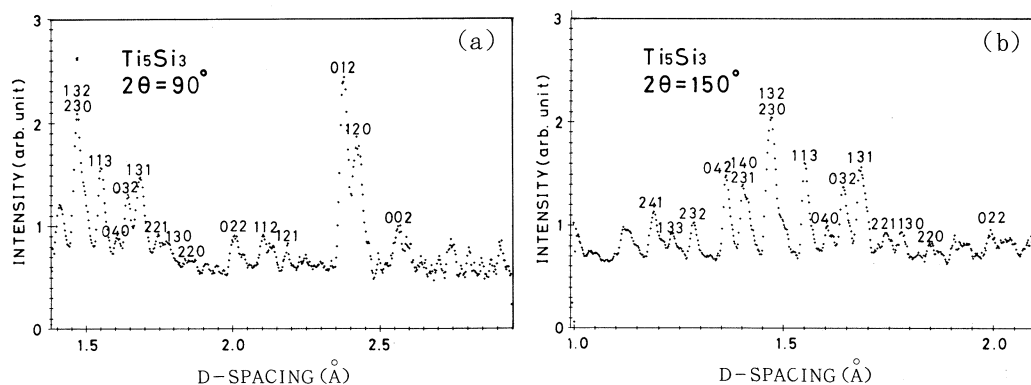


第4図 定常炉における粉末中性子回折強度分布。(a) Ti_5Si_3 , 及び(b) $Ti_5Si_3D_{0.9}$ の結果である。入射中性子の波長, λ , は1.019 Åである。

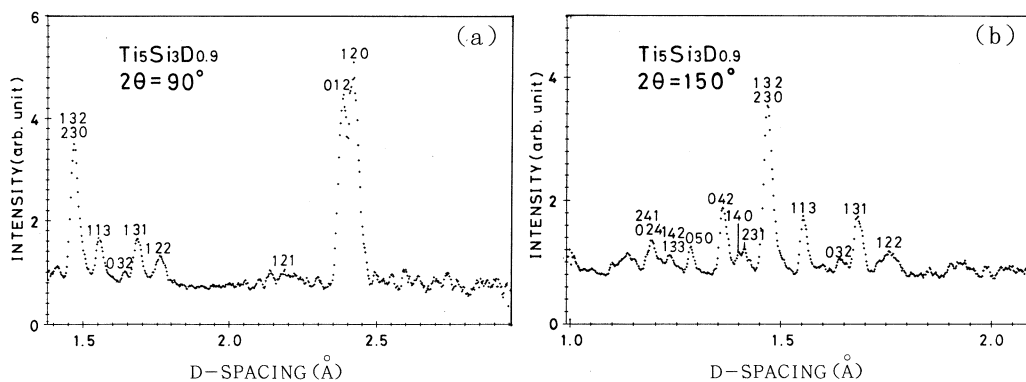
双方の結果を比較すると、110、020、120、012、022などのピークが目立った変化が現われている。たとえば110及び022ピークは、 Ti_5Si_3 においてそれぞれ約1300カウント及び約400カウントのピーク値を示しているが、 $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ においては双方ともほぼ消失している。逆に020、120、012の各ピークは、 $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ においては Ti_5Si_3 の2～3倍のピーク値を示している。一方111ピークのピーク値は双方の場合共ほぼ一定である。

3.4 多結晶用デバイ・シェラー型パルス中性子分光器による測定

第5図及び第6図に多結晶用デバイ・シェラー型パルス中性子分光器^{6),7)}による測定結果を示す。第5図及び第6図はそれぞれ Ti_5Si_3 及び $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ の回折強度分布であり、バナジウム



第5図 多結晶用デバイ・シェラー型パルス中性子分光器における Ti_5Si_3 の回折強度分布。(a) $2\theta = 90^\circ$ 、及び(b) $2\theta = 150^\circ$ の場合を示す。横軸は面間距離 d である。



第6図 多結晶用デバイ・シェラー型パルス中性子分光器における $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ の回折強度分布。(a) $2\theta = 90^\circ$ 、及び(b) $2\theta = 150^\circ$ の場合を示す。

ムの測定結果を使って規格化した。共に(a)が $2\theta = 90^\circ$ 、(b)が $2\theta = 150^\circ$ における結果である。

第4図(a)及び(b)に示した定常炉の測定結果では、210、012ピークの間隔は不完全であるが、第5図(a)及び第6図(a)の $2\theta = 90^\circ$ の結果では、双方のピークははっきり分離されている。また定常炉の結果では $2\theta = 45^\circ$ より高角度側のピーク($d \leq 1.33 \text{ \AA}$ のピーク)ははっきりしないが、第5図(b)及び第6図(b)に示した $2\theta = 150^\circ$ の結果では、それらに対応するピークは、よく分離されている。

§ 4. 結果の考察

中性子非弾性散乱の結果、 Ti_5Si_3 水素化物中の水素原子はo-siteを占めることが示唆された。 $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ においても金属格子の構造は変化しないと考えられることから、第1図の模型により水素のトラップサイトについて考える。 $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ 結晶中における(重)水素のトラップサイトとしては、図中にA、B、Cで

示した3つのo-siteが考えられる。A siteは特殊等価位置2(b) siteであり、6個のTi原子が配位している。B siteは特殊等価位置6(f) siteであり、4個のTi原子と2個のSi原子が配位している。またC siteは一般等価位置24(l) siteであり、4個のTi原子と2個のSi原子が配位している。このうちA siteは等価な6個のTi原子によって取り囲まれた典型的なo-siteである。この位置を水素原子が占めた場合のTi-H原子間距離は 2.141 \AA であり、 $\alpha\text{-TiH}_x$ 中で水素原子がo-siteを占める場合のTi-H原子間距離 2.067 \AA 、及び $\text{TiO}_{0.3}\text{H}_{0.1}$ 結晶中でo-siteを占める水素原子のTi-H原子間距離 2.093 \AA ⁹⁾に近い。B siteあるいは

第2表 $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ において、重水素原子がすべてA siteに存在すると仮定して計算された回折ピークの強度比。

*) Calculated Intensity Ratio

$$= \{I_{\text{calc}}(\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9})/I_{\text{calc}}(\text{Ti}_5\text{Si}_3)\}$$

***) Ti_5Si_3 における回折強度が非常に小さいため、このように大きな値になる。

hkl	d (\AA)	($\lambda = 1.019 \text{ \AA}$) 2θ (deg)	Calculated Intensity Ratio*
110	3.722	15.74	0.14
020	3.223	18.19	2.13
111	3.015	19.46	1.00
002	2.572	22.85	0.15
120	2.437	24.14	3.72
012	2.388	24.64	2.57
112	2.116	27.87	0.50
022	2.010	29.37	0.00
122	1.769	33.48	$5.20 \times 10^{3**}$
131	1.689	35.11	1.00
032	1.649	35.99	0.26
040	1.612	36.85	0.08
113	1.557	38.20	1.00
230	1.479	40.30	2.20
132	1.468	40.62	2.43
231	1.421	42.02	1.00
140	1.407	42.46	0.34
042	1.366	43.80	1.97
050	1.289	46.57	2.91
232	1.282	46.83	0.00
133	1.237	48.65	1.00
142	1.234	48.77	33.19
024	1.194	50.52	2.13
241	1.186	50.88	1.00

C site を水素原子が占める場合には Ti-H または Si-H 原子間距離が 1.5 Å 程度になり、これらの site を水素ないしは重水素原子が占める可能性は少ないと考えられる。

そこで重水素原子がすべて A site に存在すると仮定して、 Ti_5Si_3 と $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ の各回折ピークについて強度比を計算した。第 2 表にその結果を示す。強度比は Ti_5Si_3 のピーク強度に対する $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ の対応するピーク強度の比で示した。なお各回折ピークの強度を計算する際に結晶格子中での原子の座標が必要であるが、 Ti_5Si_3 結晶における Ti 原子及び Si 原子の座標についてはまだ報告されていない。そこで Ti_5Si_3 と同じ結晶構造をもつ Mn_5Si_3 について報告された⁵⁾ Mn 原子及び Si 原子の座標を用いた。第 2 表の計算結果は第 4 図、第 5 図及び第 6 図の測定結果によく一致しており、重水素原子が A site を占めるとする仮定はほぼ正しいと考えられる。すべての重水素原子が A site に存在する場合には、 $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ 結晶の A site の 90 % が重水素原子によって占められることになる。しかし一部の重水素が B site, C site, あるいはそれ以外の site を占める可能性もなお残されている。現在、原研及び核理研の両データについて Rietveld 法による解析を行っているところであり、その結果については追って報告したいと考えている。

§ 5. 結 論

クリスタルアナライザーを用いた中性子非弾性散乱により、 Ti_5Si_3 水素化物における水素の局在振動のエネルギー固有値を測定した。実験の結果、 Ti_5Si_3 水素化物においては、大部分の水素原子が o-site に存在することが示唆された。さらに、定常炉及びパルス中性子源を用いて粉末中性子回折を行い、大部分の重水素原子が 6 個の等価な Ti 原子が配位したサイト (A site) を占めることをほぼ確認した。

現在、粉末中性子回折の結果について Rietveld 法による構造解析を行い、 Ti_5Si_3 及び $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_{0.9}$ の結晶学的諸パラメーターを決定しつつある。また、 Ti_5Si_3 及び $\text{Ti}_5\text{Si}_3\text{D}_x$ ($X \cong 0.9$) の単結晶を作製し、中性子回折実験によってさらに精密な解析を行う予定である。

実験結果を考察するにあたり討論に加わって頂いた金属材料研究所、沼倉宏氏、ならびに原子力研究所での実験をお手伝い頂いた根本啓治技官及び高草木操氏に深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) M. Hansen : *Constitution of Binary Alloys* (McGraw - Hill, 1958) p.799.
- 2) R. Hempelmann, D. Richter and B. Strizker : J. Phys. F **12**(1982)79.
- 3) R. Khoda-Bakhsh and D. K. Ross : J. Phys. F **12**(1982)15.
- 4) 大角泰章 : 金属水素化物—その物性と応用 (化学工業社, 1983) p.159.
- 5) P. Pietrokowsky and P. Duwez : Trans. AIME **191**(1951)772.
- 6) 松本 実, 山田和芳, 小野寺重文, 貝沼亮介 : 核理研研究報告 **16**(1983)236.
- 7) 小野寺重文, 山田和芳 : 核理研研究報告 **17**(1983)71.
- 8) 渡辺 昇, 古坂道弘, 三沢正勝 : 核理研研究報告 **12**(1979)72.
- 9) 務川 進 : 修士学位論文 東北大学(1984)

T-O-F Pulsed Neutron Diffraction of GeO₂ - Na₂O Glasses

M. Ueno and K. Suzuki

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

§1. Introduction

High resolution observation of the short-range structure in GeO₂-0, 8, 16, 21, 29 and 40 mol% Na₂O glasses has been reported in a previous study¹⁾. In order to identify more precisely the change in the coordination of Ge atoms in GeO₂-Na₂O glasses, it is certainly necessary to measure the structure factor $S(Q)$ at the composition of 30-40 mol% Na₂O in the glasses. The aim of this study is to carry out the measurement of $S(Q)$ for GeO₂-35 mol% Na₂O glass, and to discuss the origin of the so-called germanate anomaly in GeO₂-Na₂O glasses based on a simple statistical mechanical calculation.

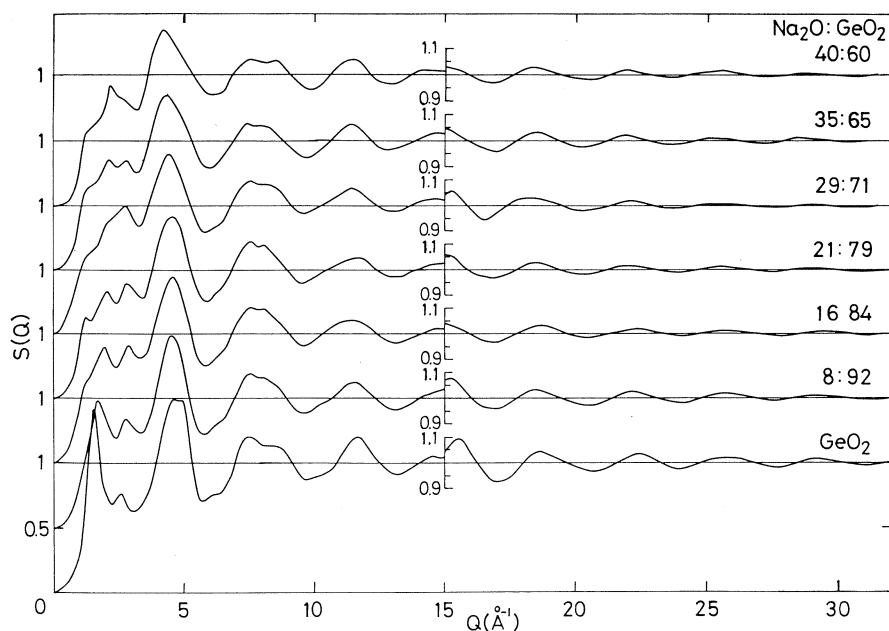


Fig. 1. Neutron total structure factors of GeO₂ and GeO₂-Na₂O glasses.

§ 2. Experimental

Sample preparation and the measurement of $S(Q)$ for GeO_2 -35 mol% Na_2O glass are the same as described in the previous paper¹⁾.

§ 3. Results

The experimental $S(Q)$'s of GeO_2 and GeO_2 - Na_2O glasses including GeO_2 -35 mol% Na_2O glass obtained in this study are shown in Fig. 1. Fig. 2 shows the RDF's (Radial Distribution Function) of GeO_2 and GeO_2 - Na_2O glasses obtained as the Fourier transform of $S(Q)$ truncated at $Q_{\text{max}} = 30 \text{ \AA}^{-1}$

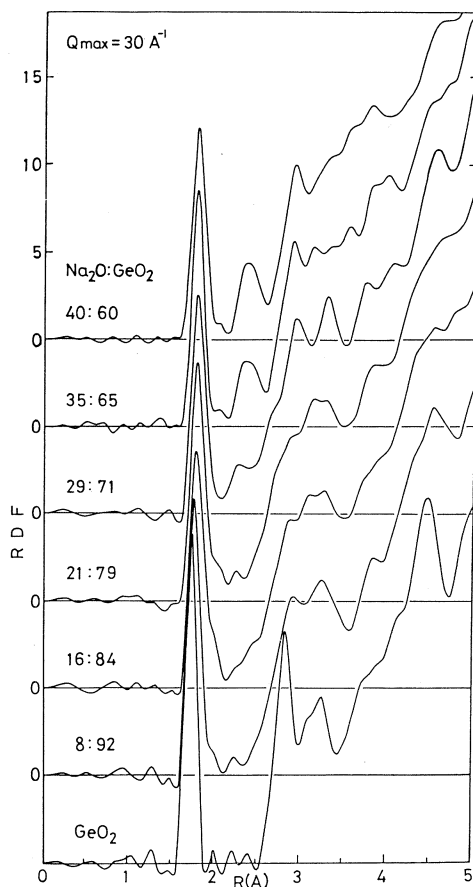


Fig. 2. Radial distribution functions of GeO_2 and GeO_2 - Na_2O glasses where the $S(Q) \rightarrow \text{RDF}$ Fourier transformation is truncated at a high Q value of 30 \AA^{-1} .

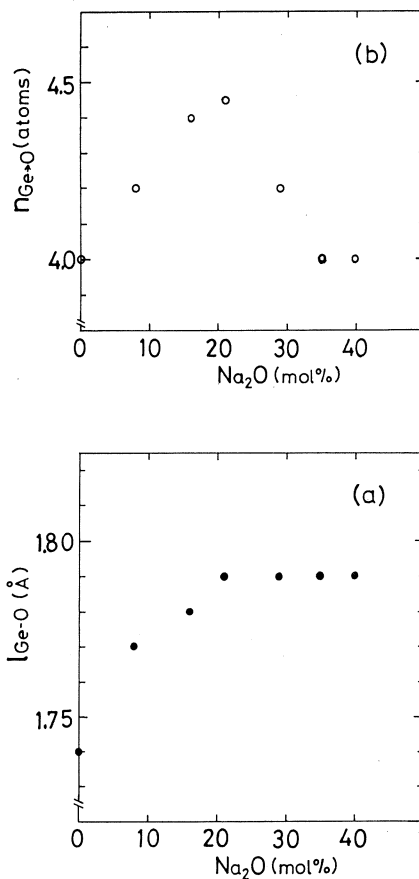


Fig. 3. (a) Average Ge-O bond length, (b) average coordination number of O atoms around a Ge atom as a function of Na_2O -content in GeO_2 - Na_2O glasses.

The average Ge-O bond length ($l_{\text{Ge-O}}$) and the average number of O atoms surrounding a Ge atom ($n_{\text{Ge-O}}$) in GeO_2 - Na_2O glasses calculated from the first peak profiles¹⁾ are shown as a function of Na_2O -content in Figs. 3a and b. The values observed for GeO_2 -35 mol% Na_2O glass in this study are $l_{\text{Ge-O}}=1.79\text{\AA}$ and $n_{\text{Ge-O}}=4.0$ atoms, respectively.

§ 4. Discussion

The fraction of GeO_6 -octahedral structure unit (N_6) can be calculated as a function of Na_2O -content from the experimental values of $n_{\text{Ge-O}}$ shown in Fig. 3b. The result is shown by solid circles in Fig. 4. A broken line in Fig. 4 represents a simple relation of

$$N_6 = x / (1 - x) \quad (1)$$

where x and $1 - x$ are the mole fractions of Na_2O and GeO_2 in $x\text{Na}_2\text{O}-(1-x)$

GeO_2 glass. A dot-dashed line in Fig.

4 represents

$$N_6 = 1 / 2 - x / (1 - x) \quad (2)$$

The experimental results are reproduced by

eq. (1) up to the composition of 20 mol%

Na_2O and by eq. (2) beyond the composition

of 20 mol% Na_2O in the glasses.

This implies that each unit of Na_2O added to GeO_2 glass converts one GeO_4 -tetrahedral structure unit into one GeO_6 -octahedral structure unit without forming non-bridging oxygen atoms up to the composition of 20 mol% Na_2O , beyond which each unit of Na_2O added further to the glass converts one GeO_6 -octahedral structure unit into one GeO_4 -tetrahedral structure unit with forming non-bridging oxygen atoms up to composition of 33 mol% Na_2O .

If the ionic charges on Na^+ , non-bridging oxygen atom and GeO_6 -octahedral

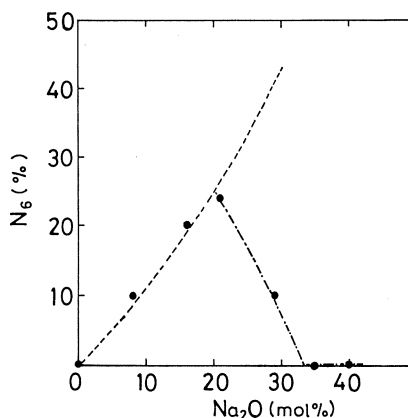


Fig. 4. Fraction of GeO_6 -octahedral structure units as a function of Na_2O -content. Dashed line shows a calculation whereby one molecule of Na_2O added converts one GeO_2 -tetrahedral into one GeO_6 -octahedral structure unit. Dot-dashed line shows a calculation whereby one molecule of Na_2O added converts one GeO_6 -octahedral into one GeO_4 -tetrahedral structure unit.

structure unit are exactly $+1$, -1 and -2 , respectively, and non-bridging oxygen atoms do not occur in the GeO_6 -octahedral structure unit, the fraction of non-bridging oxygen atoms (N_1) in $x\text{Na}_2\text{O}-(1-x)\text{GeO}_2$ glass is calculated from the electrical neutrality condition as follows :

$$2x = [x + 2(1-x)]N_1 + 2(1-x)N_6, \quad (3)$$

where $N_1 + N_0 = 1$, $N_4 + N_6 = 1$, and N_0 and N_4 are the fractions of bridging oxygen atoms and GeO_4 -tetrahedral structure units in $x\text{Na}_2\text{O}-(1-x)\text{GeO}_2$ glass.

In the composition range of $0 \leq x \leq 1/3$, the fraction of N_4 can be divided into two parts :

$$N_4 = G_3 + G_4, \quad (4)$$

where G_3 means the fraction of GeO_4 -tetrahedral structure unit with one non-bridging and three bridging oxygen atoms (G_0^3 unit) and G_4 the fraction of GeO_4 -tetrahedral structure unit consisting of four bridging oxygen atoms (G_0^4 unit). Then, the electrical neutrality condition is given by

$$2x = (G_3 + 2G_4)(1-x). \quad (5)$$

Eqs. (2), (4) and (5) can be solved for G_3 and G_4 , yielding

$$G_3 = 4x / (1-x) \text{ and}$$

$$G_4 = 3/2 - 3x / (1-x). \quad (6)$$

Fig. 5 shows the values of G_3 , G_4 and N_6 thus calculated as a function of the mol% ratio of $\text{Na}_2\text{O}/\text{GeO}_2$.

A statistical mechanical model on the boron coordination in alkali borate glasses has been proposed by Araujo²⁾. In this study, a primitive calculation by using the partition function for the canonical ensemble is carried out to determine the fraction of GeO_6 -octahedral structure units in the composition range of $0 \leq x \leq 1/3$ in $x\text{Na}_2\text{O}-(1-x)\text{GeO}_2$ glass.

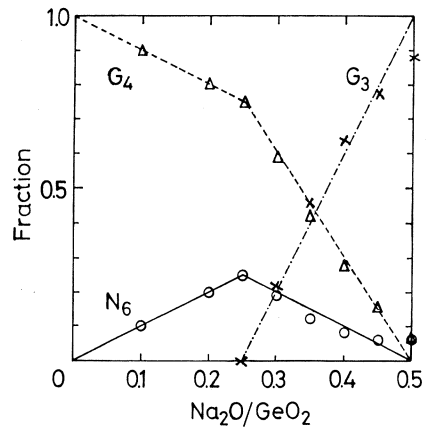


Fig. 5. Fraction of G_3 , G_4 and N_6 as a function of the mol% ratio $\text{Na}_2\text{O}/\text{GeO}_2$. Statistical mechanical calculations of the fractions are shown by $G_3(\times)$, $G_4(\Delta)$ and $N_6(\circ)$, respectively.

In order to obtain the partition function it is assumed that :

- (a) The energy of the system is proportional to the number of non-bridging oxygen atoms.
- (b) GeO_6 -octahedral structure units can not be bound to each other, and non-bridging oxygen atoms do not occur in GeO_6 -octahedral structure units.
- (c) G_0^3 units can not be bound to more than two GeO_6 -octahedral structure units.
- (d) G_0^4 units can not be bound to more than three GeO_6 -octahedral structure units.
- (e) Neither two G_0^3 units and two GeO_6 -octahedral structure units nor three G_0^3 units and one GeO_6 -octahedral unit can be bound to the same G_0^4 unit.

Now the partition function for the canonical ensemble (Z) is given by

$$Z = \sum_{[x]} W([x]) \exp - \frac{[x] \epsilon_3}{K_B T} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \text{where } W([x]) = & [x] \{(1-x)^3 - [z]^3 - 3([x] + [y])[z]^2\} \\ & + [y] \{(1-x)^4 - [z]^4 - 4([x] + [y])[z]^3 - 6[x]^2[z]^2 - 4[x]^3[z]\} \\ & + [z] \{(1-x) - [z]\}^6 \quad \text{and} \end{aligned} \quad (8)$$

$$[x] + [y] + [z] = 1 - x \quad (9)$$

$[x]$, $[y]$ and $[z]$ refer to the concentrations of G_0^3 units, G_0^4 units and GeO_6 -octahedral structure units, respectively as follows :

$$G_3 = \frac{[x]}{[x] + [y] + [z]}, \quad G_4 = \frac{[y]}{[x] + [y] + [z]} \quad \text{and} \quad N_6 = \frac{[z]}{[x] + [y] + [z]} \quad (10)$$

ϵ_3 is the energy of non-bridging oxygen atoms. $W([x])$ is the number of states corresponding to the energy $\epsilon_3 \times [x]$. K_B is Boltzmann's constant and T is the temperature.

The expectation value of the fraction of GeO_6 -octahedral structure units is taken to be the fraction which gives the largest term in the partition function. The calculated fractions of GeO_6 -octahedral structure units are shown by open circles (o) in Fig. 5. The value of the energy of non-bridging oxygen atom is $\epsilon_3 = 0.051$ eV at $T=300$ K in GeO_2 - Na_2O glasses and smaller than that of 0.086 eV in alkali borate glasses reported by Arauji². The statistical model on the

GeO₆-octahedral structure unit \rightleftharpoons GeO₄-tetrahedral structure unit transformation in GeO₂-Na₂O glasses can well describe the experimental results observed by the T-O-F pulsed neutron total scattering.

Acknowledgements

The authors would like to thank the member of Nuclear Science Laboratory for the kind operation of the LINAC and the computer system for data acquisitions.

References

- 1) M. Ueno, M. Misawa and K. Suzuki : Physica **120 B** (1983) 347.
- 2) R. J. Araujo: J. Non-Cryst. Solids **42** (1980) 209. *ibid.* **46**(1981) 217.

Ⅲ. 放 射 化 学

自己遮蔽効果が無視できる試料系における 安定同位体希釈放射化分析法とその応用

—環境試料中の Ca, Rb, Sr および Ce の
光量子放射化による同時定量—

核理研 八木益男・榎本和義

A method of stable-isotope dilution activation analysis for special samples, in which the self-shielding effect is negligible, has been developed. The method is applicable only when an element to be determined in a sample consists of at least two stable isotopes which are easily converted to radionuclides through particular nuclear reactions. In this method, the sample is previously processed by adding a known quantity (y g) of an enriched isotope in the element, while the comparative reference is prepared by taking an arbitrary amount of the natural element under investigation. When the sample and comparative reference are irradiated by particles with the same energy distribution, the element to be analyzed (x g) in the sample can be easily determined by using the following equation.

$$x = y(M/M^*)(\theta_2^*/\theta_2)[(R^*/R) - (\theta_1^*/\theta_1)(\theta_2^*/\theta_2)]/[1 - (R^*/R)]$$

where M and M^* are atomic weights of the element to be analyzed and the enrichment used, θ_1 and θ_2 are natural abundances of two stable isotopes in the element, θ_1^* and θ_2^* are isotopic compositions of the above isotopes in the enrichment used, and R and R^* are counting ratios of gamma-rays emitted by two radionuclides produced in the sample and comparative reference. Usefulness of the method was verified by photon activation analyses of Ca, Rb, Sr and Ce in standard reference materials of coal fly ash, estuarine sediment and lake sediment using isotopically enriched ^{48}Ca , ^{87}Rb , ^{86}Sr and ^{142}Ce as spikes, and the accuracy and precision of the method were proved to be valid.

§ 1. はじめに

以前提案した標準法としての安定同位体希釈放射化分析法¹⁾は、定量目的元素のある濃縮同位体の一定量をあらかじめ試料に加え、その元素の同位体存在比を天然のそれらとは変化させた上で放射化し、定量目的元素の二つの同位体から生成した放射性同位体の生成比が、濃縮同位体を加えない天然の場合に較べてどの程度変化するかを測定し、目的元素を定量する方法である。この新しい放射化分析法における比較標準は、複製試料自身に濃縮同位体の一定量をスパイクして調製するから、定量目的元素の同位体の一つが内部標準として利用されることになり、結果としてこの方法によると、試料および比較標準間の照射線量、自己遮蔽あるいはマトリックス効果等の補正は不必要となる。さらにまた、照射前後のいつれかにおいて目的元素の化学分離の必要が生じて、その化学収率の測定は一切不要となる。したがって、この方法は熱中性子、速中性子、荷電粒子ばかりでなく光量子放射化等広範な放射化分析に適用でき、広く応用されることによってその特色は一層発揮されることになる。そこで筆者らは、先に荷電粒子^{2,3)} および光量子放射化分析²⁾ に応用してその有用性の実証を試み、それぞれにおいて極めて精度の高い元素分析が達成されることを確めた。

しかしながら、光量子放射化による場合は、上記自己遮蔽あるいはマトリックス効果は本来無視できると考えられるから、このような場合には、全く別の観点に立った新たな定量式が導入できるものと期待される。そこで本研究においては、自己遮蔽あるいはマトリックス効果が全く無視できる試料系における安定同位体希釈放射化分析法を基礎的に検討して、その新しい定量式の導入を試み、えられた式を環境試料中の Ca, Rb, Sr および Ce の光量子放射化分析による定量に実際に適用し、この方法もまた実試料分析に極めて有用であることを実証することにした。

§ 2. 方法の原理

定量目的元素の原子量は M で、これは核反応を通して容易に放射性同位体に変換する少なくとも二つの同位体 M_1 (存在度: θ_1) および M_2 (同: θ_2) で構成されているものと仮定する。この元素 xg を含む試料に原子量が M^* で、 M_1 同位体構成比 θ_1^* および M_2 同位体構成比 θ_2^* の M_2 濃縮同位体の少量 yg をスパイクし放射化すると、上記両同位体から生成する放射性同位体の放射能比、 $R^* = a_1^*/a_2^*$ 、は次の式で与えられる。

$$R^* = \frac{a_1^*}{a_2^*} = \frac{[(x\theta_1 A/M) + (y\theta_1^* A/M^*)] F^* \sigma_1 (1 - e^{-\lambda_1 t})}{[(x\theta_2 A/M) + (y\theta_2^* A/M^*)] F^* \sigma_2 (1 - e^{-\lambda_2 t})} \quad (1)$$

ここに A はアボガドロ数, F^* は照射粒子線束で $\int_0^{E_{\max}} \phi(E) dE$ で与えられ $\phi(E)$ は E, dE 間の粒子数, σ_1 および σ_2 は M_1 および M_2 にかかわる核反応断面積で, それぞれ $\int_0^{E_{\max}} \sigma(E) \phi(E) dE / F$ で与えられ $\sigma(E)$ は粒子エネルギーの関数, λ_1 および λ_2 は a_1 および a_2 放射能の壊変定数, t は照射時間である。

一方, 定量目的元素を含む試薬の任意量が採取され, それには同元素の zg が含まれており, 上と同じエネルギースペクトルを持った粒子線束 F で照射されたとすると, 生成する二つの放射性同位体の放射能比, $R = a_1/a_2$, は上と同様次のように示される。

$$R = \frac{a_1}{a_2} = \frac{(z\theta_1 A/M) F \sigma_1 (1 - e^{-\lambda_1 t})}{(z\theta_2 A/M) F \sigma_2 (1 - e^{-\lambda_2 t})} \quad (2)$$

ここで(1)式を(2)式で除すと, 放射化に重要なアボガドロ数, 原子量, 粒子線束, 核反応断面積および飽和係数等の項はすべて消去され, 次のような簡単な式をうることができる。

$$\frac{R^*}{R} = \left(\frac{\theta_2}{\theta_1} \right) \frac{[(x\theta_1/M) + (y\theta_1^*/M^*)]}{[(x\theta_2/M) + (y\theta_2^*/M^*)]} \quad (3)$$

さらに(3)式を x に関する式に書きかえると次の式がえられる。

$$x = \frac{y(M/M^*)(\theta_2^*/\theta_2)[(R^*/R) - (\theta_1^*/\theta_1)(\theta_2/\theta_2^*)]}{1 - (R^*/R)} \quad (4)$$

(4)式は少し変型して示したが, これは以前提案した標準法¹⁾における式と実は同じである。それ故, 自己遮蔽あるいはマトリックス効果を考慮した系, および無視した系では全く同じ式が適用できることになる。しかし, 両系における試料および比較標準の調製法はそれぞれ異なるので, (4)式は自己遮蔽あるいはマトリックス効果が無視できる試料系のために, 新たに導入された式であるといえよう。(4)式は $x > 0$, $y > 0$ および $1 > (R^*/R) > (\theta_1^*\theta_2/\theta_1\theta_2^*)$ で成立する。この式では R^*/R 比が測定によって求められるならば, 他は既知数故 x は簡易に求められることを示す。(4)式のように一般式で示すとかなり複雑な式に見えるが, 既知数を代入すればずっと簡単な式となる。

いま, 例としてガリウムをこの定量式を用いて定量する場合を考えてみよう。天然のガリウムは ^{69}Ga (存在度: 60.1%) および ^{71}Ga (同: 39.9%) の二つの同位体で構成されているが, ここでは M_2 として種々の濃縮度の ^{71}Ga を用いた場合を想定することにする。それぞれの場合を(4)式に代入し, x/y と R^*/R 比の関係をみてみると第1図のような関係がえられる。低濃縮度の ^{71}Ga を用いた場合は式の成立する範囲は極めて狭く片寄っているが, 高濃縮度 ^{71}Ga を用いればそれは拡張, 改善され, R^*/R 比がほぼ 0.5 になるように y を添加してやる

と、ガリウムの定量は誤差が小さく測定できることがわかる。このことから(4)式による場合は、一般的にいて可能な限り高濃縮 M_2 同位体を用いるべきであるといえよう。

一方、(4)式の導入にあたっては、天然組成の定量目的元素の任意量を比較標準として用いたが、これはスパイクとして用いた M_2 濃縮同位体の任意量を採取しても代用できる筈である。いま、 M_2 濃縮同位体の任意採取量 w g を先のスパイク試料と同じエネルギースペクトルを持った粒子線束 F' で t 時間照射したと仮定すると、この比較標準中に生成する二つの放射性同位体の放射能比、 $R' = a_1' / a_2'$ は次の式で与えられる。

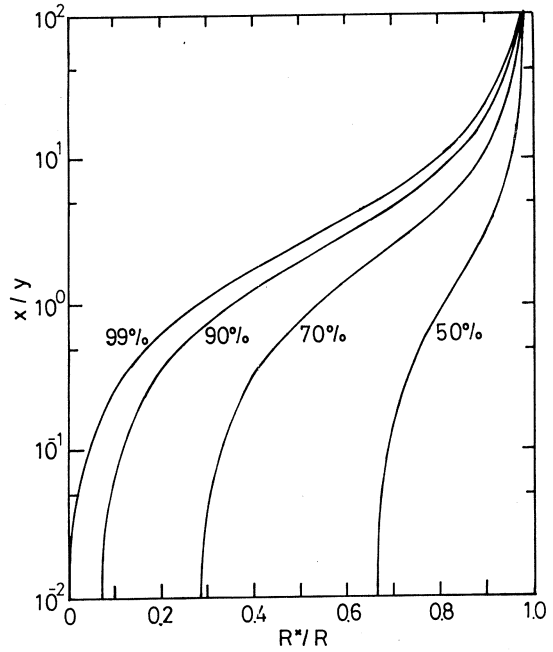
$$R' = \frac{a_1'}{a_2'} = \frac{(w\theta_1^*A/M^*)F'\sigma_1(1-e^{-\lambda_1 t})}{(w\theta_2^*A/M^*)F'\sigma_2(1-e^{-\lambda_2 t})} \tag{5}$$

先程と同様、(1)式を(5)式で除すと放射化に重要な諸項はすべて消去されて、結果として x に関する次のような式をうることができる。

$$x = \frac{y(M/M^*)(\theta_2^*/\theta_2)[1-(R^*/R')]}{[(R^*/R') - (\theta_1/\theta_1^*)(\theta_2^*/\theta_2)]} \tag{6}$$

この(6)式は $x > 0$ 、 $y > 0$ および $(\theta_1\theta_2^*/\theta_1^*\theta_2) > (R^*/R') > 1$ で成立する。この式でも R^*/R' 比が測定によって求められるならば、他は既知数故 x は容易に求められる。

いま、例として先程と同様ガリウムをこの定量式を用いて定量する場合を考えてみる。 M_2 として種々の濃縮度の ^{71}Ga を用い、それぞれを(6)式に代入して x/y と R^*/R' 比の関係をみてみると、第2図のような関係がえられる。この場合は、 R^*/R' 比が1より大であるため横軸もまた対数でとってある。高濃縮度の ^{71}Ga を用いれば式の成立する範囲は拡大するが、定量値の誤差をできるだけ小さくするためには、 R^*/R' 比が1に近いことが要求される。それ故、



第1図 The relationships between x/y and R^*/R ratios in the cases of various enriched ^{71}Ga .

この比較標準を用いる場合には(4)式の場合とは逆に、一般的に低濃縮 M_2 同位体が用いられるべきであると結論されよう。

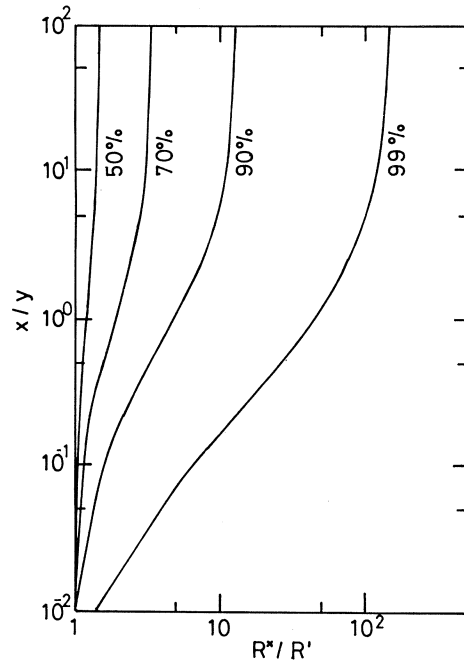
(4)式および(6)式による定量法は原理的に同一試料中の多元素同時定量にも利用でき、目的元素の化学分離を必要としない時、それはより効果的におこなうことができる。

試料および比較標準の調製およびそれらの放射能測定にかかわる諸注意は、他で既に述べた^{1,4,5)} 事項と重複するのでここでは省略する。

§ 3. 実 験

3.1 試料および試薬

分析試料には NBS SRM 1633a Coal fly ash, SRM 1646 Estuarine sediment



第2図 The relationships between x/y and R^*/R' ratios in the cases of various enriched ^{71}Ga .

第1表 Isotopic compositions of enriched ^{48}Ca , ^{87}Rb , ^{86}Sr and ^{142}Ce , and the natural abundances of the respective elements.

Isotope	Enriched isotope Composition*, %	Element Abundance, %	Isotope	Enriched isotope Composition*, %	Element Abundance, %
^{40}Ca	20.9	96.94	^{84}Sr	0.05	0.56
^{42}Ca	0.15	0.647	^{86}Sr	96.89	9.8
^{43}Ca	0.03	0.135	^{87}Sr	0.99	7.0
^{44}Ca	0.49	2.09	^{88}Sr	2.13	82.6
^{46}Ca	0.02	0.0035	A.W.	86.390	87.62
^{48}Ca	78.4	0.187	^{136}Ce	0.03	0.190
A.W.	46.247	40.08	^{138}Ce	0.04	0.254
^{85}Rb	2.00	72.17	^{140}Ce	16.83	88.5
^{87}Rb	98.00	27.83	^{142}Ce	83.10	11.1
A.W.	86.869	85.47	A.W.	141.928	140.12

* : As reported by ORNL.

およびIAEA SL-1 Lake sedimentを選び、これらの中のCa, Rb, Sr およびCeを濃縮同位体 ^{48}Ca , ^{87}Rb , ^{86}Sr , ^{142}Ce をスパイクとして用いた光量子放射化で定量することを試みた。用いた濃縮同位体 ^{48}Ca , ^{87}Rb , ^{86}Sr および ^{142}Ce はすべてOak Ridge National Laboratoryから入手し、それぞれの同位体構成比、原子量は天然元素のそれらと共に第1表に示した。これらはすべてそれぞれ既知濃度酸溶液として保存し使用した。一方、比較標準作成用の天然同位体組成のCa, Rb, Sr およびCeの標準溶液は、それぞれの試薬の一定量を同様酸溶液として調製し使用した。その他試薬はすべて最純品を用いた。

3.2 照射用試料および比較標準の調製

試料にスパイクする濃縮同位体は均一に分布させる必要があるので、各試料は 105°C で2時間乾燥後その約1gを精秤し、4N硝酸2ml、各濃縮同位体溶液の一定量およびテトラエチルシリケート2mlと混合攪拌し、シリカゲル中にドープさせることにした。えられたシリカゲルは電子レンジを用いて徐々に脱水乾燥させたのち、さらに電気炉で1時間 400°C に加熱し粉末化した。照射試料はその粉末約250mgをとり、直径10mmのペレットに加圧成型したのち高純度アルミニウム箔でつつみ、各試料当たり3ケずつ調製した。

比較標準は分析目的元素の保存溶液の任意量を採取し、それに4N硝酸とテトラエチルシリケートの同量ずつを加えて上と同様に処理し、ペレットに調製した。

3.3 制動輻射照射および放射能測定

本法による場合は試料および比較標準は同時に照射される必要はないので、それぞれのペレットは1ケずつ石英管に封入し、わざと別々に照射された。ただし、同じエネルギースペクトルを持つ制動輻射で照射することが条件づけられているので、加速エネルギー30MeV、平均電流 $150\mu\text{A}$ の電子線を2mmの白金板で制動輻射に転換し、同コンバーターの後方10cmの位置⁴⁾で3時間ずつ照射することにした。

放射能測定はGe(Li)検出器を4kPHAに接続し、マイクロ・ロボットにより作動させる自動測定装置⁶⁾を用いておこなった。ストロンチウムの定量にかかわる測定は照射後1時間、カルシウムのそれは1日、またルビジウムおよびセリウムのそれらは1週間たってから、測定器の不感時間が10%以下となるような位置でおこなった。

§ 4. 結果と考察

4.1 定量に利用する核反応

天然組成のCaは6ケ、Rbは2ケ、Sr およびCeはそれぞれ4ケの安定同位体で構成され

第2表 Photonuclear reactions used and their nuclear characteristics.

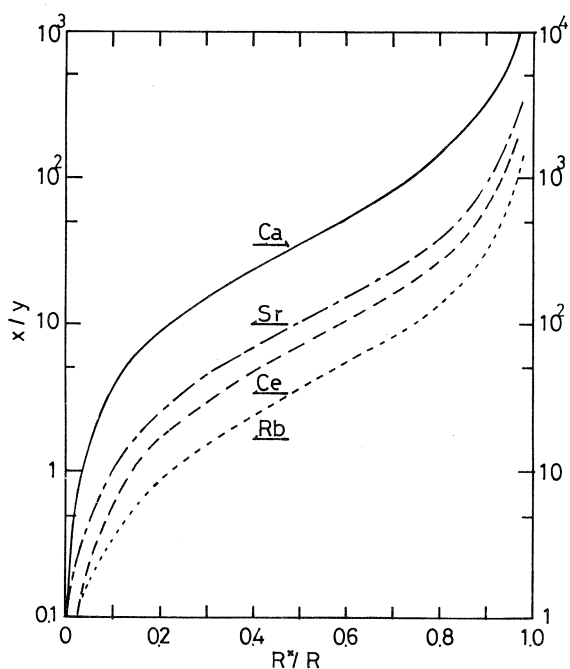
Target nuclide	Reaction	Product	Half-life	Decay mode	Principal γ -ray (keV)
^{44}Ca	(γ , p)	^{43}K	22.3 h	β^-	373, 618
^{48}Ca	(γ , n)	^{47}Ca	4.56 d	β^-	1297
^{85}Rb	(γ , n)	^{84}Rb	32.8 d	EC+ β^+ (β^-)	881
^{87}Rb	(γ , n)	^{86}Rb	18.8 d	β^-	1076
^{86}Sr	(γ , n)	$^{85\text{m}}\text{Sr}$	68 m	IT(EC)	151, 232
^{88}Sr	(γ , n)	$^{87\text{m}}\text{Sr}$	2.80 h	IT	388
^{140}Ce	(γ , n)	^{139}Ce	137.2 d	EC	166
^{142}Ce	(γ , n)	^{141}Ce	32.5 d	β^-	145

ているから、これらにかかわる光核反応は必然的に複雑となる。それらの中で目的元素を定量するために用いた光核反応と生成核の核的特性は第2表に示した。これら光核反応は生成後の半減期、生成収率あるいは検出しやすいガンマ線の放出率等を根拠にして選ばれた。また各放射能比、すなわち R および R^* の測定は、計数効率、分岐比等の点から、下線をほどこしたガンマ線光電ピーク面積比を測定することによっておこなうことにした。

4.2 各濃縮同位体の最適添加量

分析試料にスパイクすべき濃縮同位体の最適添加量は、§2で述べたように(4)式に既知数を代入し、 x/y と R^*/R

比の関係を各々について求めることによって知ることができる。本定量目的元素におけるそれらの関係は第3図のように示される。これから R^*/R 比が1に近い場合は存在量 x に対してス



第3図 The relationships between x/y and R^*/R ratios in the cases of isotopically enriched ^{48}Ca , ^{87}Rb , ^{86}Sr and ^{142}Ce .

第3表 Amounts of isotopically enriched ^{48}Ca , ^{87}Rb , ^{86}Sr and ^{142}Ce spiked for each sample.

Sample	Amount of enriched isotope (μg)			
	^{48}Ca	^{87}Rb	^{86}Sr	^{142}Ce
Coal fly ash	34.15	43.16	79.23	31.54
Estuarine sediment	26.28	38.39	17.29	14.46
Lake sediment	7.17	42.30	8.90	18.15

スパイク量 y が少な過ぎることが、 R^*/R 比が0に近い場合は逆にスパイク量 y が過剰であることがわかる。また、定量値の誤差を小さくするためのスパイク最適添加量は、これら曲線の勾配によっても左右され、 R^*/R 比が0.3~0.7の範囲で定量誤差が最小となることが、それら勾配からわかる。したがって、各試料には第3表のような量の各濃縮同位体がスパイクされた。

4.3 ブランク・テスト

本方法では試料と濃縮同位体、あるいは比較標準は、それぞれシリカゲル中にドーブされ、ペレットに成型されたが、これらの化学操作の過程で定量目的元素が汚染混入する恐れがあると、各定量値は大きな誤差を伴う危険にさらされよう。そこで全化学操作のブランク・テストをおこない、最終生成物であるシリカゲル中に定量目的元素による何等かの汚染が生じなかったかを、30 MeV 制動輻射照射による放射化で検討した。結果として Ca, Rb, Sr および Ce の汚染は全く生じなかったことが確かめられた。

4.4 Ca, Rb, Sr および Ce の定量

各試料中の Ca, Rb, Sr および Ce の定量は3回ずつおこない、えられた結果はそれらの公定値 (certified value) あるいは参考値 (information value) とともに第4表に示した。試料および比較標準は、わざと別々に照射されたにもかかわらずいづれも再現性は良く、照射粒子線束には依存しないという本法の特色を遺憾なく発揮した。また各元素の定量値の平均は lake sediment 中の Ca, coal fly ash および estuarine sediment 中の Sr の定量的場合を除き、他はすべて公定値あるいは参考値と極めて良い一致を示し、本法もまた十分光量子放射化分析に利用できることが裏付けられた。

Lake sediment 中の Ca については、まだ公定値が報告されておらず、ただ一例の参考値が報告されているに過ぎない。しかも、えられた定量値はその参考値と殆んど一致しないという結果がえられている。そこで通常の方法による光量子放射化分析 (PAA) でその定量を試み

第4表 Determination of Ca, Rb, Sr and Ce in coal fly ash, estuarine sediment and lake sediment.

Sample	Concentration of element (ppm)			
	Ca	Rb	Sr	Ce
Coal fly ash	11340	132.3	758.0	172.2
	11270	130.8	770.2	172.8
	11470	138.4	785.7	170.0
Average	11360±100	133.8±4.0	771.3±13.9	171.7±1.5
Certified value	11100±100	131 ±2	830 ±30	180 (I.V.)
Estuarine sediment	8497	88.8	156.2	77.0
	8344	86.5	161.3	74.0
	8489	87.4	161.1	83.5
Average	8443±86	87.6±1.2	159.5±2.9	78.2±4.9
Certified value	8300±300	87 (I.V.)	149 (P A A)	80 (I.V.)
Lake sediment	3281	100.6	80.3	109.5
	3295	101.6	83.8	110.7
	3341	101.5	89.2	113.1
Average	3306±31	101.2±0.6	84.4±4.5	111.1±1.8
Certified value	2500 (I.V.) 3300 (P A A)	113 ±11	80 (I.V.)	117 ±17

たところ、先の定量値と一致する値がえられ、これはむしろ参考値の方に問題があることが確かめられた。

一方、estuarine sediment 中の Sr については、まだ公定値も参考値も報告されていないので、通常の方法による光量子放射化分析でえられた値を参考値とすることにした。しかしながら、coal fly ash および estuarine sediment 両試料中の Sr の定量値に関しては、公定値あるいは参考値との一致は不十分であったという結果がえられた。ストロンチウムの定量は表 2 に示した核反応を用いておこなったが、生成核の 1 つ ^{87m}Sr は $^{87}\text{Sr}(\gamma, \gamma')^{87m}\text{Sr}$ 反応によっても生成され、この反応が妨害となる可能性も考えられる。しかし、この反応による寄与は前報²⁾で詳細に述べたように殆んど無視することができるから、先の不一致の原因は他に求められなければならないであろう。この Sr の定量に利用した二つの核反応生成物の半減期は、他に比較して極めて短いため照射 1 時間後からそれらの測定が開始されたが、このような初期の段階における試料と比較標準のガンマ線スペクトルでは、それらのコンプトン・バックグラ

ンドにおいて明らかな相違が観測された。比較標準は本来定量目的元素の任意量による合成試料故、そのコンプトン・バックグラウンドはかなり低く、ガンマ線光電ピーク面積の解析でもさした問題は生じなかったが、試料におけるそれはかなり高く、しかもコンプトン端の重複もあってガンマ線光電ピーク面積の解析には、かなりの誤差を伴うことを余儀なくされたという事実があった。この事がえられた定量値と公定値あるいは参考値との不一致の主な原因となったと考えられる。この事実は本方法による元素定量における重要な注意事項の一端を示唆するものと受け取られ、今後より一層この面での検討が必要とされる。

参 考 文 献

- 1) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Chem. **79** (1983) 57.
- 2) 八木, 榎本 : 核理研研究報告 **16** (1983) 259.
- 3) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. (in press).
- 4) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **83** (1984) 319.
- 5) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **84** (1984) 369.
- 6) 榎本, 武藤, 八木 : 核理研研究報告 **17** (1984) 236.

種々の溶媒抽出系における無機およびメチルヒ素化学種の抽出挙動

理学部化学

鈴木信男・佐藤清記・庄子英利・井村久則

§ 1. 緒 言

ヒ素は自然界において主に無機形の3価(As(III))と5価(As(V))、有機形のメチルアルソン酸(MeAs(V))とジメチルアルソン酸(Me₂As(V))として存在することが知られており、環境および生物化学的にその挙動には大きな関心が持たれている。これらの分離、定量の精度ならびに正確さを高めるためには、まずそれぞれの化学種の分離挙動を正確に把握する必要がある。分離法としてはこれまで、イオン交換クロマトグラフィー¹⁻⁵⁾、ガスクロマトグラフィー⁶⁻¹²⁾、それとアルソン発生-分別気化法¹³⁻¹⁵⁾に関するものがほとんどであり、溶媒抽出法による分離は無機形のAs(III)とAs(V)について検討されている¹⁶⁻¹⁸⁾だけで、メチルヒ素化学種も含めた系統的な研究はまったく行われていない。

また、溶媒抽出法は目的化学種の化学的性質を知るうえにも有用であり、本研究では、抽出機構の異なる4種類の抽出系、1)ハロゲン化物系、2)ジエチルジチオカルバミン酸(DDC)系、3)ジラウリルスズ(DLT)系、4)ピロガロール(PG)-テトラフェニルアルソニウム(TPA)系を選び、無機およびメチルヒ素化学種の抽出挙動をそれぞれのラベル化合物を用いて詳細に検討した。

§ 2. 実 験

2.1 ⁷⁴Asの製造

As₂O₃ (山中工業所製、高純度半導体用)約100 mgを石英管に封入し、東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックからの30-50 MeVの制動放射線を10~30時間照射した。

2.2 ラベル化合物の調製

As(III)、As(V)は前報と同様に調製した¹⁸⁾。MeAs(V)およびMe₂As(V)はMeyer反応^{19, 20)}によって、As₂O₃とヨウ化メチルより合成し、陽イオン交換クロマトグラフィー²⁾を用いて精製した。

2.2.1 MeAs(V) の調製

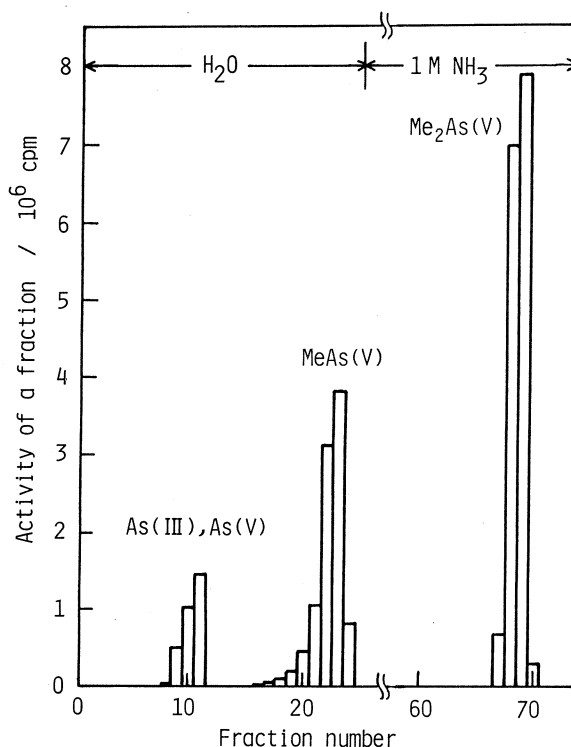
照射した As_2O_3 90 mg を微量合成用の反応容器に取り, 10 M水酸化ナトリウム 0.30 ml, ヨウ化メチル 0.15 ml を加え, 空気冷却器を取り付けて, スターラーで一昼夜かく拌した。反応液にエタノール 0.3 ml を加えて結晶化した後, 少量の水に溶解, 塩酸で弱酸性として陽イオン交換カラム (Bio-Rad AG 50W-X8 100-200 メッシュ, H^+ 形, 内径 2.5 cm, 高さ 45 cm) に注入した。水を 1 ml/分の流速で流し, フラクションコレクターを用いて 5-10 ml に分画しカウントの高い部分を集めて MeAs(V) の貯蔵液とした。

MeAs(V) と $\text{Me}_2\text{As(V)}$ を同時に注入して得られたクロマトグラムを第1図に示す。さらに, ペーパークロマトグラフィ (展開溶媒 酢酸:酢酸

エチル:水 = 3:3:1) を用いて, ラベル化合物の同定と純度確認を行った。

2.2.2 $\text{Me}_2\text{As(V)}$ の調製

Meyer 反応においてはまず MeAs(III) を調製する必要があり, 次のような抽出法を用いた。上記の MeAs(V) を含む反応液少量に 5 M硫酸 36 ml, 1 M亜硫酸水素ナトリウム 18 ml, 5 Mヨウ化ナトリウム 18 ml それにベンゼン 10 ml を加え 2~3 分振とうした。有機相を 5 M水酸化ナトリウム 2 ml と振とうして MeAs(III) を逆抽出し, ただちにその水相をヨウ化メチル 0.2 ml を入れた反応容器に移し, スターラーで一昼夜かく拌した。この溶液を塩酸で pH 2-3 とし陽イオン交換カラムに注入し, 水で MeAs(V) を溶出した後, 1.5 Mアンモニア水で $\text{Me}_2\text{As(V)}$ を溶出させた (第1図)。なお $\text{Me}_2\text{As(V)}$ の後半のフラクションには微量の他のヒ素化学種が含まれていることが抽出実験より明らかになったため, このフラクションはさらに陽イオン交換カラム (内径 0.8 cm, 高さ 10 cm) に注入し水のみで溶離して再精製した。ラベル化合物の



第1図 Purification of labelled compounds by cation exchange chromatography. Column: Bio, Lad. AG 50W-X8, 100-200 mesh, 2.0 cm ϕ \times 48 cm.

同定と純度確認は MeAs(V) と同様にペーパークロマトグラフィーを用いて行った。

2.3 その他の試薬

塩化ジラウリルスズ(IV)は以下のように精製した。適当量をエタノールに溶解し、1 M水酸化ナトリウムをかく拌しながら加え、生じた白色沈殿をろ過する。水、エタノールで十分に洗浄した後、濃塩酸、ヘキサンとともに振とうし沈殿をヘキサンに溶解させる。ヘキサン相を濃縮して結晶を析出させる。元素分析値と計算値(カッコ内)は、C : 51.88%(54.78%), H : 9.15%(9.54%)であった。ハロゲン化ナトリウム、ジエチルジチオカルバミン酸—ジエチルアンモニウム、ピロガロール、塩化テトラフェニルアルソニウムは特級試薬をそのまま使用した。ベンゼン、四塩化炭素、メチルイソブチルケトン(MIBK)、クロロホルムは常法により精製して使用した。その他の試薬は特級あるいは精密分析用試薬を用いた。

2.4 抽出操作

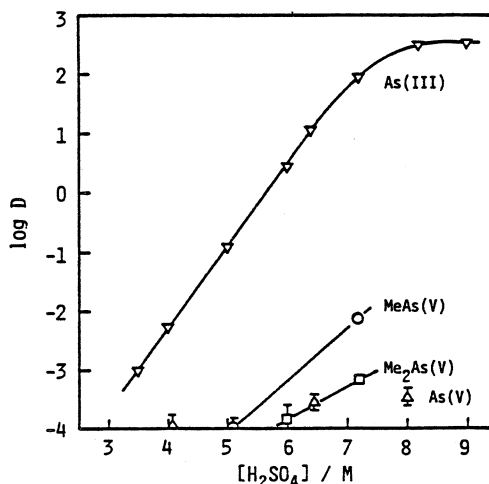
5×10^{-5} Mの放射性ヒ素化学種を含む硫酸(あるいは過塩素酸), または種々の pHの0.1 M過塩素酸ナトリウム水溶液を等量の有機溶媒と共に各抽出剤存在下で所定の時間(2~60分)振とうした。遠心分離後, 両相より一定量ずつ取り出してNaI(Tl)—井戸形シンチレーションカウンターで放射能を測定し, その比より分配比(D)を求めた。平衡 pH は抽出後直ちにガラス電極を用いて測定した。また逆抽出では, 抽出した有機相を新たな水相と振とうし, 両相の放射能より同様に分配比を求めた。

§ 3. 結果と討論

3.1 ハロゲン化物系

水相のハロゲン化物濃度を1.0 Mとし, 各化学種の分配比に対する硫酸濃度の影響を調べた。第2図から4図に塩化物, 臭化物, ヨウ化物系のそれぞれの抽出曲線を示す。いずれの系においても分配比は硫酸濃度の増加とともに増大し, 類似の抽出系であるスズ(IV)²¹⁾やアンチモン(III)²²⁾などと同様の傾向を示している。

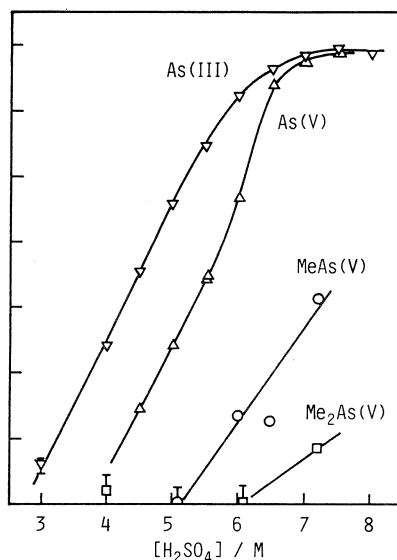
各化学種の抽出性は, 塩化物系で As(III)》



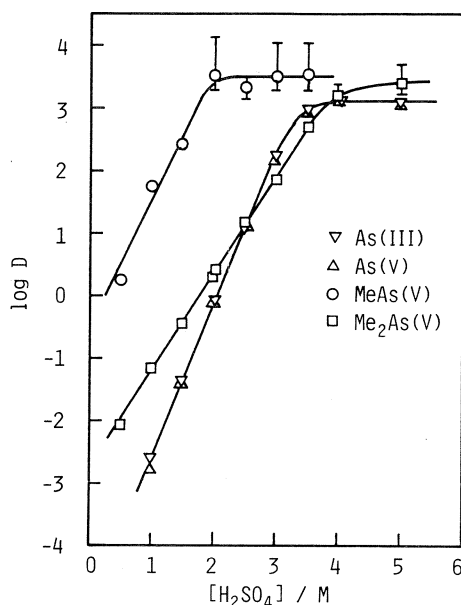
第2図 Extraction of arsenic species into benzene from 1.0 M NaCl solutions in H₂SO₄ of varying acidity. Shaking time, 2 min.

MeAs(V) > As(V) ~ Me₂As(V) となっており、As(III)のみが定量的に抽出され、他の化学種はまったく抽出されない。臭化物系では、As(III) > As(V) > MeAs(V) > Me₂As(V) となっており、As(III)とAs(V)は定量的に抽出されるが、メチルヒ素化学種はほとんど抽出されない。一方、ヨウ化物系では上記の系とは異なった傾向を示し、抽出性は MeAs(V) > Me₂As(V) ~ As(III) = As(V) となっており、全ての化学種を定量的に抽出することができる。

そこでこの系の抽出挙動をより詳細に調べるために、硫酸濃度を 4.0 M とし、ヨウ化物濃度の影響を調べた。第 5 図に結果を示すが、MeAs(V) と As(III) および As(V) の log D はほとんど直線的に増大しており、またそれぞれの正抽出および逆抽出からの結果はほぼ一致している。これはこれらの系では 2 分間の振とうによって、抽出反応が平衡に達していることを示している。As(III) と As(V) については以前にも述べたように¹⁸⁾、ヨウ化物イオンによって As(V) が As(III) に還元され、共に AsI₃ として抽出されることが考えられ、恐らく MeAs(V) の場合もヨウ化物イオンによって迅速に還元され疎水的なヨウ化物 MeAsI₂ を生成して抽出されるものと考えられる。この抽出種の性質を調べるために 5 M 硫酸を用いて逆抽出した後、再びハロゲン化物系 (4 M 硫酸) による抽出を試みた。ヨウ化物系は逆抽出液を 2 日間まで放置しても抽出挙動にまったく変化が見られなかったが、塩化物系



第 3 図 Extraction of arsenic species into benzene from 1.0 M NaBr solutions in H₂SO₄ of varying acidity. Shaking time, 2 min.

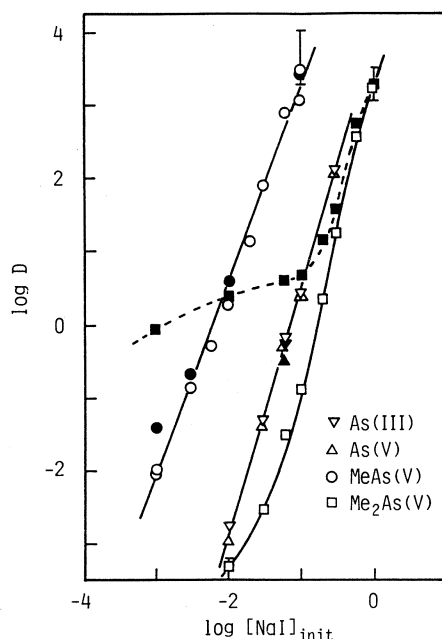


第 4 図 Extraction of arsenic species into benzene from 1.0 M NaI solutions in H₂SO₄ of varying acidity. Shaking time, 2 min.

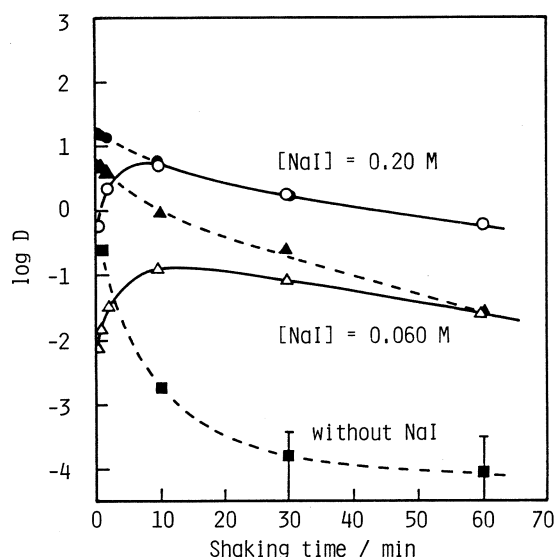
と臭化物系では、逆抽出直後はそれぞれ1 Mのハロゲン化物濃度において、 $\log D = -1.30$ と -1.05 と MeAs(V) よりはるかに大きな分配比を与えたが、放置時間が長くなるにつれて分配比は減少した。これはヨウ化物イオンによって MeAs(III) として抽出された化学種が、硫酸に逆抽出した後は徐々に空気酸化を受けて MeAs(V) に変化してゆくことを示している。

$\text{Me}_2\text{As(V)}$ は他のものと違い、正逆抽出挙動が特にヨウ化物イオンの低濃度の領域でまったく異なっており、平衡には達していない。そこで正逆抽出の振とう時間の影響を調べた。

第6図に示したようにヨウ化物濃度の異なった点においても、正抽出では振とう時間10分で分配比が最大となり、その後はゆるやかに減少する。逆抽出の場合には、分配比はゆるやかに減少するだけで、この傾向はヨウ化ナトリウムを含まない4 M硫酸の場合にも見られる。これの主な原因として、振とう時間とともに水相中のヨウ化物イオンが空気酸化を受けてヨウ素となり、平衡濃度が徐々に減少することによって考えられる。またヨウ化物濃度が $2 \times 10^{-1} \text{ M}$ では10分で正逆抽出が一致するのに対し、 $6 \times 10^{-2} \text{ M}$ では約60分を要し、ヨウ化物が低濃度ほど平衡に達するのが遅いことがわかる。これらの現象より、 $\text{Me}_2\text{As(V)}$ もヨウ化物イオンによって3価($\text{Me}_2\text{As(III)}$)に還元されて有機



第5図 Effect of NaI concentration on the extraction and back extraction of arsenic species in 4.0 M H_2SO_4 - benzene. Shaking time, 2 min.

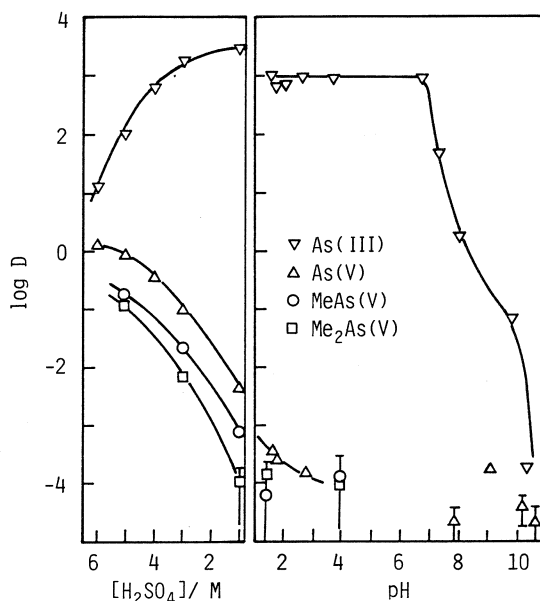


第6図 Effect of shaking time on the extraction (\circ, \triangle) and back extraction ($\bullet, \blacktriangle, \blacksquare$) of $\text{Me}_2\text{As(V)}$ in the iodide system. $[\text{H}_2\text{SO}_4] = 4.0 \text{ M}$

相に抽出されるが、その酸化還元反応が比較的遅いものと理解される。ここで推定した抽出種 MeAsI_2 、 Me_2AsI はいずれも単離され、水に溶けにくく有機溶媒に可溶であることが知られており²⁰⁾ 上記の抽出機構が妥当なものと考えられる。

3.2 DDC系

この抽出系は As(III) と As(V) の分離に利用されているが、詳細な抽出挙動については報告されていない。第7図に $1 \times 10^{-2} \text{ M}$ の DDC ジエチルアンモニウム塩-四塩化炭素溶液によるヒ素化学種の抽出曲線を示す。pH 領域では As(III) のみが約 99.9% と定量的に抽出されるが、他の化学種は 0.1% 以



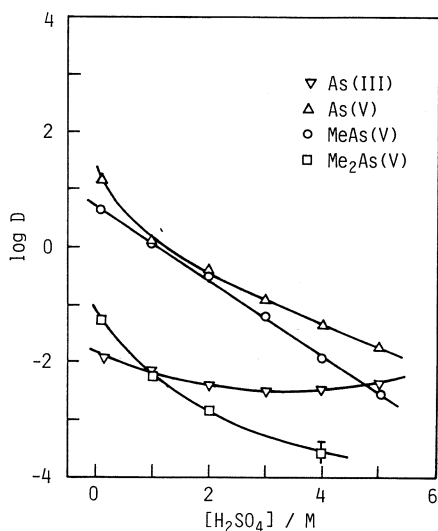
第7図 Extraction of arsenic species with $1.0 \times 10^{-2} \text{ M}$ diethyldithiocarbamate in CCl_4 from aqueous solutions of various acidity. Shaking time, 5 min.

下とまったく抽出されない。酸領域では他の三つの化学種も部分的に抽出されるが、酸濃度の依存性は As(III) とは逆になっている。 As(III) の傾向は一般に金属イオンの抽出において見られるものである。また部分的に抽出された As(V) の逆抽出挙動は As(III) のものと同じであり、 As(V) の抽出においては、三価への還元を伴っていることが推定される。

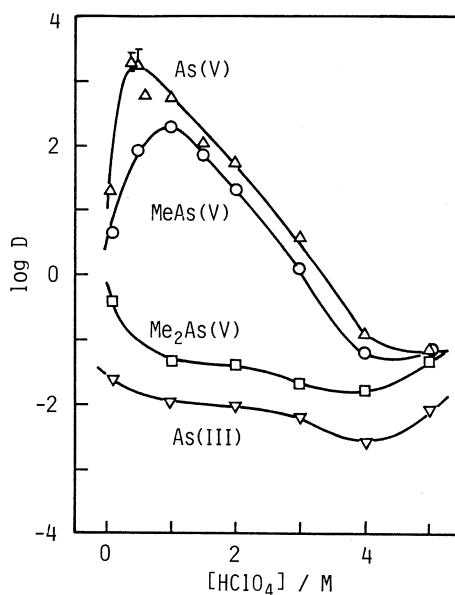
MeAs(V) と $\text{Me}_2\text{As(V)}$ は As(V) とよく似た挙動をしており、ハロゲン化物系と同じように、恐らく三価へ還元されて、DDC錯体として抽出されるものと考えられる。このようなDDC錯体は、それぞれのヨウ化物 MeAsI_2 、 Me_2AsI より合成されてガスクロマトグラフィーに適用されており、十分に安定な化合物であると考えられる。

3.3 DLT系

塩化ジラウリルスズ(IV)はベンゼンによく溶けるが、水と振とうすると加水分解して、不溶性の水酸化物、あるいは酸化物を生成しやすい。そこで有機相への溶解性を高めるために配位性溶媒であるMIBKを50% (v/v) 加えた。 $1 \times 10^{-3} \text{ M}$ の塩化ジラウリルスズ(IV)を用いて、各ヒ素化学種を硫酸および過塩素酸溶液からMIBK-ベンゼン(1:1)混合溶液に抽出した。それぞれの結果を第8, 9図に示す。硫酸の場合は、いずれの化学種も硫酸0.1 Mで分配比が最大であり、酸濃度の増加とともに分配比は減少してゆく。 As(V) と MeAs(V) の抽出性が



第8図 Extraction of arsenic species with 1.0×10^{-3} M dilauryltin(IV) in MIBK-benzene (1:1) from H_2SO_4 solutions. Shaking time, 60 min.



第9図 Extraction of arsenic species with 1.0×10^{-3} M dilauryltin(IV) in MIBK-benzene (1:1) from HClO_4 solutions. Shaking time, 60 min.

高くよく似た挙動をしているが、この系では定量的な抽出は難しい。過塩素酸を用いた場合には、As(III)以外の化学種は硫酸系より分配比が著しく増大する。特にAs(V)とMeAs(V)では数百倍以上の増加が見られ、As(V)は過塩素酸0.5Mで $\log D$ が3.2、MeAs(V)は1Mで2.3と分配比が最大となり、定量的な抽出が可能となる。

有機スズ化合物による抽出は、P(V), As(V), Se(VI, IV), Te(IV), Mo(VI), W(VI) など、オキソ酸に選択的であり、これらの陰イオンと有機スズとの錯体生成によって抽出されると考えられる^{23, 24}。DLT系の抽出性の順序 $\text{As(V)} > \text{MeAs(V)} > \text{Me}_2\text{As(V)} > \text{As(III)}$ は各化学種の酸解離定数²⁵の順序と一致しており、酸溶液中でより解離しやすい化学種の方が金属との錯形成に有利であると考えられる。また硫酸の代りに過塩素酸を用いた場合に分配比が著しく高くなるが、後者にはほとんど配位能力がなくDLTとヒ素類(5価のヒ素化学種)の反応を妨害しないためと考えられる。

3.4 PG-TPA系

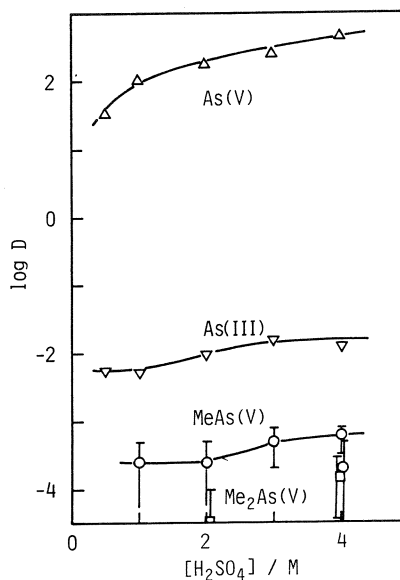
0.2Mピロガロールを含む種々の濃度の硫酸溶液から、 5×10^{-4} MのTPA塩化物-クロロホルム溶液により抽出を行った(第10図)。As(V)以外の化学種はほとんど抽出されず、As(V)に対してきわめて選択性の高い系と言える。またTPAなしではAs(V)もまったく抽出されな

かった。As(V)の抽出に関する研究²⁶⁾においても抽出種は明らかではないが、カテコールを用いた類似の抽出系の結果²⁷⁾から、恐らくAs(V)はピロガロールと1価の錯陰イオンを生成し、それとTPAとがイオン対を形成して抽出されるものと考えられる。

§ 4. まとめ

得られた結果より、それぞれのヒ素化学種の分離に有効な抽出系を第1表にまとめた。DDC系とハロゲン化物系は一般に金属イオンに対する抽出系であり、無機およびメチルヒ素化学種の場合も、陰イオンの性質の強い五価は、ほとんど抽出されず、いずれも三価の化学種として抽出されると考えられる。一方、DLT系は陰イオンに選択的な抽出系と言える。Me₂As(V)に対する選択的な抽出系は見い出せなかったが、As(III)はDDC系で、As(V)はDLT系とPG-TPA系で、MeAs(V)はヨウ化物系でそれぞれ選択的に他のヒ素化学種から抽出分離することが可能であり、四種のヒ素化学種は容易に相互分離することができる。

本研究を行うにあたり、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



第10図 Extraction of arsenic species with 2.0×10^{-1} M pyrogallol- 5.0×10^{-4} M tetraphenylarsonium into CHCl_3 from H_2SO_4 solutions. Shaking time, 30 min.

第1表 Summary of extraction separation of arsenic species (log D).

Extractant	Conditions	As(III)	As(V)	MeAs(V)	Me ₂ As(V)
NaCl ^a	7.5 M H ₂ SO ₄	2.1	< -3.0	-2.0	< -3.0
NaBr ^a	6.5 M H ₂ SO ₄	2.6	2.4	-2.7	< -3.0
NaI ^a	1.2 M H ₂ SO ₄	-2.0	-2.0	2.0	-0.9
NaI ^b	4.0 M H ₂ SO ₄	-0.5	-0.5	2.4	-2.0
DDC ^c	pH 1.5 - 6.7	3.0	< -3.5	< -3.5	< -3.5
DLT ^d	1.0 M HClO ₄	-2.0	2.8	2.3	-1.3
PG ^e -TPA ^f	2.0 M H ₂ SO ₄	-2.0	2.3	< -3.0	< -3.0

^a1.0 M, ^b0.05 M, ^c0.01 M, ^d0.001 M, ^e0.2 M, ^f 5×10^{-4} M.

教授，榑本和義助手，ならびにマシングループの皆様へ深く感謝する。また有機スズ化合物を提供して頂いた共同薬品に対して深く感謝する。

参 考 文 献

- 1) M. Yamamoto : Soil Sci. Soc. Amer. Proc. **39** (1975) 859.
- 2) E. A. Dietz, Jr. and M. E. Perez : Anal. Chem. **48** (1976) 1088.
- 3) F. T. Henry and T. M. Thorpe : Anal. Chem. **52** (1980) 80.
- 4) G. R. Ricci, L. S. Shepard, G. Colovos and N. E. Hester : Anal. Chem. **53** (1981) 610.
- 5) W. A. Maher : Anal. Chim. Acta **126** (1981) 157.
- 6) E. H. Daughtrey, Jr., A. W. Fitchett and P. Mushak : Anal. Chim. Acta **79** (1975) 199.
- 7) S. Fukui, T. Hirayama, M. Nohara and Y. Sakagami : Talanta **28** (1981) 402.
- 8) S. Fukui, T. Hirayama, M. Nohara and Y. Sakagami : Talanta **30** (1983) 89.
- 9) B. Beckermann : Anal. Chim. Acta **135** (1982) 77.
- 10) C. J. Soderquist, D. G. Crosby and J. B. Bowers : Anal. Chem. **46** (1974) 155.
- 11) Y. Odanaka, N. Tsuchiya, O. Matano and S. Goto : Anal. Chem. **55** (1983) 929.
- 12) Y. Talmi and D. T. Bostick : Anal. Chem. **47** (1975) 2145.
- 13) M. O. Andreue : Anal. Chem. **49** (1977) 820.
- 14) A. U. Shaikh and D. E. Tallman : Anal. Chim. Acta **98** (1978) 251.
- 15) R. S. Braman, D. L. Johnson, C. C. Foreback, J. M. Ammons and J. L. Bricker : Anal. Chem. **49** (1977) 621.
- 16) T. Kamada : Talanta **23** (1976) 835.
- 17) K. Kanda and N. Suzuki : Radiochem. Radioanal. Lett. **39** (1979) 221.
- 18) 庄子英利, 井村久則, 鈴木信男 : 核理研研究報告 **15** (1982) 108.
- 19) A. J. Quick and R. Adams : J. Am. Chem. Soc. **44** (1922) 805.
- 20) E. G. Rochow : Inorganic Syntheses (Mc Graw-Hill, 1960) Vol. VI, p. 113, 116.
- 21) H. Imura and N. Suzuki : Talanta **28** (1981) 73.
- 22) A. R. Byrne and D. Gorenc : Anal. Chim. Acta **59** (1972) 81.

- 23) B.Ya. Spivakov, V.M. Shkinev and Yu.A. Zolotov : Zh. Anal. Khim. **30** (1975) 2182.
- 24) V.M. Shkinev, I. Khavezov, B.Ya. Spivakov, S. Mareva, E. Ruseva, Yu.A. Zolotov and N. Iordanov : Zh. Anal. Khim. **36** (1980) 896.
- 25) C.F. Baes, Jr. and R.E. Mesmer : *The Hydrolysis of Cations* (John Wiley & Sons, 1976).
- 26) K. Kratzer and J. Stary : Radiochem. Radioanal. Lett. **40** (1979) 61.
- 27) J. Rais, P. Selucky and S. Drazanova : J. Inorg. Nucl. Chem. **33** (1971) 3087.

Kelex 100 乳化液膜によるウランの抽出と回収

選研 大木淳子・秋葉健一

The extraction of uranium(VI) has been studied by a liquid surfactant membrane containing 7-dodeceny1-8-quinolinol (Kelex 100). The stability of water-in-oil (W/O) emulsion dispersed in the external aqueous phase increased with an increase in carrier concentrations. Uranium in the external solution was extracted into emulsion phase and its concentration decreased as $\ln ([U]_{\text{ext},t} / [U]_{\text{ext},i}) = -k_{\text{obsd}} t$. The apparent rate constant (k_{obsd}) increased with an increase in carrier concentrations and in external pH values, while it varied slightly with internal acid concentrations. Uranium in the emulsion globules was recovered with a high enrichment factor by demulsification with a high voltage electrostatic method.

§ 1. 緒 言

液体膜法では、液-液抽出法を基礎として、抽出と逆抽出を同時に行うことにより、物質を連続的に輸送することができ、新しい分離法として注目されている。Liらは、逆抽出水相を有機相で取り囲んで water-in-oil (W/O) エマルジョンとした乳化液膜を用いて、炭化水素の分離¹⁾や廃水中のフェノールの除去²⁾を試みた。また、適当な担体の選択により金属イオンの輸送も可能なことから、金属イオンの分離や濃縮への応用が期待されている。

乳化液膜による金属の抽出にあたっては、担体を含む十分安定なエマルジョンを調製することが必要であり、また、分離濃縮された金属を回収するためには効率的な脱乳化が必要となる。高分子量のオキシソ誘導体である 7-dodeceny1-8-quinolinol (Kelex 100) は、広い pH 領域にわたって有機相への分配比が高く、試薬の水相への溶解による損失が少なく、また、最近 Zhu らによってウランの抽出にも有効であることが見出されている³⁾。これらのことから、Kelex 100 はウランの液膜輸送の担体として有望と考えられる。

本研究では、水素イオンの濃度差を駆動力とした乳化液膜によるウランの能動輸送を試み、乳化液膜の安定性、ウランの抽出速度、濃縮比に及ぼす種々の要因について検討し、さらに、

ウランの回収を試みた。

§ 2. 実 験

2.1 乳化液膜の安定性

界面活性剤 SPAN 80 を 2 (w/v) % 含むケロシン溶液と、硫酸 (0.02 ~ 1.2 M) を 15000 rpm で攪拌して (W/O) エマルジョンを調製した。その 5 cm³ を、外部水相である純水 50 cm³ 中に加え、300 rpm で攪拌して分散させる。30 分間攪拌後、外部水相を取り出し pH を測定して、内部水相より漏れ出した水素イオンの量から乳化液膜の破壊率を求めた。

外部水相中に酢酸緩衝液を含む場合は、10⁻⁵ M の ²³⁷U を含む 0.05 M 硫酸を内部水相とした (W/O) エマルジョンを用いて同様の実験を行い、外部水相に漏れ出した ²³⁷U の r 放射能を NaI シンチレーションカウンタで測定し、乳化液膜の破壊率を求めた。

2.2 ウランの抽出

Kelex 100 と 2 (w/v) % の SPAN 80 を含むケロシン溶液を有機相とし、低 pH の硫酸を内部水相として (W/O) エマルジョンを調製する。このエマルジョンを、トレーサーとして ²³⁷U を含む外部水相中に分散させる。なお、外部水相の pH は酢酸緩衝液で調整した。一定時間ごとに外部水相の ²³⁷U の r 放射能を測定し、外部水相中のウラン濃度の変化を調べた。実験は 25°C の恒温槽中で行った。

2.3 ウランの回収

上の実験で、攪拌を続けて外部水相のウラン濃度が低下し平衡に達した後、(W/O) エマルジョンを外部水相から汙過して分離する。このエマルジョンに 10000 V の交流電圧を印加して脱乳化し、有機相と内部水相に分離させる。有機相中には水相が微小水滴となってしまうので、遠心分離により水滴を除いた後、有機相と水相の体積及び r 放射能を測定した。

§ 3. 結果と考察

3.1 乳化液膜の安定性

外部水相に純水を用いた場合は、次式により乳化液膜の破壊率を求めた。

$$\epsilon (\%) = \frac{V_{\text{ext}} ([\text{H}^+]_{\text{ext}} - [\text{H}^+]_{\text{ext}, i})}{V_{\text{int}} [\text{H}^+]_{\text{int}, i}} \times 100 \quad (1)$$

ここで、 V は体積 (cm³)、 $[\text{H}^+]$ は水素イオン濃度 (M)、添字 int, ext, i は、各々内部水相、外部水相、初期値を示す。

また、外部水相に酢酸緩衝液を用いた場合は、次式により破壊率を求めた。

$$\epsilon(\%) = \frac{V_{\text{ext}} [U]_{\text{ext}}}{V_{\text{int}} [U]_{\text{int}, i}} \times 100 \quad (2)$$

ここで、 $[U]$ はウラン濃度(M)である。

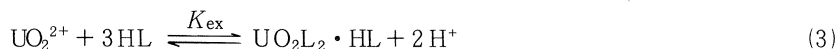
有機相に Kelex 100 を加え、担体濃度の ϵ に及ぼす影響を第1図に示した。Kelex 100 の濃度が高くなると ϵ が低下するのは、Kelex 100 が粘性が高いため、膜補強剤としての働きをしているものと考えられる。内部水相の酸濃度を 0.2~1.2

Mの間で変化させても、 ϵ は 0.8%程度でほぼ一定であるが、0.2 M以下では ϵ は著しく減少した。安定なエマルジョンを調製するため、以後の実験では、内部水相の硫酸濃度を 0.05 Mとした。酢酸

緩衝液の影響をみると、酢酸イオン濃度の増加に伴って、液体膜は不安定になった。 $([Ac^-] = 10^{-3} \text{ M} : \epsilon = 0.27\%$, $[Ac^-] = 10^{-1} \text{ M} : \epsilon = 5.33\%)$ 通常は 10^{-2} M の酢酸イオン共存とし、 ϵ は 0.8%である。また、エマルジョンを調製直後あるいは調製後長時間放置した後使用すると ϵ が大きくなり、調製後 1~2 時間のものが最も安定であることがわかった。実験では、調製後 1 時間静置したものをを用いた。 ϵ に影響を及ぼすその他の要因については、高橋らの論文⁴⁾に詳しい。

3.2 ウランの抽出

Kelex 100 によるウランの液-液抽出は、次式のように表される³⁾。

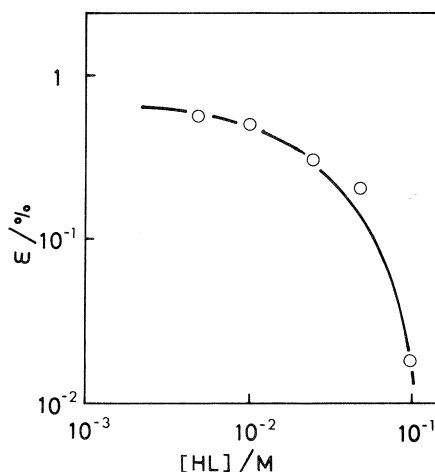


$$(\log K_{\text{ex}} = -2.56 \pm 0.02)$$

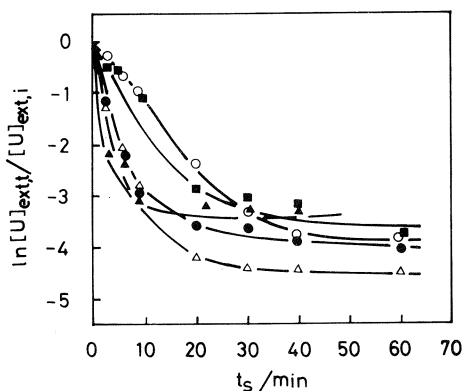
Kelex 100 を担体とした乳化液膜によるウランの抽出の例を第2図に示す。抽出の初期において、外部水相中のウラン濃度は攪拌時間(t)とともに指数関数的に減少する。従って、外部水相中のウラン濃度は次式で表すことができる。

$$\ln \frac{[U]_{\text{ext}, t}}{[U]_{\text{ext}, i}} = -k_{\text{obsd}} t \quad (4)$$

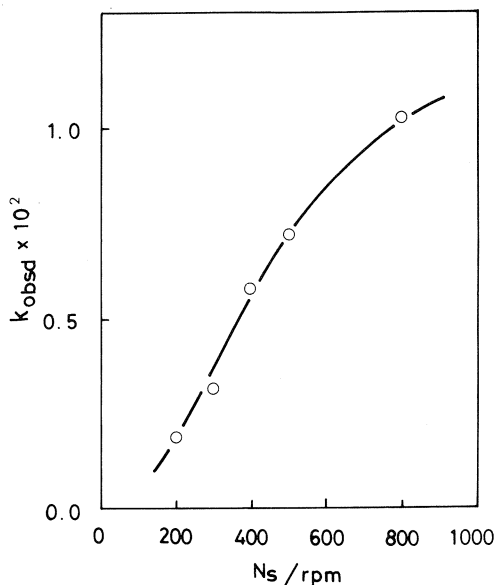
ここで、 k_{obsd} は見かけの抽出速度定数である。以後は、この定数 k_{obsd} を用いて検討する。



第1図 Effect of Kelex 100 concentration on emulsion breakdown.
ext : H₂O ; org : Kelex 100,
2(w/v)% SPAN 80 in kerosene;
int : 0.05 M H₂SO₄.



第2図 Extraction of uranium by emulsion liquid membrane. ext : 10^{-5} M uranium, 10^{-2} M acetate buffer (pH 5.4); org : 0.1M Kelex 100, 2(w/v)% SPAN 80 in kerosene ; int : 0.05M H_2SO_4 ; stirring speed N_s /rpm : (○)200, (■)300, (●)400, (△)500, (▲)800.



第3図 Effect of stirring speed on k_{obsd} . Experimental conditions are same as those in Fig. 2.

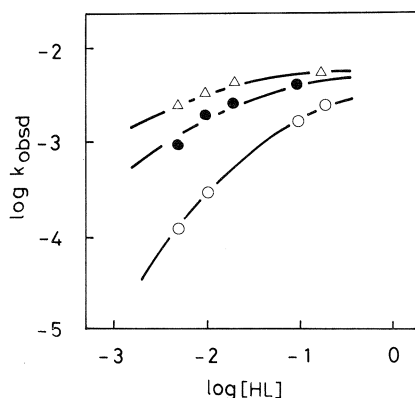
攪拌速度 N_s が増すと k_{obsd} が増加することが第3図からわかる。しかし、 N_s が 800 rpm になるとエマルジョンの破壊が認められ、外部水相中のウラン濃度もある程度までしか下がらなかった。以後の実験では、 N_s は 300 rpm とした。

3.2.1 担体濃度の影響

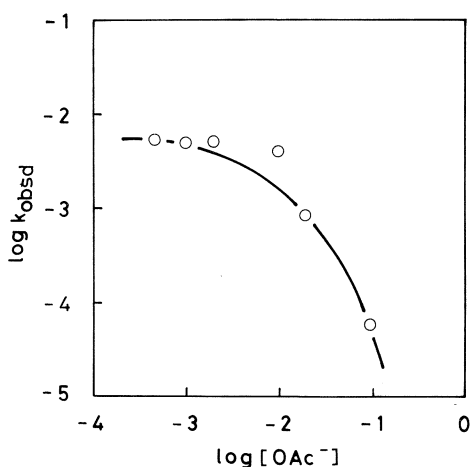
第4図に示すように、Kelex 100 濃度の増加につれ k_{obsd} は増加し、この傾向は外部水相の pH が低い程著しい。これは、pH 4.7 の場合には化学反応律速の影響が強く、pH が高くなるに従って拡散律速へ移行していくためと考えられる。以後、実験では担体濃度を 0.1 M とした。

3.2.2 水素イオン濃度の影響

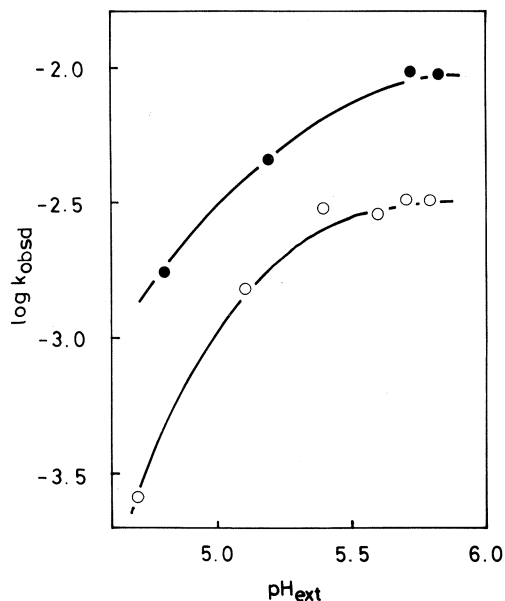
第5図に外部水相中の酢酸イオン濃度が k_{obsd} に及ぼす影響を示した。酢酸イオン濃度が 10^{-2} M 以下では、 k_{obsd} は一定であるが、 10^{-2} M を超えると急激に低下する。これは、酢酸イオン濃度が増加するとウラニルイオンとの高次の錯体が増加するためと考えられる。



第4図 Effect of Kelex 100 concentration on k_{obsd} . ext : 10^{-2} M acetate buffer, pH (○)4.7, (●)5.4, (△)5.8; int : 0.05 M H_2SO_4 .



第5図 Effect of acetate ion concentration on k_{obsd} . pH_{ext} 5.4; org: 0.1 M Kelex 100; int: 0.05 M H_2SO_4 .



第6図 Effect of pH of the external aqueous solution on k_{obsd} . pH_{ext} 5.4; org: (○) 0.01 M Kelex 100, (●) 0.1 M Kelex 100.

10^{-2} Mの酢酸緩衝液で外部水相のpHを調整し、その k_{obsd} への影響を第6図に示す。pH 5以下では、pHの増加につれ

k_{obsd} も増すが、pHが高くなるにつれて傾きは次第に減少し、pH 5.5以上では k_{obsd} にほとんど影響を与えないことがわかる。pHが高い場合は化学反応律速の影響が小さいことが原因と考えられる。

なお、内部水相中の水素イオン濃度を0.002~0.1 Mの範囲で変化させても、 k_{obsd} への影響は見られなかった。このことから、この濃度範囲では内部水相における逆抽出は十分に行われていると考えられる。

3.2.3 体積比の影響

外部水相に対するエマルションの体積を増加させると接触面積が増加するため、それに比例して k_{obsd} は大きくなる。しかし、体積比が大きすぎるとエマルションを外部水相中に十分均一に分散させることが困難になり、試薬を有効に使用できなくなるので、 k_{obsd} の増加が鈍ることが予想される。

エマルション中の内部水相と有機相の体積を変化させても、 k_{obsd} はほぼ一定となった。エマルションの内部水相界面で行われている逆抽出の反応は、全体の抽出速度に影響を及ぼしていないと考えられる。

なお、外部水相中の初期ウラン濃度は、 10^{-4} M以下の範囲では k_{obsd} に影響を及ぼさなかった。 10^{-4} M以上になると k_{obsd} は低下したが、これは、ウラン濃度に対して担体濃度が相対的に低下したためと考えられる。

3.3 ウランの濃縮及び回収

3.3.1 濃縮比

外部水相中に存在するウランを、乳化液膜を通して体積の小さい内部水相中へ輸送することにより、ウランは濃縮される。この時の濃縮比は次式で表される。

$$E = \frac{[U]_{\text{int, f}}}{[U]_{\text{ext, i}}} \quad (5)$$

定量的に抽出及び回収が行われれば、 E は外部水相と内部水相の体積比に等しい。実験では、外部水相 100 cm^3 に対し、有機相と内部水相を等容含むエマルジョンを 10 cm^3 使用したので、

第1表 Enrichment and distribution of uranium.

	E	Distribution of U/%			
		ext	org	int	
[HL]/M	0.005	18.7	13.6	2.52	83.9
	0.01	19.6	1.26	2.26	96.5
	0.02	14.3	1.03	3.15	95.8
	0.10	15.3	0.41	1.13	98.5
[OAc ⁻]/M	0.001	18.4	0.44	6.10	93.5
	0.002	12.7	0.42	5.50	93.7
	0.02	13.2	8.35	15.4	76.3
	0.10	4.6	71.2	1.64	27.2
pH _{int}	0.90	15.3	0.46	1.18	98.4
	1.20	15.3	0.41	1.13	98.5
	1.23	19.2	0.48	1.52	98.0
	1.55	19.8	0.28	0.73	99.0
pH _{ext}	4.68	15.5	2.94	1.62	95.4
	5.49	15.6	0.37	1.28	98.4
	5.72	16.7	0.65	1.43	97.9
	5.82	16.1	0.40	1.19	98.4

$$E = \frac{V_{\text{ext}}}{V_{\text{int}}} = 20 \quad (6)$$

となる。

第1表に示すように、 E は、担体濃度、内部水相及び外部水相のpHに依存しない。 E が20に達していないのは、エマルションの膨潤のため実験前に比べて内部水相の体積が増加してしまうことと、外部水相及び有機相中にウランが残留してしまうことが原因と考えられる。また、酢酸イオン濃度が 10^{-2} Mを超えると E は低下しているが、これは、第5図で k_{obsd} が低下したのと同様の理由と考えられる。

3.3.2 回収率

外部水相中にウランが残留したり、あるいは、外部水相中のウラン濃度が十分に低下しても、そのウランが有機相中に残り、内部水相へ逆抽出されなければ、ウランが回収できたとは言えない。そこで、外部水相、有機相、内部水相の各相に存在するウランの、全ウラン量に対する割合を求め、第1表に示した。担体濃度が低い場合や酢酸イオン濃度が高い場合には、外部水相や有機相中にウランが残るが、担体や酢酸イオン濃度を適当に選び、内部水相と外部水相のpH差を十分大きくとれば、ウランは98～99%内部水相へ分離濃縮することができた。

§ 4. 結 論

Kelex 100 は、広いpH領域で有機相への分配比が高く、液体膜の担体試薬として有効である。Kelex 100 を担体試薬に用いて、安定な乳化液膜を調製し、ウランの抽出速度が、担体濃度や外部水相pHに依存することを見出した。また、濃縮されたウランは高電圧下で脱乳化することにより回収が可能であり、98～99%のウランを回収することができた。

参 考 文 献

- 1) N. N. Li : Ind. Eng. Chem. Process Des. Develop. **10** (1971) 215.
- 2) N. N. Li and A. L. Shrier : *Recent Development in Separation Science* **1** (1972) 163.
- 3) L. Zhu and H. Freiser : Anal. Chim. Acta **146** (1983) 237.
- 4) K. Akiba, T. Takahashi and T. Kanno : Bull. Chem. Soc. Jpn. **57** (1984) 2618.

那須北帯・第四紀岩手火山におけるマグマの 結晶分化作用

教養部，理学部地学*

石川賢一・吉田武義*・青木謙一郎*

§ 1. はじめに

岩手火山は、東北本州弧、那須火山帯北帯¹⁾に属し、火山フロント上に位置する第四紀の複合成層火山である。

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

本火山噴出物の化学組成については既にその一部を報告している¹⁾が、ここでは、ストロンチウム同位体比を含む新たに得られた結果を示すととも本火山を構成する岩石を形成したマグマの結晶分化作用について検討する。

§ 2. 地質概略

岩手火山の活動は、旧岩手火山活動期と新岩手火山活動期とに分けられる²⁾。両者はさらに外輪山形成期と中央火口丘形成期に二分できる。旧岩手火山外輪山は大規模で典型的な成層火山体を形成し、その構成物はソレイト系列に属する玄武岩組成ないし苦鉄質安山岩組成の溶岩及び火砕岩である。同質の放射状岩脈がこの外輪山山体に貫入している。カルデラの形成後、その内部にカルク・アルカリ系列に属する安山岩類から成る御苗代中央火口丘が形成された。この東斜面に形成された御釜溶岩円頂丘の岩質はソレイト系列に属する安山岩である。新岩手火山は旧岩手火山の東側に形成された。その山体の南及び北斜面の一部に外輪山が露出しているが、その岩質はソレイト系列に属する苦鉄質安山岩である。新岩手火山の後カルデラ活動として薬師岳中央火口丘が形成されている。構成岩石はすべてソレイト質の玄武岩類である。さらにこの火口内に同質の小規模な妙高岳中央火口丘が形成されている。1719年に新岩手火山の東斜面に焼走り溶岩流が流下したが、この岩質はソレイト系列に属する苦鉄質安山岩である。

§ 3. 岩石記載

岩手火山を構成する噴出物は、その大部分がソレイト系列の玄武岩ないし安山岩であり、

他に少量のカルク・アルカリ系列の安山岩を伴う。

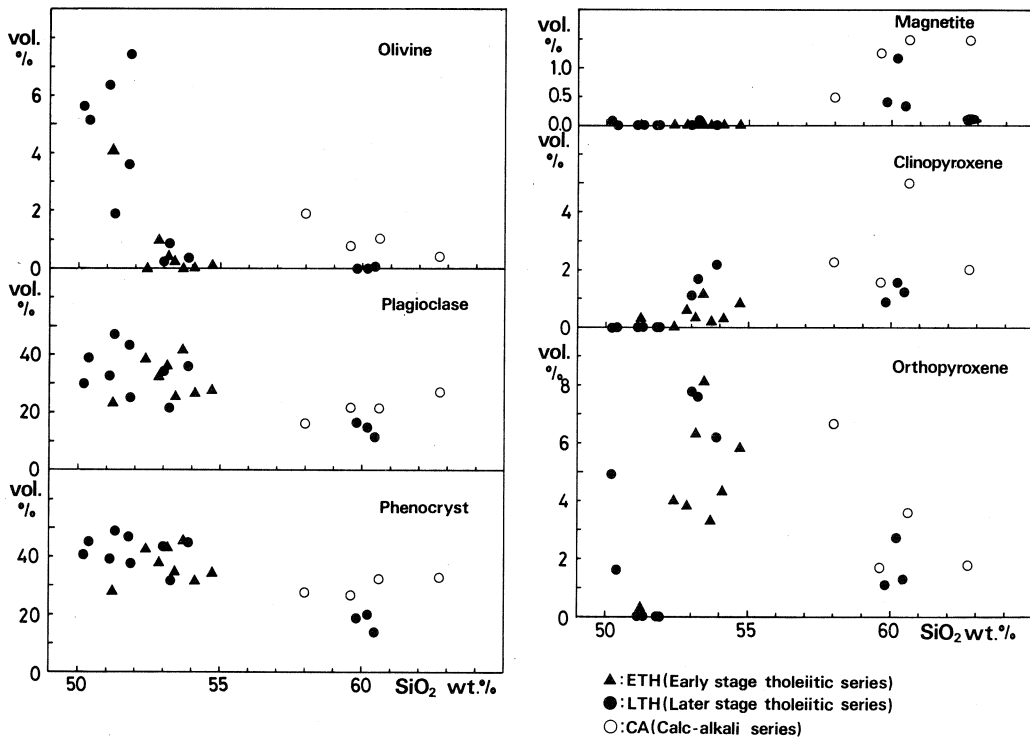
玄武岩類は、大部分カンラン石玄武岩と古銅輝石-カンラン石玄武岩であり、わずかに黒倉で1%以下の普通輝石を含むものがある。斑晶鉱物は、それぞれ、カンラン石玄武岩では、斜長石とカンラン石、又、古銅輝石-カンラン石玄武岩では、斜長石、カンラン石、古銅輝石である。これら玄武岩類はすべてピジオン輝石質岩系に属する。苦鉄質安山岩類は、カンラン石-普通輝石-古銅輝石安山岩ないし含カンラン石-普通輝石古銅輝石安山岩である。その斑晶鉱物は、斜長石、カンラン石、古銅輝石、普通輝石であり、すべてピジオン輝石質岩系に属する。安山岩類はピジオン輝石質岩系安山岩と紫蘇輝石質岩系安山岩から成る。ピジオン輝石質岩系安山岩は、含カンラン石普通輝石-紫蘇輝石安山岩ないし普通輝石-紫蘇輝石安山岩であり、紫蘇輝石質岩系安山岩は、カンラン石-普通輝石-紫蘇輝石安山岩である。両者の間には、斑晶鉱物組合せでは、カンラン石の有無を除いて、大きな差はみられないが、石基輝石組合せが異なっている。これらの記載岩石学的に分けられるピジオン輝石質岩系及び紫蘇輝石質岩系岩は、本火山においては、化学組成上、それぞれ、ソレイト系列およびカルク・アルカリ系列に対応している。

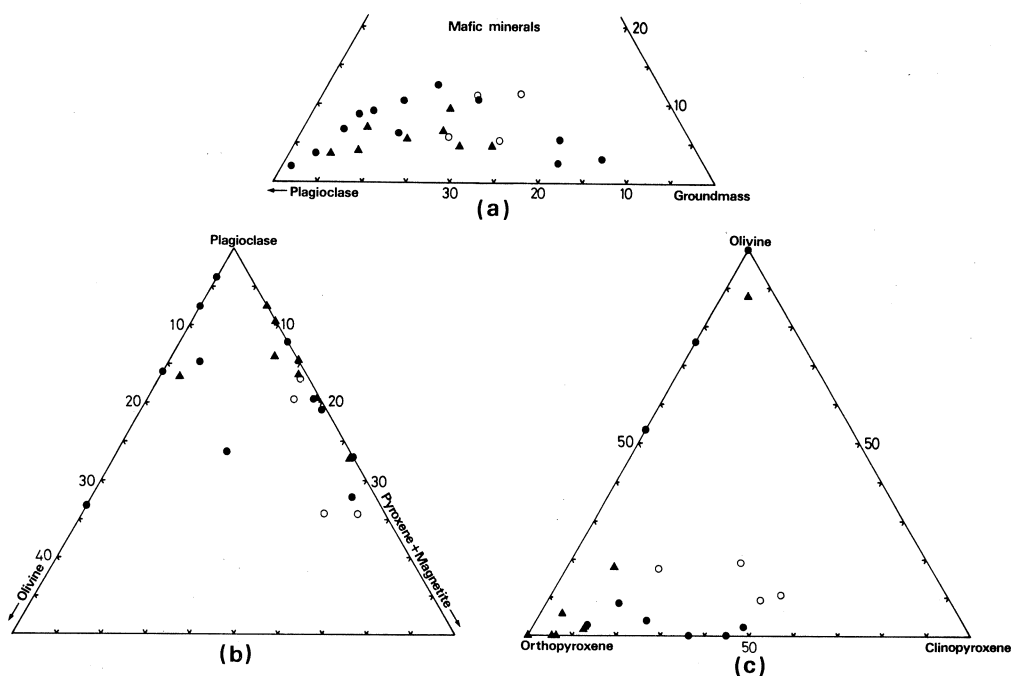
これら岩手火山に産するソレイト系列及びカルク・アルカリ系列の岩石のうち、ソレイト系列に属する岩石は、ストロンチウム同位体比から二分でき、旧岩手外輪山噴出物はそれ以降に活動したソレイト系列岩に比べてストロンチウム同位体比が高い ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0.7047 \sim 0.7051$)。そして、旧岩手後カルデラ噴出物(ソレイト系列とカルク・アルカリ系列)、新岩手外輪山噴出物(ソレイト系列)と新岩手後カルデラ噴出物(ソレイト系列)はともにほぼ同じストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0.7043 \sim 0.7044$) をもち、ストロンチウム同位体比上からは区別できない。従って、岩手火山噴出物は、ストロンチウム同位体比が高い前期ソレイト系列(ETH: Early stage tholeiite)と低い後期ソレイト系列(LTH: Later stage tholeiite)及びカルク・アルカリ系列(CA: Calc-alkali)の3グループに分類できる。

分析試料の斑晶モード組成を第1表に示す。全岩組成の変化にともなうモード組成変化の様子を示すために横軸に SiO_2 重量%を、縦軸に各斑晶鉱物の容量%をとった図を第1図に示す。全斑晶量はソレイト系列の玄武岩から苦鉄質安山岩で特に多いが、これは斜長石斑晶を多く含むためである。ソレイト系列では、 SiO_2 量の増加とともに玄武岩から苦鉄質安山岩にかけて急速にカンラン石が減少し、安山岩ではほとんど斑晶としてみられなくなる。又、玄武岩では少量か又はほとんどみられない斜方輝石斑晶が苦鉄質安山岩では多量に含まれ、安山岩に

第1表 Modal analyses of the rocks from Iwate volcano.

No.	Ol	Opx	Cpx	Mt	Pl	PH %	GM %
4	—	3.97	—	—	38.29	42.26	57.74
7	0.96	3.83	0.57	—	32.15	37.51	62.49
8	0.39	6.28	0.34	—	35.84	42.85	57.15
10	0.21	8.12	1.14	—	25.18	34.65	65.35
11	—	3.27	0.19	—	41.73	45.19	54.81
12	4.06	0.29	0.29	—	22.90	27.54	72.46
18	—	4.30	0.30	—	26.61	31.21	68.79
19	0.10	5.80	0.81	—	27.37	34.08	65.92
20	1.90	6.67	2.26	0.48	16.19	27.50	72.50
21	0.77	1.70	1.55	1.24	21.67	26.93	73.07
23	1.03	3.59	5.00	1.48	21.23	32.33	67.67
24	0.39	1.78	2.01	1.47	27.19	32.84	67.16
26	—	1.09	0.89	0.40	16.55	18.93	81.07
27	—	2.72	1.56	1.17	14.79	20.24	79.77
28	0.06	1.31	1.25	0.34	11.34	14.30	85.70
31	0.22	7.76	1.11	—	34.15	43.24	56.76
34	0.34	6.22	2.18	—	35.97	44.71	55.29
36	6.34	—	—	—	32.72	39.06	60.94
38	1.89	—	—	—	47.01	48.90	51.11
39	3.60	—	—	—	43.35	46.95	53.06
40	12.53	—	—	—	25.06	37.59	62.41
41	5.63	4.94	—	0.09	29.84	40.50	59.51
42	5.13	1.62	—	—	38.60	45.35	54.66
43	0.84	7.65	1.68	0.08	21.68	31.93	68.07

第1图 SiO₂ wt. % vs. modal compositions of phenocrysts in volume percent.



第2図 Plot in volume proportion modal mafic minerals : plagioclase : groundmass (a), pyroxene + magnetite : plagioclase : olivine (b) and olivine : orthopyroxene : clinopyroxene (c) for the rocks from Iwate volcano. The symbols are the same as those in Fig. 1.

かけて減少するのも大きな特徴である。これに対して普通輝石と磁鉄鉱の斑晶は大部分の玄武岩ではみられず、苦鉄質安山岩から安山岩にかけてみられるようになる。これらのソレアイト系列岩に比較してカルク・アルカリ系列岩では、同程度の SiO_2 量をもつ安山岩組成で比べると、一般に、カンラン石、斜方輝石などの苦鉄質鉱物斑晶および斜長石斑晶ともソレアイト系列の安山岩よりも多い傾向が明瞭にある(第2図)。

§ 4. 分析方法と分析結果

微量元素を分析した試料の全岩の主成分化学組成を第2表に示し、微量元素組成については、新たに分析した結果を以前に報告した結果(一部修正)とともに第3表に示す。Ce, Cs, Nb, Rb, Sc, Sr, Y, Zn, Zr と一部のNi, CrとCoについては、東北大学核理研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³⁾により定量した。その他、主成分元素は、湿式分析法により、Cu, Pbと一部のNiとCoは有機抽出分離後、原子吸光分析法により定量した。又、VとCrの一部は比色分析法(Vは、有機抽出分離後)により、F

第2表 Major element abundance in the rocks from Iwate volcano.

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH
wt. %												
SiO ₂	51.83	52.29	52.33	52.38	52.42	52.53	52.84	53.15	53.40	53.42	53.68	51.21
TiO ₂	0.92	0.94	0.89	0.98	0.85	0.95	0.83	0.86	0.82	0.80	0.88	0.84
Al ₂ O ₃	18.60	18.66	19.28	18.42	20.35	18.09	18.40	18.24	18.49	18.21	19.96	17.93
Fe ₂ O ₃	2.85	4.27	4.26	4.89	1.38	3.39	3.27	2.55	2.52	3.52	2.72	3.88
FeO	6.75	5.53	5.28	5.02	6.87	6.52	6.24	7.02	6.65	5.76	5.63	6.17
MnO	0.17	0.16	0.15	0.16	0.15	0.17	0.15	0.16	0.16	0.16	0.14	0.20
MgO	5.45	4.38	4.31	4.48	3.82	5.46	4.38	4.79	5.03	5.23	3.00	5.94
CaO	10.35	9.88	9.95	9.64	10.45	10.38	9.87	9.74	9.79	9.90	9.98	10.45
Na ₂ O	2.31	2.21	2.09	2.37	2.41	2.18	2.35	2.34	2.46	2.15	2.59	1.97
K ₂ O	0.19	0.39	0.41	0.32	0.42	0.20	0.39	0.50	0.43	0.37	0.51	0.18
H ₂ O ⁺	0.28	0.39	0.63	0.47	0.36	0.29	0.53	0.36	0.53	0.33	0.71	0.75
H ₂ O ⁻	0.15	0.29	0.57	0.52	0.20	0.20	0.20	0.21	0.13	0.14	0.30	0.91
P ₂ O ₅	0.11	0.08	0.10	0.09	0.12	0.11	0.11	0.11	0.14	0.11	0.09	0.09
Total	99.96	99.47	100.25	99.74	99.78	100.47	99.56	100.03	100.55	100.10	100.19	100.52
	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	
	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	CA	CA	CA	CA	
wt. %												
SiO ₂	51.37	51.76	51.80	54.86	53.82	54.11	54.71	58.00	59.60	59.74	60.58	
TiO ₂	0.77	0.78	0.94	0.83	0.89	0.86	0.86	0.83	0.84	0.83	0.82	
Al ₂ O ₃	18.42	18.49	19.06	18.11	18.24	17.84	18.16	16.10	16.00	16.51	15.73	
Fe ₂ O ₃	3.47	3.67	3.40	3.23	2.87	2.40	2.46	2.00	2.60	2.39	2.60	
FeO	6.10	6.02	5.98	5.33	5.98	6.93	6.93	6.60	5.36	5.26	4.79	
MnO	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.15	0.14	0.13	0.14	0.12	
MgO	5.67	5.98	4.40	3.30	4.64	3.94	4.09	4.58	3.88	3.86	4.06	
CaO	11.07	10.21	11.06	9.04	9.03	8.96	9.18	7.72	6.96	6.89	6.93	
Na ₂ O	2.06	1.95	2.28	2.50	2.45	3.04	2.38	2.87	2.64	2.86	2.90	
K ₂ O	0.20	0.26	0.26	0.34	0.49	0.63	0.66	0.99	1.13	1.10	1.21	
H ₂ O ⁺	0.54	0.67	0.47	1.59	0.81	0.41	0.30	0.76	0.44	0.73	0.41	
H ₂ O ⁻	0.79	0.46	0.40	0.53	0.68	0.22	0.29	0.15	0.24	0.25	0.19	
P ₂ O ₅	0.09	0.09	0.11	0.15	0.09	0.11	0.13	0.12	0.10	0.10	0.09	
Total	100.71	100.50	100.32	99.97	100.15	99.61	100.30	100.86	99.92	100.66	100.43	

Rock name and sample locality

- Olivine-bronzite basalt, somma lava of the older Iwate volcano(Shirakawazawa).
- Bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Byobuone) 1710m.
- Olivine-bearing bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Byobuone) 1735m.
- Bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Byobuone) 1720m.
- Olivine-augite-bearing bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Onigajo).
- Augite-bearing olivine-bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Onigajo).
- Augite-bearing olivine-bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Onigajo) 1715m.
- Augite-olivine-bearing bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Onigajo) 1770m.
- Olivine-augite-bearing bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Sainokamizawa).
- Olivine-bearing augite-bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Onigajo) 1725m.
- Augite-bearing bronzite andesite, somma lava of the older Iwate volcano(Onigajo) 1655m.
- Augite-bronzite-bearing olivine basalt, lava of Kurokura 1330m.
- Bronzite-bearing augite-olivine basalt, lava of Kurokura 1565m.
- Augite-bearing olivine-bronzite basalt, lava of Kurokura 1325m.
- Augite-bearing bronzite basalt, lava of Kurokura 1380m.
- Augite-bearing hypersthene andesite, lava of Kurokura 1355m.
- Augite-hypersthene andesite, radial dyke of the older Iwate volcano.
- Olivine-augite-bearing hypersthene andesite, radial dyke of the older Iwate volcano.
- Olivine-augite-bearing hypersthene andesite, radial dyke of the older Iwate volcano.
- Olivine-augite-hypersthene andesite, lava of Onashiro cone(the older Iwate volcano).
- Olivine-bearing augite-hypersthene andesite, lava of Onashiro cone(the older Iwate volcano).
- Olivine-augite-hypersthene andesite, lava of Onashiro cone(the older Iwate volcano).

	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34
	CA	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH
wt. %											
SiO ₂	62.71	59.11	59.82	60.17	60.45	51.84	52.82	53.01	53.37	53.81	53.86
TiO ₂	0.79	1.04	0.99	0.99	1.02	0.77	0.82	0.82	0.82	0.82	0.82
Al ₂ O ₃	14.80	15.94	16.02	15.71	15.30	19.76	19.39	19.72	19.24	19.46	19.30
Fe ₂ O ₃	2.78	3.29	2.63	2.55	2.57	2.63	2.11	1.75	2.31	1.93	2.46
FeO	4.30	6.24	6.24	5.95	6.51	6.44	6.61	7.16	6.62	6.69	6.21
MnO	0.12	0.17	0.16	0.17	0.16	0.15	0.16	0.16	0.16	0.16	0.15
MgO	3.12	2.72	2.55	2.54	2.59	4.29	4.54	4.19	4.35	4.56	3.93
CaO	6.31	6.69	6.56	6.50	6.59	11.37	10.12	9.71	10.13	10.23	9.65
Na ₂ O	3.04	3.49	3.52	3.52	3.53	1.79	2.48	2.56	2.41	2.34	2.65
K ₂ O	1.30	0.73	0.96	0.73	0.75	0.20	0.35	0.42	0.39	0.37	0.49
H ₂ O +	0.33	0.32	0.43	0.92	0.35	0.31	0.48	0.51	0.62	0.09	0.59
H ₂ O -	0.14	0.19	0.11	0.15	0.05	0.36	0.22	0.18	0.11	0.11	0.30
P ₂ O ₅	0.16	0.12	0.17	0.18	0.17	0.06	0.07	0.09	0.08	0.07	0.12
Total	99.90	100.05	100.16	100.08	100.04	99.97	100.17	100.28	100.61	100.64	100.53
	35	36	37	38	39	40	41	42	43	44	45
	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	TH	Cpx
wt. %											
SiO ₂	54.30	51.09	51.19	51.29	51.77	51.83	50.19	50.39	53.22	54.53	50.94
TiO ₂	0.88	0.78	0.79	0.95	0.88	0.79	0.80	0.84	0.88	1.21	—
Al ₂ O ₃	18.73	18.23	18.35	19.91	19.68	17.57	19.33	19.66	17.18	14.93	—
Fe ₂ O ₃	1.60	2.22	1.67	2.16	2.65	2.39	2.64	2.44	2.34	3.93	—
FeO	7.32	7.55	7.60	6.85	6.21	6.97	7.09	7.30	7.28	7.42	—
MnO	0.17	0.16	0.16	0.16	0.15	0.16	0.19	0.18	0.18	0.21	—
MgO	4.34	6.91	6.69	4.34	4.32	7.19	6.17	5.97	6.09	5.17	17.06
CaO	9.28	10.68	10.72	11.20	11.20	10.26	10.57	10.69	9.74	8.64	17.43
Na ₂ O	2.59	1.96	2.06	2.30	2.34	1.96	2.14	2.23	2.50	2.70	—
K ₂ O	0.55	0.15	0.21	0.21	0.24	0.20	0.19	0.16	0.28	0.38	—
H ₂ O +	0.48	0.30	0.28	0.16	0.30	0.19	0.45	0.16	0.10	0.67	—
H ₂ O -	0.19	0.04	0.15	0.05	0.05	0.03	0.46	0.07	0.12	0.02	—
P ₂ O ₅	0.10	0.09	0.08	0.09	0.10	0.08	0.07	0.06	0.11	0.15	—
Total	100.53	100.16	99.95	99.67	99.89	99.62	100.29	100.15	100.02	99.96	—

continued.

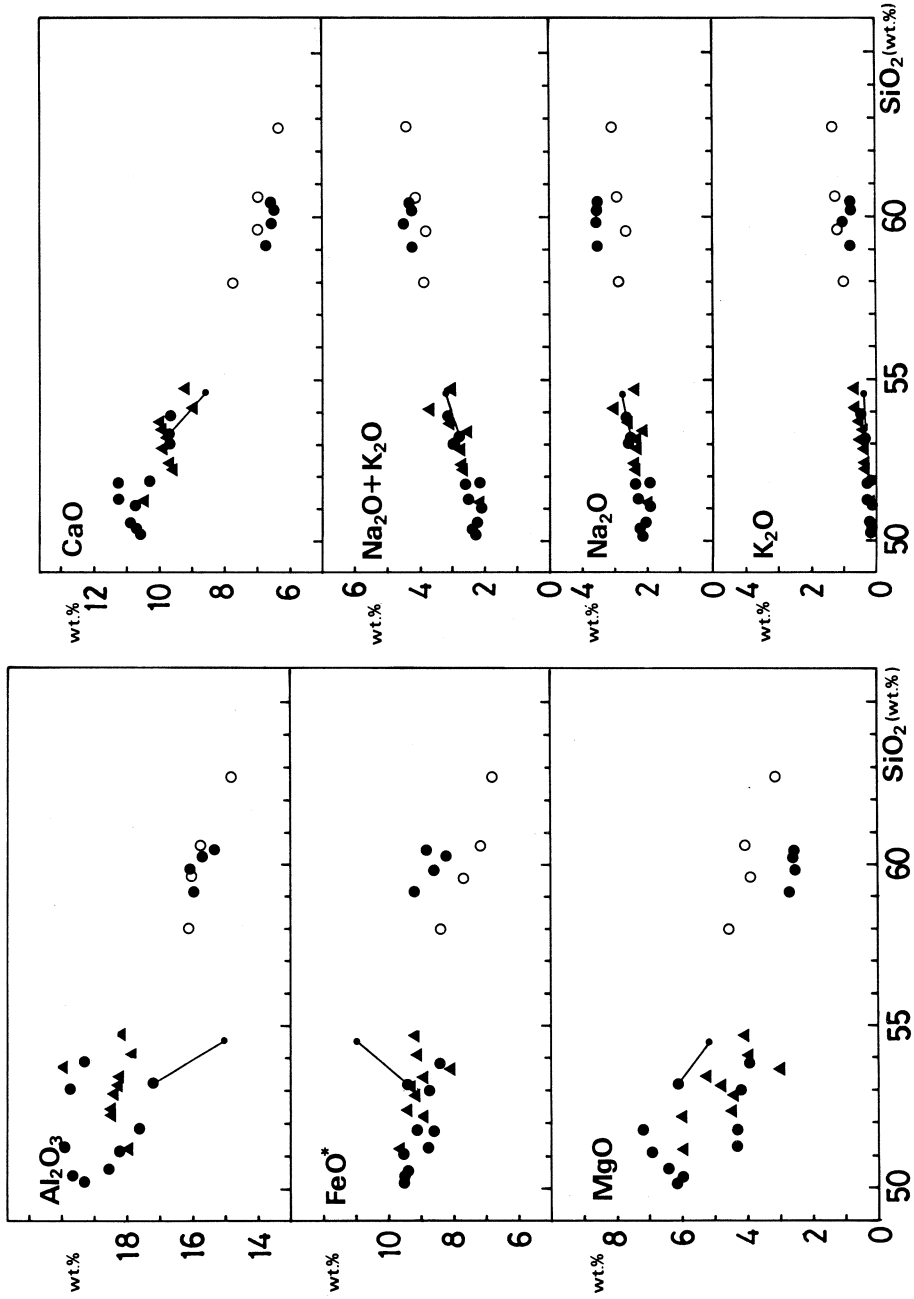
23. Olivine-hypersthene-augite andesite, lava of Onashiro cone(the older Iwate volcano) 1230m.
24. Olivine-bearing hypersthene-augite andesite, lava of Onashiro cone(the older Iwate volcano) 1320m.
25. Olivine-augite-hypersthene andesite, lava of Okama dome(the older Iwate volcano) 1430m.
26. Augite-bearing hypersthene andesite, lava of Okama dome(the older Iwate volcano) 1420m.
27. Augite-hypersthene andesite, lava of Okama dome(the older Iwate volcano) 1435m.
28. Olivine-bearing augite-hypersthene andesite, lava of Okama dome(the older Iwate volcano) 1430m.
29. Augite-bearing bronzite basalt, somma lava of the younger Iwate volcano 1775m.
30. Augite-olivine-bronzite andesite, somma lava of the younger Iwate volcano(Omisaka).
31. Olivine-bearing augite-bronzite andesite, somma lava of the younger Iwate volcano(1890m).
32. Olivine-bronzite andesite, somma lava of the younger Iwate volcano(Onimatazawa).
33. Augite-olivine-bronzite andesite, somma lava of the younger Iwate volcano(Onimatazawa).
34. Olivine-bearing augite-bronzite andesite, brock in pyroclastic flow of the younger Iwate volcano.
35. Olivine-bearing augite-hypersthene andesite, somma lava of the younger Iwate volcano(Omisaka).
36. Olivine basalt, lava of Yakushidake cone(the younger Iwate volcano) 1450m.
37. Olivine basalt, lava of Yakushidake cone(the younger Iwate volcano) 1485m.
38. Olivine basalt, lava of Yakushidake cone(the younger Iwate volcano) 1930m.
39. Olivine basalt, lava of Yakushidake cone(the younger Iwate volcano) 1950m.
40. Olivine basalt, lava of Yakushidake cone(the younger Iwate volcano) 2000m.
41. Bronzite-olivine basalt, lava of Myokodake cone(the younger Iwate volcano) 1950m.
42. Bronzite-olivine basalt, lava of Myokodake cone(the younger Iwate volcano) 1965m.
43. Olivine-bearing augite-bronzite andesite, lava of Yakehashiri(the younger Iwate volcano).
44. Groundmass of 43(Yakehashiri lava).

第3表 Trace element abundance in the rocks from Iwate volcano.

	1	2	4	5	7	8	10	11	12	18	19	20	21	23	24	
Sc			24.9*		22.1	32.5	33.3				31.6	30.6*	22.7	22.7	23.9	23.8
V			270		223	235	254	203	165		213	257	216	181	186	161
Cr			24*		20	50.4	42	14			18	19*	152	78.3	88.3	53.5
Co			28		29	28.5	29	21			26	27.5*	27.0	23.9	22.7	19.0
Ni			27		18	12.3	18	12	71		14	16	39.4	28.3	45.8	20.5
Cu			34		43	37	33	35			35	45	34	24	11	
Pb			tr		3	8	2	1			2	5	7	5	5	
Zn					71	71	127				85	86	83	47	106	
Rb					9.6	11.2	13.1				19.2	27.3	34.8	32.3	38.6	
Cs					1.34	0.59					2.24	0.93	1.65	1.48	0.58	
Sr					288	279	308				260	231	237	229	237	
Ba-NA			128	112#	120	90	85				151#	214#	240	260	320	
La-NA			5.4		4.5	5.0	4.6				6.5	6.4	8.6	9.7	12.4	
Ce					10.9	11.0	10.6				15.3		17.3	19.5	19.8	20.2
Ce-NA			19.1		12.9	13.2	12.6				20.6	20.0		22.9	29.3	26.3
Nd-ID						7.71										14.29
Sm-NA			2.4		1.7	1.9	1.8				2.6	3.3		3.3	4.3	4.5
Eu-NA			0.76		0.64	0.64	0.70				1.10	1.04		0.88	1.03	1.25
Gd-ID						2.18										4.49
Tb-NA			0.47		0.30	0.30					0.50			0.71	0.81	0.85
Dy-ID						2.51										4.99
Er-ID						1.74										2.97
Yb-NA			1.6		1.27	1.30	1.3				1.7	1.7		2.4	2.8	
Lu-NA			0.23		0.20	0.21	0.20				0.28	0.28		0.37	0.41	0.46
Y					16.1	17.6	19.3				17.0		26.5	28.6	26.3	32.0
Nb					3.2	3.4	4.2				4.5		4.4	6.2	4.6	6.7
Hf-NA			1.2		1.1	1.1	1.2				1.5	1.6		2.9	3.4	3.8
Zr					50.5	55.9	50.0				62.2		96.9	106	130	120
U-NA			0.27		0.43	0.43					0.43	0.46		0.91	1.0	0.91
Th-NA			0.90		1.06	1.87	1.12				1.8	2.1		3.2	3.8	3.8
F	75	105	145		121	136	128	197	122		174	135	209	223	339	359
⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr					0.704788		0.704734				0.705056		0.704373			0.704380

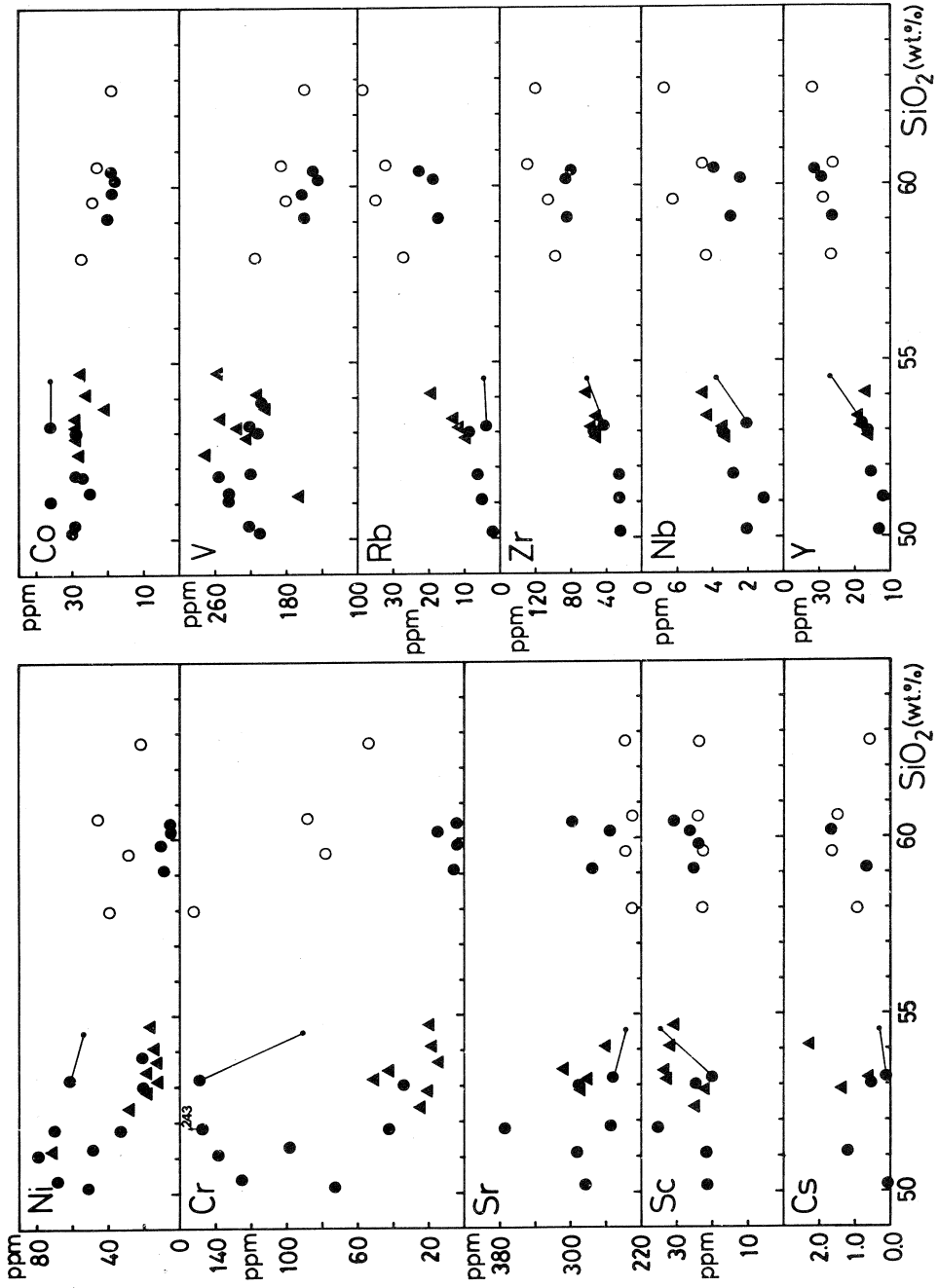
	25	26	27	28	31	34	36	38	39	40	41	42	43	44	Cpx	
Sc	25.0	23.6*	26.4	30.8	24.5		21.6			35.2		21.4		20.1	34.9	70.1
V	161	163	145	151	212	208	245	245	256	220	211	222	222			
Cr	6.4	4	15	4	34.3		138	98	42	243	73	125	149	91.3	2352	
Co	21.9	19	18	19	29.3		36	25	27	29	30	29	35.6	36.1	62.6	
Ni	7.8	10	5	5	19.7	21	79	48	33	70	51	68	55.8	54.1	221	
Cu	31	30	30	30			34	65	58	20	45	37	49			
Pb	2	4	2	4			2	6	2	7	4	4	3			
Zn	99		120	112	51		74		86		84		77	99	94	
Rb	17.5		18.7	22.6	8.9		4.9		6.1		2		4.1	4.8		
Cs	0.65		1.64		0.54		1.17				0.04		0.11	0.29		
Sr	276		255	298	291		293		375	254#	283		253	238	35.7	
Ba-NA		240	198#	208#			62#			65.1#			94.9#			
La-NA		9.5	8.28\$	6.7			2.0				2.0					
Ce	15.1		14.6	13.7	10.2		5.2		6.1		4.6		7.7	12.1		
Ce-NA		23.5	20.65\$	20.6							6.1					
Nd-ID			14.05													
Sm-NA		4.2	4.27\$	3.4			1.3				1.3					
Eu-NA		1.30	1.650\$	1.35			0.53				0.51					
Gd-ID			5.46													
Tb-NA		0.74		0.75			0.29									
Dy-ID			5.80													
Er-ID			3.67													
Yb-NA		3.4	3.24\$	2.6			1.1				0.20					
Lu-NA		0.40	0.502\$	0.38			0.15									
Y	26.4		29.3	31.2	16.2		12.3		15.6		13.2		17.4	27.3	11.5	
Nb	3.0		2.4	3.9	3.4		1.1		2.8		2.1		2.1	3.8		
Hf-NA		2.5		2.2			0.19									
Zr	85.0		85.3	80.4	52.6		24.8		24.7		24.2		43.5	61.8		
U-NA		0.65		0.44			0.07									
Th-NA		2.3		1.5			0.32									
F	246	283	257	247	153	148	95	106	101	111	62	94	125			
⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	0.704404			0.704410			0.704370		0.704350		0.704319		0.704350			

NA & * : NAA method, # : ICP method and ID & \$: Isotope dilution method⁴⁾



• (small solid circle): Yakehashiri groundmass

第3図 SiO₂ (wt.%) vs. major elements (wt.%) for the rocks from Iwate volcano. The symbols are the same as those in Fig. 1.



第4図 SiO₂ (wt.%) vs. trace elements (ppm) for the rocks from Iwate volcano.
The symbols are the same as those in Fig. 1 and 3.

はイオン電極法によって、それぞれ定量した。第3表には、同一試料についての増田による中性子放射化分析の結果、小沼・西田によるプラズマ発光分光分析結果、藤巻による同位体希釈法による分析結果⁴⁾、ならびに倉沢によるストロンチウム同位体比をとともに示してある。表中のCpxは焼走り溶岩中の普通輝石斑晶の組成である。

全岩の主成分元素とSiO₂重量%との関係は第3図に示した。また、第4図には光量子放射化分析により得られた結果を、横軸にSiO₂をとった組成変化図に点示してある。

§ 5. 岩手火山噴出物の岩石化学的特徴

岩手火山は東北本州弧の火山フロント上に位置する、ソレイト系列の玄武岩類を主体とする火山である。岩手火山のソレイト系列岩及びカルク・アルカリ系列岩は、主成分元素については、那須火山帯北帯の、それぞれの系列に属する岩石と比較した場合、おおむね一致した組成をもつ。但し、全鉄は、玄武岩から苦鉄質安山岩では平均より低く、安山岩では、逆に高い。また、玄武岩から苦鉄質安山岩にかけて、Al₂O₃とMgOのばらつきが大きい(第3図)。すでに知られているようにソレイト系列の岩石とカルク・アルカリ系列の岩石との間にはNiとCrの組成に大きな差がある。第4図に示されるように各系列が別の組成変化径路を有しながら、ともに単調に減少している。CoとSrもSiO₂の増加とともに減少している。Rb, Zr, Nb, YとCeはSiO₂の増加にともない増加する。

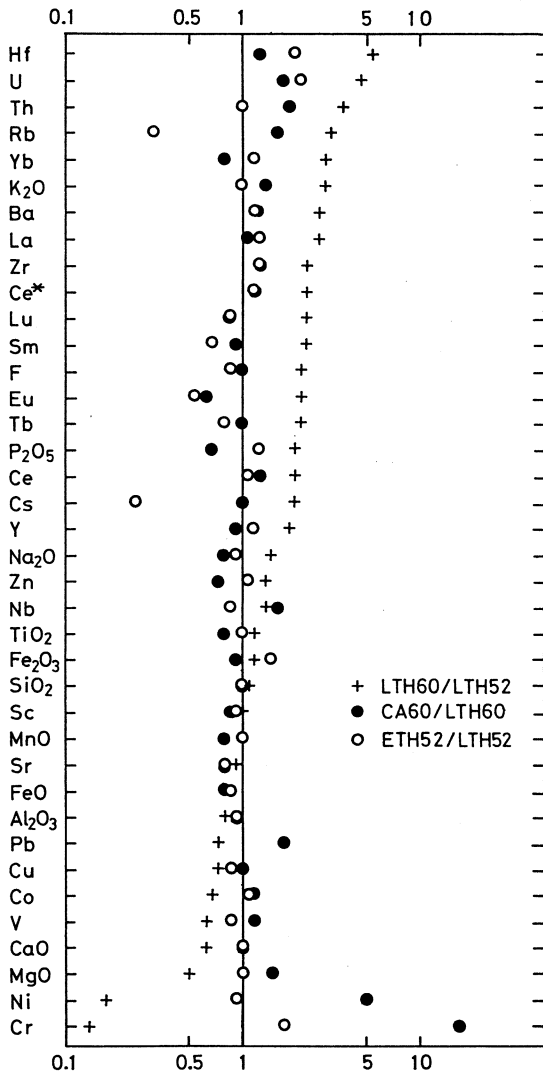
本火山を構成する前述の3グループの岩石についてその組成関係を比較検討するために各組成変化径路に対する曲線のあてはめを行った。得られた式から各SiO₂値について計算により求めたあてはめ値を第4表に示す。表中の元素名についた星印は、曲線のあてはめに中性子放射化分析の結果を用いたことを示す。

第5図はあてはめ値を用いて作成した規格化図である。元素の配列は後期ソレイトグループにおいて分化にともない、より濃集する元素を上、より減少する元素を下にとってある。この岩石グループにおいてはHfとUが分化にともなう濃集度が最も大きく、一方、NiとCrは急激に減少することが第5図からわかる。またインコンパティブル元素をその濃集度の程度によっていくつかのグループに細分できることがわかる。

岩手火山の前期ソレイト・グループと後期ソレイト・グループの組成をSiO₂ = 52%と比較すると、第5図に示されているように、前期ソレイト系列では、後期ソレイト系列よりもP₂O₅, Cr, Co, Ba, La, Yb, Ce, Y, Hf, ZrとUに富み、そして⁸⁷Sr/⁸⁶Srが高い。逆にAl₂O₃, Na₂O, Sc, V, Cu, Rb, Nb, Cs, F, SrそしてSmやEuに乏しくなっている。また、SiO₂ = 60%において、後期ソレイト・グループとカルク・アルカリ・

第4表 Calculated abundances of elements from regression curves in the tholeiitic rocks and calc-alkali rocks from Iwate volcano.

	ETH52	ETH54	ETH56	LTH51	LTH52	LTH54	LTH56	LTH58	LTH60	CA58	CA60	CA62
wt. %												
SiO ₂	52.00	54.00	56.00	51.00	52.00	54.00	56.00	58.00	60.00	58.00	60.00	62.00
TiO ₂	0.86	0.88	0.84	0.80	0.82	0.86	0.90	0.95	0.99	0.83	0.83	0.81
Al ₂ O ₃	18.74	18.75	18.30	19.24	19.29	19.11	18.53	17.53	16.08	16.53	15.98	15.42
Fe ₂ O ₃	3.51	3.07	2.64	2.18	2.23	2.33	2.43	2.53	2.63	1.99	2.49	2.76
FeO	6.20	6.18	6.16	7.15	6.97	6.67	6.44	6.31	6.26	6.62	5.27	4.48
MnO	0.16	0.15	0.14	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.14	0.13	0.12
MgO	5.29	4.18	3.46	5.82	5.13	4.16	3.49	3.01	2.65	4.55	4.01	3.46
CaO	10.59	9.68	8.87	10.93	10.59	9.83	8.95	7.93	6.78	7.70	7.02	6.53
Na ₂ O	2.14	2.44	2.74	2.09	2.22	2.50	2.80	3.13	3.48	2.76	2.85	2.94
K ₂ O	0.26	0.44	0.62	0.19	0.26	0.39	0.53	0.66	0.79	0.98	1.13	1.25
P ₂ O ₅	0.09	0.11	0.12	0.06	0.07	0.09	0.11	0.13	0.15	0.09	0.11	0.12
Total	99.84	99.88	99.89	99.62	99.74	100.10	100.34	100.34	99.97	100.19	99.82	99.89
ppm												
Sc	24.0	29.6	34.5	24.6	25.9	27.5	28.3	28.1	26.9	22.7	23.2	23.6
V	201	235	242	230	230	220	200	176	156	215	189	169
Cr	76.7	21.6	12.6	203	42.3	16.4	10.2	7.4	5.8	148	93.8	60.9
Co	32.9	26.9	21.0	30.0	28.8	26.6	24.3	22.0	19.7	27.1	23.9	20.7
Ni	34.7	15.5	10.0	80.1	35.5	16.8	11.0	8.2	6.5	43.0	33.7	26.6
Cu	38	36	34	43	42	39	36	34	31	45	32	18
Pb	—	—	—	4.1	4.0	3.8	3.6	3.3	3.1	5.7	5.5	5.4
Zn	87	89	91	72	76	84	92	100	107	72	79	86
Rb	1.9	14.6	27.4	4.1	5.8	9.2	12.6	15.9	19.3	28.0	32.3	36.5
Cs	0.15	1.54	2.93	0.51	0.58	0.73	0.88	1.02	1.17	1.36	1.19	1.03
Sr	245	285	180	301	298	293	288	283	278	231	233	235
Ba*	88	123	158	54	71	105	138	172	206	206	249	291
La*	3.63	5.54	7.45	2.16	2.78	4.04	5.29	6.55	7.80	6.22	8.67	11.12
Ce	7.5	12.6	17.7	5.8	6.7	8.6	10.5	12.4	14.3	17.8	18.9	20.1
Ce*	10.7	16.9	23.0	7.0	8.6	11.6	14.7	17.7	20.8	24.6	25.6	26.5
Sm*	1.13	2.37	3.61	1.35	1.63	2.17	2.7	3.26	3.81	3.01	3.63	4.26
Eu*	0.35	0.84	1.34	0.53	0.62	0.81	1.00	1.19	1.38	0.67	0.90	1.13
Tb*	0.28	0.41	0.54	0.28	0.33	0.43	0.52	0.62	0.72	0.66	0.74	0.81
Yb*	1.13	1.50	1.87	0.69	0.94	1.44	1.94	2.45	2.95	1.06	2.36	3.65
Lu*	0.15	0.23	0.32	0.14	0.17	0.23	0.29	0.35	0.41	0.32	0.37	0.43
Y	18.4	17.4	16.4	13.1	14.8	18.2	21.6	25.1	28.5	25.8	27.9	30.0
Nb	2.1	4.0	5.9	2.2	2.3	2.5	2.7	2.9	3.2	4.5	5.3	6.1
Hf*	0.78	1.32	1.85	0.16	0.39	0.86	1.32	1.79	2.25	2.50	3.03	3.55
Zr	42.3	56.2	70.1	26.9	33.0	45.3	57.6	69.9	82.2	101	111	121
U*	0.24	0.39	0.54	0.06	0.11	0.22	0.32	0.42	0.52	0.97	0.95	0.93
Th*	0.49	1.55	2.61	0.32	0.48	0.82	1.15	1.49	1.82	3.13	3.41	3.70
F	102	147	192	92	111	147	183	219	255	204	268	332
⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	0.704372	0.704880	0.705388	0.704344	0.704351	0.704365	0.704379	0.704393	0.704407	0.704373	0.704376	0.704379



第5図 Toleiite (LTH)-normalized element patterns in the differentiates, early stage tholeiite (ETH) and calc-alkalic rock (CA).

グループの岩石を比較すると、第5図から明らかのように、インコンパティブル元素のうちRb, Th, U, K, Hf, Zr, Nb, LaとCeはカルク・アルカリ系列の岩石に多く、Yb, LuとEuはソレイト系列の岩石で多い。P₂O₅, Na₂O, TiO₂, SrとScがソレイト系列で高いのに対してコンパティブル元素であるCo, MgO, Cr, NiとVはカルク・アルカリ系列の岩石で富んでいる。

§ 6. マグマの分別結晶作用の検討

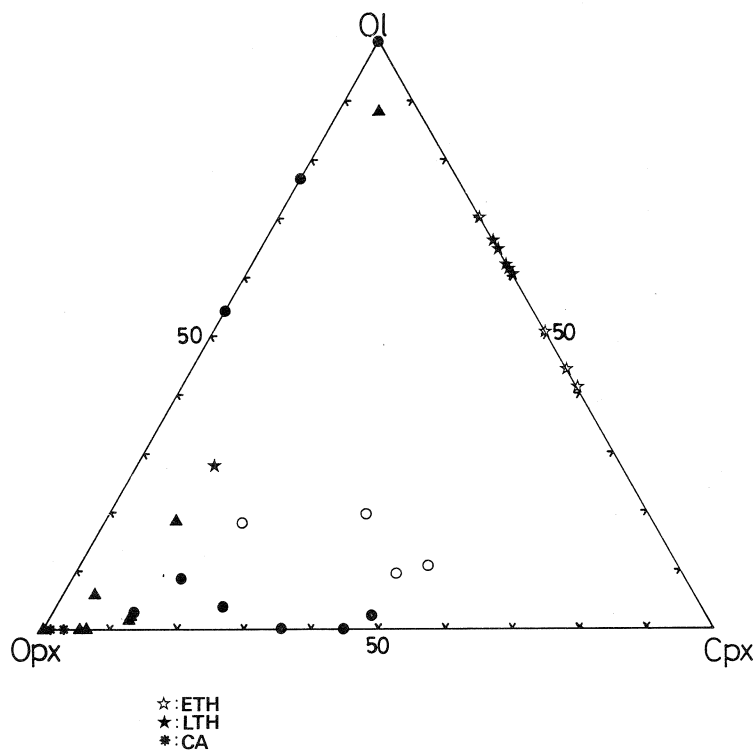
6.1 ソレイト系列の玄武岩ないし苦鉄質安山岩

一般に、ソレイト系列に属する岩石はソレイト質玄武岩から、主に斑晶鉱物の結晶分別作用によって形成されると考えられている。岩手火山に産するソレイト系列の玄武岩から安山岩について、その斑晶鉱物組合せやその量比の変化から、ソレイト質マグマの分別結晶作用を

検討すると、玄武岩から苦鉄質安山岩にかけては斜長石とカンラン石斑晶がみられ、苦鉄質安山岩では斑晶は主に斜長石と斜方輝石とから構成されるようになる。そしてさらに安山岩では、少量の普通輝石と磁鉄鉱がこれらに加わる。すなわち、ソレイト系列では、カンラン石、斜長石、斜方輝石が分別結晶作用で主要な役割を演じているようにみえる。しかしながら、焼走り溶岩について、主に斜長石と斜方輝石からなる斑晶を取り除いた石基部分の組成を分析したところ、その組成は全岩が示す組成変化径路からはずれた位置に点示

される(第3図)。このことは、現在、岩石中にみられる斑晶と、それが全岩から取り去られて形成される残液とが作るトレンドは岩手火山の噴出物のうち、特に苦鉄質な岩石が作る全岩化学組成変化径路とは異なることを意味している。

そこで、この問題を更に検討するために、ソレアイト系列の組成変化径路への曲線のあてはめから得られた組成(第4表)を使用してWright and Doherty法⁵⁾によって分別鉱物の組合せとその量比の検討を行った。分別鉱物の組成についてはEPMAによる分析結果を参考にした。得られた計算結果を、実際の斑晶モード組成とともにカンラン石-普通輝石-斜方輝石三角図(第6図)に点示した。その結果によれば、玄武岩質組成のマグマから苦鉄質安山岩組成のマグマをみちびくためには、斜長石の他にカンラン石と普通輝石を主要な分別鉱物として晶出分別する必要がある。



第6図 Plots in weight proportions modal olivine (Ol) : orthopyroxene (Opx) : clinopyroxene (Cpx).

Fractionated minerals ratios calculated by the method of Wright and Doherty⁴⁾ also plotted by stars.

Other symbols are the same as those in Fig. 1.

すなわち、ソレイト系列の玄武岩ないし苦鉄質安山岩が示す全岩組成変化径路は、現在その中にみられる斑晶鉱物のみの分別結晶作用では説明できず、玄武岩の斑晶としてはほとんど認められない普通輝石がカンラン石、斜長石とともに分別して形成されたものである可能性を考える必要がある。

仮に、後者の可能性を採用した場合は次のようなマグマの形成史を考えることができる。すなわち地下深所(20 kmより浅い)で初生玄武岩質マグマはカンラン石、斜長石とともに普通輝石を分別して、組成をより分化した玄武岩ないし苦鉄質安山岩マグマに変化させながら上昇し、火山体直下の浅いマグマ溜りに達した。このカンラン石、普通輝石と斜長石斑晶の分別で形成された一連のマグマがさらに、浅いマグマ溜りおよび火道中でカンラン石(現在、多くは残晶)、斜長石と斜方輝石を斑晶として晶出しながらも、あまりそれらを分別せずに地表に噴出し、現在みられるソレイト系列玄武岩~苦鉄質安山岩を形成した。つまり、現在地表でみられるこれらの岩石が示す一連の組成変化径路は地下深所でのカンラン石+普通輝石+斜長石斑晶の晶出分別ではほぼ形成され、現在火山岩中に斑晶としてみられる鉱物の晶出分別は玄武岩から苦鉄質安山岩までの組成変化にはあまり影響を与えていなかったと考えることができる。後期に晶出した斑晶鉱物の分別は、現在ソレイト系列の玄武岩や苦鉄質安山岩にみられる Al_2O_3 やMgO 値のばらつきの形成に関与したかもしれない。

第5表 Fractionated mineral assemblages and their ratios calculated by the method of Wright and Doherty⁴⁾ for the rocks from Iwate volcano.

Parent	Daughter	ΣR^2	Ol	Cpx	Opx	Mt	Pl	PH%	Liq %
ETH52	ETH53	0.2144	1.31	1.93	—	—	3.76	7.00	91.94
ETH53	ETH54	0.1741	1.08	1.39	—	—	3.59	6.06	92.92
ETH54	ETH55	0.1452	0.95	0.93	—	—	3.56	5.44	93.61
ETH55	ETH56	0.1309	0.94	0.40	—	—	3.64	4.98	94.17
LTH51	LTH52	0.0801	2.17	1.33	—	—	4.43	7.93	91.24
LTH52	LTH53	0.0790	1.72	1.08	—	—	4.18	6.98	92.20
LTH53	LTH54	0.0787	1.41	0.93	—	—	4.17	6.51	92.73
LTH54	LTH55	0.0770	1.24	0.69	—	—	4.17	6.10	93.21
LTH55	LTH56	0.0690	1.11	0.58	—	—	4.30	5.99	93.43
LTH56	LTH57	0.0615	0.46	0.21	1.03	—	4.76	6.46	92.95
LTH57	LTH58	0.0064	—	0.30	1.60	0.47	5.37	7.74	92.35
LTH58	LTH59	0.0061	—	0.07	1.53	0.45	5.40	7.45	92.73
LTH59	LTH60	0.0035	—	—	1.38	0.41	5.39	7.18	93.05
LTH60	LTH61	0.0032	—	—	1.26	0.39	5.45	7.10	93.24
YK-bulk	YK-GM	0.5745	—	—	9.39	—	16.99	26.38	74.00
CA56	CA58	1.0670	—	0.13	11.48	0.77	14.56	26.94	74.32
CA58	CA60	0.2553	—	—	7.64	0.47	10.24	18.35	81.96
CA60	CA62	0.0297	—	—	4.85	0.25	7.35	12.45	87.05
CA62	CA64	0.0210	1.73	—	0.01	0.55	4.95	7.24	92.17

6.2 ソレライト系列の安山岩

ソレライト系列の安山岩は本火山ではごく少量産するにすぎない。Wright & Doherty法による結果(第4表)および第4図から判断して、ソレライト系列玄武岩ないし苦鉄質安山岩組成のマグマから、現在斑晶鉱物としてみられる斜長石、斜方輝石、カンラン石とともに少量の普通輝石を晶出分別することにより、ソレライト系列の安山岩を形成できる。この考えは、ソレライト系列の安山岩が量的に少ないことから無理なく適用できる。

6.3 カルク・アルカリ系列安山岩

カルク・アルカリ系列安山岩は、第4表および第4図に示されているように、より苦鉄質なマグマから、主に、斜長石と斜方輝石が少量の磁鉄鉱などとともに晶出分別することによって、形成しうる。計算から得られた分別鉱物の組合せと量比は、現在ソレライト系列の玄武岩中にみられるものに近く、カルク・アルカリ系列の安山岩中に実際にみられる斑晶鉱物組合せとは、一致しない。

§ 7. さいごに

岩手火山噴出物はそれぞれ特有の岩石学的、地球化学的特徴をもった3グループ、すなわち、ストロンチウム同位体比が高い前期ソレライト系列と、それが低い後期ソレライト系列ならびにカルク・アルカリ系列の岩石からなる。

光量子放射化分析法等により得られた分析値を用いて各グループに属する岩石の平均組成変化径路を計算し、それにもとづいて分化にとまらぬ組成変化および各岩石グループ間の組成差を論じた。さらに各組成変化径路について、対応する分別結晶作用を検討した。

ソレライト系列の玄武岩ないし苦鉄質安山岩が示す組成変化径路は、既存斑晶の分別では説明できず、おそらく、地下深所でのカンラン石、普通輝石と斜長石を主とした分別結晶作用により、一連の組成変化を生じたと推定された。ソレライト系列の安山岩は、より苦鉄質なマグマから、現在みられる斑晶を晶出分別することにより形成しうる。カルク・アルカリ系列安山岩の組成変化径路も実際にみられる斑晶鉱物の分別では説明できない。

本研究にあたり、東北大学核理研、八木益男助教授、榊本和義博士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R I センターの藤田稔教授、山寺亮博士をはじめとする職員の方々に終始お世話になった。大阪府立大の故増田康之博士には、多数の試料について、中性子放射化分析をしていただいた。東北大学岩鉱教室の藤巻宏和博士には貴重なデータを引用

させていただいた。茨城大学理学部の小沼直樹教授，筑波大学分析センターの西田憲正博士にはプラズマ発光分光分析法による微量元素の定量を行っていただいた。また地質調査所倉沢一博士にはストロンチウム同位体比を測定していただいた。以上の方々に厚く御礼申し上げる。なお，本研究の一部に文部省科学研究費（Nos. 59740412, 59540509 と 59420015）を使用した。

参 考 文 献

- 1) 石川賢一，吉田武義，青木謙一郎：核理研研究報告 **15**（1982）257.
- 2) K. Onuma：岩鋳 **47**（1962）192.
- 3) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki：Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **15-1**（1981）101.
- 4) H. Fujimaki：岩鋳 **76**（1981）93.
- 5) T. L. Wright and P. C. Doherty：Geol. Soc. Am. Bull. **81**（1970）1995.

那須北帯・南蔵王火山噴出物の地球化学的研究

理学部地学

酒寄淳史・吉田武義・青木謙一郎

§ 1. はじめに

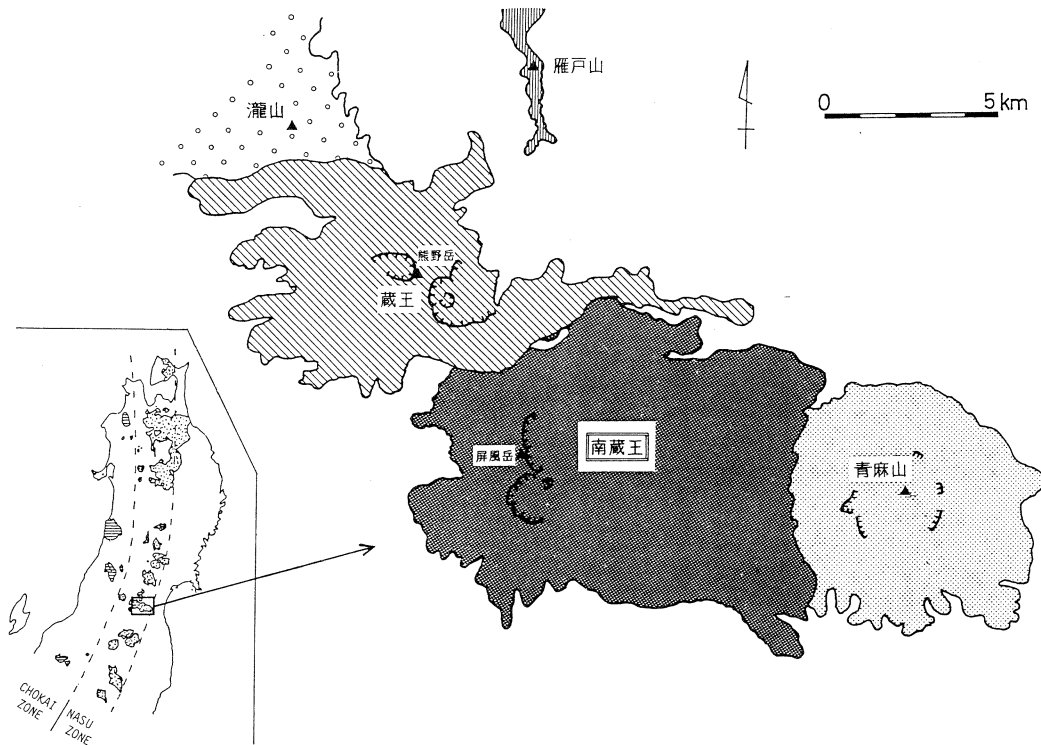
南蔵王火山は東北本州弧，那須火山帯北帯に属する第四紀火山である。本火山は瀧山火山，蔵王火山，青麻火山とともに蔵王火山群を構成する。これまでの研究¹⁾によれば，東北本州弧の火山フロント上では北から南へ火山岩の化学組成が系統的に変化している。蔵王火山ならびに南蔵王火山はそのような島弧に沿った組成変化のうちの K_2O 量が明瞭に変化する位置にある。すなわち，蔵王火山より北側の火山に比較して蔵王火山及びその南側の火山ではより K_2O 量が多い傾向がある。一方，蔵王火山群，白鷹火山そして月山火山の並びは八幡平火山，森吉火山，寒風火山の並びとともに明瞭な島弧を横切る方向への火山岩組成の変化が認められるところである。本論ではこのような火山岩組成の空間的变化を考えるうえで重要な位置にある南蔵王火山を構成する噴出物の主成分ならびに微量成分元素組成を示し，その特徴について述べる。

§ 2. 南蔵王火山の概要

南蔵王火山は東北本州弧の脊梁部に位置し，北側で蔵王火山，東側で青麻火山と接している(第1図)²⁾。本火山は6つの山体より成り(第1表)，そのうち馬ノ神岳，烏帽子岳，屏風岳，不忘山の4つの噴出中心は一地域に集中している。山体の西側地域では基盤が高く，東側で低い。この基盤の高まりの東側斜面上に火山体が形成されている³⁾。南蔵王火山の活動は3期に分けられる。第1期は4つの山体を含むが，岩石はすべて安山岩である。第2期では，玄武岩，玄武岩質安山岩の噴出の後，安山岩の噴出が続く。第3期の噴出物は最初，主に玄武岩質安山岩であり，後，玄武岩が加わる。本火山では，噴出物の組成が活動とともに，次第に

第1表 Summary of the volcanic activity of Minami Zao volcano.

ステージ	山体	岩系	主な岩石
3	不忘山	P	玄武岩質安山岩， 玄武岩
			玄武岩質安山岩
2	屏風岳	H	安山岩
		P	玄武岩質安山岩
1	烏帽子岳	H	安山岩
	馬ノ神岳		
	杉ヶ峰	P	
	野ノ森山	H	



第1図 Map showing the location of Minami Zao volcano.

苦鉄質になる傾向が認められる。

§ 3. 岩石記載

南蔵王火山を構成する岩石は玄武岩から安山岩に及び、岩系はピジョン輝石質岩系(P-series)と紫蘇輝石質岩系(H-series)がともに認められる。第2表に分析岩石試料のモード組成を示す。本火山構成岩石の斑晶量は一部のものを除き、30～40%に達する。

玄武岩類としては、普通輝石-カンラン石玄武岩、紫蘇輝石-カンラン石玄武岩と普通輝石-紫蘇輝石-カンラン石玄武岩があり、ともにピジョン輝石質岩系に属する。玄武岩質安山岩としては、含カンラン石-普通輝石-紫蘇輝石安山岩と普通輝石-紫蘇輝石安山岩が主にみられ、まれに紫蘇輝石安山岩、含石英普通輝石-カンラン石安山岩も産する。これらの多くはピジョン輝石質岩系に属するが、紫蘇輝石質岩系に属する岩石もある。安山岩類としては、含カンラン石普通輝石-紫蘇輝石安山岩と普通輝石-紫蘇輝石安山岩を産し、その大部分は紫蘇輝石質岩系に属する。但し、杉ヶ峰山体を構成する岩石と第3期噴出物中最もSiO₂に富む岩石は例外的にピジョン輝石質岩系に属する。紫蘇輝石質岩系に属する安山岩とピジョン輝石質岩系

第2表 Phenocryst assemblages and modal compositions (volume %) of the rocks of Minami Zao volcano.

Stage	Sample No.	Rock Series	Pl	Hy	Au	Mt	Ol	Qz	Gm	
3	不忘山	P	34.8	5.0	3.5	0.4	tr	—	56.1	Pl: Plagioclase, Hy: Hypersthene, Au: Augite, Mt: Magnetite, Ol: Olivine, Qz: Quartz, Gm: Groundmass.
		P	18.5	2.6	0.8	—	tr	—	78.1	
		P	20.9	0.6	—	tr	—	—	78.4	
		P	32.1	11.4	2.7	—	tr	—	53.8	
		P	36.4	2.6	0.8	—	tr	—	60.2	
		P	28.1	0.6	0.4	tr	5.0	—	65.8	
		P	34.0	0.2	0.5	0.1	4.5	—	60.6	
2	屏風岳	H	30.1	6.5	2.9	0.9	—	—	59.6	
		H	25.6	6.5	2.5	0.8	0.4	—	64.3	
		H	2.8	1.4	0.4	—	—	—	95.4	
		P	17.4	0.2	1.7	tr	2.0	tr	78.6	
		P	25.6	—	0.2	tr	2.1	—	72.0	
		P	36.9	0.4	tr	tr	5.3	—	57.4	
		P	34.5	—	1.6	tr	9.3	—	54.6	
1	烏帽子岳	H	30.1	2.0	2.1	0.4	3.0	—	62.4	
		H	31.3	3.8	3.4	0.7	—	—	60.5	
	杉ヶ峰	P	24.6	3.1	5.3	1.4	0.3	—	65.4	
			馬ノ神岳	1-1	H	23.6	4.4	5.5	1.5	tr

に属する安山岩の斑晶鉱物組合せには明瞭な差異は認められないが、杉ヶ峰の岩石は、他のものよりカンラン石斑晶を多少多く含む傾向があり、また、第3期の安山岩にはカンラン石を包有した斜長石巨斑晶を普遍的に含むという特徴がある。安山岩質溶岩中には同源捕獲岩がみられることがある。その岩質は紫蘇輝石質岩系に属するカンラン石-普通輝石-紫蘇輝石安山岩である。

南蔵王火山構成岩石中には一般に斑晶斜長石が30%前後含まれる。磁鉄鉱は、安山岩中には斑晶として普遍的に含まれるが、玄武岩や玄武岩質安山岩では斑晶としては稀にしか含まれず、輝石斑晶中の包有物や微斑晶としてのみ認められる。

§ 4. 分析方法と分析結果

南蔵王火山の代表的試料21個について、新たに湿式分析法により主成分元素の定量を行った。このうち、18個については、光量子放射化分析法⁴⁾により、Ce, Co, Cs, Nb, Rb, Sc, Sr, Zn, ZrとYの10元素を定量した。放射化には東北大学核理研の電子ライナックを利用し、30MeV加速電子を用いた。Vについては、有機抽出後、比色分析法により定量した。分析結果を第3表に示す。18試料のうちわけは第1期から4個、第2期から7個、そして第3期から7個である。試料No. 1-3は杉ヶ峰の岩石であるが、その化学組成は他の山体のものと異なり、また山体の位置も南蔵王火山主体の噴出中心から離れている。従って、今回の議論が

第3表 Chemical compositions of rocks from Minami Zao volcano.

Sample No.	1-1	1-2	1-3	1-4	(1-5)	2-1	2-2	2-3	2-4	2-5	2-6	2-7
Rock Series	H	H	P	H	H	P	P	P	P	H	H	H
SiO ₂ wt. %	59.42	60.74	60.74	61.23	54.06	49.81	50.61	51.82	54.46	54.66	57.45	58.67
TiO ₂	0.81	0.75	0.71	0.77	0.78	0.83	1.02	0.96	0.85	1.15	0.85	0.82
Al ₂ O ₃	15.26	14.74	16.04	15.05	16.97	19.21	18.50	18.50	16.67	17.12	16.98	15.90
Fe ₂ O ₃	4.26	5.12	2.47	4.07	5.36	4.69	5.91	4.82	3.53	4.79	3.82	4.58
FeO	4.37	3.03	5.35	3.87	4.58	5.65	4.74	5.12	5.85	6.04	4.49	4.06
MnO	0.14	0.12	0.14	0.13	0.15	0.15	0.16	0.16	0.15	0.18	0.13	0.15
MgO	3.41	2.88	3.28	3.17	5.63	5.85	5.32	4.36	5.01	3.74	4.10	3.90
CaO	6.93	6.22	6.67	6.26	8.94	10.65	10.19	9.78	8.89	7.87	6.98	7.03
Na ₂ O	3.10	3.03	2.50	3.19	2.60	2.24	2.62	2.62	2.51	3.05	2.87	2.97
K ₂ O	1.18	1.27	1.00	1.38	0.53	0.37	0.47	0.86	0.70	0.70	1.14	1.12
H ₂ O ⁺	0.31	0.81	0.62	0.26	0.36	0.26	0.33	0.49	0.30	0.26	0.50	0.49
H ₂ O ⁻	0.22	0.76	0.45	0.18	0.16	0.16	0.22	0.22	0.12	0.23	0.33	0.21
P ₂ O ₅	0.17	0.14	0.12	0.17	0.14	0.12	0.16	0.19	0.10	0.19	0.13	0.16
Total	99.58	99.61	100.09	99.73	100.26	99.99	100.25	99.90	99.14	99.98	99.77	100.06
Zn ppm	69		79	74	70	62	80	80	72	93	78	91
Sc	21.4		30.4	17.1	17.2	29.3	23.8	27.7	20.5	28.2	13.8	21.6
V			156	153		301	281	337			190	175
Co	22.1		18.8	19.2	32.5	35.0	32.7	26.9	28.5	26.4	25.0	23.6
Nb	3.4		4.3	4.0	2.5	1.9	2.2	2.7	3.5	3.4	4.1	4.1
Zr	98.0		107.0	112.0	57.0	39.0	47.5	65.9	66.9	74.4	101.0	96.1
Y	27.2		30.7	27.1	19.1	17.4	18.1	22.9	21.7	28.0	28.7	25.9
Ce	20.6		18.6	22.6	12.1	7.2	10.7	18.3	14.2	16.2	21.5	20.8
Sr	264		193	273	268	320	354	408	280	297	320	306
Cs	0.84		0.37	0.83	0.39	—	0.08	1.11	0.33	0.21	0.77	0.98
Rb	34.6		28.6	40.3	11.4	6.7	6.6	24.6	16.7	15.1	31.2	33.3

Rocks of 1 stage.

1-1. Olivine bearing hypersthene augite andesite, (馬ノ神岳) 秋山沢 890 m.

1-2. Augite hypersthene andesite, (馬ノ神岳) 秋山沢 1020 m.

1-3. Olivine augite hypersthene andesite, (杉ヶ峰) 杉ヶ峰山頂.

1-4. Augite hypersthene andesite, (烏帽子岳) 小滝ノ沢 670 m.

1-5. Hypersthene augite olvine andesite (cognate inclusion), (烏帽子岳) 小和寺沢 700m.
Rocks of 2 stage (屏風岳).

2-1. Augite olivine basalt, 大若沢 980 m.

2-2. Augite bearing hypersthene olivine basalt, 入天神沢 1,020 m.

2-3. Augite olivine basalt, 大若沢 930 m.

2-4. Quartz bearing hypersthene augite olivine andesite, 空沢 960 m.

2-5. Augite hypersthene andesite, 屏風岳東崖 1,690 m.

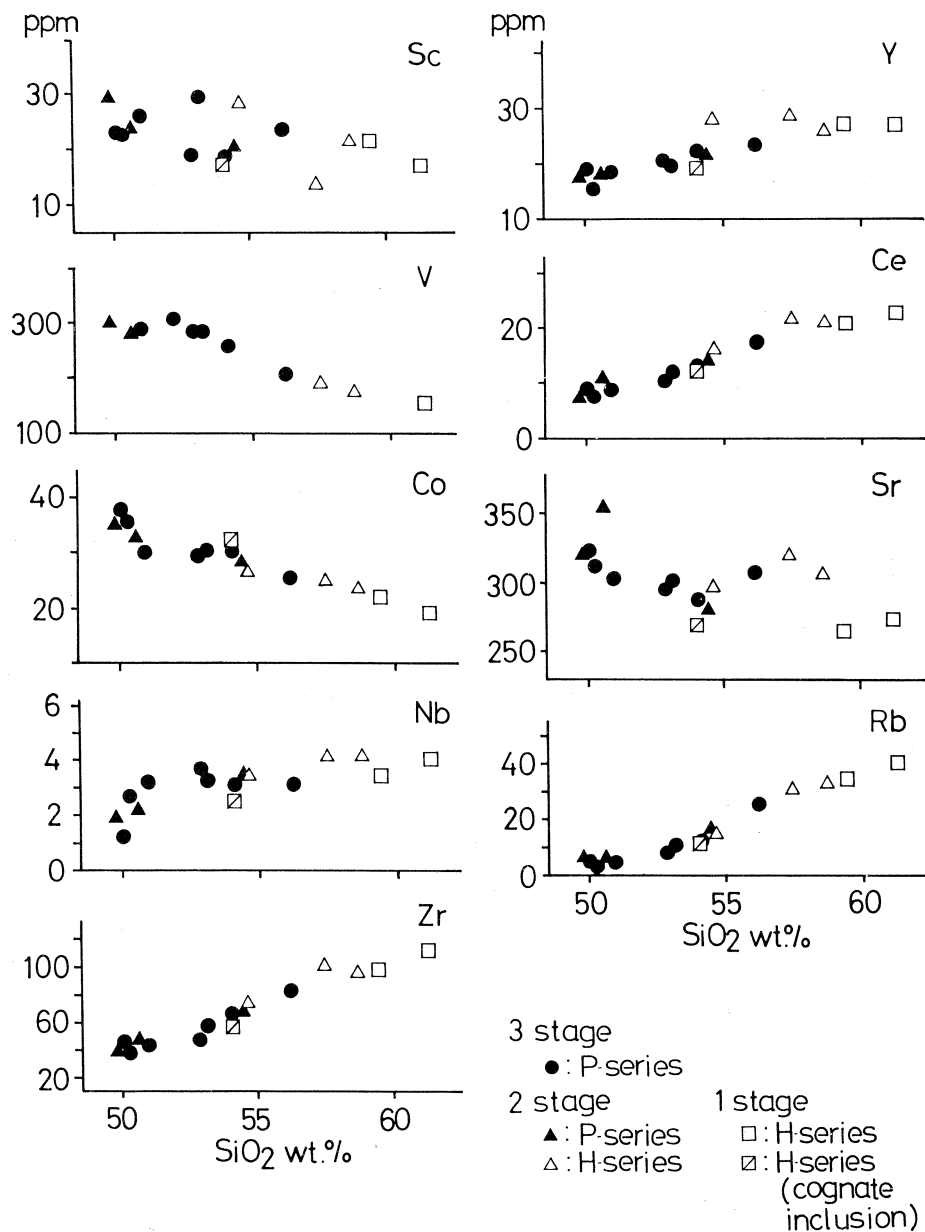
2-6. Olivine bearing augite hypersthene andesite, 屏風岳南崖 1,750 m.

2-7. Augite hypersthene andesite, ウズメ平西崖 1,620 m.

Sample No.	3-1	3-2	3-3	3-4	3-5	3-6	3-7	3-8	3-9	3-10	3-11
Rock Series	P		P	P	P	P	P	P	P	P	P
SiO ₂ wt. %	49.15	49.90	50.05	50.27	50.77	50.95	52.09	52.84	53.14	54.08	56.19
TiO ₂	1.07	0.96	1.02	0.90	0.92	0.88	1.11	0.80	0.95	0.90	0.85
Al ₂ O ₃	20.09	18.16	17.92	17.73	19.70	20.07	16.89	18.11	17.25	17.73	16.68
Fe ₂ O ₃	3.82	5.37	4.99	5.12	4.63	5.30	4.01	4.37	5.54	3.54	4.51
FeO	6.05	5.63	6.14	6.12	5.97	4.82	7.06	5.51	4.71	6.30	4.66
MnO	0.14	0.17	0.18	0.17	0.16	0.16	0.16	0.15	0.15	0.15	0.15
MgO	3.61	6.01	6.21	6.58	3.96	4.24	4.81	5.10	4.45	4.55	4.28
CaO	10.57	10.68	9.97	10.00	10.38	10.45	9.49	9.18	8.70	8.85	8.02
Na ₂ O	2.21	2.35	2.29	2.29	2.25	2.48	2.68	2.52	2.71	2.73	2.84
K ₂ O	0.38	0.39	0.35	0.28	0.36	0.36	0.58	0.50	0.57	0.63	0.94
H ₂ O ⁺	1.75	0.39	0.44	0.42	0.52	0.35	0.31	0.21	0.61	0.41	0.24
H ₂ O ⁻	1.48	0.09	0.28	0.17	0.34	0.13	0.16	0.15	0.95	0.16	0.12
P ₂ O ₅	0.15	0.18	0.13	0.15	0.11	0.12	0.13	0.11	0.17	0.13	0.19
Total	100.47	100.28	99.97	100.20	100.07	100.31	99.48	99.55	99.90	100.16	99.67
Zn ppm			65	73		89		74	72	83	69
Sc			22.9	22.6		25.9		18.9	29.5	18.8	23.4
V						288	307	284	284	257	208
Co			38.0	35.6		30.1		29.5	30.5	30.3	25.7
Nb			1.2	2.7		3.2		3.7	3.2	3.1	3.1
Zr			46.4	38.5		43.8		48.4	58.0	66.9	83.2
Y			19.2	15.5		18.6		20.6	19.7	22.3	23.6
Ce			9.0	7.6		8.7		10.4	12.0	13.0	17.6
Sr			323	312		303		295	301	288	308
Cs			0.14	—		0.19		0.26	0.54	0.50	0.24
Rb			4.8	3.0		4.7		8.5	10.9	12.1	25.5

Rocks of 3 stage (不忘山).

- 3-1. Hypersthene olivine basalt, 南屏風岳山頂.
- 3-2. Augite hypersthene olivine basalt (scoria), 不忘山南尾根 1,660 m.
- 3-3. Hypersthene augite olivine basalt, 不忘山南尾根 1,670 m.
- 3-4. Augite hypersthene olivine basalt, 大若沢 1,120 m.
- 3-5. Olivine hypersthene augite basalt, ケチャグラ沢 1,160 m.
- 3-6. Olivine bearing augite hypersthene basalt, 大若沢 1,270 m.
- 3-7. Augite hypersthene olivine andesite, 大若沢 1,210 m.
- 3-8. Olivine bearing augite hypersthene andesite, 鉛沢 1,040 m.
- 3-9. Hypersthene andesite, 水引入道山南斜面 1,600 m.
- 3-10. Olivine bearing augite hypersthene andesite, 大沢 820 m.
- 3-11. Olivine bearing augite hypersthene andesite, 鉛沢 860 m.



第2図 Trace elements variation diagram.

Solid symbols represent pigeonitic rock series and open symbols represent hypersthentic rock series.

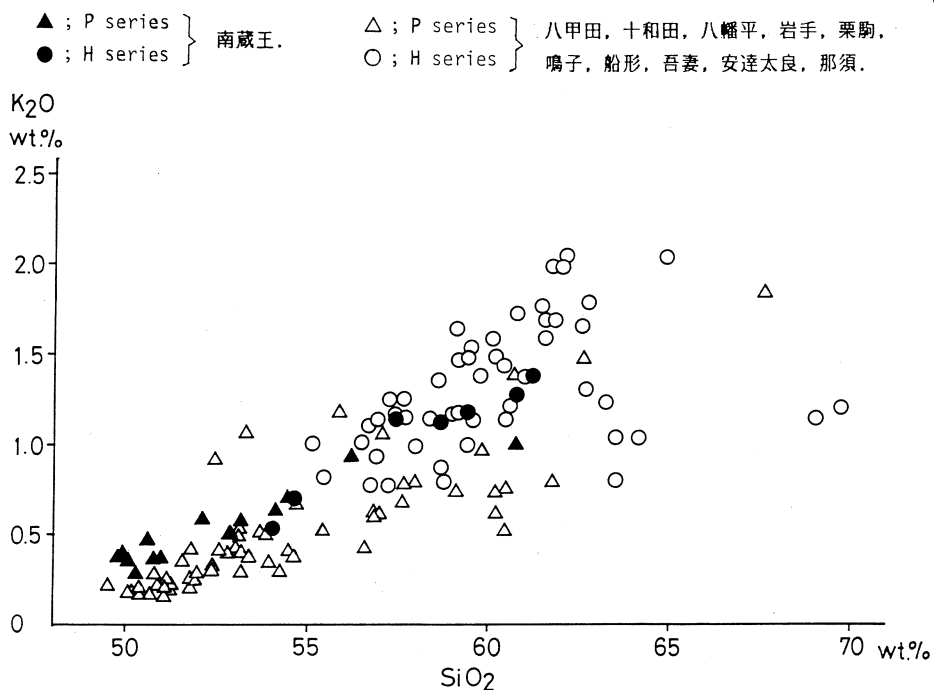
らは除いた。試料No. 1 - 3とNo. 3 - 1はKawano *et al.*⁵⁾からの引用である。分析結果を横軸にSiO₂ %, 縦軸に各微量元素濃度をとった図に点示したのが第2図である。試料No. 2 - 3は

組成が本火山噴出物の描く変化径路から大きくはずれるため、ここでは点示しなかった。

§ 5. 南蔵王火山噴出物の化学的特徴

これまでの研究によれば⁶⁻¹⁰，那須火山帯北帯に属する緒火山では一般にピジオン輝石質岩系に属する岩石と紫蘇輝石質岩系に属する岩石とは，各々異なる組成変化径路をもち，その特徴はそれぞれ，ソレイト系列およびカルク・アルカリ系列の組成変化径路に相当している。南蔵王火山噴出物の化学組成上の最大の特徴はピジオン輝石質岩系に属する岩石が紫蘇輝石質岩系に属する岩石とともに一連の組成変化をしていることである。この一連の組成変化径路上でピジオン輝石質岩系岩はより苦鉄質な側を占め，一方，紫蘇輝石質岩系岩は珪長質組成側を占める。

本火山噴出物の化学組成を東北本州弧の他の脊梁沿いの火山のものと比較したところ， K_2O 量に明瞭な特徴が認められた。第3図は SiO_2 wt. %に対して K_2O wt. %をとった図である。那



第3図 SiO_2 - K_2O diagram of the volcanic rocks from Hakkoda, Towada, Hachimantai, Iwate, Kurikoma, Narugo, Funagata, Azuma, Adatarai, Nasu (Kawano *et al.*⁵⁾, Kato⁷⁾, Fujinawa⁸⁾, Ishikawa *et al.*¹⁰⁾, Yoshida *et al.*¹¹⁾ and Minami Zaō.

須火山帯北帯の紫蘇輝石質岩系 (Subordinate tholeiite⁵⁾ を含む) の岩石はピジョン輝石質岩系の岩石に対して K_2O に富む組成変化径路をとる。また、紫蘇輝石質岩系に属する岩石の K_2O 量を脊梁の火山間で比較すると、島弧沿いに系統的な変化があることも指摘されている。第3図において南蔵王火山からのピジョン輝石質岩系と紫蘇輝石質岩系に属する岩石の組成を、他の東北本州弧脊梁沿いの火山のものと比較すると、紫蘇輝石質岩系岩については、それらと明瞭な組成差は認められないが、ピジョン輝石質岩系岩については、他の火山のものより明らかに K_2O 量に富む傾向が認められる。

南蔵王火山噴出物のうち、第1期噴出物の組成は同源捕獲岩を除けば、 $SiO_2 = 60\%$ 前後に集中している。それに対して、第2期噴出物の組成はピジョン輝石質岩系玄武岩の $SiO_2 = 50\%$ から紫蘇輝石質岩系安山岩の $SiO_2 = 59\%$ までに及んでいる。そして第1期噴出物の組成は第2期噴出物の作る組成変化径路の延長上に点示される。第3期噴出物はすべてピジョン輝石質岩系に属するが、その組成は $SiO_2 = 50 \sim 56\%$ であり、第2期噴出物の珪酸に乏しい側の組成と重複する。微量成分元素の濃度も主成分元素と同様に、ピジョン輝石質岩系に属する岩石と紫蘇輝石質岩系に属する岩石とが一連のなめらかな、あるいは直線的な組成変化径路を描く。

§ 6. 南蔵王火山噴出物の組成変化径路の特徴

南蔵王火山噴出物は、 SiO_2 の急激な増加に対して、Total FeO/MgO がわずかしか増加しない組成変化径路を描く。これはカルク・アルカリ系列に属する岩石が示す特徴である。このような組成変化径路の成因として、結晶分化作用¹²⁻¹⁴⁾ や2つの端成分マグマの混合¹⁵⁾ が考えられている。微小部X線分析により斑晶鉱物の組成を調べたところ、安山岩においてはしばしば、温度、組成の異なるマグマが混合して生じた可能性のある斑晶核部の組成のバイモーダル頻度分布や苦鉄質斑晶の逆累帯構造などが認められる。一方、安山岩のなかにも、そのような特徴の認められないものも存在し、これらはより苦鉄質なマグマからの結晶分化作用により形成されたと考えられることができる。

ソレイト系列とカルク・アルカリ系列とを識別する目的でよく用いられる図が、横軸に K_2O % を、縦軸に MgO % をとった第4図である。この図において、結晶分化により形成された一連の岩石は一般に曲線を描き、一方、2つのマグマの混合により形成された岩石群の組成は直線を描くと考えられている。南蔵王火山噴出物のうち、おそらく、苦鉄質なマグマからの一連の結晶分化作用により形成されたと考えられる岩石 (黒丸) をこの図に点示したところ、その組成変化径路は図に示した矢印のように曲線を描いている。同じ図に、2つのマグマの混合によ

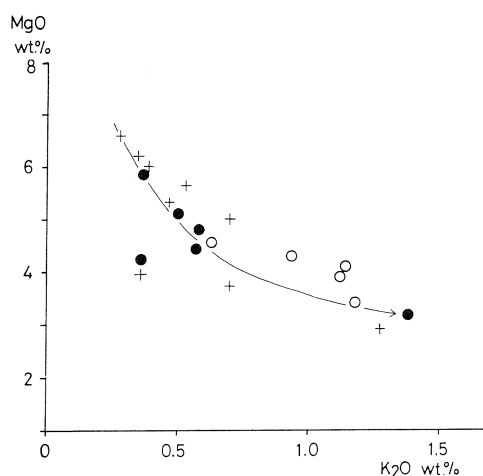
り形成された可能性のある岩石(白丸)を点示してあるが、図から明らかなように、その組成は結晶分化作用による組成変化径路上の珩長質組成側に重なり、それらの間には明瞭な差異はみられない。

以上の検討から、南蔵王火山噴出物が示す一連の組成変化径路は基本的には苦鉄質マグマの結晶分化作用の結果生じたものであると考えられる。微量元素のうち、Zr, Ce, YとRbは分化が進むとともにほぼ一定の割合で増加している。NbはSiO₂ = 52%位までは急増するが、それ以降の増加率は小さい。一方、Coは分化が進むとともに減少し、VもSiO₂ = 52%付近から減少する。値のばらつきはあるものの、ScとSrにも減少傾向が認められる。

第5図は玄武岩(No.2-1)の組成を用いて、玄武岩質安山岩(No.3-8)と安山岩(No.1-4)を各々規格化した図である。この両規格化パターンにおいて、Vに明瞭な相異が認められる。顕微鏡観察から推定される分別鉱物は玄武岩質安山岩ではカンラン石、斜長石、単斜輝石および斜方輝石であり、安山岩では、斜長石、単斜輝石、斜方輝石そして磁鉄鉱である。おそらく、第5図の両規格化パターンにみられる違いはこのような分化にともなう分別鉱物の種類と量比の変化、とりわけ、磁鉄鉱の分別効果を反映しているものと考えられる。

§ 7. ま と め

南蔵王火山噴出物にはピジオン輝石質岩系に属する岩石と、紫蘇輝石質岩系に属する岩石と



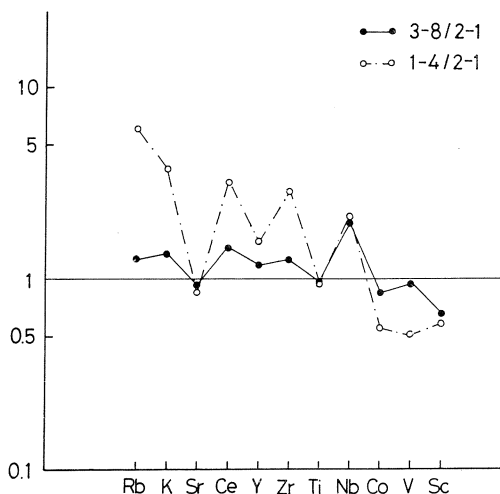
第4図 MgO-K₂O diagram.

Open circles: rocks showing evidences of magma mixing.

Solid circles: rocks showing no evidence of magma mixing.

Cross: others.

Arrow indicates hypothetical differentiation trend.



第5図 Basaltic rock (No.2-1)-normalized element patterns in basaltic andesite (No.3-8) and andesite (No.1-4).

がある。これら両岩系の組成を他の東北本州弧脊梁沿いの火山のものと比較すると紫蘇輝石質岩系岩については、それらと明瞭な組成差は認められないが、ピジョン輝石質岩系岩については、他の火山のものより、 K_2O 量に富む傾向がある。そして、これら両岩系に属する岩石の主成分ならびに微量元素組成は一連の変化径路を形成している。この組成変化径路は、分化が進むにつれて SiO_2 が急増し、TotalFeO/MgO比がわずかしか増加しないカルク・アルカリ系列に属する岩石が示す特徴をもつ。この全岩組成が示す一連の組成変化径路は、基本的には、玄武岩質マグマからの結晶分化作用の結果生じたものであると推定される。

本研究にあたり、終始お世話になった東北大学理学部核理研、八木益男助教授、榎本和義教官ならびにライナックマシングループの方々、東北大学サイクロトロンR Iセンターの藤田稔教授、山寺亮博士をはじめ職員の方々に厚く御礼申し上げる。なお、本研究の一部に文部省科学研究費（Nos. 59420015 と 59540509）を使用した。

参 考 文 献

- 1) S. Aramaki and T. Ui : J. Volcanol. Geotherm. Res. **18** (1983) 549.
- 2) 千葉とき子 : 岩鉱 **46** (1961) 73.
- 3) 酒寄淳史 : 東北大学理学部修士論文 (手記) .
- 4) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **15**-1 (1981) 101.
- 5) Y. Kawano, K. Yagi and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **7** (1961) 1.
- 6) Y. Kawano, and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **6** (1960) 409.
- 7) 加藤祐三 : 岩鉱 **51** (1964) 233.
- 8) 藤縄明彦 : 岩鉱 **75** (1980) 385.
- 9) 和田恵治 : 岩鉱 **76** (1981) 215.
- 10) 石川賢一, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **15** (1982) 257.
- 11) 吉田武義, 渡部 均, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **16** (1983) 309.
- 12) E. F. Osborn : Am. J. Sci. **257** (1959) 609.
- 13) E. F. Osborn : Am. Mineral. **47** (1962) 211.
- 14) T. H. Green and A. E. Ringwood : Contrib. Mineral. Petrol. **18** (1968) 105.
- 15) M. Sakuyama : J. Petrol. **22** (1981) 553.

東北日本・安達太良火山の地球化学的研究

茨城大, 理学部地学*

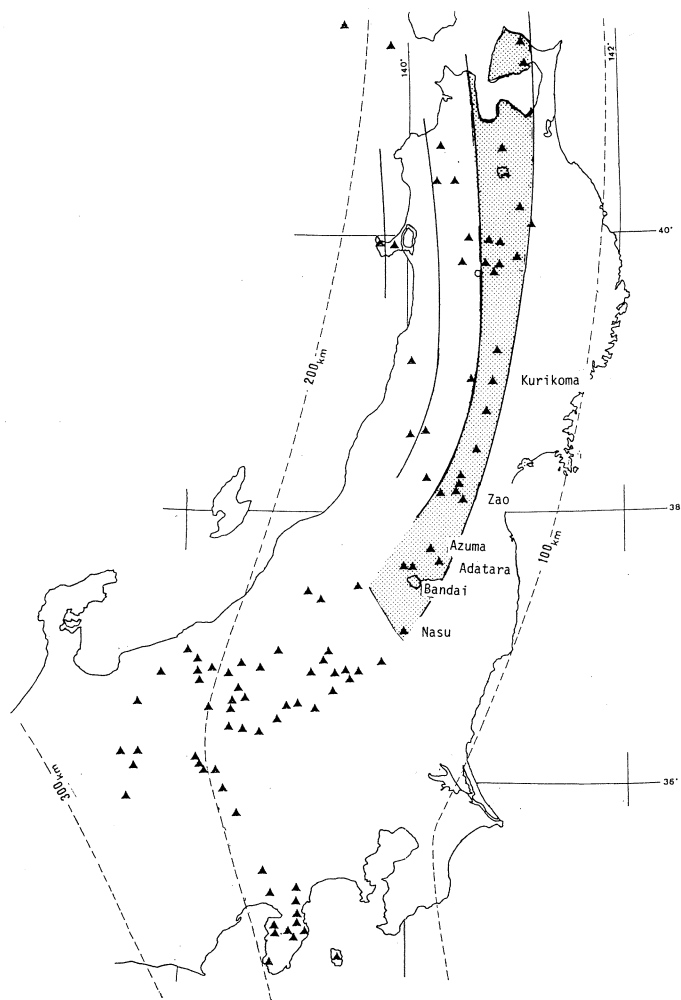
藤縄明彦・吉田武義*・青木謙一郎*

§ 1. 緒 言

安達太良火山は東北日本の火山フロント付近に位置する第四紀火山である(第1図)。

本火山においても, 東北日本の火山フロントに位置する他の多くの火山同様, 低アルカリソレイト, カルクアルカリ両系列の岩石が共存する。一火山に共存する低アルカリソレイト, カルクアルカリ両系列の成因関係を明らかにする事は東北日本弧の第四紀マグマティズム解明のための重要な課題である。

各系列, とりわけカルクアルカリ系列の組成変化メカニズムを明らかにする事が両系列の成因関係を論ずる上で必要不可欠のワンス



第1図 Index map of the Adataro volcano. Solid triangles indicate the localities of the Quaternary volcanoes in the eastern Japan. Broken lines are depth contours of the deep-earthquake foci in km. Shaded area indicates the northern subzone of the Nasu volcanic zone, Northeast Japan.

トップである事は異論のない所であろう。

そこで今回、安達太良火山を構成する岩石のうち代表的試料25個について光量子放射化分析を主な手法とする微量成分の分析を行い、その全岩化学組成上の特徴を明らかにした。本稿では、この結果に基づき安達太良火山における低アルカリソレアイト、カルクアルカリ各系列の組成変化メカニズムが双方とも斑晶鉱物の分別結晶作用を主体とするものであると解釈される事を示す。

§ 2. 安達太良火山の形成史概説

安達太良火山は福島市南西方約15 km、北緯37° 37' 東経140° 17' に位置する。本火山は南北約14 km、東西約 9 km の楕円形底面をもち、南北方向に伸長した火山列を主体とする。

本火山主体部の形成史は三期に分けられる。第一期には、カルクアルカリ安山岩質マグマの噴出により前ヶ岳が形成され、第二期には低アルカリソレアイトマグマの噴出により古和尚山火山体が形成された。第三期には再びカルクアルカリ安山岩質マグマの噴出が行われ火山群が形成された(第2図)。

なお岩石系列の定義は § 3 で行う。

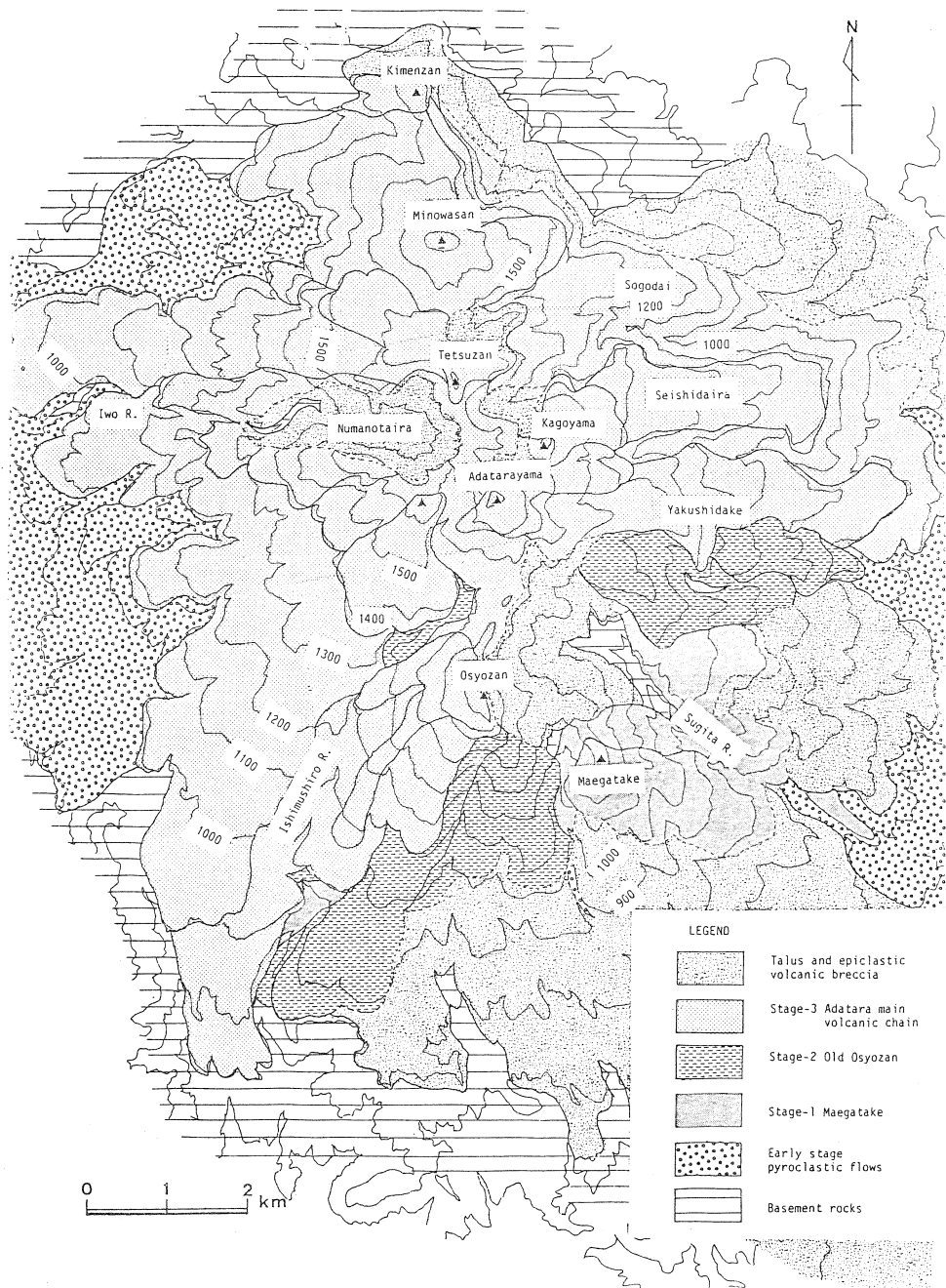
§ 3. 分析試料の岩石学的特徴

安達太良火山構成岩石の岩石学的特徴を第1表に、そのうちの代表的試料の主成分化学組成を第2表に示す。

第一期構成岩石はシソ輝石質岩系(H-series)¹⁾に属する安山岩である。第二期構成岩石はピジョン輝石質岩系(P-series)¹⁾に属する玄武岩ないし安山岩である。第三期構成岩石の多くはH-seriesの安山岩であるがまれにP-seriesの安山岩も認められる。

斑晶鉱物は斜長石、シソ輝石、普通輝石および磁鉄鉱がすべての岩石中に認められ、時にカソラン石がこれに加わる。また、H-seriesの岩石のうち酸性のものにはまれに融食石英およびイルメナイトがごくわずか認められる事がある。

なお第三期構成岩石中のP-seriesの安山岩はKawano *et al.*²⁾の“subordinate tholeiite series”に属するものである³⁾。これは噴出時期、主成分化学組成のみならず、Sr 同位体比や斑晶鉱物の造岩鉱物学的特徴も、第三期に噴出したH-seriesの岩石と類似し、第二期構成岩石とは明らかに区別する事ができる⁴⁾。従ってこれら subordinate tholeiite series の岩石は、同時期に噴出したH-seriesの岩石と同源のものであると判断される。

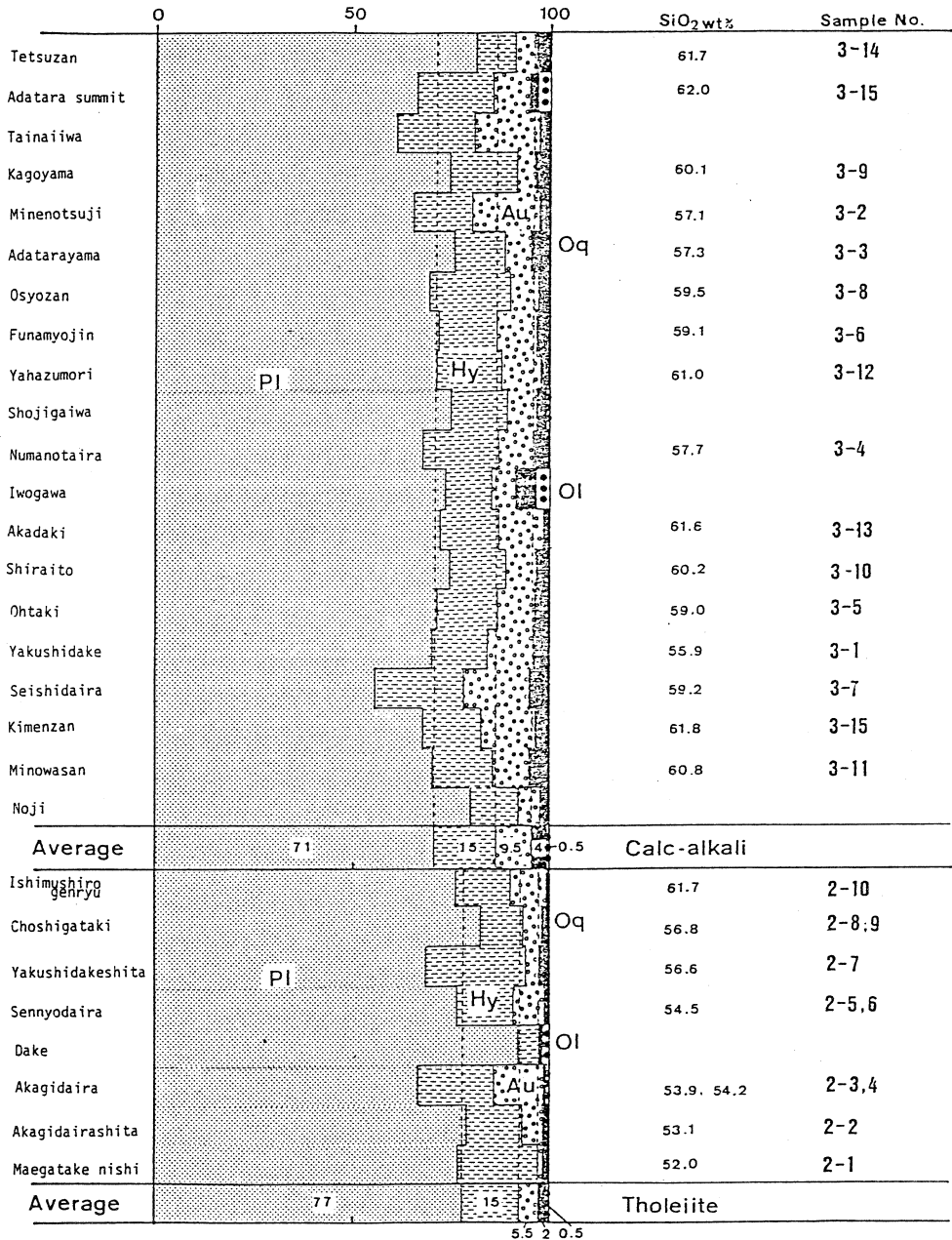


第2図 Geological map of the Adataro volcano. Thin lines are contours.

第1表 Mineral assemblages of the rocks from the Adatara volcano.

		Phenocryst									Groundmass								
		Spl.	R.S.	Pl.	Hy.	Au.	Mt.	Ol.	Qz.	Il.	Pl.	Hy.	Au.	Pi.	Mt.	Si.	Al.	Ap.	Bi.
Motoyama	P.F.			**	*	*	*	-	-	-	*	+	+	+					**
Tetsuzan	P.F.			**	*	*	*	-	-	-	*	+	+	+					**
Tetsuzan	L.F. 3-14	H	31.4	4.1	2.1	1.3	-	-	Tr.	**	*	*	*	*	+	+	+	**	
Adatara summit	L.D. 3-16	H	19.9	5.9	3.0	0.6	1.0	-	-	**	*	*	*	+	+	+	+	**	
Tainaiiwa	L.F.	H	26.7	8.3	7.0	1.6	Tr.	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Kagoyama	L.D. 3-9	H	19.9	4.4	1.2	1.3	-	-	Tr.	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Minenotsuji	L.F. 3-2	P	19.5	4.4	5.1	1.1	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Adatarayama	L.F. 3-3	H	26.1	4.2	2.2	1.6	0.5	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Osyozan	L.F. 3-8	H	24.8	7.6	2.5	1.0	0.3	-	Tr.	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Funamyojin	L.F. 3-6	H	26.5	5.2	3.5	1.8	0.1	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Yahazumori	L.F. 3-12	H	27.5	6.3	3.8	1.3	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Shojigaiwa	L.F.	H	33.0	6.1	3.4	1.2	0.6	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Numanotaira	L.F. 3-4	H	19.8	5.7	2.4	1.4	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Iwogawa	L.F.	H	25.4	3.9	2.1	1.6	1.5	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Akadaki	L.F. 3-13	H	23.8	5.8	4.5	0.9	0.1	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Shiraito	L.F. 3-10	H	23.3	4.4	2.3	1.4	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Bonari	P.F.			**	*	*	*	-	-	-	**	*	*	*				*	
Ohtaki	L.F. 3-5	H	24.8	5.4	3.1	1.2	0.4	Tr.	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Yakushidake	L.F. 3-1	P	23.7	4.7	3.6	1.5	0.3	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Seishidaira	L.F.	H	20.4	2.7	1.5	0.9	0.7	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Kimenzan	L.D. 3-7	H	21.5	8.4	6.4	1.9	-	Tr.	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Minowasan	L.F. 3-15	H	23.3	5.1	4.7	1.4	-	-	Tr.	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Sogodai	L.F. 3-11	H	31.7	6.6	4.1	2.6	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Noji	L.F.	H	32.8	4.8	2.4	1.0	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Ishimushiro genryu	L.F. 2-10	P	36.3	6.4	4.6	0.5	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Choshigataki shita	L.F. 2-8,9	P	39.3	5.0	2.0	1.3	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Yakushidake shita	L.F. 2-7	P	21.1	7.7	1.0	1.0	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Sennyodaira	L.F. 2-5,6	P	28.2	5.3	2.8	0.6	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Dake	L.F.	P	46.2	2.6	0.3	0.1	0.9	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Akagidaira	L.F. 2-3,4	P	28.4	7.9	5.3	0.3	0.5	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Akagidaira shita	L.F. 2-2	P	32.2	5.7	1.8	0.8	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Maegatake nishi	L.F. 2-1	P	32.3	8.6	0.6	0.7	Tr.	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Choshigataki shita	P.F.			**	*	*	*	-	-	-	*	+	+	+				**	
Sennyodaira shita	L.F. 1-1	H	25.7	5.5	2.7	1.9	0.1	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Endogataki	L.F.	H	32.2	6.3	2.6	1.6	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Sugitagawa	L.F. 1-3	H	30.0	6.4	3.9	1.4	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	
Adatara spa	L.F. 1-2	H	31.4	4.6	3.1	1.0	-	-	-	**	*	*	*	*	+	+	+	*	

Spl.; Sample number Mt.; Magnetite Al.; Alkali feldspar L.F.; Lava flow
R.S.; Rock series Ol.; Olivine Ap.; Apatite L.D.; Lava dome
Pl.; Plagioclase Qz.; Quartz Bi.; Biotite P.F.; Pyroclastic flow
Hy.; Hypersthene Il.; Ilmenite Gl.; Glass
Au.; Augite Pi.; Pigeonite (** > * > +)
Si.; Silica minerals



第3図 Modal abundances of the phenocryst minerals. Pl: plagioclase, Hy: hypersthene, Au: augite, Oq: Fe-Ti oxides (opaque minerals), Ol: olivine.

第2表 Bulk chemical compositions of the rocks from the Adatara volcano (major elements).

	2-1	2-2	2-3	2-4	2-5	2-6	2-7	2-8	2-9	2-10
SiO ₂ (wt%)	51.99	53.14	53.94	54.23	54.52	54.62	56.60	56.84	56.85	61.74
TiO ₂	1.02	1.04	0.96	0.96	0.98	1.02	0.99	0.89	0.89	0.99
Al ₂ O ₃	20.37	18.37	19.19	18.31	18.60	18.04	18.60	18.25	18.97	15.73
Fe ₂ O ₃	4.02	4.79	4.35	4.24	4.48	4.73	3.94	3.24	4.22	3.43
FeO	5.07	5.19	4.90	5.12	5.48	5.19	5.07	4.85	3.93	4.64
MnO	0.15	0.16	0.14	0.16	0.18	0.17	0.15	0.07	0.12	0.10
MgO	3.77	4.53	4.36	4.22	3.64	3.60	3.47	3.00	3.10	1.85
CaO	9.79	8.59	8.74	8.61	8.35	7.75	7.72	8.03	8.07	6.20
Na ₂ O	2.39	2.54	2.57	2.50	2.31	2.60	2.75	2.59	2.58	3.51
K ₂ O	0.28	0.40	0.34	0.29	0.40	0.37	0.42	0.62	0.59	0.79
H ₂ O+	0.50	0.47	0.28	0.61	0.68	0.91	0.43	0.67	0.38	0.26
H ₂ O-	0.25	0.37	0.12	0.25	0.35	0.62	0.30	0.55	0.27	0.12
P ₂ O ₅	0.21	0.20	0.18	0.18	0.19	0.19	0.20	0.15	0.20	0.27
Total	99.81	99.79	100.07	99.68	100.16	99.81	100.64	99.75	100.17	99.63
FeO*	8.69	9.50	8.82	8.94	9.51	9.45	8.62	8.09	7.73	7.73
FeO*/MgO	2.30	2.10	2.02	2.12	2.61	2.62	2.48	2.70	2.49	4.18
Na ₂ O+K ₂ O	2.67	2.94	2.91	2.79	2.71	2.97	3.17	3.21	3.17	4.30
F (ppm)	157	224	211	198	220	206	257		253	328

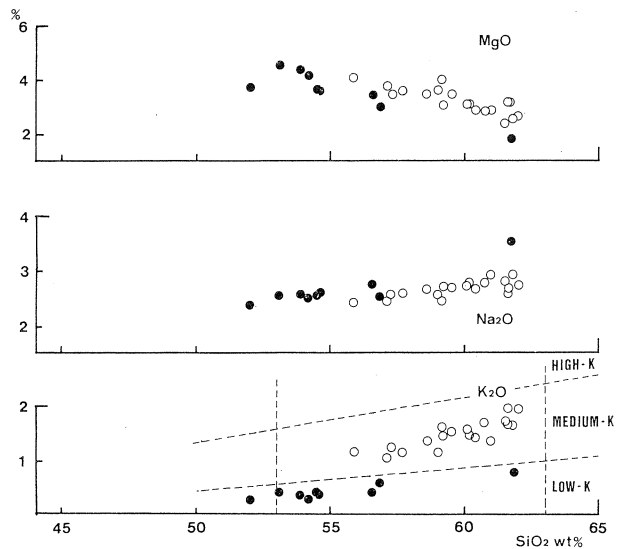
	3-1	3-2	3-3	3-4	3-5	3-6	3-7	3-8	3-9	3-10
SiO ₂	55.92	57.12	57.28	57.72	59.02	59.13	59.16	59.48	60.11	60.17
TiO ₂	0.97	0.97	0.95	0.95	0.81	0.76	0.77	0.79	0.85	0.84
Al ₂ O ₃	17.13	17.84	16.68	16.56	16.75	16.27	17.25	17.62	16.34	17.39
Fe ₂ O ₃	4.27	3.56	4.00	4.72	5.12	3.77	4.92	4.42	3.91	3.74
FeO	5.53	3.68	4.90	4.24	3.26	4.00	2.23	3.07	3.95	3.36
MnO	0.14	0.14	0.14	0.13	0.13	0.10	0.14	0.12	0.14	0.13
MgO	4.06	3.77	3.44	3.56	3.63	3.98	3.03	3.46	3.03	3.07
CaO	7.04	6.06	7.49	6.65	6.68	6.11	6.26	5.99	5.77	6.78
Na ₂ O	2.42	2.43	2.57	2.56	2.56	2.44	2.73	2.71	2.78	2.58
K ₂ O	1.17	1.05	1.24	1.14	1.16	1.63	1.46	1.53	1.58	1.47
H ₂ O+	0.58	1.42	0.55	0.74	0.39	0.70	1.22	0.64	0.71	0.31
H ₂ O-	0.33	1.47	0.23	0.59	0.23	0.83	0.76	0.33	0.66	0.26
P ₂ O ₅	0.16	0.19	0.18	0.21	0.14	0.14	0.12	0.17	0.17	0.16
Total	99.72	99.70	99.65	99.77	99.88	99.86	100.05	100.33	100.00	100.26
FeO*	9.37	6.88	8.50	8.49	7.87	7.39	6.66	7.05	7.47	6.73
FeO*/MgO	2.31	1.83	2.47	2.38	2.17	1.86	2.20	2.04	2.47	2.19
Na ₂ O+K ₂ O	3.59	3.48	3.81	3.70	3.72	4.07	4.19	4.24	4.36	4.05
F	333	437	427	355	365	453		312	427	415

第2表(続き)

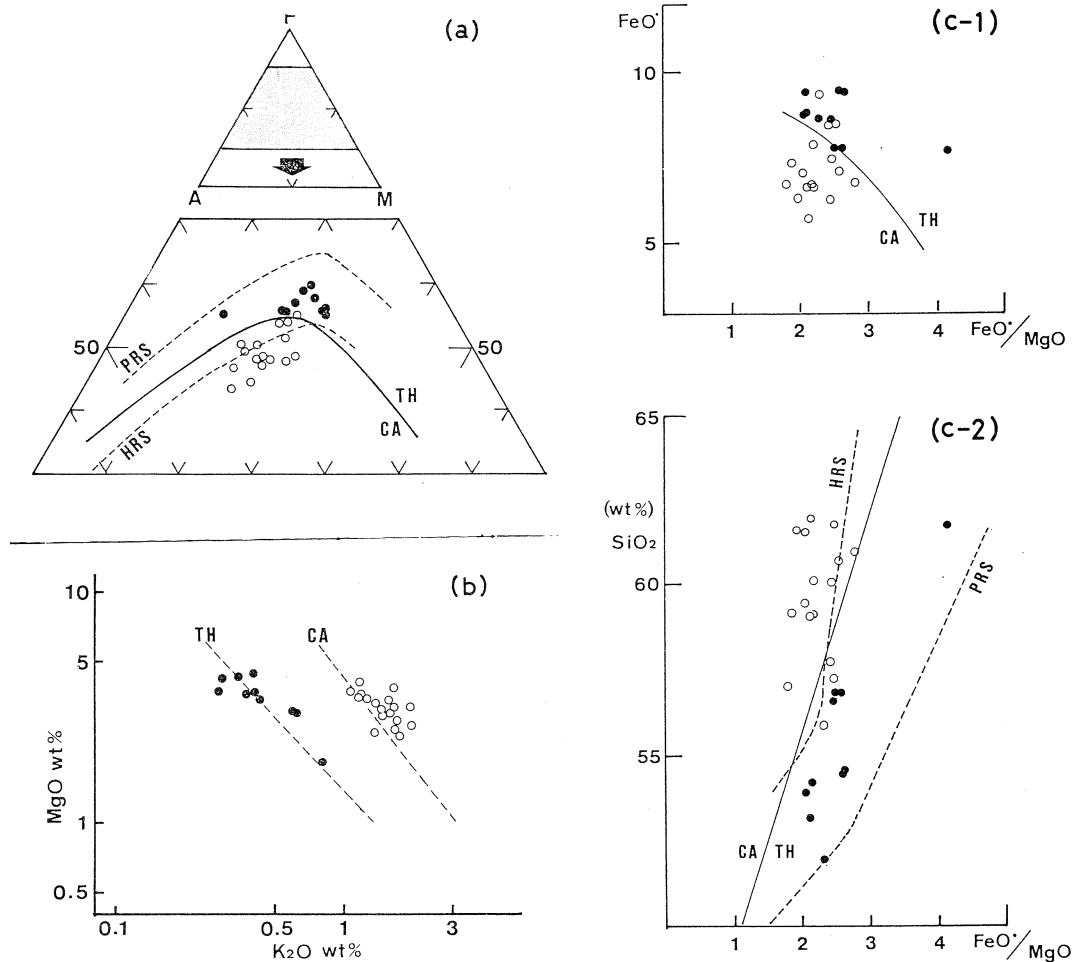
	3-11	3-12	3-13	3-14	3-15	3-16	1-1	1-2	1-3
SiO ₂	60.75	61.00	61.56	61.69	61.79	61.97	58.63	60.39	61.44
TiO ₂	0.83	0.88	0.71	0.73	0.74	0.67	0.83	0.82	0.78
Al ₂ O ₃	15.97	16.82	16.62	16.03	16.13	16.14	17.66	17.20	16.93
Fe ₂ O ₃	4.37	4.42	4.23	2.89	2.68	2.34	5.36	4.81	3.41
FeO	3.27	2.86	2.89	3.74	3.94	3.59	2.94	2.87	3.26
MnO	0.09	0.11	0.10	0.11	0.11	0.10	0.13	0.13	0.11
MgO	2.82	2.46	3.22	3.20	2.57	2.66	3.37	2.91	2.38
CaO	6.34	5.94	6.21	5.83	5.76	5.47	5.77	5.64	5.43
Na ₂ O	2.80	2.92	2.57	2.68	2.94	2.70	2.65	2.67	2.82
K ₂ O	1.71	1.37	1.68	1.98	1.68	1.97	1.35	1.43	1.76
H ₂ O+	0.37	0.56	0.36	0.78	0.73	1.18	0.92	0.92	0.75
H ₂ O-	0.10	0.18	0.15	0.57	0.57	0.88	0.65	0.51	0.38
P ₂ O ₅	0.15	0.16	0.11	0.15	0.14	0.14	0.13	0.11	0.15
Total	99.57	99.68	100.41	100.38	99.73	99.81	100.39	100.41	99.60
FeO*	7.20	6.84	6.70	6.34	6.35	5.70	7.76	7.20	6.33
FeO*/MgO	2.55	2.78	2.08	1.98	2.47	2.14	2.30	2.47	2.66
Na ₂ O+K ₂ O	4.51	4.29	4.25	4.66	4.62	4.67	4.00	4.10	4.58
F	436	419	438	529					

総斑晶量を100とした時の各斑晶鉱物の容量比を第3図に示す。各岩石系列内において斑晶鉱物の量比は各々ほぼ一定に保たれ、両者の間には有意の差が見出される。すなわち低アルカリソレアイト系列に比べカルクアルカリ系列は普通輝石および鉄チタン酸化物の含有量が明らかに高い。

本論で用いる“低アルカリソレアイト系列”は



第4図 Diagram of MgO-SiO₂, Na₂O-SiO₂ and K₂O-SiO₂ for the rocks of the Adataro volcano. Solid circles: rocks erupted in the Stage 2 (low-alkali tholeiitic rocks). Open circles: rocks erupted in the Stages 1 and 3 (calc-alkaline rocks).



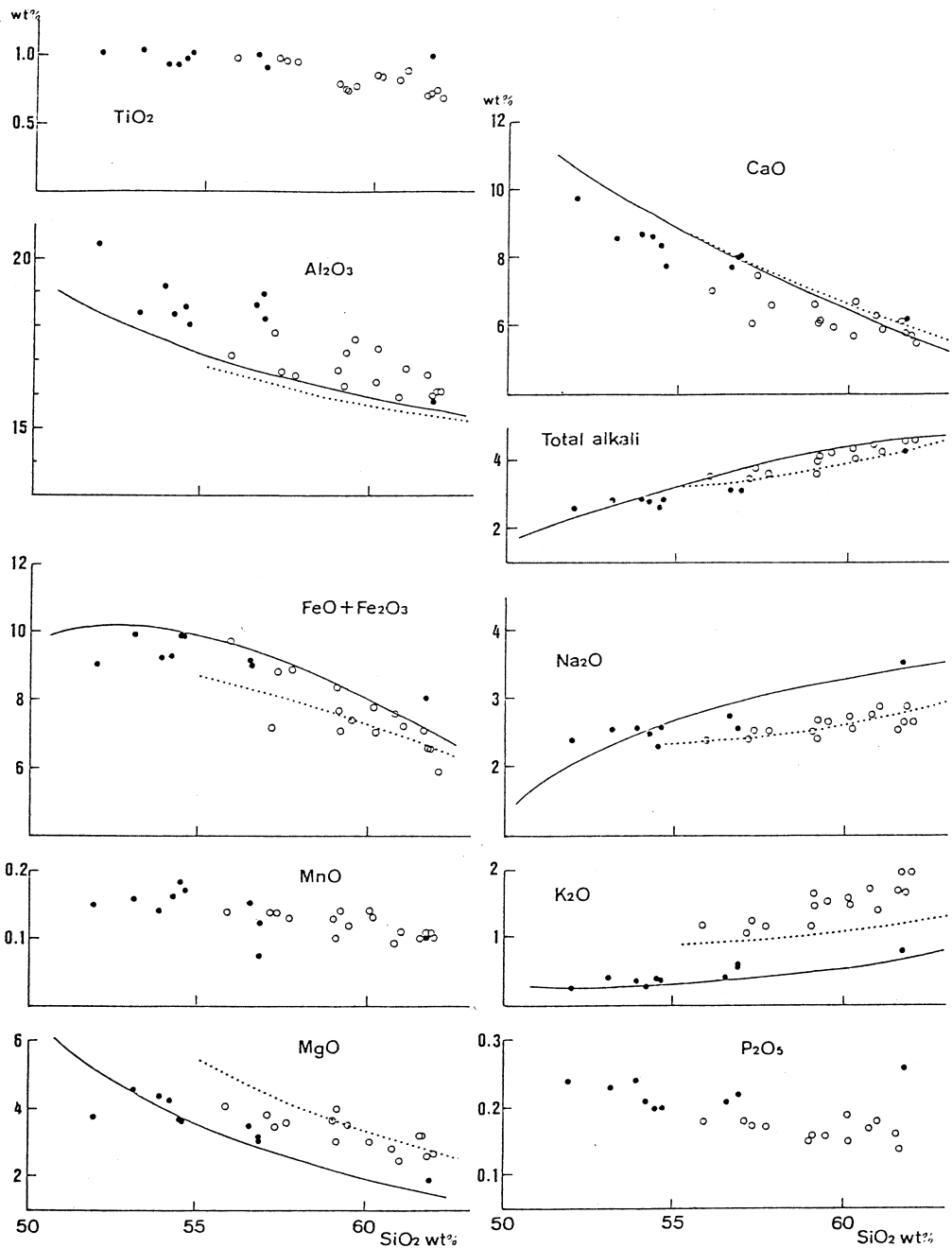
第5図 (a). AFM diagram for the rocks of the Adataro volcano. Symbols are same as those in Fig. 4. Solid line: boundary between the tholeiitic rocks and the calc-alkaline rocks. Broken lines of PRS and HRS are the average trend lines of the P-series and the H-series in the volcanoes of the Northeast Japan, respectively.

(b). Log-log diagram of MgO and K₂O contents in the volcanic rocks of the Adataro volcano.

Average lines are quoted from Masuda and Aoki¹⁰⁾.

(c). Miyashiro's diagrams⁹⁾ for the rocks of the Adataro volcano.

low-K andesite⁵⁾ およびその延長上の basalt に、また“カルクアルカリ系列”は medium-K andesite⁵⁾ に対応するものとする(第4図)。つまり、安達太良火山からの low-K 組成の岩石は東北日本火山フロント付近のソレライト系列に相当し、一方 medium-K 組成の岩石はカルクアルカリ系列に相当している(第5図)。東北日本の火山フロント付近の火山のうち、奥羽



第6図 Silica variation diagrams v. s. major elements for the rocks of the Adatara volcano. Symbols are same as those in Fig. 4. Solid and broken lines indicate the average variation trends of the tholeiite series and the calc-alkali rock series in the northern subzone of the Nasu volcanic zone, respectively.

山脈内に位置する火山においてこの関係が一般に成立つ⁶⁾。

本火山の低アルカリソレイト系列（第二期構成岩石）とカルクアルカリ系列（第一・三期構成岩石）の岩石は第6図に示されているように各々那須火山帯北帯（第1図の影をつけた部分）の低アルカリソレイト，カルクアルカリ各系列の平均値に近い値を有する。従って安達太良火山における各系列の岩石は，それぞれ東北日本の火山フロント付近の火山における両系列の岩石化学的特徴を代表するものと判断できる。

§ 4. 微量成分の分析方法とその結果

本火山の代表的試料についての微量成分分析結果を第3表に，横軸に $\text{SiO}_2\%$ をとった組成変化図を第7図に示す。Ni, Cr, Co, Sc, Zr, Nb, Zn, Rb, Cs, Sr, Ce, Y の12元素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により定量を行った。また Sc, V, Ba, Sr, Y（第3表中の星印をつけた元素）は筑波大学分析センターにおいてプラズマ発光分光分析法（ICP）により定量した。

コンパティブル元素（Ni, Cr, Co, Sc, V）

コンパティブル元素はカルクアルカリ系列の Ni, Cr を除き全岩の SiO_2 増加にともなって減少する。殊に低アルカリソレイト系列の Ni, Cr は全岩の SiO_2 52%から55%の間に急激に減少する。カルクアルカリ系列の Ni, Cr は全岩の SiO_2 量とほとんど相関を示さず，組成変化トレンドを決定することはできない。Co, Sc および V において低アルカリソレイト，カルクアルカリ各系列は各々異なる組成変化トレンドを有する。Sc, V の SiO_2 増加にともなう減少傾向はカルクアルカリ系列においてより急激である。

HFS元素（Zr, Nb）

HFS 元素は全岩の SiO_2 増加にともなって増加する傾向にある。同じ SiO_2 量で比較するとカルクアルカリ系列の方がソレイト系列よりも Zr に富み Nb に乏しい。

インコンパティブル元素（K, Rb, Cs, Ba, Sr, Y, Ce）

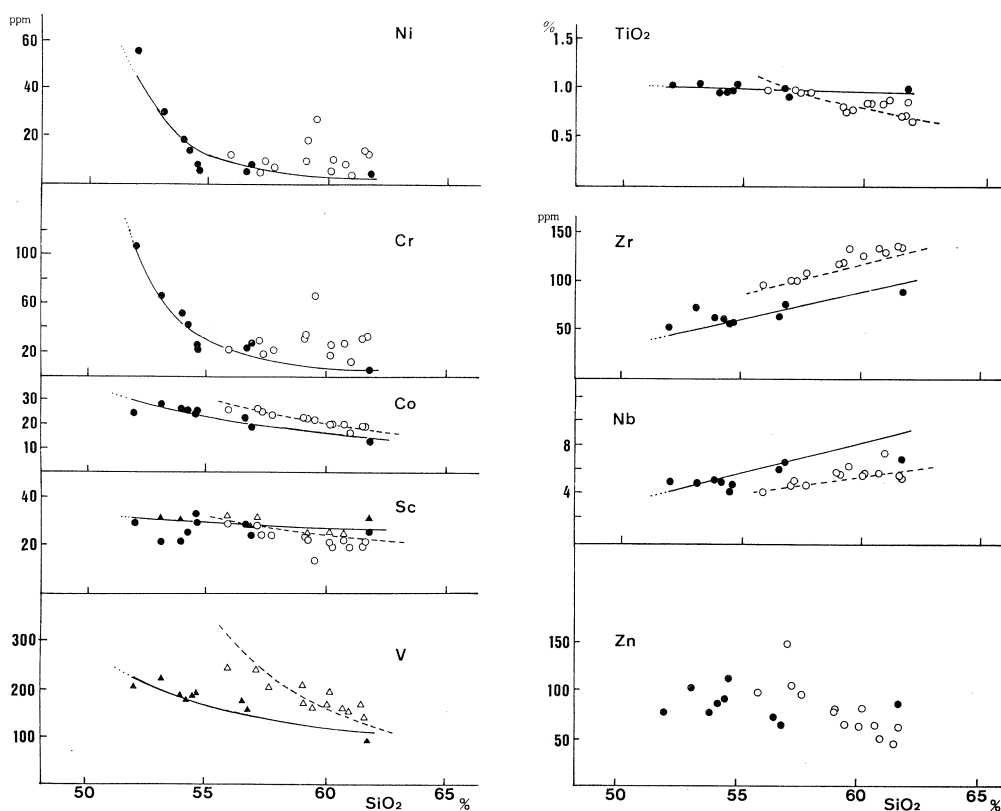
インコンパティブル元素は通常，全岩の SiO_2 増加にともなって増加する傾向にある。本火山においても Sr 以外の元素に関してはこの傾向が成り立っている。Sr だけは両系列とも全岩の SiO_2 増加に伴い減少する傾向を示す。これは，Sr について高い結晶-液間の分配係数を有する鉱物，すなわち斜長石の分別作用が両系列の組成変化に大きな影響を及ぼしている事を示唆する。Y 以外のインコンパティブル元素において，低アルカリソレイト，カルクアルカリ各系列はそれぞれ異なる組成変化トレンドを形成している。

第3表 Bulk chemical compositions of the rocks from
the Adataro volcano (trace elements).

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Sample No.	1-1	1-2	1-3	2-1	2-2	2-3	2-4	2-5	2-6	2-7	2-9	2-10
wt. %												
SiO ₂	58.63	60.39	61.44	51.99	53.14	53.94	54.23	54.52	54.62	56.60	56.85	61.74
TiO ₂	0.83	0.82	0.78	1.02	1.04	0.96	0.96	0.98	1.02	0.99	0.89	0.99
K ₂ O	1.35	1.43	1.76	0.28	0.40	0.34	0.29	0.40	0.37	0.42	0.59	0.79
ppm												
Ni	6.9	12.9	9.0	55.0	29.0	17.3	13.4	7.1	4.0	4.6	7.5	3.8
Cr	25.2	31.8	23.9	107.0	65.3	51.4	44.4	20.9	27.4	23.3	28.2	4.5
Co	21.4	19.4	20.3	24.4	28.7	27.0	26.4	25.1	26.0	22.8	19.1	13.6
Sc	24.0	21.3	16.7	29.2	21.6	21.6	25.2	32.8	29.4	29.0	24.1	25.6
Sc*	-	-	-	31	32	31	-	-	-	-	28	31
V*	-	-	-	203	221	189	179	188	195	178	160	93
Zr	121	133	147	52.3	74.6	63.7	61.9	55.9	58.1	65.2	75.6	89.1
Nb	5.5	6.6	6.7	4.9	4.8	5.0	4.8	4.1	4.6	5.9	6.5	6.8
Zn	98	79	80	78	103	78	86	91	111	70	66	84
Rb	47.6	48.0	54.4	3.2	9.6	6.2	6.0	7.1	7.8	8.8	12.4	15.3
Cs	0.74	1.59	0.98	0.16	-	0.09	-	0.14	0.28	-	-	0.26
Ba*	-	-	-	99	132	124	124	127	138	145	153	212
Sr	227	220	214	301	265	292	293	278	271	261	256	272
Sr*	-	-	-	299	275	301	288	267	272	247	262	256
Ce	26.0	27.8	21.4	9.9	15.1	12.9	11.6	12.4	13.5	13.7	16.7	19.5
Y	31.3	30.5	28.7	22.0	25.9	23.0	22.9	22.5	24.9	28.9	27.4	33.4
Y*				24	28	25	25	24	26	30	30	36

	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25
Sample No.	3-1	3-2	3-3	3-4	3-5	3-6	3-8	3-9	3-10	3-11	3-12	3-13	3-14
wt. %													
SiO ₂	55.92	57.12	57.28	57.72	59.02	59.13	59.48	60.11	60.17	60.75	61.00	61.56	61.69
TiO ₂	0.97	0.97	0.95	0.95	0.81	0.76	0.79	0.85	0.84	0.83	0.88	0.71	0.73
K ₂ O	1.17	1.05	1.24	1.14	1.16	1.63	1.53	1.58	1.47	1.71	1.37	1.68	1.98
ppm													
Ni	11.4	4.8	9.7	6.9	9.9	18.0	27.6	5.5	10.2	8.2	3.0	14.1	12.4
Cr	21.2	29.2	19.6	21.7	32.7	36.0	68.0	18.4	26.8	28.3	14.4	32.2	33.9
Co	25.7	25.9	25.2	23.7	23.1	22.3	21.6	20.0	20.6	20.2	16.7	19.5	19.0
Sc	28.0	28.5	24.1	24.1	23.4	22.4	13.8	21.4	19.1	22.1	19.2	19.8	21.3
Sc*	33	32	-	-	-	25	-	26	-	25	-	-	22
V*	247	239	-	205	209	171	162	168	195	163	153	168	140
Zr	94.1	100	101	109	118	120	136	128	124	134	132	137	136
Nb	4.0	4.5	4.9	4.6	5.6	5.5	6.2	5.4	5.6	5.6	7.5	5.4	5.3
Zn	98	148	105	95	77	80	64	63	82	61	49	45	62
Rb	32.1	35.9	35.2	37.7	38.2	50.9	47.5	45.2	45.1	48.6	44.0	57.7	62.6
Cs	0.41	0.96	0.39	0.58	0.75	1.20	0.63	1.40	1.11	1.09	0.99	1.18	2.39
Ba*	277	295	274	285	316	350	371	357	327	383	344	395	406
Sr	238	211	247	233	217	228	232	216	232	221	223	204	219
Sr*	245	216	231	229	219	224	232	222	229	228	223	203	205
Ce	17.3	19.9	17.6	20.0	22.6	21.3	21.4	24.1	14.0	26.8	26.9	22.8	26.5
Y	25.9	27.5	27.3	27.3	28.5	27.9	26.1	29.3	30.5	29.2	32.7	24.7	30.1
Y*	29	30	28	28	30	29	28	33	35	33	35	29	30

* ICP analysis.



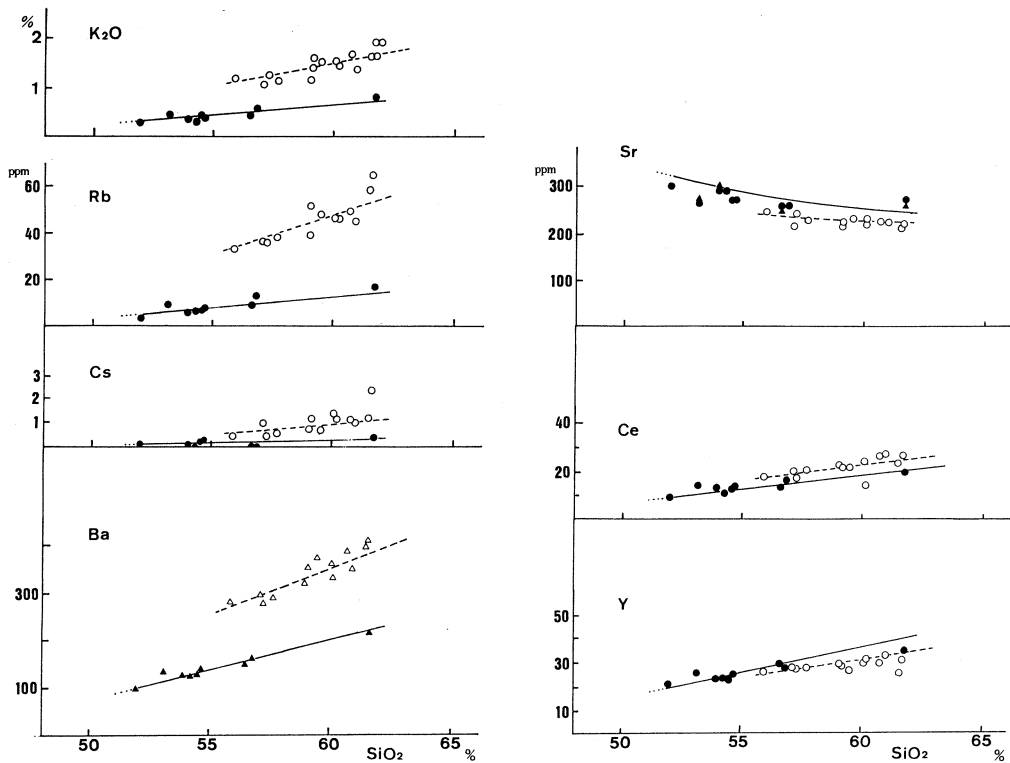
第7図 Silica variation diagrams v. s. trace elements for the rocks of the Adataro volcano. Symbols are same as those in Fig. 4. Triangles indicate the values determined by means of the ICP analytical method. Solid and broken lines indicate the fractionation trends of the low-alkali tholeiite and calc-alkali rock series, respectively. They are calculated by means of the Rayleigh fractionation model (see text).

§ 5. 考 察

1) 主成分化学組成

各系列の主成分化学組成変化を、斑晶鉱物の分別作用によるものとして以下に検討する。

まず、斑晶鉱物間に、液からの分離のし易さに差がないと仮定して分別鉱物集合体のバルクの化学組成を計算する。各系列において斑晶鉱物間の容量比はほぼ一定に保たれていた(第3図)。従ってこの平均値をとり分別鉱物集合体中の各鉱物の体積百分率とする。これらに各鉱物の比重(斜長石 2.7, シソ輝石 3.4, 普通輝石 3.3, 鉄チタン酸化物 5, カンラン石 3.5)をか



第7図 (続き)

け、分別鉱物集合体中の各鉱物の weight fraction を算出した(第4表・A)。各鉱物の平均的組成は斑晶のコアの平均的組成を使う(第5表)。これら weight fraction と各鉱物の化学組成とから算出したバルクの分別鉱物集合体の化学組成を第6表・Aに示す。この値をハーカー図上にプロットしたものが第8図である。明らかに、これらの組成を本火山におけ

第4表 Weight fractions of the minerals in the "fractionated minerals".

	Plagioclase	Hypersthene	Augite	Fe-Ti oxide(s)	Olivine	
A	Tholeiite series	0.72	0.18	0.06	0.03	0 - 0.01
	Calc-alkali rock series	0.64	0.17	0.11	0.07	0 - 0.01
B	Tholeiite series 1	0.646	0.212	0.081	0.051	0.01
	Tholeiite series 2	0.653	0.214	0.082	0.051	0
	Calc-alkali rock series	0.566	0.192	0.131	0.111	0

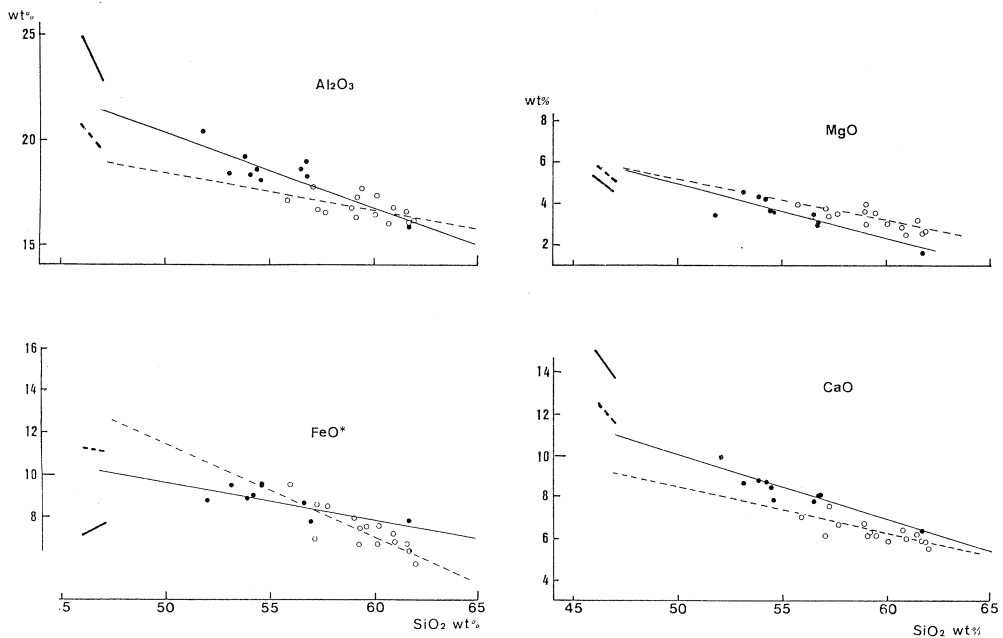
1 Basic rocks ($SiO_2 < 56\%$)2 Acidic rocks ($SiO_2 > 56\%$)

* A and B show the values before and after the revision, respectively (see text).

第5表 Average chemical compositions of the phenocryst minerals.

Tholeiite series						Calc-alkali rock series					
Basalt, Basic andesite.						Basic andesite					
	Plagioclase	Hypersthene	Augite	Fe-Ti oxide	Olivine		Plagioclase	Hypersthene	Augite	Fe-Ti oxide	Olivine
	An ₈₀	Wo ₄ En ₆₅ Fs ₃₁	Wo ₃₉ En ₄₁ Fs ₂₀	UsP ₄₀	FO ₇₅		An ₈₀	Wo _{2.5} En _{59.5} Fs ₃₈	Wo ₄₃ En ₃₉ Fs ₁₈	UsP ₄₀	FO ₆₆
SiO ₂	47	54	52	--	38	SiO ₂	48	53	52.5	--	37
Al ₂ O ₃	32	1.5	2.5	1.5	--	Al ₂ O ₃	32	0.8	1.2	1.8	--
FeO*	0.5	20	12.5	78	23	FeO*	0.5	23.5	11.0	78	30
MgO	--	23	14	--	38	MgO	--	21	13	--	32
CaO	17	1.5	18	--	--	CaO	16	1.3	20	--	--

Andesite.					Acidic andesite				
	Plagioclase	Hypersthene	Augite	Fe-Ti oxide		Plagioclase	Hypersthene	Augite	Fe-Ti oxide
	An ₇₅	Wo _{3.5} En ₆₀ Fs _{36.5}	Wo ₄₁ En ₃₈ Fs ₂₁	UsP ₄₀		An ₇₀	Wo _{2.5} En _{59.5} Fs ₃₈	Wo ₄₃ En ₃₉ Fs ₁₈	UsP ₃₅
SiO ₂	49	53	52	--	SiO ₂	50	53	52.5	--
Al ₂ O ₃	32	1.0	2	1.5	Al ₂ O ₃	30	0.8	1.2	1.5
FeO*	0.5	23	13	78	FeO*	0.5	23.5	11.0	80
MgO	--	21	13	--	MgO	--	21	13	--
CaO	15	1.8	19	--	CaO	14	1.3	20	--

第8图 Silica variation diagram v. s. Al₂O₃, FeO*, MgO and CaO.

Thin straight lines are the average variation lines approximated by the least square method. Thick Lines indicate the assumed bulk chemical compositions of the "fractionated minerals" before the revision (see text). Solid lines are those for the tholeiite series. Broken lines are those for the calc-alkali rock series. Symbols are same as those in Fig. 4.

第6表 Bulk chemical compositions of the "fractionated minerals".

A				
	Tholeiite series		Calc-alkali rock series	
	Basalt	Andesite	Basic andesite	Acidic andesite
SiO ₂	46.0	47.0	46.0	47.0
Al ₂ O ₃	25.0	23.0	21.0	19.5
FeO*	7.3	7.6	11.3	11
MgO	5.4	4.6	5.7	5.0
CaO	15.1	13.4	12.5	11.4

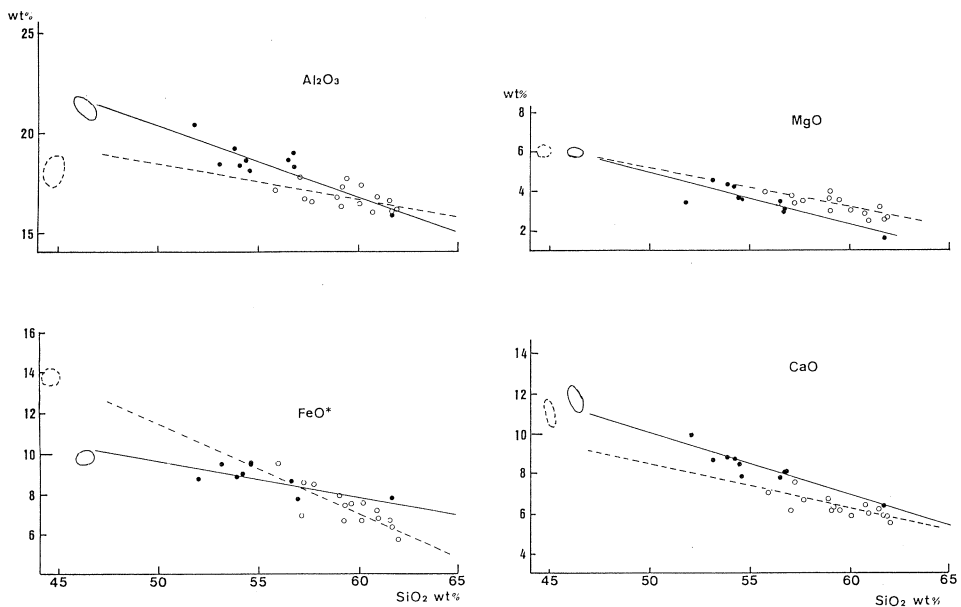
B				
	Tholeiite series		Calc-alkali rock series	
	Basalt	Andesite	Basic andesite	Acidic andesite
SiO ₂	46.0	46.6	44.5	44.9
Al ₂ O ₃	21.0	20.9	18.2	17.1
FeO*	9.7	10.1	15.0	15.0
MgO	6.3	5.5	6.0	5.7
CaO	12.6	11.5	11.8	10.7

* A and B show the values before and after the revision, respectively (see text).

る分別鉱物集合体の組成と見なすには Al₂O₃, CaO が多過ぎ, FeO* (FeO + 0.9 × Fe₂O₃) が少なすぎる。

そこで, 鉱物の平均粒径や密度の相違によって液からの分離のされ易さが異なると考え, 分別鉱物集合体のバルクの化学組成を再計算した。今のところ, 鉱物の, 液からの分離のされ易さの度合を定量的に求める事は, マグマの物性のデータが不十分のため困難であるが次の様な事は十分考えられる。溜り内のマグマに対流が存在すれば液との密度差の大きな

細粒の鉱物は, 密度差の小さな, より粗粒の鉱物よりも効果的に分離される⁷⁾し, またマグマがビンガム流体としてふるまえば液の yield strength は, 液との密度差の小さな粗粒の鉱物,



第9図 Silica variation diagram v.s. Al₂O₃, FeO*, MgO and CaO.

Areas surrounded by oval-shaped curves indicate the assumed bulk chemical compositions of the "fractionated minerals" after the revision. Symbols and lines are same as those in Fig. 10.

たとえば斜長石の、重力分離に対する重要なバリエーションとなりうる⁵⁾。従ってマグマ中において輝石よりも斜長石が分離しにくく、逆に鉄チタン酸化物はより分離し易いという状態が十分存在しうる。そこで先の値から斜長石を20%差し引き、鉄チタン酸化物(主に磁鉄鉱)を40%加えて(第4表・B)、再計算を行った(第6表・B)。これについてもハーカー図にプロットした(第9図)。各系列の分別鉱物集合体の再計算値は、それぞれ、最小二乗法で求めた各系列の平均的トレンドの延長付近に位置する。すなわち、本火山の低アルカリソレライト、カルクアルカリ各系列の主成分組成変化トレンドは、斑晶鉱物の分別作用によって説明できる。両系列における分別鉱物集合体中の各鉱物の weight fraction は表4・Bの通りである。

第7表 Bulk chemical compositions of the primitive magmas (trace elements).

	Tholeiite series	Calc-alkali rock series
wt. %		
SiO ₂	52.0	55.5
TiO ₂	1.02	1.10
K ₂ O	0.30	1.10
ppm		
Ni	45	-
Cr	110	-
Co	30	30
Sc	32	32
V	225	350
Zr	45	92
Nb	4	4
Rb	5	33
Cs	0.01	0.6
Ba	100	260
Sr	320	240
Ce	9	16
Y	20	25

第8表 Silica contents and weight fractions of the residual magmas.

Tholeiite series														
SiO ₂ (magma)	52	53	54	55	56	57	58	59	60	61	62	wt. %		
SiO ₂ (fractionated minerals)	46.0		46.1		46.3		46.4		46.5		wt. %			
weight fractions of the (residual) magma	1.000	0.857	0.750		1.000		0.888	0.798	1.000		0.907	0.829		
							1.000		0.921	0.853				
									1.000	0.931	0.871			
	1.000	0.857	0.750	0.666	0.599	0.543	0.496	0.457	0.423	0.394	0.369			
Calc-alkali rock series														
SiO ₂ (magma)	55.5	56	57	58	59	60	61	62	63	wt. %				
SiO ₂ (fractionated minerals)	44.5		44.6		44.7		44.8		44.9		45.0		45.1	wt. %
weight fractions of the (residual) magma	1.000	0.957	0.880		1.000		0.920	1.000		0.930	1.000		0.934	
							1.000		0.938	1.000		0.941		
									1.000	0.944				
	1.000	0.957	0.880	0.810	0.753	0.703	0.660	0.621	0.584					

第9表 Mineral/liquid apparent partition coefficients. Data sources are Allégre *et al.*¹¹⁾, Bornholst¹²⁾ and Gill⁵⁾.

	P1/1	Opx/1	Cpx/1	Mt/1	Ol/1
Ni	*0 **(0 - 0.26)	11 (4.8 - 24)	8.4 (3.5 - 9)	19 (4 - 19)	25 (13 - 58)
Cr	0 (0 - 0.04)	7 (2.8 - 23)	23 (10 - 70)	15 (1 - 58)	1.9 (1 - 5.2)
Co	0 (0 - 0.1)	5 (3 - 15)	2 (1.7 - 9)	8 (4 - 25)	3.5 (2.5 - 6.5)
Sc	0.03 (0 - 0.03)	2 (1.4 - 7.5)	7.5 (2.5 - 17)	3 (0.8 - 4)	0.16 (0.14 - 0.37)
V	0 (0 - 0.01)	1.5 (0.5 - 7.2)	1.5 (0.9 - 18)	25 (24 - 63)	0.05 (0.02 - 0.09)
Ti	0.03 (0.03 - 0.05)	0.7 (0.26 - 0.7)	1.3 (0.4 - 1.3)	15 (8 - 100)	0.3 (0.02 - 0.3)
Zr	0.02 (0.01 - 0.03)	0.22 (0.02 - 0.22)	0.34 (0.18 - 0.34)	1.0 (0.14 - 1.7)	0.01 (0.01)
Nb	0.025 (0.025)	0.35 (0.35)	0.30 (0.30)	1.0 (1.0)	0.35 (0.35)
K	0.11 (0.02 - 0.2)	0.01 (0.01 - 0.06)	0.02 (0.01 - 0.02)	0.01 (0.01)	0.01 (0.01)
Rb	0.05 (0.02 - 0.19)	0 (0.01 - 0.03)	0.01 (0 - 0.04)	0 (0 - 0.01)	0 (0 - 0.01)
Cs	0.01 (0.01)	0 (0)	0.03 (0.03)	0 (0)	0 (0)
Ba	0.3 (0.05 - 0.36)	0.01 (0 - 0.23)	0.02 (0.002 - 0.15)	0 (0 - 0.01)	0 (0 - 0.01)
Sr	1.96 (1.3 - 3.2)	0.03 (0.004 - 0.1)	0.08 (0.06 - 0.21)	0.01 (0 - 0.01)	0.01 (0 - 0.019)
Ce	0.19 (0.06 - 0.30)	0.03 (0.007 - 0.33)	0.3 (0.04 - 0.51)	0.03 (0.01 - 0.82)	0.01 (0.003 - 0.012)
Y	0.06 (0.06)	0.8 (0.3 - 0.8)	1.0 (1.0)	0.4 (0.4)	0.013 (0.013)

* Suggested value ** Range of reported values
Data sources are Allegre *et al.* (1977), Bornhorst (1980) and Gill (1981).

第10表 Apparent bulk partition coefficients between "fractionated minerals" and liquid.

	TH 1	TH 2	CA
Ni	4.23	4.01	5.32
Cr	4.13	4.15	6.02
Co	1.67	1.64	2.11
Sc	1.21	1.22	1.72
V	1.72	1.72	3.26
Ti	1.04	1.04	1.99
Zr	0.14	0.14	0.21
Nb	0.17	0.17	0.23
K	0.08	0.08	0.07
Rb	0.03	0.03	0.03
Cs	0.01	0.01	0.01
Ba	0.21	0.21	0.17
Sr	1.28	1.29	1.13
Ce	0.16	0.16	0.16
Y	0.31	0.31	0.36

TH Tholeiite series
CA Calc-alkali rock series
1 Basic rocks ($\text{SiO}_2 < 56\%$)
2 Acidic rocks ($\text{SiO}_2 > 56\%$)

2) 微量成分化学組成

次に微量成分の組成変化トレンドを用いて前述の考えを更に検討する。

まず、各系列の岩石中最も SiO_2 に乏しい岩石の平均的な化学組成を未分化マグマの組成とした(第7表)。一方、分別の度合は、未分化マグマと分別鉱物集合体との SiO_2 含有量から加減法を用いて算出した。分別鉱物集合体のバルクの組成は、それらが晶出したマグマの SiO_2 量の増加に従い、若干 SiO_2 に富んでゆく傾向にある。これはカンラン石の有無や斜長石の An 成分の変化等に依る。この SiO_2 増加の割

合をほぼ一定と仮定し、分別の度合を算出した（第8表）。

ここで微量成分は Rayleigh fractionation model に従って挙動するものとする。分別鉱物集合体と液との間のバルクの分配係数は次式で与えられる。

$$\begin{pmatrix} \bar{D}^{\text{Ni}} \\ \bar{D}^{\text{Cr}} \\ \bar{D}^{\text{Co}} \\ \bar{D}^{\text{Sc}} \\ \vdots \\ \bar{D}^{\text{Ce}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} D_{p1/l}^{\text{Ni}} & D_{hy/l}^{\text{Ni}} & D_{au/l}^{\text{Ni}} & D_{mt/l}^{\text{Ni}} & D_{ol/l}^{\text{Ni}} \\ D_{p1/l}^{\text{Cr}} & \dots & \dots & \dots & \dots \\ D_{p1/l}^{\text{Co}} & \dots & \dots & \dots & \dots \\ D_{p1/l}^{\text{Sc}} & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ D_{p1/l}^{\text{Ce}} & \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X_{p1} \\ X_{hy} \\ X_{au} \\ X_{mt} \\ X_{ol} \end{pmatrix}$$

\bar{D}^i = bulk partition coefficient for the trace element i

$D_{a/l}^i$ = partition coefficient between mineral a and liquid

X_a = weight fraction of the phase a

ol: plagioclase, hy: hypersthene, au: augite, mt: titanomagnetite, ol: olivine.

計算に使用した各鉱物-液間の分配係数を第9表に、また得られた分別鉱物集合体-液間のバルクの分配係数を第10表に示す。これらバルクの分配係数を用い、第7表に示した各未分化マグマから Rayleigh model に従って分別結晶作用をさせた時の残液（マグマ）の微量成分組成を見積った。第7図においてその結果を実線（低アルカリソレイト系列）および破線（カルクアルカリ系列）で示してある。これらの計算値と全岩分析値とは、カルクアルカリ系列の Ni, Cr を除いてきわめて良い一致を示す。

本火山のカルクアルカリ系列の安山岩中には Mg に富むカンラン石や普通輝石、シソ輝石がわずかながら存在しており、カルクアルカリ安山岩質マグマに、少量ながら未分化マグマの混入が間欠的に行われた可能性が高い⁸⁾。Mg に富むカンラン石は Ni に、また普通輝石は Cr に富んでいると予想される。これら鉱物を含むマグマの混入は、ごくわずかでもカルクアルカリマグマの Ni, Cr 含有量を大きく変化させる。恐らく 0.5 重量パーセント程度のカンラン石、普通輝石の混入によって、本火山のカルクアルカリ系列で認められる程度の Ni, Cr のばらつきは十分生じうる。またこの程度のマグマの混入によって、他の元素の組成変化トレンドが著しく変化する事はない。

§ 6. 結 論

安達太良火山の低アルカリソレイト系列に属する岩石が示す主成分、微量成分の組成変化トレンドは斑晶鉱物の分別結晶作用により説明できる。

また、カルクアルカリ系列の主成分、微量成分の組成変化トレンドも Ni, Cr を除いて分別結晶作用で説明できる。Ni, Cr の値はばらつくが、これは未分化マグマ、殊に未分化マグマ

由来のマフィック鉱物が、間欠的に、分化中のマグマに少量混入した結果と考えられる。

従って安達太良火山噴出物の組成変化メカニズムは両系列とも主に分別結晶作用であったと結論できる。

光量子放射化分析にあたり、東北大学核理研、八木益男助教授、榎本和義博士ならびにライナックマシングループの方々、東北大学サイクロترون RI センターの藤田稔教授、山寺亮博士をはじめ職員の方々に終始御世話になった。また茨城大学理学部の小沼直樹教授、筑波大学分析センターの西田憲正博士にはプラズマ発光分光分析法による微量元素の定量を行っていた。以上の方々に深く感謝する。

なお本研究の一部に文部省科研費 (Nos. 59420015, 59540509) を使用した。

参 考 文 献

- 1) H. Kuno: Bull. Volcanol. **20** (1959) 37.
- 2) Y. Kawano, K. Yagi and K. Aoki: Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III, **7** (1961) 1.
- 3) 藤縄明彦: 岩鉱 **75** (1980) 385.
- 4) 藤縄明彦: 火山 **28** (1983) 440.
- 5) J. B. Gill: *Orogenic Andesite and Plate Tectonics*. (Springer-Verlag, 1981).
- 6) 高橋正樹, 藤縄明彦: 三鉱学会演旨 (1983) 30.
- 7) R. W. Bartlett: Am. J. Sci. **267** (1969) 1067.
- 8) A. Fujinawa: Ph. D. dissertation, Tohoku Univ. (1984).
- 9) A. Miyashiro: Am. J. Sci. **274** (1974) 321.
- 10) Y. Masuda and K. Aoki: Earth Planet. Sci. Lett. **44** (1979) 139.
- 11) C. J. Allégre, M. Treuil, J-F. Minster, B. Minster and F. Albarede: Contrib. Mineral. Petrol. **60** (1977) 57.
- 12) T. J. Bornholst: Ph. D. dissertation, Univ. of New Mexico. (1980).

東北本州弧・第四紀森吉火山噴出物の微量化学組成

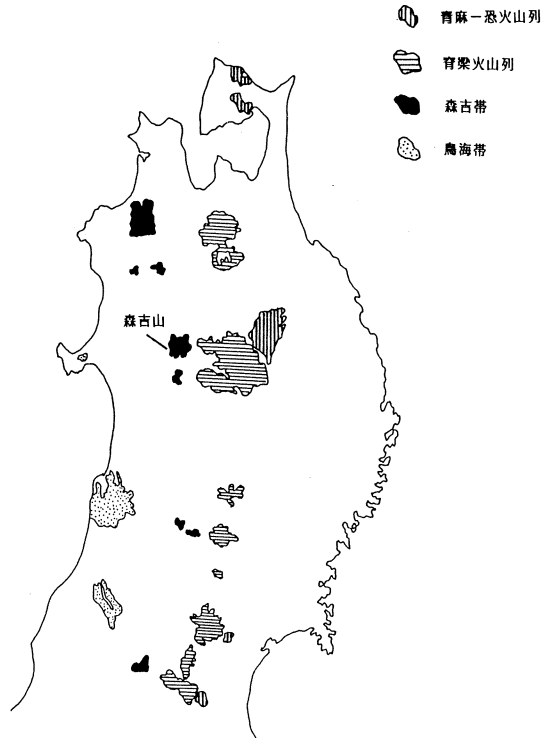
理学部地学

中川光弘・吉田武義・青木謙一郎

§ 1. はじめに

東北本州弧に分布する第四紀火山は、従来、那須火山帯と鳥海火山帯に二分して、その特徴が論じられてきた¹⁾。この東北本州弧第四紀火山の帯状区分は、その地質学的ならびに地球化学的特徴から、最近、さらに細分されている。それによれば、東北本州弧第四紀火山は、海溝側から、従来の那須火山帯が恐山-青麻火山列(恐山, 七時雨, 青麻火山等²⁾)と脊梁火山列(八甲田, 八幡平, 船形, 蔵王火山等²⁾)に、上記以外の那須及び鳥海火山帯が森吉帯(岩木, 田代, 森吉, 白鷹火山等³⁾)と鳥海帯(新称)(寒風, 鳥海, 月山火山等³⁾)に区分されている(第1図)。

森吉火山は森吉帯に属し、脊梁火山列に属する八幡平火山と鳥海帯に属する寒風火山のほぼ中間に位置する。その分布位置上の重要性から、これまで多くの研究がなされている⁴⁻⁶⁾。本火山は、比較的単純な形成史を持つ成層火山である。その活動はカルデラ形成期を挟んで2分でき、それぞれの活動様式ならびに噴出物の岩石学的性質が著しく異なる⁴⁾。本報では、この森吉火山噴出物の微量化学組成を、その岩石学的特徴とともに示し、特に、その活動期の違いによる微量成分元素の挙動の違いについて論じる。



第1図 東北本州弧第四紀火山分布図。

§ 2. 森吉火山の地質と岩石記載

森吉火山の活動は、カルデラ形成期を境に、前期（Eステージ）と後期（Lステージ）に二分でき、前期は更にE1, E2, E3に三分できる。各活動期の地質学的ならびに岩石学的特徴は次の通りである⁴⁾。E1, E2ステージはカルデラ形成前の成層火山体を形成した活動であり、山体中央部を噴出中心とし、主に火砕岩類から成る。本火山で最も早期のE1ステージ噴出物は山体中心部にわずかに露出し、50%前後の斑晶をもつ普通輝石紫蘇輝石安山岩（ $\text{SiO}_2=60\sim 62\%$ ）から成る。休止期をはさんで、その後活動したE2ステージ噴出物は本火山体の7割を占め、この活動により、現在の成層火山体が形成された。その構成岩石は、主に、30%前後の斑晶をもつ普通輝石紫蘇輝石安山岩（ $\text{SiO}_2=57\sim 62\%$ ）であり、少量の、やはり30%前後の斑晶をもつカンラン石含有普通輝石紫蘇輝石安山岩（ $\text{SiO}_2=55\sim 57\%$ ）を伴う。E3ステージはカルデラ形成に伴う活動であり、大規模なスコリア流とそれに引き続く溶岩流から成る。その構成岩石は10%前後の斑晶をもつ紫蘇輝石普通輝石安山岩～石英安山岩（ $\text{SiO}_2=62\sim 66\%$ ）である。カルデラ形成後のLステージは、主に溶岩流と溶岩円頂丘から成り、それらの噴出中心はカルデラ壁周辺およびカルデラ内に散在する。その構成岩石は石英普通輝石含有普通角閃石紫蘇輝石カンラン石玄武岩、石英含有普通輝石カンラン石普通角閃石紫蘇輝石安山岩および石英普通輝石含有紫蘇輝石普通角閃石石英安山岩である。これら岩石の斑晶量は20～40%であり、 SiO_2 wt. %は52～65%である。

森吉火山では、以上のようにカルデラ形成期を挟んで、噴出物の活動様式ならびに岩石学的性質が著しく異なる⁴⁾。カルデラ形成後のLステージ噴出物には、縞状溶岩⁷⁾、同源捕獲岩、結晶度の悪い細粒石基中に散在する玄武岩質粗粒石基（basaltic groundmass⁸⁾）等のマグマの不均質性や、Mgに富んだカンラン石斑晶と石英斑晶の共存等の斑晶鉱物の非平衡組合せが認められる。一方、カルデラ形成前のEステージ噴出物にはそのような現象はみられない。このような岩石記載学的特徴の違いに対応して両期噴出物の主成分元素組成も明瞭な相異を示している⁴⁾。

§ 3. 微量成分元素の分析とその結果

森吉火山噴出物について、既に、湿式分析法による主成分元素組成が公表されている^{4) 9)} 岩石のうち、E1ステージから1個、E2ステージから5個、E3ステージから2個そしてLステージから4個の試料を選び微量成分元素の定量を行った。Ce, Co, Cs, Nb, Rb, Sc, Sr, Yと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、光量子放射化法¹⁰⁾により定量した。また Ba と Sr については筑波大学においてプラズマ発光分光分析法により定量された¹¹⁾

第 1 表 分析試料のモード組成および採取地点。

	PL	OPX	CPX	OR	OL	HO	QZ	
L-1	12.9	2.0	0.9	tr	2.1	0.5	tr	E-1-1; hy-aug and. (Kaerazunosawa 830m)
L-4	28.2	1.3	0.4	0.5	0.9	1.5	1.6	E-2-1; ol-aug-hy and. (Ohmatsuzawa 800m)
L-6	20.5	4.0	2.5	1.8	0.8	0.8	0.5	E-2-3; ol-bearing aug-hy and. (Tokidozawa 540m)
L-7	28.6	2.6	0.4	0.9	-	4.0	2.6	E-2-5; aug-hy and. (Renzazawa 540m)
E-3-2	3.2	0.4	0.7	0.1	-	-	-	E-2-10; aug-hy and. (Todorinaizawa 700m)
E-3-1	++	+	+	+	-	-	-	E-2-12; aug-hy and. (Ozawa 790m)
E-2-12	31.9	1.1	1.7	1.1	-	-	tr	E-3-1; aug-hy and. (Nishinomatazawa 980m)
E-2-10	31.9	0.8	0.7	0.7	-	-	-	E-3-2; hy-aug and. (Sozezawa 480m)
E-2-5	32.2	5.2	4.6	1.7	-	-	-	L-1; qz-bearing ho-aug-hy-ol ba. (east of Okudake 1440m)
E-2-3	29.2	4.0	2.8	1.1	0.1	-	-	L-4; qz-bearing ol-aug-ho-hy and. (Karasuinosawa 1090m)
E-2-1	21.2	3.7	2.3	0.3	0.4	-	-	L-6; qz-bearing ol-ho-aug-hy and. (summit of Hibakuradake)
E-1-1	33.4	6.9	8.4	2.4	-	-	-	L-7; qz-aug-bearing hy-ho da. (Karasuinosawa 1280m)

(aug; augite, hy; hypersthene, qz;quartz, ol;olivine, ho;hornblende,
ba.;basalt, and.;andesite, da;dacite)

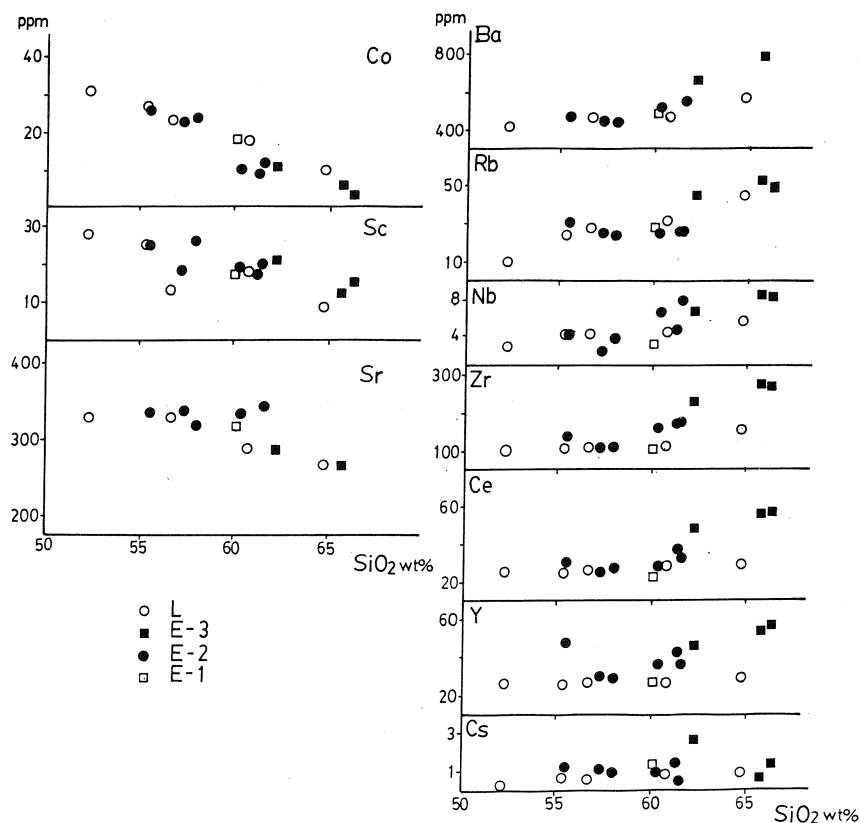
第 2 表 森吉火山噴出物の全岩化学組成。

(%)	E-1-1	E-2-1	E-2-3	E-2-5	E-2-10	E-2*	E-2-12	E-3-1	E-3-2	E-3*	L-1	L*	L-4	L-6	L-7
SiO ₂	60.06	55.50	57.28	58.00	60.33	61.28	61.52	62.20	65.74	66.33	52.22	55.36	56.69	60.76	64.75
TiO ₂	0.76	1.02	0.84	0.95	0.83	0.57	0.82	0.91	0.90	0.69	0.94	0.91	0.83	0.79	0.63
Al ₂ O ₃	17.05	17.61	17.33	17.03	18.48	17.64	17.30	16.43	14.74	13.87	18.91	18.02	18.49	16.79	16.18
Fe ₂ O ₃	5.58	4.42	4.93	5.80	2.82	2.29	3.74	2.45	2.93	2.83	3.99	2.04	4.81	3.98	4.72
FeO	1.46	4.48	3.05	2.96	3.68	3.33	3.08	3.71	2.64	3.45	4.49	5.92	3.04	2.97	0.58
MnO	0.12	0.17	0.17	0.10	0.16	0.09	0.14	0.13	0.14	0.12	0.15	0.11	0.14	0.15	0.13
MgO	2.77	3.52	3.63	3.53	1.28	1.52	1.36	1.27	0.96	1.19	5.45	4.54	3.99	2.38	1.57
CaO	6.34	7.11	7.08	6.73	6.07	6.42	5.75	5.42	3.40	3.69	7.85	7.27	6.69	5.55	3.75
Na ₂ O	3.11	2.97	3.13	3.33	3.98	3.67	3.90	3.55	4.08	3.94	3.07	2.76	3.58	3.45	3.85
K ₂ O	1.26	1.46	1.27	1.30	1.39	1.38	1.52	2.14	2.14	1.98	0.87	1.05	1.25	1.51	1.92
H ₂ O ⁺	1.66	0.77	0.23	0.52	0.71	1.44	0.68	1.66	0.55	0.33	1.48	1.48	0.36	1.41	1.32
H ₂ O ⁻	0.62	0.83	0.54	0.27	0.39	0.35	0.18	0.20	0.91	0.65	1.09	1.01	0.33	0.51	0.63
P ₂ O ₅	0.16	0.25	0.20	0.17	0.21	0.24	0.26	0.29	0.28	0.30	0.25	0.14	0.33	0.16	0.15
total	100.95	100.16	99.66	100.69	100.33	100.22	100.25	100.36	99.44	99.37	100.76	100.61	100.53	100.41	100.18
(ppm)															
Ba	486	473	447	438	520	-	549	667	789	-	418	-	462	461	574
Ce	23.4	31.0	26.0	27.6	29.3	37.5	32.7	48.6	56.2	56.9	26.0	25.2	28.1	29.1	30.0
Co	17.7	25.7	23.1	24.4	9.5	9.3	11.6	10.7	5.7	3.4	31.1	26.8	23.4	17.8	9.6
Cs	1.38	1.33	1.17	0.98	0.97	1.53	0.45	2.68	0.72	1.44	0.31	0.74	0.62	0.91	1.04
Nb	3.3	4.4	2.6	4.2	6.8	4.7	7.9	6.8	8.5	8.4	3.1	4.4	4.4	4.6	5.7
Rb	27.5	31.2	25.1	24.1	24.7	26.8	26.7	45.1	52.6	48.7	9.6	24.3	27.9	32.4	44.9
Sc	16.5	25.0	18.3	26.2	19.0	16.7	19.6	21.1	12.1	14.7	27.7	25.2	12.8	18.4	8.6
Sr*	316	338	339	319	361	-	346	287	267	-	331	-	332	288	268
Sr	341	329	326	335	383	365	372	312	284	274	353	375	418	314	292
Y	27.1	47.2	29.5	28.6	36.5	43.3	37.0	46.9	54.1	57.0	27.2	25.8	26.3	27.0	29.2
Zr	106	141	110	114	167	176	282	232	277	272	103	106	113	115	159
Zn	74	68	53	70	57	48	72	55	88	98	86	72	56	69	63

Sr*; ICP analysis

analyst: E-2*, E-3*, L*; K. Aoki. others, M. Nakagawa

第1表に分析試料のモード組成および試料採取地名を、第2表に分析結果を、主成分元素組成とともに示す。第2図は横軸に SiO_2 wt.% を、縦軸に各微量元素濃度 (ppm) をとった組成変化図である。



第2図 SiO_2 - 微量元素組成変化図。

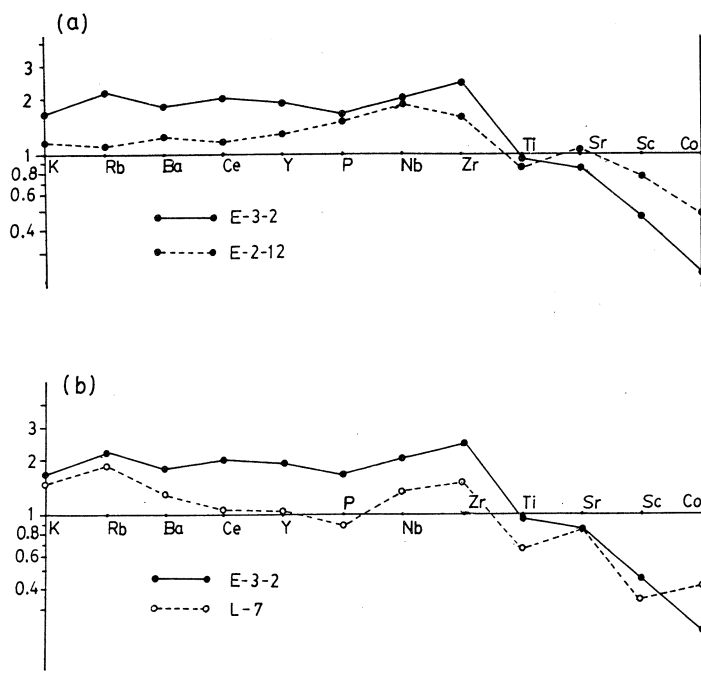
§ 4. 森吉火山噴出物の微量成分元素組成

Eステージ噴出物では全岩の SiO_2 wt.%が増加するにつれて、Co と Sc は単調に減少し、Sr はやや増加 ($\text{SiO}_2 = 60\%$ 前後でピークをもつ) し、その後減少、Ba と Rb は単調増加、Zr, Nb, Y と Ce は $\text{SiO}_2 = 60\%$ 以上になると急激に増加する。一方、Lステージ噴出物では、全岩の SiO_2 wt.%が増加するにつれて、Co, Sc と Sr は減少し、Ba, Rb, Zr, Nb, Y, Ce と Cs は増加する。Lステージ噴出物の各微量元素濃度は、一部の試料における Sc と Zr を除いて、全岩の SiO_2 wt.%の増加に対して直線的に変化している。このような全岩組成の直線的な変化は、

2つのマグマの混合により形成された一連の岩石が示す特徴のひとつ^{5,6)}である。

Eステージ噴出物は、全岩 SiO₂%の増加に伴う鉄の濃集度の違いから、E1とE2・E3に分けられる。両者は斑晶輝石の化学組成にも違いがみられる。E1ステージ噴出物はその露出が限られており、採取試料が示す組成範囲も狭い(SiO₂=60~62%)。これについては詳しい検討は困難であるので、以下の議論からは除いた。

E2, E3ステージ噴出物のうちの珩長質岩(E-2-12 および E-3-2)の組成を苦鉄質岩(E-2-10)の組成で規格化し、SiO₂ wt.%の増加に伴う化学組成の変化を検討した(第3図(a))。第3図(a)から明らかなように、SiO₂ wt.%の増加に伴い、K, RbとBaのLIL元



第3図 (a) E2, E3ステージ噴出物のE-2-10 (SiO₂=58%)による規格化パターン、

(b) 2種の石英安山岩(E-3-2, L-7)のE-2-10 (SiO₂=58%)による規格化パターン。

素(Large ion lithophile elements¹²⁾)およびCe, Y, P, NbとZrのHFS元素(High field strength elements¹²⁾)の濃度は増加し、Sr, ScとCo濃度は低下している。Tiには明瞭な傾向が認められない。SiO₂ wt.%の増加に伴い、濃度が減少する元素はマグマの結晶過程で分別鉱物中に選択的に取り込まれる元素であり、Srは斜長石に、CoとScは主に輝石に分配さ

れる。Ti および Nb が明瞭な減少傾向を示さない事実は、これらが選択的に取り込まれる磁鉄鉱の分別があまり顕著でなかったことを示唆している。この考えは E 2, E 3 ステージ噴出物においては、 SiO_2 wt.% が増加するにつれて Fe/Mg 比が著しく増加すること⁴⁾からも支持される。

以上に述べた、森吉火山噴出物が示す岩石記載、鉱物組成、主成分元素組成と微量元素組成の特徴から判断して、前期噴出物が示す全岩化学組成変化 (E 1 ステージを除く) は、苦鉄質マグマからの斜長石と輝石を主とする分別結晶作用により形成されたものであり、一方、後期噴出物は 2 つのマグマの混合により形成されたものであると考えられる^{5, 6)}。

L ステージ噴出物の組成変化を 2 つのマグマの混合によると考える場合、その珪長質側端成分マグマは L-7 ($\text{SiO}_2 = 64.75\%$) 組成をもっていたと推定される^{5, 6)}。この石英安山岩は E 3 ステージの石英安山岩 E-3-2 ($\text{SiO}_2 = 65.74\%$) とは、普通角閃石や石英の斑晶をもつことをはじめとして種々の相異点がある。両者の化学組成上の違いを検討するために、両者を安山岩 (E-2-10) で規格化した第 3 図 (b) を作成した。両石英安山岩は、K, Rb と Ba の LIL 元素組成には大きな差異はない。コンパティブル元素のうち Co の含有量は L-7 で高い。リン灰石に主に分配されると考えられる P, Ce と Y は E-3-2 では著しく濃集しているのに対して L-7 ではほとんど変化していない。また、L-7 では E-3-2 に比べて Ti の減少が著しい。

§ 5. ま と め

森吉火山噴出物の微量元素組成には次のような特徴がある。

- (1) カルデラ形成前の噴出物の微量元素組成は全岩の SiO_2 wt.% の変化に対して、一連の曲線を描く。
- (2) カルデラ形成後の噴出物の微量元素組成は全岩の SiO_2 wt.% の変化に対して、直線的に変化する。
- (3) カルデラ形成前の噴出物が示す全岩の化学組成変化は、主に、斜長石と輝石の分別結晶作用で説明できる。
- (4) カルデラ形成後に噴出した普通角閃石石英安山岩は、カルデラ形成直前に噴出した紫蘇輝石普通輝石石英安山岩に比べ、苦鉄質岩に対して、P, Ce と Y の HFS 元素が濃集しないという特徴を有する。

本研究を進めるにあたり、東北大学原子核理学研究施設の八木益男助教授、榎本和義博士ならびにライナックマシニンググループの方々、東北大学サイクロトロンRIセンターの藤田稔教授、山寺亮博士をはじめ職員の方々にお世話になった。これらの方々に厚く御礼申し上げる。なお本研究の一部に文部省科学研究費（Nos. 59420015 と 59540509）を使用した。

参 考 文 献

- 1) Y. Kawano, K. Yagi and K. Aoki: Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **7** (1961) 1.
- 2) 霜島 洋, 黒木嘉彦, 中川光弘, 青木謙一郎: 火山第2集 **29** (1984) 155.
- 3) 高橋正樹, 藤縄明彦: 三鉱学会講演要旨集(弘前) (1983) 46.
- 4) 中川光弘: 岩鉱 **78** (1983) 197.
- 5) 中川光弘: 岩鉱 **77** (1982) 148.
- 6) 中川光弘: 火山第2集 **27** (1982) 173.
- 7) G. A. MacDonald and T. Katsura: Geol. Soc. Am. Bull. **76** (1965) 475.
- 8) M. Sakuyama: Jour. Volcanol. Geotherm. Res. **5** (1979) 179.
- 9) Y. Kawano and K. Aoki: Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **6** (1960) 409.
- 10) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki: Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **15-1** (1981) 101.
- 11) N. Onuma, Y. Takaku, N. Nishida and M. Nakagawa: (準備中).
- 12) J. Gill: Orogenic andesite and plate tectonics (Springer, 1981).

東北日本，鳥海火山の地球化学的研究

理学部地学

林信太郎・吉田武義・青木謙一郎

§ 1. はじめに

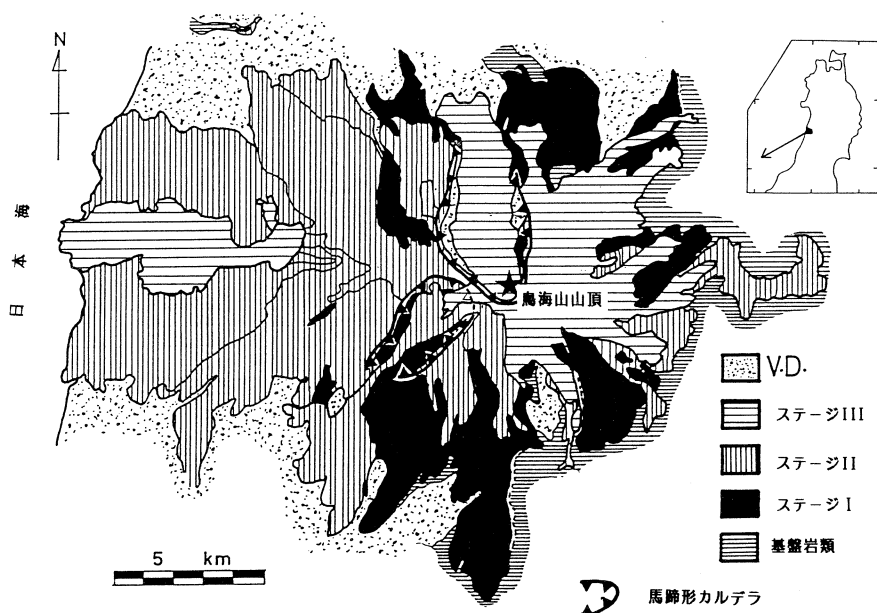
鳥海火山は秋田・山形県境に位置する大規模な成層火山である。本火山は林¹⁾により詳細な地質調査が行なわれ、火山の形成史が明らかにされた。林¹⁾は本火山の形成史を3ステージに区分し、さらに各ステージを細分した。本火山の主な噴出物はカルクアルカリ安山岩であるが、ステージⅠ・Ⅱでは少量の玄武岩が噴出している。各ステージの安山岩はマフィックな安山岩からサリクな安山岩まで変化に富み班晶鉱物の組合せも変化にとんでいる。

本火山の岩石の微量成分の研究には石川ら²⁾によるFの分析があるのみで、しかもその対象になったサンプルは上位の層準のものに限られている。本火山のように詳細な地質調査が行われ、形成史が明らかにされた火山は世界的に見ても例が少なく、これらの調査によって採集されたサンプルをもとに岩石学的・地球化学的研究を行うことは極めて重要である。本稿では、各ステージの代表的岩石24個について主要元素および微量元素の全岩化学分析値を報告する。

§ 2. 地質概略および岩石記載

本火山の活動は林¹⁾により3活動期に区分され、さらに各時期は幾つかに細分されている。ステージⅠには大規模な古期成層火山が形成された。この時期に形成された成層火山体は、それ以後の噴出物にほとんどおおわれており、その詳細な内部構造は不明である。しかし、この山体の外形は円錐形であり、中心噴火により形成されたと考えられる。この火山体は鳥海火山噴出物の60%以上をしめること、また噴出物相互間に浸蝕間隙を示す証拠が頻繁に見出されることから、おそらく長期にわたる活動により形成されたものと推定される。ステージⅡの活動は東西方向に配列した多数の火口群から行なわれた。この時期の噴出物はステージⅠの噴出物を薄くおおっている。西鳥海火山はこの時期に形成された山体の西側部分にあたる。ステージⅢの活動は上記火口群のほぼ西端と東端で行われ、東部には小規模な成層火山体(東鳥海火山)が形成された。第1図に地質図をしめす。

本火山にはカルクアルカリ岩系の玄武岩・安山岩と高アルミナ玄武岩系列の玄武岩が出現する。このうちカルクアルカリ岩系の安山岩が99%以上を占める。本火山に出現する岩石はいず



第1図 鳥海火山の地質図。V.D.；滑落ブロック，崖錐堆積物および河川堆積物。

れも多量の斜長石斑晶を含んでいるが，マフィック斑晶の組合せは各ステージごとに特徴がある。ステージ I の岩石はほとんどが安山岩であり，この他に少量の高アルミナ玄武岩（1%以下）が認められる。安山岩のマフィック斑晶鉱物は普通輝石，紫蘇輝石，磁鉄鉱，±かんらん石であり，かんらん石がモードで1%をこえることはまれである。高アルミナ玄武岩は安山岩と同じ斑晶鉱物組合せをもつが，かんらん石が多い。ステージ II 噴出物もやはり安山岩が主であり，1%程度のカルクアルカリ系列の玄武岩が認められる。この時期の岩石のほとんどはクロムスピネルを包有する大型のかんらん石斑晶をもつ。このステージの前半（ステージ II a）はかんらん石，普通輝石，紫蘇輝石，磁鉄鉱を斑晶としてもつ安山岩・玄武岩が噴出し，後半（ステージ II b・c）にはかんらん石，普通輝石，紫蘇輝石，磁鉄鉱，角閃石を斑晶として含む安山岩・玄武岩が噴出している。ステージ III に噴出した岩石は±かんらん石，普通輝石，紫蘇輝石，磁鉄鉱を斑晶として持つカルクアルカリ安山岩のみである。ステージ III a の岩石中のかんらん石斑晶はクロムスピネルを包有する。一方，ステージ III b の岩石中のかんらん石は斜長石，磁鉄鉱を包有する。第1表に分析サンプルのモード組成を示した。

第1表 鳥海火山産岩石のモード組成。

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Stage	I	I	I	I	I	I	I	I	I	IIa	IIa	IIa
Plagioclase	22.4	19.2	19.6	17.5	23.4	20.5	26.7	22.6	30.8	10.4	16.8	21.1
Olivine	-	-	-	tr	-	tr	-	-	-	3.0	3.6	0.9
Hypersthene	1.0	2.1	1.0	1.1	1.8	1.1	1.5	3.1	3.9	0.8	1.8	2.1
Augite	4.5	4.4	5.2	2.6	2.9	2.0	2.6	3.9	4.0	2.5	4.5	4.6
Opaque mineral	2.1	1.5	0.9	0.9	0.9	0.5	1.6	2.3	3.2	0.6	0.1	1.0
Hornblende	-	-	-	-	-	0.1	-	-	-	-	-	-
Groundmass	70.0	73.7	73.2	78.1	71.1	75.8	67.5	68.1	58.1	82.7	73.2	70.2
No.	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24
Stage	IIa	IIa	IIb	IIb	IIb	IIb	IIc	IIc	IIc	IIIa	IIIa	IIIb
Plagioclase	23.5	19.3	21.5	14.5	19.1	22.8	5.6	29.6	35.1	18.3	31.5	16.3
Olivine	2.5	3.7	2.6	3.7	1.7	0.5	7.2	tr	-	3.1	-	0.8
Hypersthene	2.1	2.3	2.1	1.7	2.0	1.9	0.5	1.8	1.6	1.7	3.1	2.1
Augite	2.5	4.6	3.0	3.6	3.3	4.6	3.2	4.1	4.1	4.2	5.8	3.2
Opaque mineral	1.0	1.1	1.1	0.9	1.4	1.7	tr	1.8	1.6	1.0	2.2	1.1
Hornblende	-	-	0.3	tr	0.4	0.4	0.2	1.1	1.0	-	-	tr
Groundmass	68.2	69.0	69.4	75.5	73.0	68.1	83.3	61.6	56.6	71.7	57.4	76.6

1 洗沢下部溶岩, 2 三の俣溶岩, 3 御滝溶岩, 4 鹿の俣川第一溶岩, 5 三の俣溶岩, 6 奈管谷溶岩, 7 三の俣溶岩, 8 大台野上溶岩, 9 鹿の俣川第二溶岩, 10, 11 釜ヶ岳溶岩, 12 北折川溶岩, 13 川袋溶岩, 14 大砂川溶岩, 15, 16, 17 鳥の海溶岩, 18 霊峰溶岩, 19 八丁坂スコリア, 20 鑛森山円頂丘溶岩, 21 千丈ヶ原スコリア流堆積物中の軽石包有物, 22, 23 七高山溶岩, 24 新山溶岩; 高アルミナ玄武岩-1, カルクアルカリ岩系列の玄武岩-10, 11, (19), カルクアルカリ岩系列の安山岩-その他

§ 3. 分析方法および分析試料

主成分元素は湿式分析法により定量した。Sc, Co, Zn, Rb, Cs, Sr, Ce, Y, Nb, Zr の10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, 30 MeV 加速電子をもちいて光量子放射化法^{3), 4)}により定量した。また, Ba, Srはプラズマ発光分光分析法により定量した。カルクアルカリ系列の玄武岩3個とカルクアルカリ系列の安山岩21個の分析結果を第2表に示す。

なお, これらのうち2サンプルは火砕流堆積物中の本質岩塊とその軽石質包有物であり, その他のサンプルはすべて溶岩である。

§ 4. 主成分元素

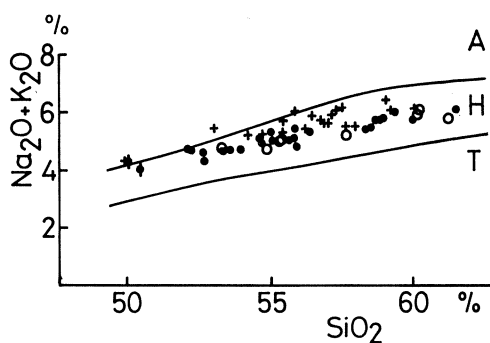
主成分元素には活動期に対応した組成差が認められる。第2図に $\text{SiO}_2 - (\text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O})$ 図を示した。図には久野⁵⁾による三玄武岩帯の領域をしめしてある。鳥海火山の岩石はこの図中で高アルミナ玄武岩領域の上部をしめる。ステージIの岩石はこの中でもアルカリにとみ, 高

第2表 鳥海火山産岩石の全岩化学組成。

* はプラズマ発光分光分析法による。Noは第1表に対応する。

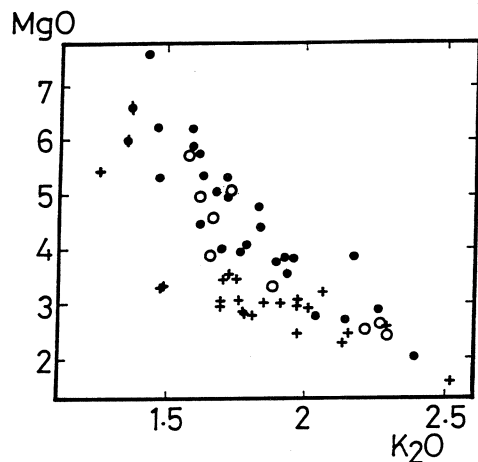
No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Stage	I	I	I	I	I	I	I	I	I	IIa	IIa	IIa
SiO ₂ (wt%)	54.80	54.49	54.92	55.99	56.38	58.39	58.04	58.73	59.37	52.50	52.41	55.00
TiO ₂	1.01	1.03	1.13	1.01	1.02	1.06	1.01	0.95	0.85	1.12	0.92	1.06
Al ₂ O ₃	18.48	16.49	18.67	18.50	18.64	17.35	19.18	18.23	17.48	18.09	17.89	17.34
Fe ₂ O ₃	4.14	5.43	3.80	3.62	3.32	3.34	3.42	3.17	2.83	3.01	2.87	3.40
FeO	4.40	4.72	4.31	4.28	4.43	4.02	2.38	3.10	3.86	5.38	5.59	4.93
MnO	0.19	0.25	0.18	0.17	0.14	0.18	0.16	0.15	0.17	0.13	0.18	0.15
MgO	3.30	3.25	3.05	2.79	2.99	2.44	2.41	2.51	2.26	5.29	5.68	3.97
CaO	7.03	7.25	6.95	6.27	6.11	5.57	5.22	4.81	5.46	9.26	7.90	7.47
Na ₂ O	3.87	3.78	4.10	3.89	3.76	4.43	3.94	3.82	4.02	3.22	3.10	3.40
K ₂ O	1.47	1.45	1.68	1.76	1.83	1.96	2.11	2.25	2.11	1.46	1.58	1.67
P ₂ O ₅	0.33	0.27	0.27	0.29	0.23	0.28	0.24	0.20	0.28	0.22	0.22	0.21
H ₂ O+	0.63	0.88	0.67	0.80	0.42	0.45	0.85	1.40	0.75	0.40	0.87	0.45
H ₂ O-	0.43	0.76	0.53	0.49	0.40	0.33	0.65	0.69	0.37	0.16	0.46	0.45
Total	100.08	100.05	100.26	99.86	99.67	99.80	99.61	100.01	99.81	100.24	99.67	99.50
Sc (ppm)	9.6	18.2	12.6	-	19.5	20.1	15.2	20.8	12.2	21.3	19.4	21.4
Co	16.5	17.9	15.9	14.6	16.4	9.1	10.3	12.9	12.0	26.0	26.8	19.6
Zn	59	78	147	83	52	102	56	54	25	59	59	128
Rb	30.4	30.5	39.3	42.0	46.0	50.0	53.3	52.7	57.0	36.6	42.0	48.4
Cs	0.14	0.20	0.93	0.96	1.18	0.97	1.02	0.89	1.73	0.25	0.40	0.09
Sr	567	574	526	474	545	508	488	351	512	588	570	557
Sr*	-	546	520	-	531	-	459	-	-	593	560	563
Ba*	-	436	530	-	567	-	605	-	-	472	465	524
Ce	37.5	42.5	47.6	40.1	40.3	38.8	34.0	35.9	43.0	35.4	12.9	37.8
Y	30.5	29.2	34.7	30.2	32.7	32.1	28.0	27.9	28.6	28.6	28.4	31.3
Nb	5.3	4.0	5.4	3.9	5.6	5.7	4.9	4.7	5.9	3.3	3.2	4.5
Zr	135	128	147	118	143	142	167	175	153	106	119	128
No.	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24
Stage	IIa	IIa	IIb	IIb	IIb	IIb	IIc	IIc	IIc	IIIa	IIIa	IIIb
SiO ₂ (wt%)	55.42	57.98	54.42	55.17	56.36	58.57	50.99	59.58	60.32	54.30	59.56	57.30
TiO ₂	1.00	0.88	0.95	0.85	0.86	0.91	1.01	0.87	0.70	1.02	0.84	0.97
Al ₂ O ₃	18.83	17.60	17.77	19.02	17.69	17.25	18.35	17.28	17.14	17.84	17.47	18.15
Fe ₂ O ₃	2.99	3.26	4.22	4.03	3.20	3.28	2.83	3.82	3.00	2.79	2.92	3.11
FeO	4.26	3.74	4.08	3.08	4.40	4.19	5.61	3.01	3.46	5.23	3.88	4.30
MnO	0.16	0.14	0.15	0.15	0.14	0.14	0.16	0.13	0.23	0.16	0.14	0.14
MgO	4.06	3.56	4.93	4.40	4.40	3.29	6.36	2.71	1.98	4.93	2.40	3.32
CaO	6.92	6.66	7.31	6.97	6.90	6.07	7.67	6.01	5.07	7.77	5.50	6.64
Na ₂ O	3.67	3.49	3.31	3.20	3.51	3.66	3.10	3.65	3.69	3.14	3.79	3.47
K ₂ O	1.77	1.92	1.69	1.59	1.83	2.06	1.55	2.13	2.35	1.60	2.27	1.87
P ₂ O ₅	0.27	0.21	0.21	0.24	0.23	0.22	0.26	0.18	0.15	0.20	0.19	0.19
H ₂ O+	0.58	0.34	0.23	0.48	0.16	0.51	1.73	0.34	1.75	0.39	0.66	0.42
H ₂ O-	0.26	0.25	0.24	0.33	0.19	0.22	0.35	0.18	0.65	0.15	0.15	0.08
Total	100.19	100.03	99.51	99.51	99.87	100.37	99.97	99.89	100.49	99.52	99.77	99.96
Sc (ppm)	21.8	18.8	21.0	18.5	18.2	17.0	19.1	17.1	10.5	24.2	11.2	18.2
Co	19.6	19.2	21.1	24.7	24.8	16.7	27.8	15.6	13.8	26.6	13.5	20.5
Zn	34	66	103	73	43	42	87	64	50	108	62	71
Rb	43.6	54.0	44.8	49.8	47.1	55.7	41.7	57.8	66.2	39.6	59.5	51.0
Cs	0.53	0.44	0.63	1.57	0.54	2.23	1.47	1.09	2.40	0.77	2.38	2.26
Sr	526	451	493	505	455	428	517	451	414	437	395	409
Sr*	-	454	504	468	480	431	-	447	397	-	-	-
Ba*	-	598	511	533	522	620	-	630	662	-	-	-
Ce	36.3	40.8	34.5	-	-	40.2	28.7	38.2	38.8	31.1	37.8	33.7
Y	28.9	30.0	26.7	28.6	29.0	29.8	23.1	32.4	31.6	26.4	29.4	26.4
Nb	3.9	4.6	5.1	3.7	4.6	4.2	2.9	4.4	4.6	3.7	4.7	3.8
Zr	137	144	122	132	129	154	106	156	175	121	166	137

アルミナ玄武岩領域とアルカリ玄武岩の領域のほぼ境界付近にプロットされる。これに対しステージII・IIIの岩石はアルカリにやや乏しい領域にプロットされる。第3図には K_2O-MgO 図を示す。この図上でステージIの岩石はステージII・IIIの岩石よりも MgO の低い領域にプロットされる。これにたいしステージII・IIIの岩石は MgO に富みほぼ直線的なトレンドを示す。このステージの岩石の K_2O の増加に伴う MgO の減少傾向はステージIの場合よりも急激である。 Na_2O-K_2O 図上(第4図)でも両者の差は明瞭である。ステージII・IIIの岩石は Na_2O 量の低い領域に一連のトレンドをつくるのに対し、ステージIの岩石はそれよりも Na_2O の高い領域にばらつく。この他、同じ SiO_2 量の岩石で比較した場合、ステージIの岩石はステージII・IIIの岩石よりも TiO_2 、 P_2O_5 に富み、 CaO に乏しい。



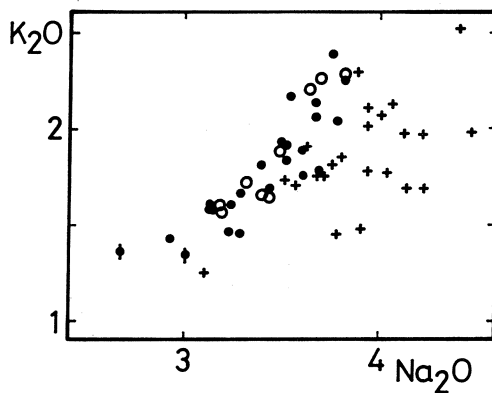
第2図 $SiO_2 - (Na_2O + K_2O)$ 図。

+ ステージI, ● ステージII, ○ ステージIII, ● 同源捕獲岩(ステージII) 図中の曲線は久野⁶⁾による三玄武岩帯の境界をしめす。A アルカリ玄武岩の領域, H 高アルミナ玄武岩の領域, T ソレアイトの領域。



第3図 $K_2O - MgO$ 図。

+ ステージI, ● ステージII, ○ ステージIII, ● 同源捕獲岩(ステージII)。



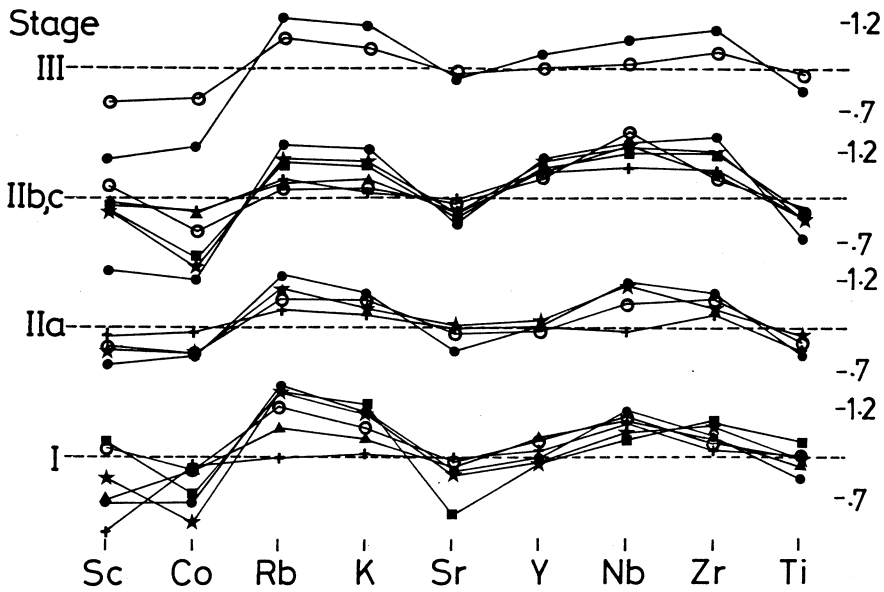
第4図 $Na_2O - K_2O$ 図。

+ ステージI, ● ステージII, ○ ステージIII, ● 同源捕獲岩(ステージII)。

§ 5. 微量元素組成

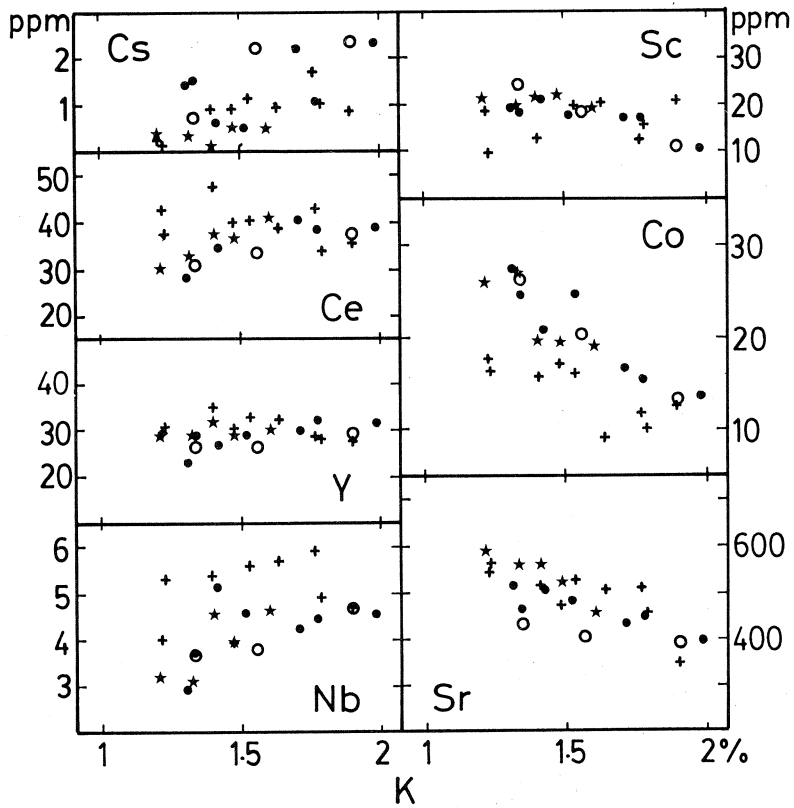
分化にともなう元素の挙動の大まかな傾向を見るために、第5図に各ステージのマフィック

な岩石による規格化パターンを示した。図には Sc, Co, Rb, Sr, Y, Nb, Zr の 7 微量元素と Ti, K について、各ステージの最もマフィックな岩石の元素の量で他の元素を割り、対数でプロットしてある。なお、角閃石安山岩の活動したステージ II b・c の岩石は区分して示してある。各ステージの示すパターンは良く類似している。玄武岩からサリク安山岩へと岩石が SiO_2 にとむにつれて、Rb, Zr, K などのインコンパティブル元素はほぼ同様な比率で増加する。また、これらの元素の増加にともない、カンラン石、単斜輝石などのマフィック鉱物に分配し、晶出分化作用の初期に取去られる Sc や Co は急激に減少する。斜長石に分配される Sr, マグネタイトなどに分配される Ti はやや減少し、Y はほぼ一定、Nb はおおむね Zr の挙動と一致する。以下に各元素の挙動についてのべる。



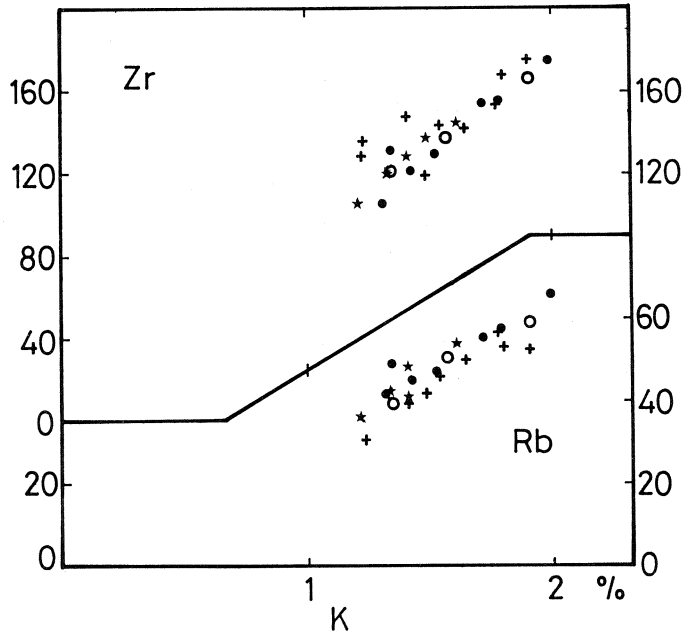
第5図 主要元素および微量元素の最もマフィックな岩石による規格化パターン。

Co, Sc, Sr : この3つの元素はKの増加にともない顕著に減少する(第6図)。ステージIのサンプルのCo量はステージII・IIIの岩石よりも少ない。これにたいし、ステージII・IIIの岩石はよりCoに富み、玄武岩からサリク安山岩に向かって直線的にCo量が減少し、ステージIの岩石との差は縮まる。ステージIの岩石のSc量はばらつき、10~20 ppmで増加の傾向も減少の傾向も示さない。これにたいしステージII・IIIの岩石のSc量はCoの場合と同様に直線的に減少する。SrはステージIの場合、Kが1.8%程度の安山岩までは漸減の傾向をみせる。サリク安山岩では低くなる。ステージII・IIIのサンプルは各々トレンドは異なるがいずれのステージ



第6図 K-微量元素図。

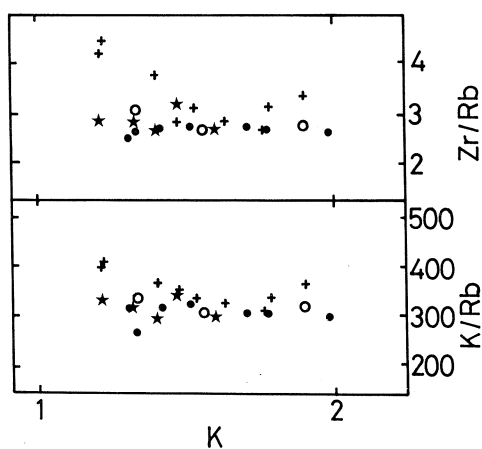
- + ステージI,
- ★ ステージIIa,
- ステージIIb+c,
- ステージIII。



の岩石も直線的に減少する。ステージⅡ・Ⅲの岩石のマフィック安山岩は下位の層準のものほどSr量が高い。

Ce, Y: この2つの元素に関してはKの増加に対して顕著な増減が認められない。マフィックな岩石ではステージⅠの岩石のCe量がステージⅡ・Ⅲのそれを上回る傾向がみえる。Yはほぼ30 ppm前後で一定している。

Rb, Cs, Zr, Nb: これらの元素はそのイオン半径, 電荷から, イソコンパティブル元素として挙動することが期待される。実際, これらの元素はKの増加にともない, 増加の傾向をしめしている。Nb, Csの値はばらつくがこれは両元素の濃度が低いために分析誤差が高かったためと考えられる。Zr, RbはKと非常に良い相関をしめす。第7図にKを横軸に取って, これらの元素の比をしめた。ステージⅡ・Ⅲの岩石のイソコンパティブル元素の比は一定した値をとる(K/Rb = 310前後, Zr/Rb = 2.8前後)。このように一定した元素比を持つことはステージⅡ・Ⅲの岩石が共通のマグマからの一連の分化物であることをしめしている。またステージⅠの岩石の大半はK/Rb, Zr/Rbの高い領域にプロットされる。これはステージⅠの岩石が異なったマグマから導かれたためと考えられる。



第7図 K-Zr/Rb図, K-K/Rb図。
+ ステージⅠ, ★ ステージⅡa, ● ステージⅡb・c, ○ ステージⅢ。

§ 6. ま と め

1) 各微量元素の大まかな挙動はすべてのステージで似通っている。Kの増加にともないRb, Zrはほぼ同じ割合で増加する。これにたいし, Co, Sc, Sr, Yはこの順で減少の程度が著しい。

2) ステージⅠの岩石はステージⅡ・Ⅲの岩石に比べて, Co, Rbに乏しく, Nb, Zrにとむ。

3) ステージⅡ・Ⅲの岩石の示すトレンドはいずれの微量元素-K図上でも直線的である。

4) ステージⅡ・Ⅲの岩石のK/Rb比, Zr/Rb比はほぼ一定であり, ステージⅠのそれよりも低い傾向にある。

本研究を進めるに当たり、東北大学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R Iセンターの藤田稔教授、山寺亮博士には実験上の御便宜を図っていただいた。茨城大学理学部小沼直樹教授、筑波大学分析センターの西田憲正氏にはプラズマ発光分光分析をしていただいた。以上の方々に深く感謝する。なお、本研究の一部に、文部省科研費（Nos. 59420015と59540509）を使用した。

参 考 文 献

- 1) 林信太郎：岩鉱 **79** (1984) 249.
- 2) K. Ishikawa, S. Kanisawa and K. Aoki : Jour. Volcanol. Geotherm. Res. **8** (1980) 161.
- 3) T. Yoshida and K. Aoki : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **16** (1983) 160.
- 4) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **15-1** (1981) 101.
- 5) H. Kuno : Bull. Volcanol. **29** (1966) 195.

東北本州弧・第四紀月山火山の地球化学的研究

理学部地学

小泉治彦・吉田武義・青木謙一郎

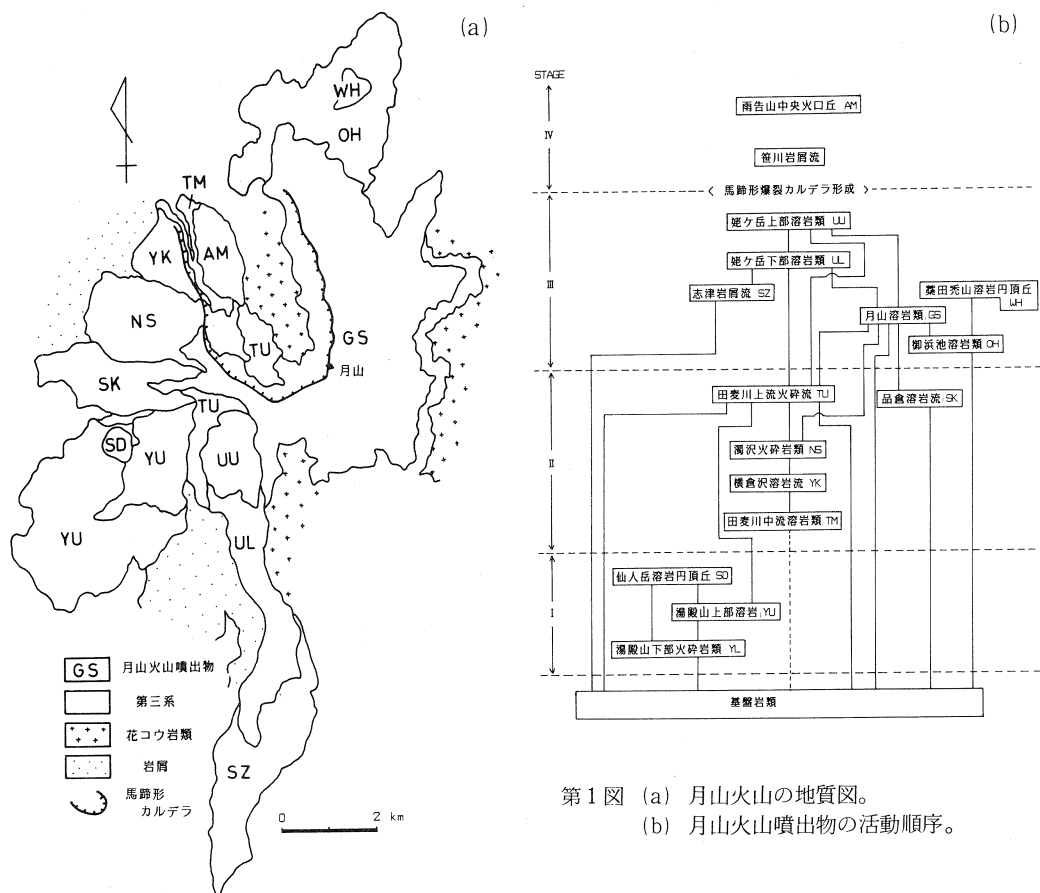
§ 1. はじめに

東北本州弧は発達した島弧であり、火山フロント西側の内弧に2本の火山列が海溝と平行に南北に走っている。東北本州弧に分布する第四紀の火山岩には火山フロントから離れるに従い、 K_2O やアルカリ含有量の増加¹⁾、斑晶としてHb, Biを含む岩石の出現²⁾等の現象がみられ、これには海溝から沈みこむ太平洋プレートの深度が関係していると考えられている。月山火山は背弧側の火山帯である鳥海火山帯に属する第四紀の火山であり、海溝からの距離は約340 km、火山フロントからは約55 kmの位置にある。本火山については多くの研究がなされている³⁻⁵⁾が本論では、その地質概略と岩石の記載を述べた後、光量子放射化法等により行った岩石の分析結果を示し、若干の考察を行う。

§ 2. 月山火山の形成史

月山火山は北西方に開いた直径約3 kmの馬蹄形カルデラをもつ偽アスピーテ火山⁶⁾である。現在みられる山体は本来の円錐形火山体が“磬梯式噴火”により崩壊して形成されたと考えられ、その崩壊物質は馬蹄形カルデラの北西方に流れ山を伴う緩斜面を作っている。火山体の東側では溶岩原面が保存され、緩斜面をなすが、西側山体は開析が進んでおり、原地形の保存は悪い。

月山火山の基盤岩は花コウ岩類および第三系月山累層である。西村によれば月山火山の初期に形成されたガラス質岩の年代は約30万年B.P.である⁷⁾。本火山の形成史は4つのステージに区分できる(第1図)。第1期は湯殿山山体を構成し、その容積は約1.2 km³である。岩石の変質の度合や、地形の開析の程度から最も古いと判断される。湯殿山下部火砕岩類はほとんど火砕流堆積物からなる活動であり、構成岩石は大型の斜長石斑晶をもつ安山岩である。湯殿山上部溶岩は主に溶岩流からなり、少なくとも6枚以上ある。岩石は $SiO_2 = 58 \sim 60\%$ の安山岩である。仙人岳溶岩円頂丘は仙人岳を構成し、地形から溶岩円頂丘と判断される。第2期噴出物は湯殿山の北方で、馬蹄形カルデラ壁の西側を構成している。大型の斜長石を含む石英安山岩質火砕流堆積物を主とする活動であり、安山岩溶岩をわずかに挟在する。第2期噴出



第1図 (a) 月山火山の地質図。
(b) 月山火山噴出物の活動順序。

物の容積は約 1.6 km^3 である。田麦川中流溶岩類は大型の斜長石、普通角閃石、黒雲母と石英の斑晶をもつ本質ブロックを含む火砕流堆積物である。横倉沢溶岩流は石基に特徴的な球果状構造をもつ石英安山岩の溶岩からなる。濁沢火砕岩類は安山岩質本質ブロックをもつ火砕流堆積物であるが、露出は悪い。品倉溶岩流は大型の斜長石、黒雲母と石英斑晶をもつ石英安山岩質溶岩である。田麦川上流火砕流は大型の斜長石、黒雲母、石英斑晶の他にリン灰石を多く含有する石英安山岩質の火砕流堆積物である。第3期活動は安山岩質の溶岩流と火砕岩が互層する活動で山体東部緩斜面及び姥ヶ岳を構成しており、その容積は約 2.8 km^3 である。月山溶岩類は山体東部平坦面を構成する溶岩流主体の活動であり、少量の火砕岩を伴っている。志津岩屑流は供給源のはっきりしない岩屑状堆積物である。姥ヶ岳下部溶岩類、上部溶岩類は共に姥ヶ岳付近を噴出口とする安山岩質溶岩及び同質火砕岩からなるが後者は前者より斑晶普通角閃石量が多い。御浜池溶岩類は御浜池周辺に分布する安山岩質溶岩である。藁田禿山溶岩円頂丘は板状節理の発達した安山岩よりなる溶岩円頂丘である。第4期活動は笹川岩屑流堆積物を生

じた馬蹄形カルデラの形成と中央火口丘の活動からなる。雨告山中央火口丘はほとんどがあまり発泡のよくない火砕岩からなる。その容積は約 0.1 km^3 である。雨告山付近に同質岩石の岩脈がある。

月山火山はまず、安山岩質の湯殿山山体が形成された後、石英安山岩質の火砕流主体の活動が続き、その後の安山岩質溶岩流主体の活動により円錐形の火山体が形成された。この山体はその後の馬蹄形カルデラの形成を伴う山体崩壊と中央火口丘の形成によって現在の地形を示すにいたったと言える。月山火山の総容積は約 5.7 km^3 である。

月山火山の下には基盤構造の大きな不連続が存在する。これは鳥海山の基盤から続く断層であり、東側に対して西側が落ちている。この基盤地形の存在のために第2期噴出物は西側へ、一方、第3期噴出物は東側および北側に流下したと考えられる。

§ 3. 岩石記載

月山火山を構成する岩石は大きく、主に第3期噴出物を構成する斜方輝石普通輝石安山岩(Aグループ噴出物)と、普通角閃石、黒雲母、石英斑晶を多く含む珪長質安山岩~石英安山岩(Dグループ噴出物)とに二分できる。前者はまれに斑晶としてカンラン石、普通角閃石、黒雲母を含む。これらの他に、例外的に斜方輝石普通輝石石英安山岩(YK)や普通角閃石安山岩(YU, AM)がある。岩石系列はすべて紫蘇輝石質岩系に属し、石基の結晶度は一般に悪い。安山岩にはしばしば、斜長石、普通輝石、斜方輝石と鉄鉱からなるクリスタル・クロットや同源捕獲岩が認められる。これらは石英安山岩ではあまり認められない。第1表に月山火山を構成する代表的な岩石16個についてのモード組成を示す。これらは概して斑状であり、その斑晶量は19~40容量%におよぶ。この斑晶のうち約7割を斜長石が占めている。安山岩の斑晶における普通輝石/斜方輝石比は火山フロントに産する第四紀安山岩に対して大きく、後者では一般に斑晶斜方輝石>斑晶普通輝石であるのに対して前者では斑晶普通輝石は斑晶斜方輝石の5~10倍程度含まれる。第2図aは頂点に石基、苦鉄質斑晶、珪長質斑晶をとった三角図である。Aグループ、Dグループの岩石におけるモード組成の変化は、共に石基頂点を通る直線に回帰でき、このことはある特定の苦鉄質斑晶/珪長質斑晶比をもった斑晶集合体と石基との分別によりこのようなモード組成の変化が生じた可能性を示唆している。また、第2図bのように、頂点に、斜長石斑晶、輝石斑晶と含水鉱物斑晶をとった三角図に各岩石を点示すると、Aグループの岩石は斜長石-輝石辺上に、またDグループの岩石は斜長石-含水鉱物辺上に集中する。このように、この2グループの岩石間には、鉱物組合せ、特に、含水鉱物斑晶量に著しい相違がみられる。

第1表 月山火山噴出物のモード組成。

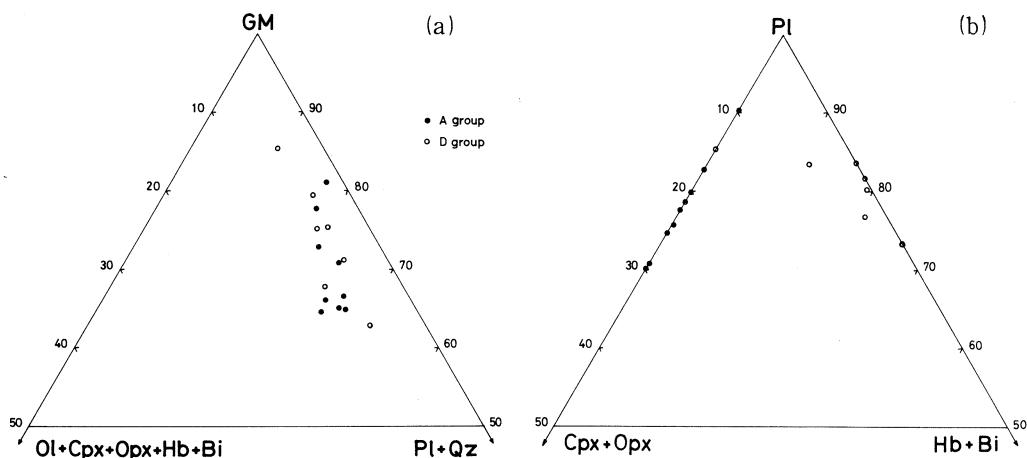
No.	Stage		Ol	Opx	Cpx	Hb	Bi	Opq	Pl	Qz	PH%	GM%
2	III	UL	0.7	0.8	4.1	—	—	0.4	23.5	—	29.5	70.5
3	III	GS	—	1.2	8.2	—	—	0.7	24.3	—	34.4	65.6
4	III	UL	—	1.5	6.3	—	—	1.1	26.9	—	35.8	64.2
6	III	GS	—	1.2	7.0	0.1	—	1.9	25.9	—	36.1	63.9
7	III	GS	—	1.3	5.5	—	—	1.1	20.0	—	27.9	72.1
8	III	WH	—	1.3	9.2	—	—	1.1	24.6	—	36.2	63.8
10	I	YU	—	0.1	1.4	3.1	0.1	1.3	23.7	—	29.7	70.3
11	III	GS	0.1	0.6	3.8	—	—	1.0	17.5	—	23.0	77.0
12	III	GS	0.1	1.8	5.2	—	—	1.6	25.8	—	34.5	65.5
14	IV	AM	—	—	—	4.2	0.2	1.2	19.6	1.0	26.2	73.8
15	III	GS	—	0.4	1.4	—	—	0.5	16.9	—	19.2	80.8
16	I	YL	—	—	—	5.3	2.3	0.5	20.9	11.0	40.0	60.0
17	I	YU	—	—	0.1	3.5	0.3	0.8	15.8	3.1	23.6	76.4
18	II	TU	—	0.2	0.4	4.4	0.6	0.6	18.5	2.4	27.0	73.0
19	II	YK	—	0.7	4.3	—	—	1.0	29.0	0.2	35.2	64.8
20	II	SK	—	—	—	4.5	1.5	1.7	30.4	0.3	38.4	61.6

試料番号は第2表の番号に、ステージ、記号は第1図(b)に対応している。

Ol : olivine, Opx : orthopyroxene, Cpx : clinopyroxene, Hb : hornblende,

Bi : biotite, Opq : opaque mineral, Pl : plagioclase, Qz : quartz,

PH : phenocryst, GM : groundmass.

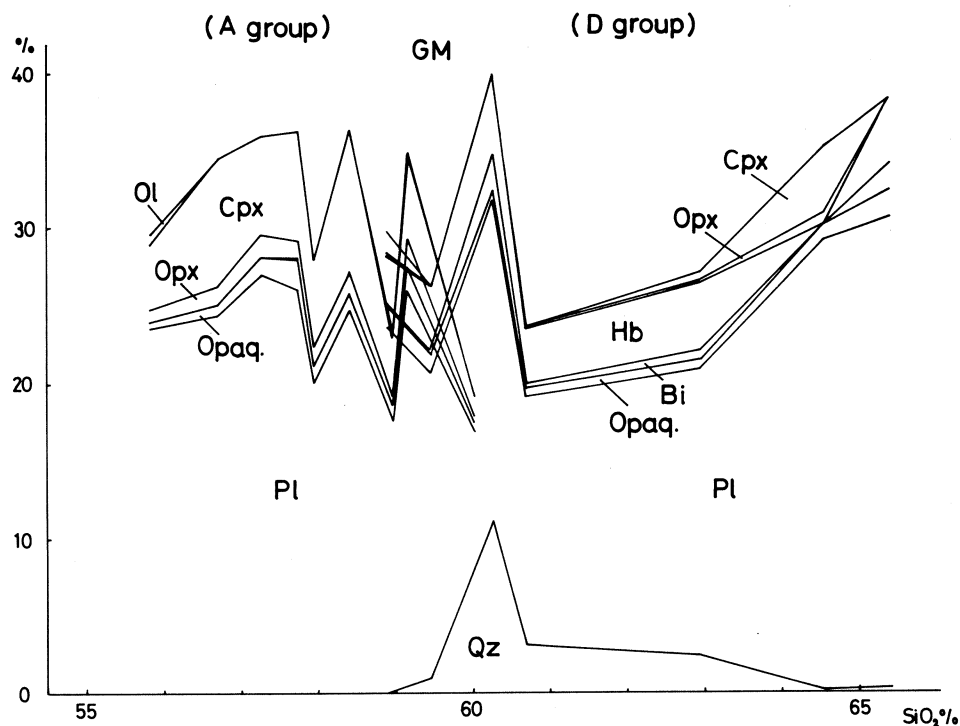


第2図

(a) 苦鉄質斑晶-珪長質斑晶-石基 三角図。(b) 斜長石斑晶-輝石斑晶-含水鉍物斑晶 三角図。

岩石の組成の変化に伴うモード組成の変化をみるために、横軸にSiO₂重量%をとり、縦軸にモード組成をとった第3図を作成した。これによれば概して岩石のSiO₂重量%が増えたと

もに普通輝石と斜方輝石が減少し、普通角閃石、黒雲母、石英斑晶が増える傾向がみられるが、これらの変化は連続的ではなく、 $\text{SiO}_2 = 60\%$ 前後で急激に変化している。このことはAグループの岩石と、Dグループの岩石との間には明瞭なモード組成上の不連続があることを示している。



第3図 SiO_2 -モード組成図。
記号は第1表参照。

§ 4. 岩石の分析方法と結果

月山火山の代表的試料16個について、あらたに湿式分析法により主成分元素の定量を行った。このうち12個については微量元素の定量も行った。定量にあたっては、東北大学理学部核理研において電子ライナックを利用し、30 MeVの加速電子を用いて、光量子放射法⁸⁾により定量した。分析結果を第2表、第3表に、 SiO_2 を横軸にとった組成変化図を第4図、第5図に示した。これらの図には、比較のため、火山フロントに位置する八幡平火山におけるカルク・アルカリ岩系の組成変化径路⁹⁾を一緒に示した。月山火山噴出物の組成は $\text{SiO}_2 = 56 \sim 67\%$ の安山岩～石英安山岩である。分析試料No. 1は第3期噴出物中から産した同源捕獲岩である。第3期噴出物の組成は $\text{SiO}_2 = 56 \sim 60\%$ であり、月山火山噴出物のうち苦鉄質側を占める。主成分元素

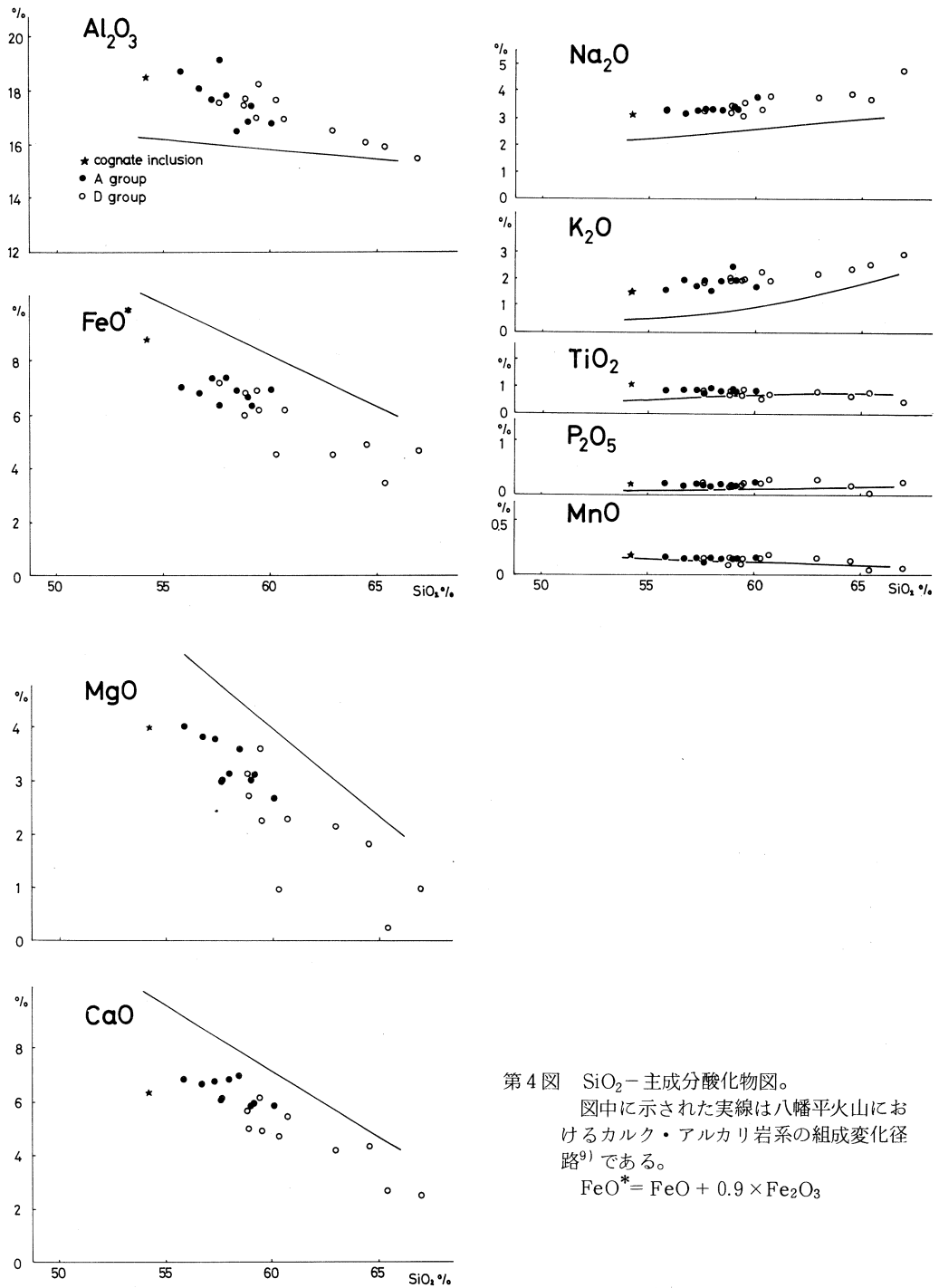
第2表 月山火山噴出物の主成分元素組成。

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Stage		III	III	III	III	III	III	III	III	I	III
Name		UL	GS	UL	UU	GS	GS	WH	GS	YU	GS
wt. %											
SiO ₂	54.20	55.83	56.72	57.26	57.76	57.77	57.96	58.42	58.84	58.90	58.98
TiO ₂	1.09	0.85	0.88	0.86	0.85	0.76	0.93	0.81	0.70	0.86	0.91
Al ₂ O ₃	18.49	18.70	18.05	17.63	17.56	19.14	17.83	16.50	17.48	17.71	16.89
Fe ₂ O ₃	5.30	3.28	3.47	4.18	3.29	3.30	3.31	3.27	3.29	3.65	3.47
FeO	3.97	4.04	3.66	3.58	4.20	3.38	4.40	3.95	3.02	3.51	3.53
MnO	0.18	0.17	0.15	0.16	0.15	0.11	0.16	0.15	0.09	0.17	0.15
MgO	3.98	4.01	3.82	3.78	3.02	3.03	3.14	3.60	3.13	2.72	3.02
CaO	6.34	6.83	6.63	6.74	6.06	6.13	6.83	6.95	5.70	5.00	5.86
Na ₂ O	3.11	3.30	3.17	3.27	3.27	3.31	3.32	3.29	3.17	3.42	3.42
K ₂ O	1.54	1.60	1.97	1.73	1.87	1.94	1.55	1.93	2.01	1.98	2.45
H ₂ O+	0.86	0.48	0.68	0.70	0.92	0.72	0.18	0.64	1.15	1.10	0.52
H ₂ O-	0.48	0.23	0.26	0.40	0.64	0.56	0.06	0.25	0.87	0.49	0.35
P ₂ O ₅	0.19	0.20	0.16	0.20	0.21	0.18	0.15	0.20	0.15	0.19	0.15
total	99.73	99.52	99.62	100.49	99.80	100.33	99.82	99.96	99.60	99.70	99.70
Analyst	HK	HK	HK	HK	KA	HK	HK	HK	KA	HK	HK

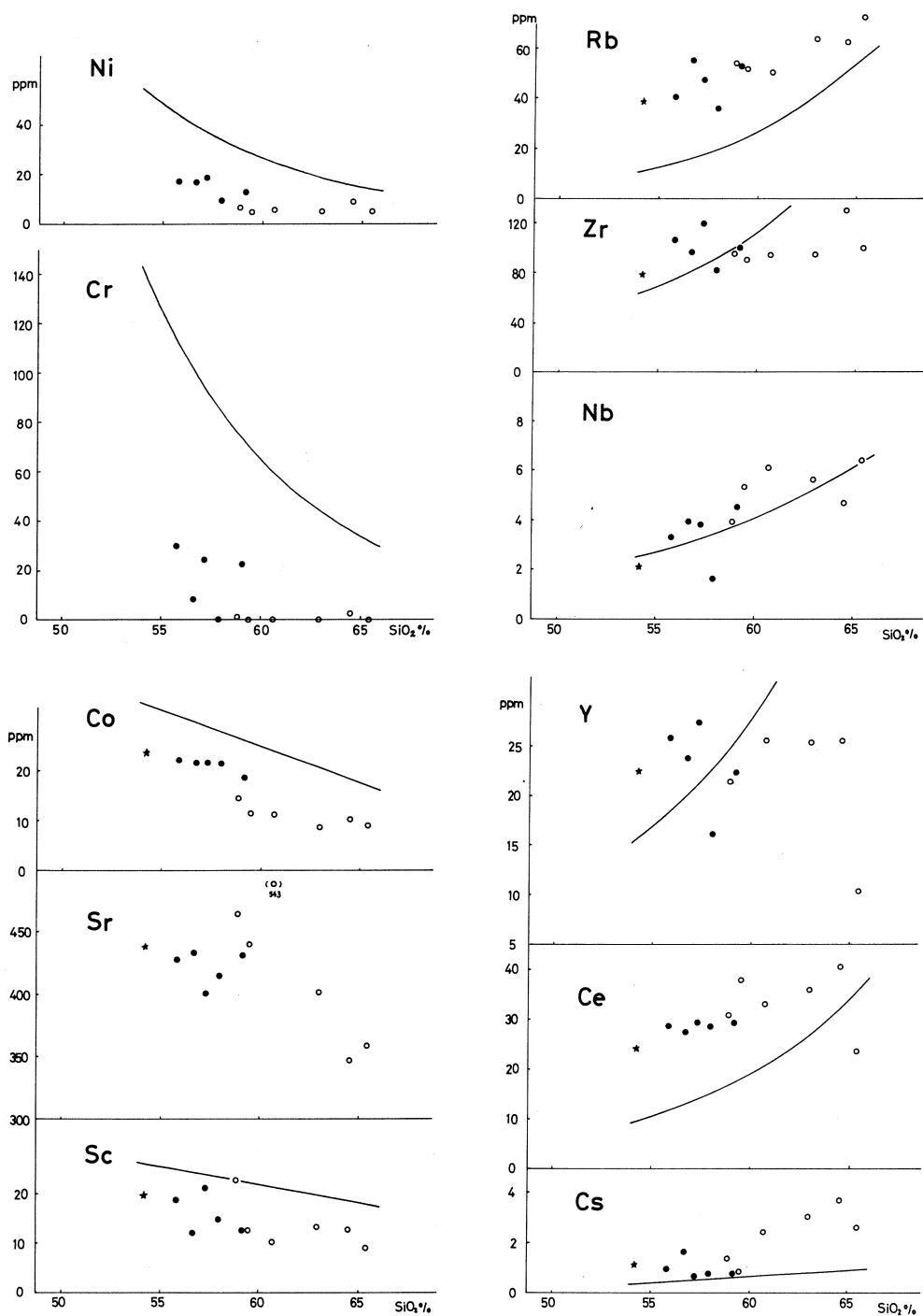
No.	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21
Stage	III	III	IV	III	I	I	II	II	II	I
Name	GS	UL	AM	GS	YL	YU	TU	YK	SK	
wt. %										
SiO ₂	59.16	59.39	59.48	60.03	60.29	60.71	62.95	64.55	65.41	66.98
TiO ₂	0.81	0.68	0.90	0.84	0.52	0.72	0.78	0.67	0.78	0.44
Al ₂ O ₃	17.43	17.01	18.23	16.80	17.63	16.97	16.52	16.09	15.92	15.48
Fe ₂ O ₃	3.58	3.47	4.63	3.64	2.89	3.73	3.19	3.08	3.40	2.69
FeO	3.09	3.77	1.98	3.63	1.91	2.80	1.63	2.13	0.41	2.21
MnO	0.15	0.10	0.15	0.16	0.16	0.18	0.16	0.13	0.05	0.07
MgO	3.12	3.60	2.27	2.69	0.96	2.29	2.15	1.83	0.25	0.98
CaO	5.95	6.14	4.90	5.85	4.76	5.45	4.18	4.33	2.69	2.49
Na ₂ O	3.31	3.08	3.58	3.77	3.30	3.80	3.74	3.89	3.69	4.75
K ₂ O	1.97	1.91	2.00	1.72	2.25	1.91	2.19	2.37	2.55	2.92
H ₂ O+	0.81	0.58	0.89	0.30	3.64	0.96	1.24	0.45	3.40	0.59
H ₂ O-	0.37	0.44	0.52	0.16	1.58	0.19	0.54	0.19	0.97	0.32
P ₂ O ₅	0.16	0.19	0.22	0.23	0.20	0.28	0.27	0.17	0.04	0.24
total	99.91	100.36	99.75	99.82	100.09	99.99	99.54	99.88	99.56	100.16
Analyst	HK	KA	HK	HK	HK	HK	HK	HK	HK	YK

HK : Haruhiko Koizumi, KA : Ken-ichiro Aoki, YK : Yoshio Katsui.

- 同層捕獲岩，月山北部にこり沢。
- 斜方輝石普通輝石安山岩，姥沢小屋南方約900m地点。
- 斜方輝石普通輝石安山岩，にこり沢上流，標高約1550m地点。
- 斜方輝石普通輝石安山岩，姥沢小屋の約300m南。
- カンラン石紫蘇輝石普通輝石安山岩，姥ヶ岳山頂¹⁰⁾。
- 斜方輝石普通輝石安山岩，月山山頂の南西約1200m地点。
- 斜方輝石普通輝石安山岩，東部平坦面の崖。
- 斜方輝石普通輝石安山岩，薬田山南西部の露頭。
- カンラン石紫蘇輝石普通輝石安山岩，月山山頂¹⁰⁾。
- 斜方輝石黒雲母含有普通輝石普通角閃石安山岩，湯殿山東側標高約1400m地点。
- 斜方輝石普通輝石安山岩，月山山頂北西側の沢標高約1650m地点。
- 斜方輝石普通輝石安山岩，月山北部バラモミ沢上流。
- カンラン石紫蘇輝石普通輝石安山岩，姥ヶ岳の2km南¹⁰⁾。
- 黒雲母含有普通角閃石安山岩，雨告山山頂付近。
- 斜方輝石普通輝石安山岩，仙人沢右岸標高1350m地点。
- 黒雲母普通角閃石安山岩，仙人沢湯殿山神社の上流。
- 普通輝石黒雲母含有普通角閃石安山岩，湯殿山東側石跡川上流標高1160m地点。
- 斜方輝石普通輝石含有黒雲母普通角閃石石英安山岩，田麦川上流標高1500m地点。
- 斜方輝石普通輝石石英安山岩，雨告山の北西約1200m田麦川の左岸。
- 黒雲母普通角閃石石英安山岩，仙人沢祈祷所北側標高約1000m地点。
- 紫蘇輝石黒雲母普通角閃石石英安山岩，湯殿山円頂丘浴岩¹¹⁾。



第4図 SiO_2 -主成分酸化物図。
 図中に示された実線は八幡平火山における
 カルク・アルカリ岩系の組成変化径
 路⁹⁾である。
 $\text{FeO}^* = \text{FeO} + 0.9 \times \text{Fe}_2\text{O}_3$



第5図 SiO_2 -微量元素組成変化図。

記号等は第4図参照。なお、八幡平カルク・アルカリ系列のSr組成は低すぎて図中に表示できなかった。

第3表 月山火山噴出物の微量元素組成。

	1	2	3	4	7	10	12	14	17	18	19	20
ppm												
Sc	19.8	18.7	12.0	21.1	14.8	22.7	12.6	12.6	10.2	13.3	12.9	8.9
Cr	—	29.5	8.5	24.1	tr	1.6	22.5	tr	tr	tr	2.9	tr
Co	23.6	22.1	21.5	21.6	21.5	14.3	18.6	11.3	11.0	8.7	10.1	9.2
Ni	—	17.0	16.9	18.8	9.7	6.9	13.0	4.9	6.0	5.0	9.1	5.0
Zn	49	58	62	61	42	47	46	79	75	66	82	33
Rb	38.8	40.6	55.0	47.2	35.9	53.9	52.9	51.3	50.0	63.6	62.4	72.3
Cs	1.14	0.94	1.63	0.68	0.73	1.37	0.79	0.86	2.43	3.09	3.76	2.63
Sr	438	428	433	401	415	465	432	440	543	402	347	359
Ba	403	538	566	676	—	555	468	919	488	488	925	801
Ce	24.1	28.6	27.5	29.4	28.6	30.9	29.2	38.1	33.4	36.0	40.4	23.6
Y	22.5	25.9	21.3	27.4	16.1	21.5	22.4	32.7	25.6	25.4	25.6	10.4
Nb	2.1	3.3	3.9	3.8	1.6	3.9	4.5	5.3	6.1	5.6	4.7	6.4
Zr	78.1	106	96.4	119	82.5	95.2	101	90.2	94.6	94.0	130	100

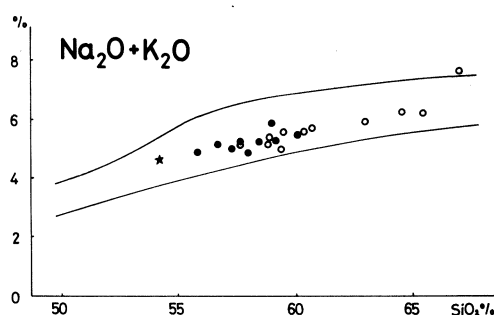
試料番号は第2表の番号に対応している。

組成において各ステージの岩石はそれぞれ一連の組成変化経路を示している。

§ 5. 月山火山噴出物の地球化学的特徴

月山火山は同じ鳥海火山帯に属する鳥海火山が玄武岩から安山岩を主体とするのに対して珪長質安山岩から石英安山岩を主体とする火山である。月山火山噴出物は大きく、斜方輝石普通輝石安山岩（Aグループ）と黒雲母普通角閃石石英安山岩（Dグループ）とに区分できる。その分布地域も東部と西部にかなり明瞭に分かれている。これら両岩石グループの組成はともに、AFM図ではカルク・アルカリ系列の領域にはいり、珪酸-アルカリ図上（第6図）では高アルミナ玄武岩系列の領域に点示される。主成分組成でみる限り、同じ鳥海火山帯に属する鳥海火山や沼沢火山の噴出物の組成と類似する。また、火山フロントの安山岩に比較してやや Al_2O_3 が多く、アルカリも多い。FeO*は少なく、ノルム鉱物として石英がでる。

記載岩石学的に、明瞭に区分できる2つの岩石グループの間には、主成分元素組成の上ではあまり明瞭な差異は認められないが、微量成分元素の組成変化径路にはかなり明瞭な差異が認



第6図 SiO_2 - アルカリ図
記号は第4図参照。図中の境界線は Kuno¹²⁾による。

められる。すなわち、CoとCrが $\text{SiO}_2 = 60\%$ のところ急減し、一方、CsとNbはそこで増加する。この微量元素濃度における不連続は斑晶鉱物モードにおける不連続と密接に関連していると考えられる。

月山火山噴出物の組成を火山フロントの火山岩組成と比較すると、 K_2O 、全アルカリとともにRb、Ce、CsやSr等の微量元素は明らかに富んでおり、島弧を横切る方向での組成変化が明瞭に認められる。それに対して、火山フロントの火山岩中では明瞭なインコンパティブル元素として振舞うZrとYが、月山火山噴出物中では、 SiO_2 重量%の増加に対して明瞭な増加を示さないとともに、その濃度も前者とあまり変わらない。

§ 6. さいごに

月山火山は島海火山帯に属する第四紀火山であり、その形成史は4期に分けられる。その火山活動は東高西低の基盤構造に支配され、その境界部に活動中心があった。初期の活動は西側におこり、低地を埋めた後、東側斜面にも溶岩が流下し、円錐状火山体を形成した。その後、大規模な岩屑流を伴う活動により、北西方に開いた馬蹄形カルデラが形成された。

月山火山噴出物を構成する岩石は、記載岩石学的に異なる2つの岩石グループからなる。これらはすべて紫蘇輝石質岩系に属している。このうち、苦鉄質側のグループは斜方輝石普通輝石安山岩であり、一方、珪長質側のグループは角閃石、黒雲母、石英斑晶をもつ安山岩～石英安山岩である。このような斑晶モードの不連続に対応する異常は微量元素組成の変化径路にも認められる。

月山火山噴出物の化学組成は火山フロントの安山岩の組成に比較して、より鉄が少なく、アルカリ、 Al_2O_3 が多い。 K_2O 、全アルカリとともにRb、Ce、CsとSrは火山フロントの火山岩組成に対して明らかに富んでおり、島弧を横切る方向での組成変化が明瞭に認められる。一方、火山フロントの火山岩中ではインコンパティブル元素として振舞うZrとYが、月山火山噴出物中では、 SiO_2 重量%の増加に対して明瞭な増加を示さず、その濃度も前者とあまり変わらない。すなわち、マグマの分化に伴う組成変化において、背弧の火山からの噴出物は、火山フロントからのものとは異なる挙動を示すことが明らかになった。

本研究にあたり、東北大学理学部核理研、八木益男助教授、榎本和義博士ならびにライナックマシニンググループの方々、東北大学サイクロトロンRIセンターの藤田稔教授、山寺亮博士をはじめ職員の方々には終始お世話になった。また東北大学教養部地学教室の石川賢一博士には

一部試料の分析をやっていただいた。これらの方々に厚く御礼申し上げます。なお、本研究の一部に文部省科学研究費（Nos. 59420015 と 59540509）を使用した。

参 考 文 献

- 1) H. Kuno : Bull. Volcanol. **20** (1959) 37.
- 2) 柵山雅雄 : 火山第2集 **22** (1977) 263.
- 3) T. Ichimura : Bull. Earthq. Res. Inst., Tokyo Univ. **33** (1955) 419.
- 4) 柴橋敬一 : 酒田西高研究紀要 **1** (1975) 1.
- 5) 宇井忠英 : 山形県総合学術調査会報告「出羽三山葉山」(1975) 15.
- 6) 守屋以智雄 : 日本の火山地形(東京大学出版会).
- 7) 今田 正, 柴橋敬一, 富沢 尹 : 山形県総合学術調査会報告「出羽三山葉山」(1975) 1.
- 8) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **15** (1981) 101.
- 9) 吉田武義・渡部均・青木謙一郎 : 核理研研究報告 **16** (1983) 309.
- 10) Y. Kawano, K. Yagi and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **7** (1961) 1.
- 11) Y. Katsui : 地質学雑誌 **60** (1954) 187.
- 12) H. Kuno : Bull. Volcanol. **29** (1966) 195.

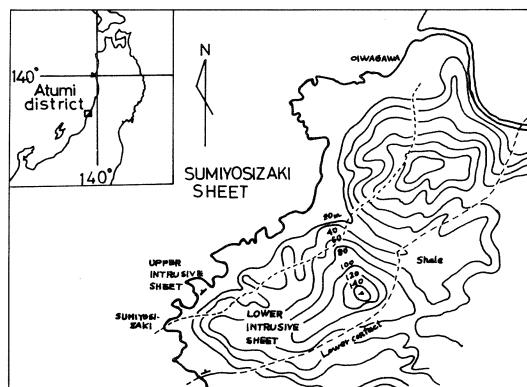
山形県・温海地域住吉崎岩床の地球化学的研究

理学部地学

徐 紅・吉田武義・青木謙一郎

§ 1. はじめに

住吉崎アルカリドレライト岩床は山形県温海地域に分布する数多くのドレライト岩床の一つである(第1図)¹⁾。中新世の地層を貫き、その貫入年代は中新世後半とされている。本岩床は北東～南西に伸びる、幅約 0.8 km、長さ約 1.5 km の地域に露出する。本岩床は西に約 30° 傾斜し、その最大の厚さは約 300 m であるが、今回、試料を連続的に採取した住吉崎付近での厚さは約 200 m である。この岩床は下部岩床と上部岩床からなる



第1図 Sketch geological map showing distribution of Sumiyoshizaki sheet after Kushiro.¹⁾

複合岩床である。下部岩床は変質の進んだカンラン石玄武岩からなる数10 cm 幅の基底急冷相をもち、主体は、アルカリドレライト、方沸石アルカリドレライトからなる。その中にドレライトペグマタイト、モンゾニ岩、そして閃長岩よりなる分化脈やパッチが発達している¹⁾。上部岩床は主に石英ドレライトから構成されており、少量の分化脈やパッチを伴う。特に下部岩床については海岸に沿って、岩床の下部から上部へ連続的に試料を採取でき、本岩床はアルカリドレライトマグマの分化作用を研究するには最適の岩体である。

温海地域のドレライトについては、久城¹⁾をはじめ、青木・水越²⁾、藤巻³⁾などの研究がある。本論では、住吉崎アルカリドレライト岩床について光量子放射化分析等で得られた分析値をもちいて、アルカリ玄武岩マグマの分化に伴う元素の挙動を明らかにし、分化現象をより詳しく検討することを試みた。

§ 2. 住吉崎岩床を構成する岩石

本岩床を構成する岩石は一般にマグマの分化作用の最末期に熱水変質作用を受けており、モ

ード組成を正確に測定することは困難な事が多い。そこで本論では、ノルム鉱物組成を用いて岩石の分類を行った。分類にあたっては $(Or+Ab)/An$ ならびに Or/Ab を使用し、次のように区分した。

岩床本体	アルカリドレライト	—	$(Or+Ab)/An < 2.5$ で方沸石が乏しい
	方沸石ドレライト	—	$(Or+Ab)/An < 2.5$ 且つ方沸石が多い
分化体	方沸石ドレライトベグマタイト	—	$(Or+Ab)/An < 2.5$ 且つ方沸石が多い
(分化脈)	方沸石モンゾニ岩	—	$2.5 < (Or+Ab)/An < 4.0$ 且つ方沸石が多い
	方沸石閃長岩	—	$4.0 < (Or+Ab)/An$ 且つ方沸石が多い

分化体(脈)は更に Or/Ab の大小により、次のように分類した。

$Or/Ab > 0.2$	—	高カリウム分化体
$Or/Ab < 0.2$	—	高ナトリウム分化体

アルカリドレライト：主に下部岩床の下部を構成する。構成鉱物はカンラン石、普通輝石、斜長石、磁鉄鉱、イルメナイトであり、沸石と少量の紫蘇輝石、リン灰石およびカリ長石を伴う。カンラン石はほぼ自形で、微弱な累帯構造を示し、しばしば変質して蛇紋石の仮像として産する。試料 83050710 (下部接触部から29m上位)中のカンラン石は Fo_{77-65} である。普通輝石はオフィティック組織を示し、弱い累帯構造がある。結晶の中心部分の組成は $(Mg_{40}Ca_{43}Fe_{17})$ である。岩床下部から上部へと普通輝石のモードは徐々に増えている。斜長石は正累帯を示し、しばしば沸石(主に方沸石)に交代されている。少量の紫蘇輝石がメソスタシスの中に分布している。

方沸石ドレライト：構成鉱物はアルカリドレライトとほぼ同じであるが、単斜輝石と方沸石の量が多い。カンラン石はほとんどの場合変質している。単斜輝石はオフィティック組織を示し、微弱な累帯構造がある。斜長石は著しい累帯構造を示している。カリ長石が斜長石の周縁あるいは粒間に分布する。方沸石は空孔を充填したり、斜長石を交代している。

方沸石ドレライトベグマタイト：分化脈あるいはパッチとして、岩床本体のドレライト中に産する。分化脈の厚さは普通 5 cm くらいで、パッチの長辺は 10 cm 程度である。分化脈を構成する岩石は岩床本体を構成する岩石に比較して粗粒である。主要構成鉱物は単斜輝石、斜長石、磁鉄鉱とイルメナイトからなり、その他に沸石や少量のアルカリ長石とリン灰石を伴う。単斜輝石は主にサブオフィティック組織を呈する。斜長石は強い累帯構造を呈し、アルカリ長石はその周縁に分布する。

方沸石モンゾニ岩：分化脈、パッチとして岩床本体のドレライト中に産する。主な構成鉱物

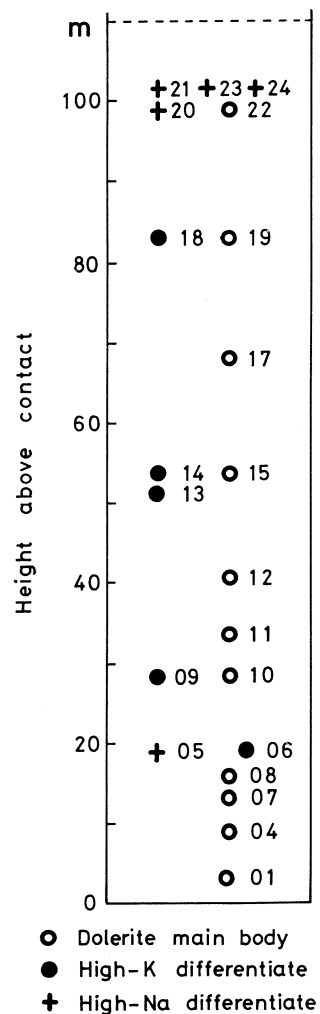
は単斜輝石，斜長石，アルカリ長石，磁鉄鉱，イルメナイトで，その他に方沸石や少量のリン灰石を含む。斜長石は主に正累帯構造を示すが，ときに逆累帯構造もみられ，しばしば方沸石に交代される。単斜輝石はサブオフィティック組織を呈し，粒度は不揃いで，弱い累帯構造がある。アルカリ長石は斜長石の周縁あるいは単独の結晶として産する。

方沸石閃長岩：産状及び主要構成鉱物は方沸石モンゾニ岩と類似するが，斜長石の大部分が方沸石に交代され，アルカリ長石や沸石の量が多い。

以上の各岩石は多かれ少なかれすべてマグマ後期熱水変質作用を受け，沸石の他に角閃石，雲母，緑泥石，蛇紋石，滑石，カオリナイト，モンモリナイト等の二次鉱物を生じている。

§ 3. 分析方法と分析結果

下部岩床から22個，上部岩床から2個の試料について主成分の湿式分析を行った。下部岩床では岩体の下部から上部への系統的な組成変化がみられるので，試料の採取は下部接触面からはほぼ等間隔に行った。第2図に分析試料の採取位置を示す。このうち，下部岩床からの10個と上部岩床からの2個の試料について微量成分元素の分析を行った。微量元素の分析にあたっては，東北大学核理研において電子ライナックを利用し，30 MeVの加速電子を用いて，光量子放射化法⁴⁾により定量した。主成分元素の分析結果を第1表に，微量元素組成を第2表に示した。



第2図 Location of samples in the lower sheet.

第1表 Chemical compositions of major elements in Sumiyoshizaki sheet.

Group No. Name	DMB 01 AD	DMB 04 AD	DMB 07 AD	DMB 08 AD	DMB 10 AD	DMB 11 AD	DMB 12 AD	DMB 15 AAD	DMB 17 AAD	DMB 19 AAD	DMB 22 AAD	HKD 06 ADP
wt. %												
SiO ₂	48.13	48.32	48.10	47.91	47.79	48.30	47.60	48.71	49.91	50.64	50.98	48.89
TiO ₂	1.56	1.21	1.25	1.09	1.18	1.14	1.13	1.48	1.43	1.54	1.41	1.48
Al ₂ O ₃	17.88	17.93	18.65	18.34	17.59	18.09	17.75	20.24	18.11	18.87	18.99	17.91
Fe ₂ O ₃	3.31	2.63	3.44	2.72	2.48	3.08	2.75	2.08	3.49	2.73	2.95	2.23
FeO	4.54	5.10	3.84	4.96	5.29	4.46	4.68	3.05	3.60	3.78	3.39	4.35
MnO	0.13	0.12	0.13	0.12	0.14	0.14	0.13	0.12	0.14	0.13	0.12	0.13
MgO	8.75	8.39	8.73	7.62	8.64	7.89	8.39	4.05	5.96	4.32	3.57	5.54
CaO	8.51	6.35	7.90	7.61	8.43	8.14	7.67	7.79	8.56	7.23	6.83	9.91
Na ₂ O	3.11	3.51	3.06	4.22	3.37	3.08	3.93	6.24	4.76	5.16	5.34	4.13
K ₂ O	0.44	1.51	0.70	0.75	0.72	1.56	0.71	1.02	1.12	1.78	2.43	1.72
H ₂ O+	2.74	3.85	3.62	3.87	3.82	3.28	4.77	4.93	2.67	2.80	3.26	3.31
H ₂ O-	0.60	0.47	0.34	0.35	0.22	0.28	0.33	0.26	0.22	0.32	0.28	0.09
P ₂ O ₅	0.23	0.27	0.24	0.25	0.24	0.23	0.22	0.24	0.25	0.27	0.20	0.29
Total	99.93	99.66	100.00	99.81	99.91	99.67	100.06	100.21	100.22	99.57	99.75	99.98

Group No. Name	HKD 09 AS	HKD 13 ADP	HKD 14 ADP	HKD 18 AM	HKD 28 ADP	HKD 32 AS	HND 05 AS	HND 20 AM	HND 21 AS	HND 23b AM	HND 23w AS	HND 24 AM
wt. %												
SiO ₂	50.60	49.76	49.48	52.81	52.26	54.57	57.24	50.39	51.81	51.31	55.99	50.03
TiO ₂	2.62	1.13	1.12	1.57	1.73	2.05	1.85	1.57	1.78	1.32	2.09	1.82
Al ₂ O ₃	15.66	18.30	17.66	16.23	16.41	16.01	16.03	17.62	15.10	15.08	15.97	16.78
Fe ₂ O ₃	3.40	1.36	2.63	4.79	3.33	4.58	4.30	3.63	3.87	3.79	3.54	3.81
FeO	4.58	2.72	2.92	2.78	4.69	3.35	2.38	2.84	3.81	4.04	3.54	3.48
MnO	0.13	0.10	0.12	0.13	0.16	0.15	0.06	0.15	0.16	0.16	0.13	0.16
MgO	5.00	5.13	6.22	4.64	5.51	4.20	3.28	4.64	5.06	6.50	2.42	4.92
CaO	5.76	10.98	9.37	7.25	8.46	4.77	2.97	6.33	6.63	8.62	3.39	6.38
Na ₂ O	4.61	5.02	5.03	4.75	4.29	5.11	7.83	6.93	6.59	5.67	8.75	6.82
K ₂ O	3.42	1.36	1.61	2.38	1.49	3.35	1.33	0.49	1.12	0.39	0.30	1.20
H ₂ O+	3.11	4.14	3.44	1.67	1.10	1.12	1.44	4.39	3.40	2.71	2.17	4.16
H ₂ O-	0.22	0.05	0.34	0.43	0.13	0.02	0.14	0.36	0.21	0.10	0.10	0.25
P ₂ O ₅	0.64	0.21	0.24	0.31	0.30	0.54	0.55	0.40	0.38	0.30	0.73	0.33
Total	99.75	100.26	100.18	99.74	99.86	99.82	99.40	99.74	99.92	99.99	99.28	100.14

DMB : dolerite main body, HKD : high-K differentiate,
HND : high-Na differentiate, AD : alkali dolerite, AAD : alkali analcime dolerite, ADP : analcime dolerite pegmatite, AM : analcime monzonite, AS : analcime syenite.

28 and 32 are from upper sheet and others from lower sheet.

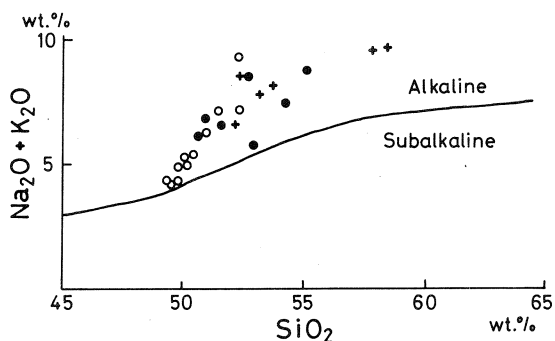
第2表 Chemical compositions of trace elements in Sumiyoshizaki sheet.

Group No.	DMB 01	DMB 07	DMB 12	DMB 17	DMB 22	HKD 06	HKD 28	HKD 18	HKD 32	HND 23b	HND 20	HND 23w
Name	AD	AD	AD	AAD	AAD	ADP	ADP	AM	AS	AM	AM	AS
ppm												
Sc	22.0	24.9	22.9	47.3	28.6	39.0	43.3	29.8	40.4	44.2	33.5	27.8
Cr	176	155	192	170	61.4	246	113	89.0	46.5	161	44.0	14.9
Co	35.2	34.2	36.8	26.3	18.5	20.7	23.4	19.5	17.6	26.1	19.9	12.1
Ni	135	123	151	53.0	38.6	54.2	39.1	41.2	16.5	57.6	27.7	9.8
Zn	40	—	38	30	83	55	24	79	28	72	51	61
Rb	4.9	13.5	17.1	21.7	47.1	31.4	32.1	47.0	65.2	5.3	10.5	1.9
Cs	0.34	0.35	0.67	1.31	1.90	0.75	—	0.86	0.09	1.92	2.77	0.77
Sr	372	367	347	309	368	489	317	307	189	287	324	278
Ce	21.4	23.3	19.7	21.9	25.9	26.8	31.0	31.1	49.4	21.5	29.5	52.8
Y	20.6	19.7	19.5	24.2	25.6	27.2	31.8	30.9	42.2	25.2	32.2	53.6
Nb	10.9	11.0	9.7	13.2	13.0	12.9	14.4	14.7	24.3	8.8	15.7	28.0
Zr	87.6	88.6	75.5	96.4	121	96.7	124	137	198	76.4	119	245

§ 4. 考 察

4.1 3つの組成変化径路の存在

住吉崎岩床を構成する岩石は SiO_2 が50%前後から60%近くに及び広い組成範囲を示す。一般にアルカリ岩と非アルカリ岩とは $\text{SiO}_2-(\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O})$ 図(第3図)上で区分される⁵⁾が住吉崎岩床を構成する岩石はすべてアルカリ岩系列の領域に点示される。そして、他地域のアルカリ玄武岩質岩と比較して、 SiO_2 がやや高く、 Al_2O_3 が非常に高い。一方、 P_2O_5 や TiO_2 は比較的低い。



第3図 $\text{SiO}_2-(\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O})$ diagram.
Symbols as in Fig. 2.

Kushiro¹⁾は各地のアルカリ玄武岩における分化にともなう Na_2O と K_2O の挙動にもとづいて、それらをカリウム濃集型とナトリウム濃集型に二分し、その成因を論じた。彼が両型の識別に用いたのと同じ $\text{K}_2\text{O}-\text{Na}_2\text{O}$ 図を第4図に示す。ドレライト岩床本体は最初 Na_2O が増加した後、すこし K_2O 側にふる。分化脈及びパッチ(以下では、これらをまとめて分化体と呼ぶ)にはアルカリの濃集の仕方により、Kushiroのカリウム濃集型とナトリウム濃集型に対

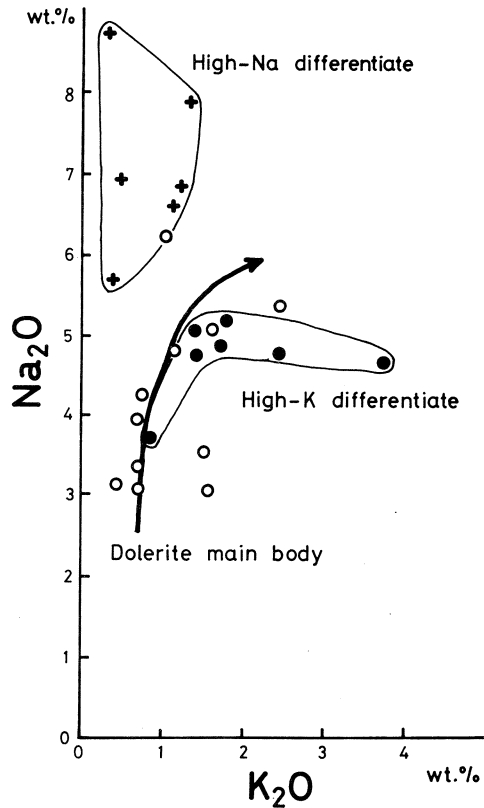
応する2つのグループが認められる。以下ではこれを高カリウム分化体と高ナトリウム分化体と呼んで区別する。第4図において、高カリウム分化体の組成は K_2O が少ない側では岩床本体の組成が点示される領域に重なっている。高ナトリウム分化体の分布は大部分下部岩床の上部に集中している。また、高ナトリウム分化体は高カリウム分化体や岩床本体に比較してより強く変質している。

4.2 分化にともなう元素の挙動

住吉崎アルカリドレライト岩床の分化に伴う元素の挙動を検討するために、横軸に SI ($100 \times MgO / (MgO + FeO + Fe_2O_3 + Na_2O + K_2O)$) をとった組成変化図を第5図と第6図に示した。ドレライト岩床本体と分化体にはかなり明瞭な成分元素の挙動の差が認められる。SI の減少に従って MgO , Ni , Cr と Co はどちらにおいても同じ様に減少するが CaO の減少率は分化体の方が大きく、その変化曲線は

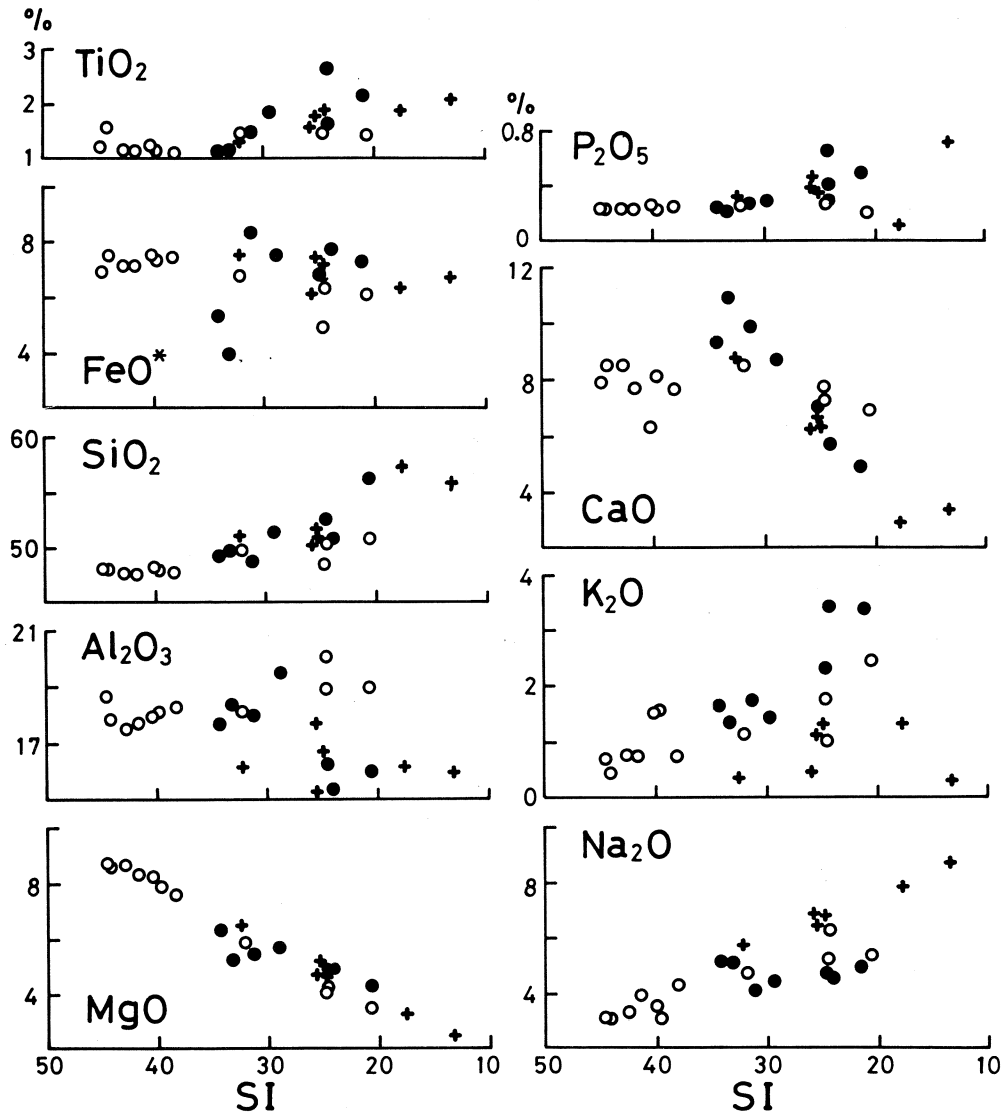
SI が約30で互いに交差する。Sc は SI の減少にともない一度濃集した後、減少する。 SiO_2 , Zr , Nb , Ce と Y は SI の減少に対して岩床本体、分化体ともに単調に増加するが、その増加率は後者为大きく、分化体の変化径路は SI 約30で岩床本体の示す変化径路から分岐している。 TiO_2 と P_2O_5 にもその傾向が認められる。

Al_2O_3 , FeO^* ($FeO + 0.9 \times Fe_2O_3$), Na_2O , K_2O , Sr , Rb と Cs においてはドレライト岩床本体と分化体との間だけでなく、高カリウム分化体と高ナトリウム分化体との間にも組成変化径路の違いが認められる。岩床本体においてはこれらの元素は FeO^* と Sr を除いて単調に増加する。高カリウム分化体では K_2O と Rb は SI の減少とともに単調に増加するが、 Na_2O と Cs はほとんど変化せず、 Al_2O_3 と Sr は CaO とともに急減する。一方、高ナトリウム分化体では SI の減少とともに Na_2O は単調に増加しているが、 K_2O , Rb , Al_2O_3 と Sr はほとんど一定である。これらの事実は高カリウム分化体の組成変化には Ca 斜長石の分別あるいは集



第4図 K_2O-Na_2O diagram.
Symbols as in Fig. 2.

積が大きく寄与し、一方、高ナトリウム分化体ではその関与があまりないことを強く示唆している。



第5図 Variation of major oxides versus SI.
Symbols as in Fig. 2.

4.3 住吉崎岩床における結晶分化作用

以上に述べたように、住吉崎岩床を構成する岩石は各岩石グループ毎に主成分元素、微量元素共に一連の組成変化を示し、各岩石グループ毎に固有の結晶分化作用を行ったことを強く示唆している。本岩床における結晶分化作用を定量的に検討するために、各岩石グループ毎に組成変化径路に対する曲線のあてはめを行った。第3表と第4表に得られた式を用いて計算した岩床本体および分化体の組成を示した。このうちの主成分元素組成と本岩床を構成する鉱物の化学組成を用いて、Wright & Doherty 法¹⁾により分別鉱物の組合せの検討と、その量比の見積りを行った。結果を第5表に示す。第7図はその結果を用いて、SIの変化に伴う各岩石グ

第3表 Calculated abundances of elements from regression curves for the dolerite main body of Sumiyoshizaki sheet.

Name	DMB48	DMB44	DMB40	DMB38	DMB36	DMB32	DMB28	DMB26	DMB24	DMB20
SI	48.00	44.00	40.00	38.00	36.00	32.00	28.00	26.00	24.00	20.00
Dist.(m)	5	15	26	32	38	51	58	72	79	94
wt. %										
SiO ₂	49.83	49.99	50.24	50.40	50.58	51.02	51.56	51.86	52.19	52.93
TiO ₂	1.22	1.27	1.31	1.34	1.36	1.41	1.45	1.47	1.50	1.54
Al ₂ O ₃	18.40	18.65	18.91	19.04	19.16	19.42	19.67	19.80	19.93	20.18
Fe ₂ O ₃	3.19	3.13	3.06	3.03	3.00	2.93	2.87	2.84	2.80	2.74
FeO	4.80	4.84	4.78	4.72	4.63	4.39	4.05	3.85	3.62	3.10
MnO	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13	0.12	0.12
MgO	10.10	9.20	8.28	7.81	7.33	6.36	5.36	4.85	4.33	3.28
CaO	8.18	8.24	8.24	8.22	8.18	8.06	5.41	7.78	5.71	5.91
Na ₂ O	2.44	3.23	3.93	4.24	4.52	5.02	5.41	5.58	5.71	5.91
K ₂ O	0.69	0.78	0.83	0.94	1.01	1.19	1.42	1.56	1.74	2.22
B ₂ O ₅	0.21	0.24	0.25	0.26	0.26	0.26	0.26	0.25	0.24	0.22
Total	99.19	99.70	99.96	100.13	100.16	100.19	97.59	99.97	97.89	98.15
ppm										
Sc	7.9	23.0	34.0	38.0	40.9	43.8	42.6	40.5	37.3	28.0
Cr	142	172	186	189	188	175	148	129	107	52.0
Co	37.4	35.3	32.9	31.7	30.4	27.6	24.5	22.9	21.2	17.8
Ni	239	135	93.7	81.3	71.9	58.3	49.0	45.4	42.3	37.1
Zn	25	32	38	42	45	52	59	63	66	73
Rb	10.0	11.2	13.7	15.6	17.8	23.2	30.1	34.1	38.4	48.2
Cs	0.03	0.41	0.75	0.91	1.06	1.32	1.56	1.66	1.75	1.91
Sr	358	356	354	353	352	351	349	348	347	345
Ce	20.7	21.3	21.9	22.2	22.5	23.3	23.8	24.1	24.4	25.1
Y	19.0	20.0	21.1	21.6	22.1	23.1	24.1	24.6	25.2	26.2
Nb	10.3	10.7	11.2	11.4	11.6	12.1	12.6	12.8	13.0	13.5
Zr	77.2	83.1	88.9	91.8	94.8	101	107	109	112	118

第4表 Calculated abundances of elements from regression curves for the differentiates of Sumiyoshizaki sheets.

Name	HKD38	HKD36	HKD32	HKD28	HKD26	HKD24	HKD20	HND32	HND28	HND26	HND24	HND20	HND16
SI	38.00	36.00	32.00	28.00	26.00	24.00	20.00	32.00	28.00	26.00	24.00	20.00	16.00
wt. %													
SiO ₂	51.45	51.34	51.54	50.40	52.92	53.66	55.58	52.36	52.90	53.34	53.88	55.31	57.17
TiO ₂	0.44	0.81	1.41	1.34	1.98	2.08	2.14	1.41	1.63	1.73	1.81	1.95	2.04
Al ₂ O ₃	19.61	19.09	18.14	19.04	16.88	16.49	15.78	15.82	16.73	17.01	17.19	17.19	16.74
Fe ₂ O ₃	0.71	1.37	2.53	3.03	3.95	4.33	4.95	3.83	3.96	4.01	4.04	4.06	4.03
FeO	3.49	3.53	3.61	4.72	3.72	3.76	3.84	3.88	3.69	3.60	3.51	3.32	3.14
MnO	0.07	0.09	0.12	0.13	0.14	0.14	0.13	0.17	0.16	0.15	0.14	0.13	0.11
MgO	6.35	6.18	5.79	7.81	5.07	4.79	4.19	6.58	5.69	5.25	4.81	3.94	3.07
CaO	10.84	10.77	10.12	8.22	7.86	6.76	4.05	8.93	7.44	6.74	6.07	4.82	3.68
Na ₂ O	4.82	4.83	4.84	4.24	4.85	4.85	4.86	5.96	6.58	6.90	7.21	7.84	8.46
K ₂ O	1.37	1.43	1.59	0.94	2.07	2.40	4.05	0.78	0.80	0.81	0.82	0.84	0.86
P ₂ O ₅	0.22	0.23	0.26	0.26	0.35	0.41	0.80	0.30	0.34	0.37	0.40	0.48	0.60
Total	99.37	99.67	99.95	100.13	99.79	99.67	100.37	100.02	99.92	99.91	99.88	99.88	99.90
ppm													
Sc	41.8	41.1	39.9	38.0	38.0	37.4	36.1	41.7	37.6	35.8	34.1	31.3	28.8
Cr	536	403	229	189	97.4	73.3	41.5	182	54.5	40.4	32.1	22.7	17.6
Co	25.1	24.3	22.6	31.7	20.1	19.3	17.6	25.6	21.9	20.3	18.7	15.9	13.5
Ni	107	88.4	59.7	81.3	33.2	27.3	18.4	68.3	30.6	24.0	19.7	14.6	11.5
Zn	51	50	49	42	46	46	44	65	63	62	62	60	58
Rb	20.5	22.7	28.4	15.6	42.3	49.3	69.9	7.9	6.9	6.4	6.0	5.0	4.1
Cs	1.24	1.13	0.91	0.91	0.59	0.48	0.26	2.41	2.12	1.98	1.83	1.55	1.26
Sr	761	651	476	353	298	255	186	303	230	298	297	293	280
Ce	20.3	21.8	25.6	22.2	33.8	37.7	48.1	21.9	26.2	28.9	31.8	38.5	46.5
Y	23.1	24.2	27.0	21.6	32.7	35.2	41.7	25.6	29.3	31.6	34.2	40.4	47.7
Nb	11.1	11.5	12.5	11.4	15.5	17.2	24.6	9.3	13.3	15.2	17.2	21.2	25.3
Zr	73.7	80.4	97.4	91.8	135	154	206	78.7	102	116	131	168	211

ループでの、分別鉱物の組合せ及び量比の変化を図示したものである。

岩床本体が示す組成変化は主にカンラン石、斜長石および単斜輝石の分別で説明できる。SIの減少にもかかわらず分別相の組合せと量比はほとんど変化せず、下部岩床最上部近くで始めて斜長石の分別量が増える。ドレライト岩床本体の下部から上部までが一定の鉱物組合せと量比を持った固相の分別により形成されたとする考えは、これらの岩床が全体が液体からなるマグマが貫入後、順次、晶出順序に従って固相が、その場で晶出分別して形成されたとする考えとは相入れない。むしろ、多量の斑晶を有したマッシュ状のマグマが貫入後、直ちに斑晶部の沈積を行い、その時の斑晶と液の混合比の差により一連の組成変化が生じた可能性が高い。この考えは、組成変化経路が多く元素についてはほぼ直線的であること、SIの減少に伴いインコ

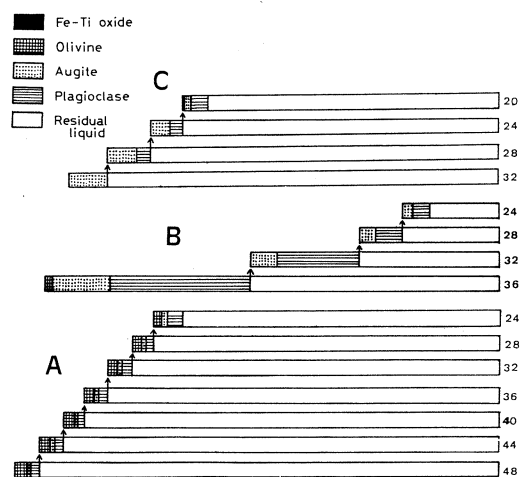
第5表 Results of mixing calculations based on 11 major elements.

Rock group	Parent	Daughter	ΣR^2	Ol	Cpx	FeTi	Pl	Ph %	Liq%
Dolerite main body	DMB48	DMB44	0.424	2.69	0.44	—	1.82	4.95	95.05
	DMB44	DMB40	0.298	2.70	0.72	—	2.02	5.44	94.56
	DMB40	DMB36	0.175	2.73	0.83	—	2.22	5.78	94.22
	DMB36	DMB32	0.118	2.67	0.97	—	2.30	5.94	94.06
	DMB32	DMB28	0.082	2.68	0.92	—	2.38	5.98	94.02
	DMB28	DMB24	0.107	2.61	1.04	—	2.43	6.08	93.92
	DMB24	DMB20	0.197	2.61	1.45	—	4.65	8.71	91.29
High-K differentiate	HKD36	HKD32	0.298	1.44	12.62	—	31.10	45.16	54.84
	HKD32	HKD28	0.201	0.65	10.03	—	20.85	31.53	68.47
	HKD28	HKD24	0.358	—	9.64	—	15.90	25.54	74.46
	HKD24	HKD20	1.291	—	10.39	—	17.27	27.66	72.34
High-Na differentiate	HND32	HND28	0.819	—	9.07	—	—	9.07	90.93
	HND28	HND24	0.246	—	7.60	—	3.00	10.60	89.40
	HND24	HND20	0.224	—	5.59	—	3.71	9.30	90.70
	HND20	HND16	0.147	—	1.78	0.27	5.11	8.16	91.84

ンパティブル元素である Ce, Y, Zr, Nb がわずかしか増加しないことから支持される。

分化体は高カリウム分化体と高ナトリウム分化体とに分けられ、それぞれの組成変化径路を生成するのに必要な分別相の組合せと量比も異なる。高カリウム分化体における分別相は始め、少量のカンラン石と単斜輝石ならびに斜長石で本体と一連の性格を有するが分化が進むとカンラン石が消失する。分別鉱物のうち斜長石の量比が大きく、これは微量元素を

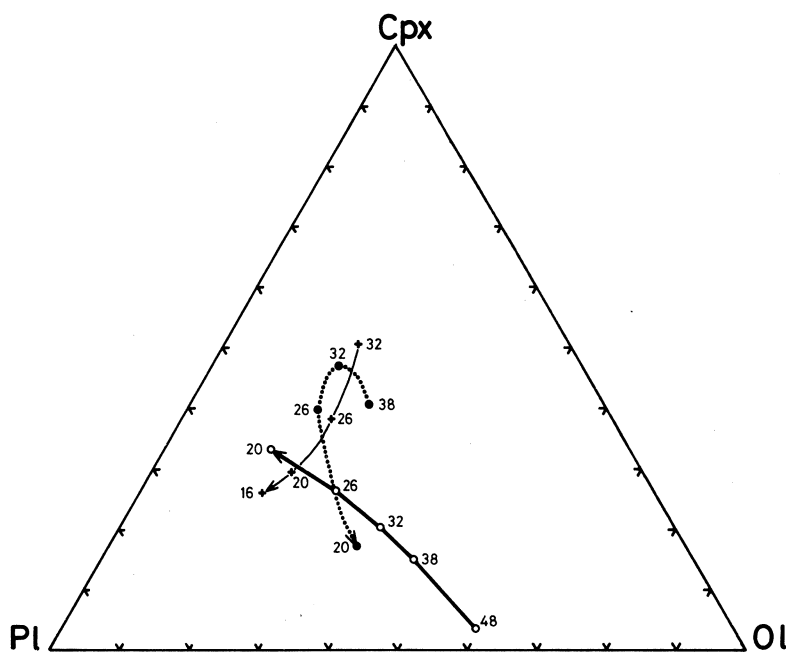
含めたその組成変化径路からも支持される。Sr が CaO とともに岩床本体より高いのは高カリウム分化体のうち特に高 SI 側における斜長石の濃集を示唆している。高ナトリウム分化体では高カリウム分化体と違って、初期の分別鉱物は単斜輝石だけであり、後、少量の斜長石がこれに加わる。これも本分化体が示す微量元素を含めた化学組成上の特徴と矛盾しない。



第7図 Variation in calculated modal compositions of cumulus minerals.

先の各岩石グループ毎の組成変化径路の差を更に明瞭に示すため、曲線のあてはめから得られた組成をカンラン石-単斜輝石-斜長石三角図にプロットしたのが第8図である。この図において、本体、高カリウム分化体、高ナトリウム分化体はそれぞれ異なるトレンドを示し、それらは先に計算によって得られた分別モデルと矛盾しない。分化体の特に SI が高い側の組成は、同じ SI 値をもつ岩床本体の組成に比較して、より単斜輝石側に寄っており、両者が異なる分化系列に属することをよく示している。

カンラン石-単斜輝石-斜長石系においては圧力の増加にともない単斜輝石の領域は拡がり、一方、斜長石の領域は狭くなる⁷⁾。また単斜輝石と斜長石の安定関係はマグマ中の水の含有量にも影響され、水の増加に伴い単斜輝石の領域は拡大する。先に述べたように高カリウム分化体では斜長石と単斜輝石が、高ナトリウム分化体では主に単斜輝石が分別している。両分化体



第8図 Differentiation trends of the dolerite sheet in weight proportions normative olivine : plagioclase : clinopyroxene. Numbers are SI.

とも岩床本体の内部に発達し、両者の間に形成圧力の差があったとは考えられない。一般に岩床内部の最終固化部分では固相に取り込まれない成分が極端に濃集すると考えられる。水はその代表的なものである。高ナトリウム分化体は下部岩床の最上部に主に発達しており、この分

化体の形成に岩床内部における水の局所的な濃集が重要な役割を果たしたと考えることは可能である。実際、高ナトリウム分化体は高カリウム分化体や岩床本体を形成している岩石に比較して著しく沸石化等が進んでおり、本岩が高含水状態のもとで形成されたことを強く示唆している。高ナトリウム分化体の組成上の最大の特徴はKとRbという水と親和性のある元素が極端に少ないことであるが、これは最終的に岩床系外に移動したと考えられる水と共に失われたと考えることが可能である。

§5. ま と め

住吉崎岩床を構成する岩石はアルカリ岩に属するが、他地域の典型的なアルカリ岩と比較してSiO₂がやや高く、またAl₂O₃が非常に高い。一方、TiO₂やP₂O₅が低いのが特徴である。これらの岩石は更に、下部から上部へと系統的に組成変化する岩床本体、脈状あるいはパッチ状に産する高カリウム分化体および高ナトリウム分化体に三分できる。岩床本体の示す組成変化傾向はカンラン石、単斜輝石および斜長石の分別で説明でき、おそらく、これら鉱物集合体の岩床下部への集積により本岩床の大部分が形成されたと考えられる。高カリウム分化体は最初、カンラン石、単斜輝石そして斜長石が分別し、後、カンラン石が消失する。高ナトリウム分化体の組成変化には単斜輝石の分別が最も寄与している。高ナトリウム分化体の分布と変質の状態から本岩の形成には岩床内部に局所的に濃集した水が重要な役割を果たしたことが推定された。

謝 辞

本研究にあたり、東北大学理学部原子核理学研究施設の八木益男先生、榎本和義先生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センターの藤田稔先生、山寺亮先生ならびに職員の方々に御協力を賜った。また、本研究の一部に、文部省科学研究費(Nos. 59420015と59540509)を使用した。以上の方々ならびに関係部局に深謝する。

参 考 文 献

- 1) I. Kushiro : Fac. Sci. Univ. Tokyo **15** (1964) 135.
- 2) 青木謙一郎, 水越泰子 : 岩鉱 **66** (1971) 132.
- 3) H. Fujimaki and H. Kurasawa : 岩鉱 **74** (1979) 311.

- 4) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **15** (1982) 224.
- 5) H. Kuno : Bull. Volcanologique **29** (1966) 29.
- 6) T. L. Wright and P. C. Doherty : Geol. Soc. Am. Bull. **81** (1970) 1995.
- 7) D. C. Presnall *et al.* : Contrib. Min. Petrol. **66** (1978) 203.

Ⅳ. 加 速 器 · 測 定 器

150MeV 光子標識装置の製作(Ⅲ)

— 中性子検出器 —

核理研, 教養部*, メルボルン大**

須田利美・守 和彦・藤井芳昭・野村和泉

寺沢辰生・今野 収・鳥塚賀治・前田和茂*

P. Harty**・G. O' keefe**

§ 1. 序

1981年11月に完成したパルスビーム・ストレッチャー(SSTR)¹⁾から得られる, ほぼデュ-
ーティファクター100%の連続電子線を用いての同時計数実験が本施設に於て精力的に行なわ
れている。我々はこの電子線と光子標識装置から得られる単色光子で光核反応実験を行って
いる。反応粒子検出器として中性子検出器が整い(r, n)実験ができる様になったので, 中性
子検出器の性能等について報告する。

§ 2. 実験装置

2.1 光子標識装置及び標識光子

SSTRから得られるデュ-ティファクターほぼ100%の連続電子線を幅射ターゲット(金箔
1/1000 r. l.)に照射し, 制動輻射による r 線は, その下流にある反応ターゲットを照射し光
核反応を引き起す。光核反応により生成された中性子(陽子)を中性子(陽子)検出器で検出
する。制動輻射をおこした電子は, 標識電磁石で運動量分析され電子検出器に入る。反応粒子
の検出器と電子検出器の同時計数をとることにより, r 線のエネルギーを同定し, 単色 r 線
による実験と等価な実験を行なうことができる。

制動輻射をおこした電子を検出する電子検出器は, 5 mm厚, 100 mm高のプラスチックシ
ンチレータで, その幅は各検出器が同じ運動量幅($1/50 \times E_0$: E_0 は, 入射電子エネルギー)
を覆う様に設計されている。この検出器で, $0.2 E_0 \sim 0.8 E_0$ のエネルギーの電子を検出でき
る。標識光子のエネルギーは $E_0 = 130$ MeVの時

$$26 \text{ MeV} \leq E_r \leq 104 \text{ MeV}$$

$$\Delta E_r = 2.6 \text{ MeV}$$

である。また制動輻射を起した電子数と実際にターゲットを照射する光子数の比を標識効率
(Tagging Efficiency)と言うが, 我々の場合,

標識効率 $\cong 50\%$

である。詳しくは、文献 2), 3), 4) を参照されたい。光子標識装置の性能を第 1 表に挙げておく。

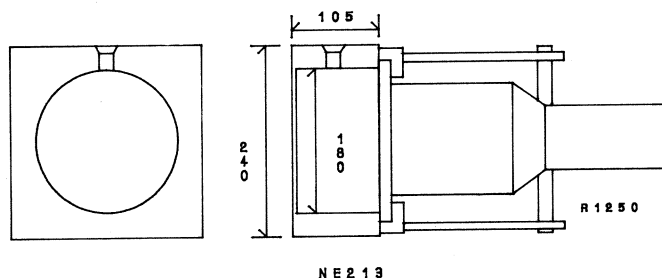
第 1 表 光子標識装置の性能。

最大入射エネルギー	180 MeV
標識範囲	$(1/5) E_0 \leq E_\gamma \leq (4/5) E_0$
標識光子エネルギー幅	$(1/50) E_0$
標識効率	$\cong 50\%$
* $D_2O(\gamma, n)$ 実験時	
発生光子数	2×10^5 光子/sec
S/N比(上記の光子数の時)	38

2.2 中性子検出器 (Neutron Detector)

中性子検出器は第 1 図に示す様に、有機液体シンチレーター (NE 213) 2.6 ℓ 入ったタンクと 5 インチの光電子増倍管

(R 1250) からできている。この検出器を 4 つ組みあげて、中性子検出器として用いる。バックグランド対策として、検出器の前面及び側面を、(220 mm \times 460 mm \times 20 mm) のプラスチックシンチレーター 4 枚で覆い、上面にもプラスチックシンチレーターを置き Veto 検出器として用いている。また、検出器の上下面、側面を鉛板で覆って荷電粒子等に対する対策としている。更に、4 つの独立な中性子検出器のうち同時に 2 つが光った事象に対しては (例えば上方からくる宇宙線等) アンチコインシデンスをかけることにより低バックグランド化をめざした。



第 1 図 中性子検出器。左図は正面図。液体シンチレーターは NE 213 (2.62 ℓ)。

中性子検出においては、中性子に伴う大量の γ 線を中性子と弁別する必要がある。我々は

PSD (Pulse Shape Discrimination) とよばれる方法を用いた。⁵⁾ これは γ 線の対創生、コンプトン散乱による電子と、中性子の主に陽子との弾性散乱、炭素原子核との核反応の結果得られる陽子等の発光波形の違いを利用して、中性子と γ 線を弁別する方法である。NE 213 は PSD による $n-\gamma$ 弁別の際によく使われており、弁別特性のよいことが知られている。

中性子のエネルギー決定には TOF (Time-Of-Flight) 法を用いる。ターゲット、中性子検出器間の飛行時間からエネルギーを決定する。実験時には前述のように中性子以外に光核反応による γ 線も観測される。 γ 線の TOF はそのエネルギーによらず一定であるから、TOF スペクトル上にピークを形成する。このピークは“ γ フラッシュ”とよばれ、中性子のエネルギー決定、検出器系の時間分解能の評価に使われる。

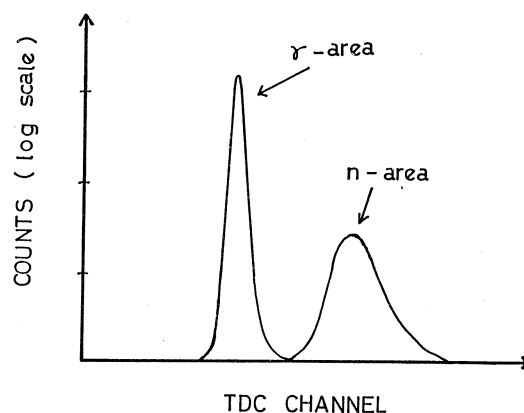
§ 3. 測定結果

3.1 バックグラウンド

光子数が偶然同時計数との兼合いから、 2×10^5 光子/sec とおさえられており、中性子の計数率は ~ 20 中性子/1800 sec である為に、ルーム・バックグラウンド、宇宙線、ターゲットからの荷電粒子、 γ 線等大量のバックグラウンドは中性子測定にとって非常に深刻な問題である。§ 2 で述べた様にバックグラウンド除去のために、検出器をプラスチックシンチレーターで囲み、検出器自身でも逆同時計数を取り、更に解析時に PSD で中性子の事象のみ取り込む。

以下では、プラスチックシンチレーターの効果、検出器間での逆同時計数の効果、及び電子検出器との同時計数をとることによるバックグラウンドの減少について述べる。右図の各エリアの計数の比較をすることにより、プラスチックシンチレーターの効果等を調べた。

第 3 図にビーム・オフ時のバックグラウンドの測定結果を示す。縦軸は 100 秒あたりの γ 領域、中性子領域の計数率、横軸は測定回数 (測定日) である。プラスチックシンチレーター、検出器間の逆同



第 2 図 PSD スペクトルの一例。
 γ 線 (γ -area)、中性子 (n -area) がよく弁別されていることがわかる。

計数により γ 領域のバックグラウンドは約 $1/4$ になり、中性子領域でも約 $2/3$ におちている。

このことから特に r 領域のバックグラウンドに対して有効であることがわかる。プラスチックシンチレータ等で大きな効果があることより、大部分は宇宙線 (μ^- など) と考えられる。

次に実験時 (ビーム・オン時) のバックグラウンドについて述べる。その準備として偶然同時計数について簡単に触れる。毎秒 N_1 , N_2 の計数率の信号の同時計数を考える際、時間分解能を τ , デューティファクターを d. f. とすると、偶然同時計数 N_{ac} は

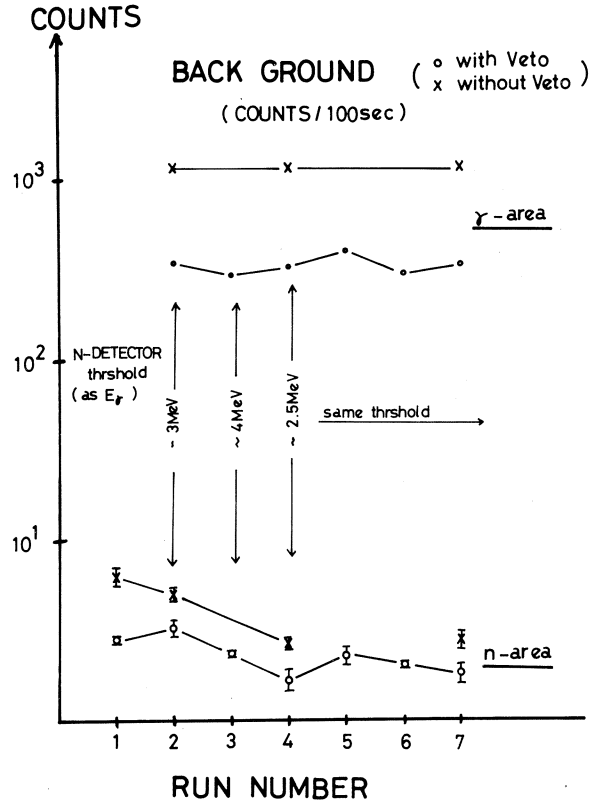
$$N_{ac} = N_1 \cdot N_2 \cdot \tau / \text{d. f.}$$

で与えられる。 N_1 をバックグラウンド, N_2 を電子検出器の計数率 ($2 \times 10^5 \text{ electrons/sec}$), $\tau = 100 \text{ nsec}$, d. f. = 0.8 とおくと

$$N_{ac} / N_1 = 2 \cdot 10^5 \cdot 100 \cdot 10^{-9} / 0.8 = 3.8\%$$

電子検出器と偶然同時計数するバックグラウンドは、約 4% になる。

第 2 表には、電子検出器との同時計数をとらない時の輻射ターゲット有無によるバックグラウンドの比較、及びビーム・オン、ビーム・オフ時のバックグラウンドが比較してある。輻射ターゲ



第 3 図 バックグラウンドの測定結果。○印は Veto カウンターで逆同時計数をとった時の測定結果。×印は逆同時計数をとらない時の測定結果。threshold の値は、 r 線のエネルギーを表わす。

第 2 表 バックグラウンド (電子検出器との Coincidence なし)。

1) BEAM ON 時 (100 秒)

	輻射ターゲットあり	輻射ターゲットなし
r 領域	1182. 23 \pm 8. 10	1214. 56 \pm 8. 21
中性子領域	2. 22 \pm 0. 35	2. 06 \pm 0. 34

2) BEAM OFF 時 (100 秒)

r 領域	207. 11 \pm 3. 4
中性子領域	1. 56 \pm 0. 29

ット有無では、大きな相違は見られない。つまり r ビーム上のコリメーター等からのバックグラウンドは r ビームの条件がよければ問題のないことを示している。ビーム・オン、ビーム・オフ時では、 r 領域に対しては約 5 倍、中性子領域の事象の数にも若干の相違が認められる。ビーム・オン、ビーム・オフ時、上述の様に r ビームライン上からのバックグラウンドがないとすれば、これら電子ビームに起因するバックグラウンドは、電子ビームのダンプ用に用いているファラデー・カップが源であると結論できる。

しかし、これらのバックグラウンドも電子検出器と同時計数をとることにより約 4% 前後におとすことができる。更に、バックグラウンドの大部分を占めている r 領域の事象は PSD で解析時におとせるので、中性子測定で問題となる中性子領域のバックグラウンドの計数率は、第 2 表のデータを使って評価すると

$$(2.22 \pm 0.351) / 100 \times 0.04 = (8.88 \pm 1.40) \times 10^{-4} \text{ (中性子/秒)}$$

よって、約 1100 秒に 1 ケの割合となり、実験に支障はない。

3.2 実験結果

実験は、東北大学核理研の 300 MeV 電子線形加速器及び SSTR を用いて行い、重水 (22.605 g/cm^2) をターゲットとして行った。発生光子数は 2×10^5 光子/sec，照射光子数は、標識効率を 50% として 1×10^5 光子/sec である。第 3 表に中性子測定条件をまとめておく。以下では、実験から得られた各種スペクトルを示し、中性子検出器の性能等について述べる。

第 3 表 $D_2O(r, n)$ 実験パラメーター。

中性子検出器 (180 ϕ \times 103 mm)	
NE 213	$2.621 \times 4 = 10.481$
飛行距離	2.636 m
立体角	14.65 msr
時間分解能	1.5 n sec
D_2O ターゲット	
体積	1128.3 cm^3
厚さ	22.605 g/cm^2
純度	99.95 %

最初に、本測定系の $n-r$ 弁別特性を PSD スペクトルにより示す。中性子検出器から出力波形もデータとして取りこんでいるので得られたそれら波高別の PSD スペクトルを第 4~6 図に示す。

図中の“ADC RANGE”は出力波形値を意味し、Full Scale 16 Channel である。

$n-r$ 弁別性が非常によいことがわかる。このスペクトルから解析時に r による事象を除去することができる。

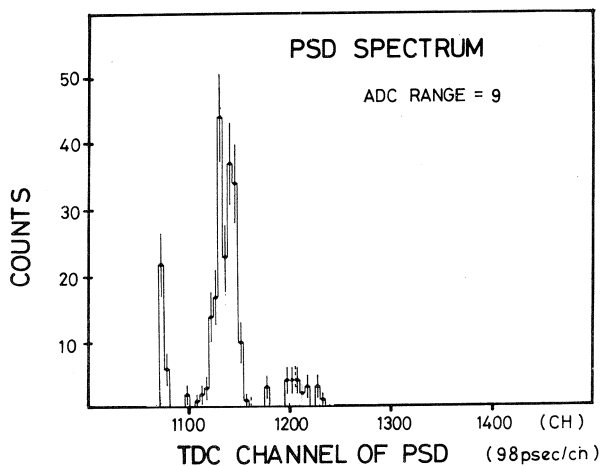
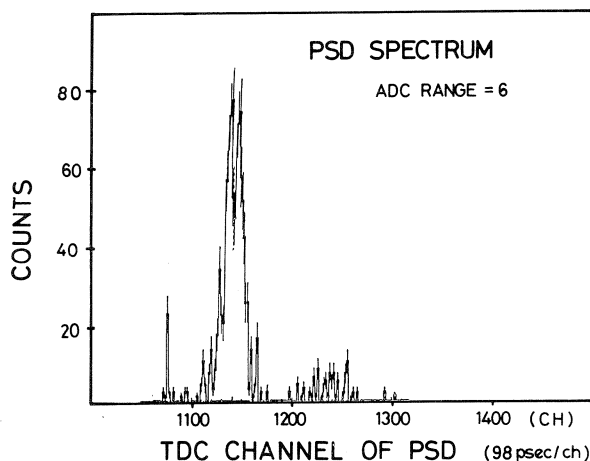
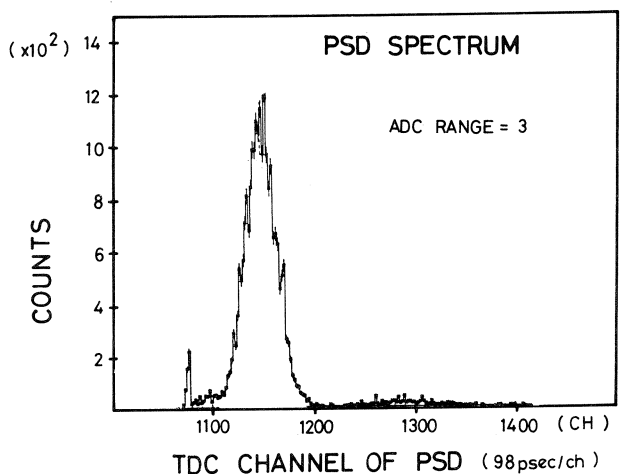
第 7 図に TOF スペクトルを示す。横軸は TDC (Time to Digital Converter)

のチャンネルである。第7図は PSD スペクトルで r の事象を除去していないので、 r フラッシュがきれいに見える。 r の TOF は一定であるから r フラッシュの幅から、この測定系の時間分解能 Δt を評価することができる。第8図は電子検出器27チャンネル ($E_\gamma = 35.5 \pm 1.3$ MeV) の TOF スペクトルであり、 r フラッシュの FWHM (Full Width at Half Maximum) から $\Delta t = 1.5$ n sec と考えられる。

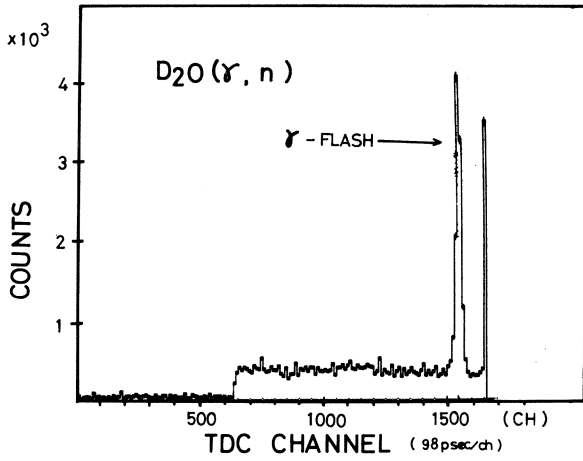
これは電子検出器固有の時間分解能等が原因と考えられる。また中性子の場合、検出器内での発光場所により信号に時間差があらわれるから、此のことを考慮にいと、本検出器系の中性子のエネルギー分解能は第9図のようになる。

第10図は、PSD で r 事象を除去した後の TOF スペクトルである。同時計数実験で問題となる偶然同時計数された事象は、TOF スペクトル上に一様に分布するから、その寄与を第10図から評価できる。 S/N 比は

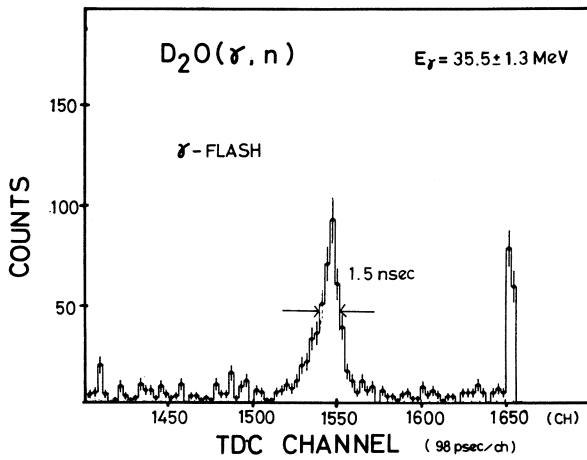
$$S/N = 6310/166 = 38.0$$



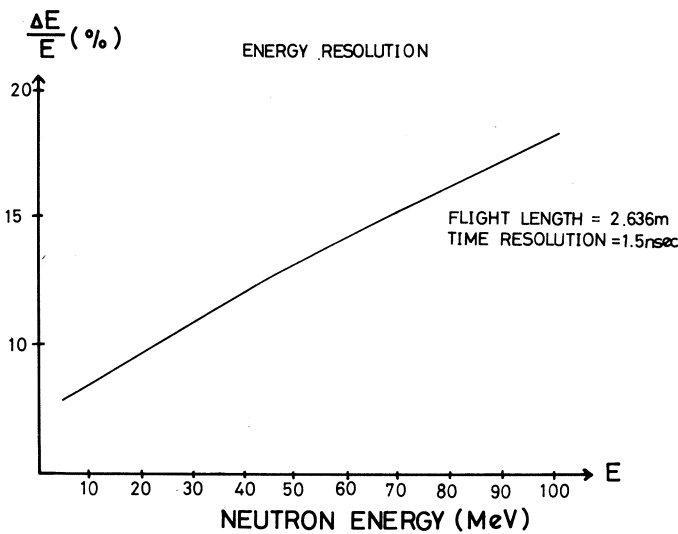
第4～6図 実験で得られた波高別の PSD スペクトル。



第7図 TOFスペクトル。



第8図 電子検出器27チャンネル
($E_\gamma = 35.5 \pm 1.3 \text{ MeV}$)
の γ -フラッシュ。 γ フラ
ッシュの幅から時間分解能
を評価する。

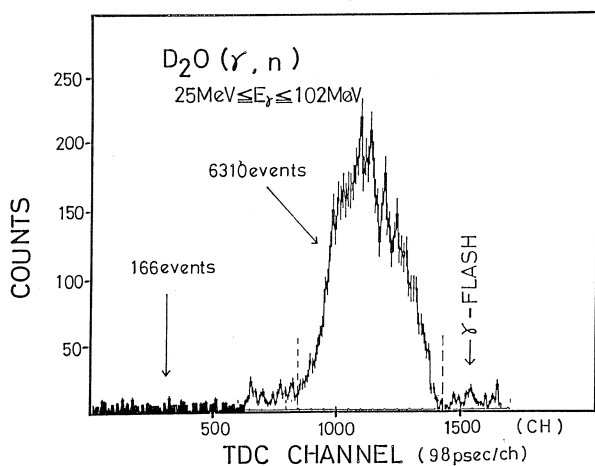


第9図 本中性子検出器
の各中性子エネル
ギーに対するエネ
ルギー分解能。

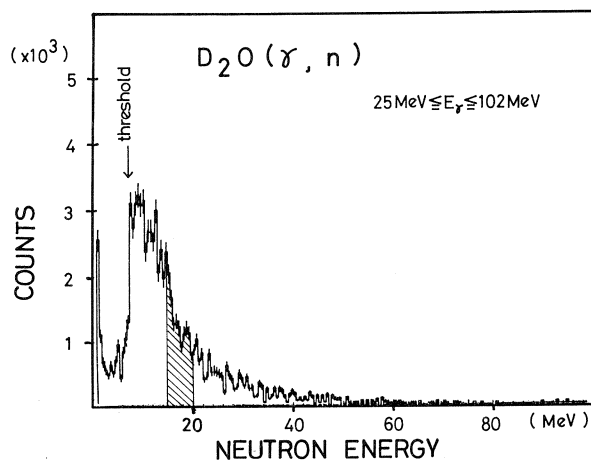
で、低バックグラウンド化に成功しているといえる。

TOFからエネルギーに変換したスペクトルが第11図である。第12図は、中性子の発光出力スペクトルの一例で、第11図の斜線で示したほぼ単一のエネルギー中性子の発光出力のスペクトルである。

中性子検出器にとって、その検出効率 (Detection Efficiency) は、断面積の絶対値測定にとって決定的に重要な量である。今回ターゲットを重水に選んだ目的の一つは、光分解の断面積の知られている重陽子⁶⁾を使って検出効率を求めるためであった。 E_γ が低い時はKinematicsから酸素からの中性子を分離することができる。(第13図参照)

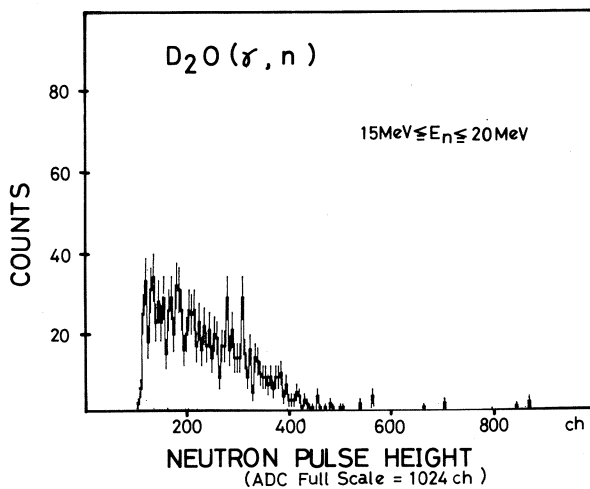


第10図 PSDスペクトルで γ 線の事象を除去した後のTOFスペクトル。

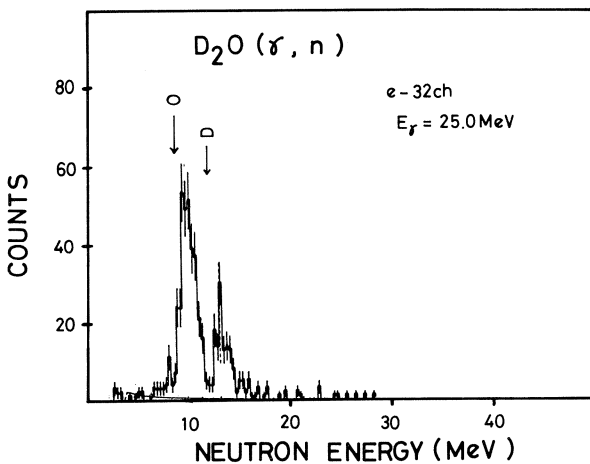


第11図 中性子のエネルギースペクトル。
斜線部は $15 \text{ MeV} \leq E_n \leq 20 \text{ MeV}$ の領域。

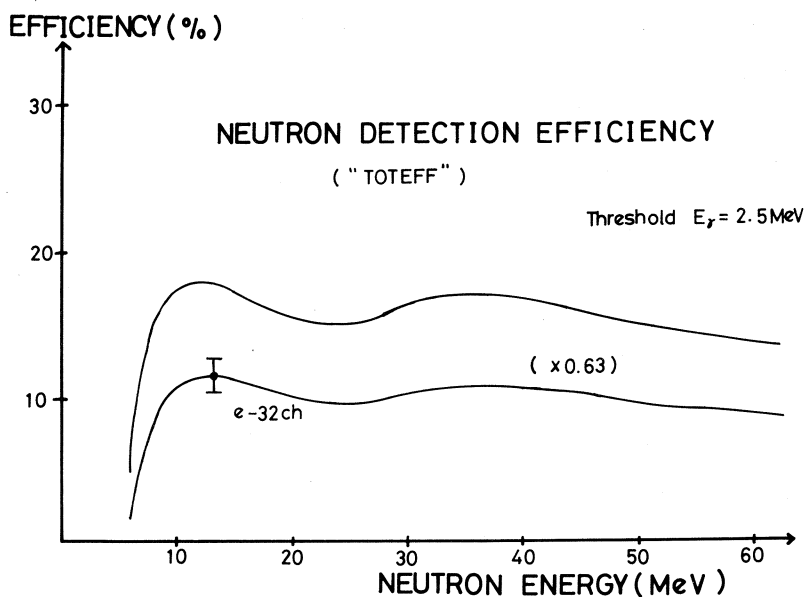
理論計算は我々と同じ円筒型の検出器で広く確められている計算コード“TOTEFF”⁷⁾によるものである。第14図に計算結果と実験で得られた効率を示す。実験値と理論値との比が0.6であることがわかる。しかし図中の実験値は検出器のみの検出効率でなく、重水中での中性子の吸収による減少をも含めた中性子検出器系全体の検出効率であり、検出器自体の検出効率を求める為には重水中での減少率を正確に評価しなければならない。現在減少率の詳しい計算を行っているが粗い評価では理論値との一致が確かめられた。東北大サイクロトロンで高いエネルギーの単色中性子により検出効率測定を行い理論値が検出器自体の検出効率を再現する事を確かめ、検出効率として理論値を用いる事の正当性が確かめられた。



第12図 第11図の斜線部分の中性子の発光出力スペクトル。横軸はADCチャンネルである。



第13図 $E_\gamma = 25.0 \text{ MeV} \pm 1.3 \text{ MeV}$ の γ 線による中性子エネルギースペクトル。重陽子の光分解による中性子と重水中の酸素原子核との $^{16}\text{O}(\gamma, n_0)^{15}\text{O}_{g.s.}$ ($g.s.$: 基底状態) による中性子のピークが見える。



第14図 中性子検出器の検出効率。理論曲線は計算コード“TOTEFF”による。実験点は、重陽子の光分解断面積を用いて計算した本測定系の検出効率。

§ 4. ま と め

製作した中性子検出器により、低バックグラウンドで中性子を測定できることがわかった。
S/N比は38である。PSDによるn-r弁別も十分で、今後本格測定を行なう予定である。

参 考 文 献

- 1) 玉江忠明他：核理研研究報告 **15** (1982) 137.
- 2) 藤井芳昭他：核理研研究報告 **15** (1982) 321.
- 3) 守 和彦他：核理研研究報告 **16** (1983) 341.
- 4) 藤井芳昭：修士論文 (1983) 東北大学.
- 5) P. Sperr *at al.* : Nucl. Instrum. & Methods **116** (1974) 55.
- 6) F. Partovi : Ann. Phys. **27** (1964) 79.
- 7) Kurtz : University of Colorado Computer Program, 1972 unpublished.

(e, e' p) 実験装置 (II)

核理研, 教養部*, 情教センター**

川原英明・田中 陽・日野 威

吉田克久・菅原真澄・玉江忠明

坪田博明*・宮瀬晴久*・川添良幸**

§ 1. はじめに

我々は, パルスビームストレッチャーより得られる連続電子線を利用した同時計数実験装置を制作してきた。

本実験装置は, 散乱電子と核から放出される陽子の同時計数により, 主に巨大共鳴の研究を目的とするものである。

ここでは, 今期の実験により測定可能となったので以下に報告する。

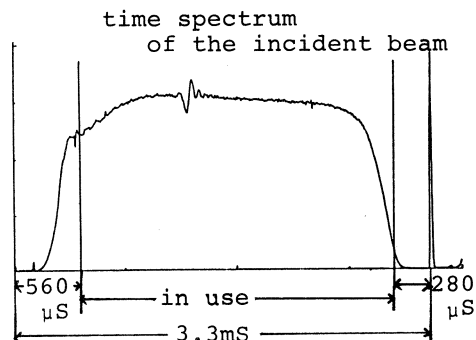
§ 2. 装置の概要

装置の詳細は, 前回の報告¹⁾を参照されたい。ここでは簡単に概略を述べる。

入射パルス電子線はパルスビームストレッチャー (SSTR) により連続ビームに変換された後, 標的に照射する。入射ビームの時間分布を第1図に示す。実験では電氣的な雑音を避ける為に, 図の実線ではさまれた中央部分のみを使用している。

散乱電子は電子線磁気スペクトロメーター (LDM) により運動量分析し, 焦点面上に設置された 192 ch, 3層の多線式比例計数管 (MWPC) 及び2層のプラスチックシンチレーターにより検出する。運動量帯域幅は 5.3% であり, 測定された弾性散乱の幅は約 250 keV であった。

一方, 標的核から放出された陽子は, 散乱槽内に設置された4層の表面障壁型半導体検出器 (SSD) によって検出, エネルギー分析される。1層目には厚さ 50 μm の薄い SSD を, 2層目以降は 1 mm の SSD を使用した。これにより $\Delta E - E$ 検出器法を用いて粒子識別を行う。SSD の有効面

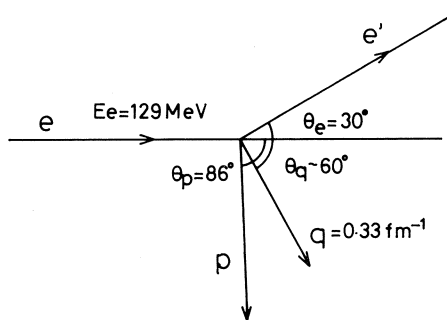


第1図 入射ビームの時間スペクトル。本実験では図に示した実線の間のみを使用し, 前後の 560 μs 及び 280 μs は使用しなかった。

積は 300mm^2 、立体角は 2 層目に於いて 21msr である。前置増幅器として、電子によるバックグラウンドが多く計数率が非常に高い為に、電荷増幅型ではなく電流増幅型を使用している。その為、エネルギー分解能は 300keV 程度しか得られていない。また測定可能な最大の陽子エネルギーは 22MeV である。

同時計数の LDM 上のプラスチックシンチレーターの信号と、比較的出力の大きな 2 層目の SSD の信号との間で行なった。1 層目の SSD を通過し 2 層目に入る為には、陽子のエネルギーが 2MeV 必要である事等から、検出可能な陽子は約 4MeV 以上となる。

データ収集系は各事象毎に MWPC のチャンネル、各層の SSD の出力、電子-陽子間の時間差等を記録している。粒子識別はデータ解析の段階で行なう。



第 2 図 実験条件。入射電子のエネルギーは SSTR への入射時は 130MeV であるが、取り出し時には 129MeV となる。 q の方向は $E_x = 17\text{MeV}$ で 60° である。

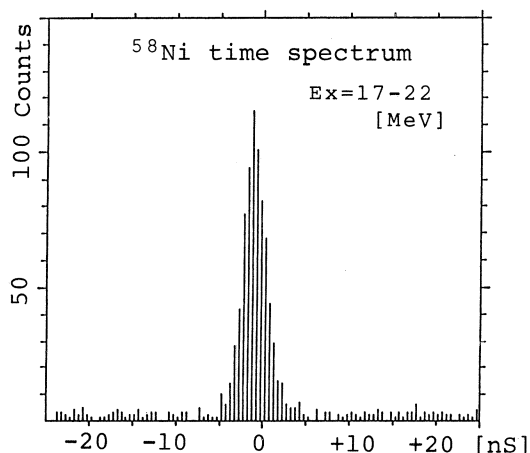
§ 3. 実験結果

第 2 図に実験条件を示す。標的核として主に ^{58}Ni を用い、一部 ^{90}Zr も使用した。電子の散乱角は入射電子の方向に対して -30° とした。この時の移行運動量は 0.33fm^{-1} 、その方向は散乱電子の運動量にもよるが、約 60° となる。標的核より放出された陽子の検出角は 86° とした。

測定した励起エネルギーは、 ^{58}Ni に対しては $13\sim 30\text{MeV}$ 、 ^{90}Zr に対しては $15\sim 20\text{MeV}$ の範囲で行った。標的の厚さは ^{58}Ni が 9.62mg/cm^2 、 ^{90}Zr が 4.95mg/cm^2 であり、入射電子の方向に対し 30° の角度をもたせた。

3.1 時間スペクトル

第 3 図に電子-陽子間の時間スペクトルを示す。ピークの部分が真の事象、裾の部分が偶然事象である。偶然事象



第 3 図 プラスチックシンチレーター（電子）と SSD（陽子）間の時間スペクトル。励起エネルギーは $17\sim 22\text{MeV}$ で断面積のピークの部分である。この時 S/N 比は約 20 である。

の計数率は、電子及び陽子側の検出器の計数率をそれぞれ N_e , N_p , 時間分解能を τ , 入射ビームのデューティファクターを d とすると

$$\tau N_e N_p / d$$

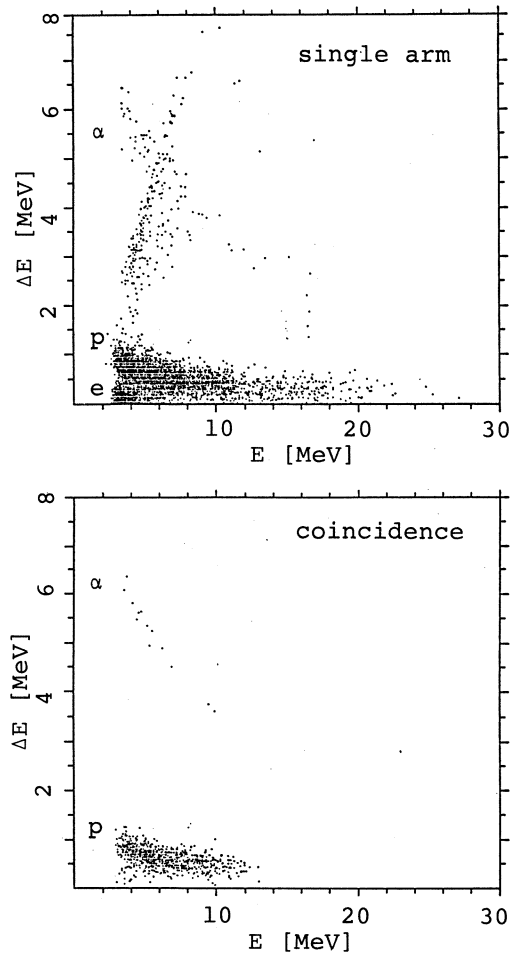
となる。ここで N_e , N_p は照射電子の強度 I_e に比例するから偶然事象の計数率は I_e の2乗に比例する。一方、真の事象の計数率は I_e に比例するから、 S/N 比を真の事象と偶然事象の比と定義すれば I_e に逆比例する。したがって S/N 比を上げる為には I_e をおさえる必要がある。

図に示した測定では、 $I_e \sim 100$ nAであった。この時 $E_x = 17 \sim 22$ MeV, S/N 比は約20である。

本実験においては N_p は LDM の磁場にはよらず一定、 N_e は主に電子の弾性散乱の裾によるものと考えられるから、偶然事象の計数率は弾性散乱の裾の大きさに比例する。これに対して真の事象は断面積に比例するから S/N 比は巨大共鳴の低エネルギー側で悪化する事が予想される。実際、励起エネルギーの低い所 ($E_x = 13 \sim 18$ MeV) では S/N 比は10程度であった。

3.2 粒子識別

陽子検出器として使用している SSD は、陽子以外にも α 粒子や電子等の荷電粒子を感じてしまう。したがって前にも述べたように、 $\Delta E - E$ 検出器法により陽子と他の粒子を識別している。一層目の薄い SSD の出力を ΔE , 2層目以降の厚い SSD の出力の和を E とすると、2層目から4層目の間で粒子が全運動エネルギーを失った場合、 E_0 , k を適当に選べば、



第4図 横軸に $E = \text{SSD } 2 \sim 4$, 縦軸に $\Delta E = \text{SSD } 1$ をプロットしたもの。上は同時計数を行なわない時で、 E と ΔE が比例して分布しているものは電気的な外来雑音と思われる。下は同時計数を行った時で電子と思われる粒子が相対的に少なくなっている。

$$\Delta E \cdot (E + E_0 + k \Delta E) \sim f(M_Z^2)$$

という関係が成り立ち、その値はエネルギーにはよらず粒子の種類にのみ依存する量となる。第4図では横軸に E 、縦軸に ΔE をプロットした。各粒子は双曲線上に分布している。一次直線上に分布しているのは電気的な外来雑音と思われる。

この図によると α 粒子は容易に除く事ができるが、電子と陽子との区別はあまり判然としない。しかし同時計数を行なった後には、電子と思われる事象は5%程度と多くはないので、現在の段階では取り除いていない。

3.3 Missing Energy

第5図にmissing energy E_M の分布を示す。横軸 E_M は、

$$E_M = E_x - \{A/(A-1)\} E_p$$

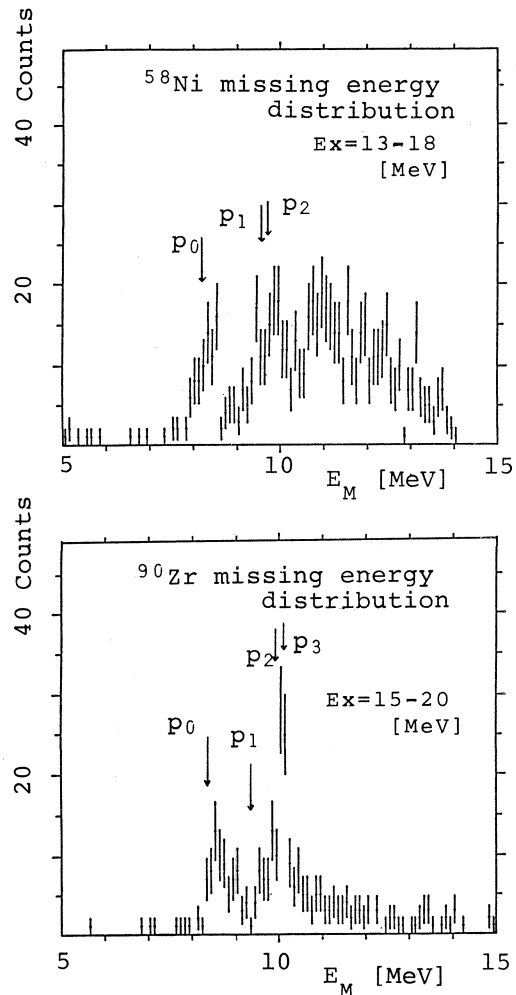
と定義すると、残留核の励起状態に対応し p_0, p_1, p_2 等が分布する。

^{90}Zr は ^{58}Ni よりも p_0 が多いので、 p_0 がきれいに分布している。図から分るように、 p_0 の分離は可能であるが p_1 以上は現在の所困難である。分解能は800 keV程度を得ている。

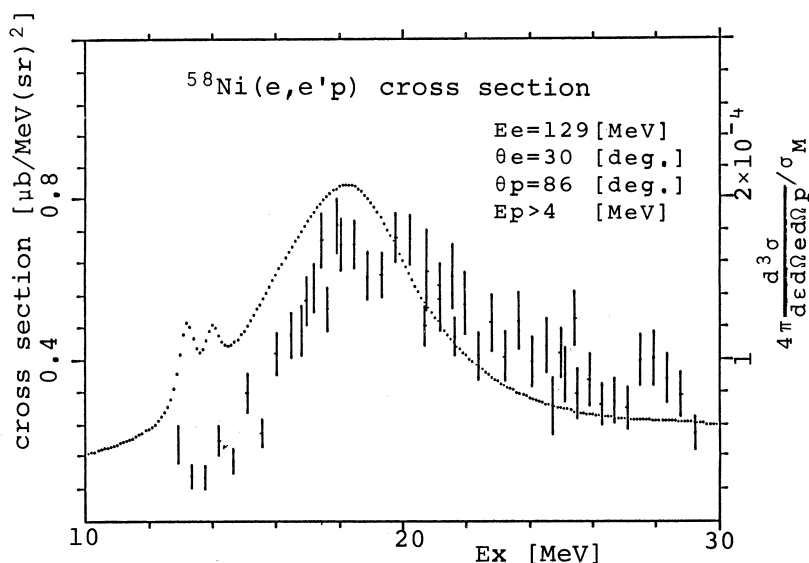
3.4 微分断面積

第6図に ^{58}Ni に対して得られた微分断面積のスペクトルを示す。右側の縦軸では電子散乱との比較の為に、陽子の角分布をとりあえず等方的と仮定し 4π 倍した後、Mott散乱の断面積で規格化してある。絶対値は ^{58}Ni の弾性散乱を測定して規格化した。この時使用した形状因子は、他の実験²⁾ によって得られた電荷分布より求めた。点線は実験値³⁾ より外挿した電子散乱の微分断面積である。

図に示した誤差は統計的誤差のみであ



第5図 Missing energy spectrum.



第6図 ^{58}Ni の微分断面積。点線は実験値³⁾より外挿した (e, e') の微分断面積。13.2, 14.0, 16.3, 18.5及び29 MeVに Lorentz型の共鳴を仮定し、さらに準弾性散乱からの寄与を加えた。実際の断面積は裾の部分で多少大きくなると思われる。

る。前に述べたように、照射電子線の一部は使用していない。しかし、電流モニター (SEM) は全電流を測定しているので線量を大きく見積っている。これは断面積を5~10%小さくしている。これに対して、偶然事象及び粒子識別されなかった電子のバックグラウンドが、励起エネルギーの低い所 ($E_x \leq 18 \text{ MeV}$) で15%、高い所で10%程断面積を大きくしている。

光核反応の実験³⁾によれば、 ^{58}Ni の (r, p) 反応の断面積は、 (r, n) の約2倍である。励起状態からの崩壊が主に陽子又は中性子の放出によるとすれば、 $(e, e'p)$ 反応に於いて全立体角にわたって陽子を測定すれば電子散乱の $\frac{2}{3}$ の断面積となる事が予想される。

今回得られた結果は前述の系統的誤差を考慮しても、励起エネルギー20 MeV以上では $\frac{2}{3}$ よりも大きい。また測定している陽子のエネルギーは4 MeV以上であるから、より低エネルギーの陽子をも測定すれば励起エネルギーの低い所でも $\frac{2}{3}$ 以上となる可能性がある。しかしこれは陽子の角分布を等方的とした場合であるから詳細な比較には角分布の測定が必要である。

§ 4. ま と め

以上、今回得られた結果を示した。以下に装置の性能を示す。

時間分解能 $\lesssim 10 \text{ nS}$

E_M 分解能	~ 800 keV
立体角 Ω_e	約 5 msr
Ω_p	21 msr

なお、 Ω_e は effective な立体角であり、LDMの立体角とMWPCの検出効率との積である。

問題点としては、陽子検出系の分解能が低い事と、ここでは述べなかったが、12MeV以上の陽子のエネルギーが正しく測定されていない事が判っている。今後、これ等の点を改善して行く必要がある。

本研究にあたり、SSTRの運転に御協力頂いた今野收助手に感謝します。また、MWPCの使用に当って御協力、助言を頂いた小山田正幸助教授、横川淳氏に感謝します。

参 考 文 献

- 1) 日野威他：核理研研究報告 **17**(1984) 228.
- 2) J. R. Ficenece *et al.* : Phys. Lett. **32 B** (1970) 460.
- 3) 鳥塚賀治他：核理研研究報告 **6** (1973) 165.
- 4) S. C. Fultz *et al.* : Phys. Rev. C **10** (1974) 608.
 B. S. Ishkanov *et al.* : Sov. J. Nucl. Phys. **11** (1970) 272.
 庄田勝房他：核理研研究報告 **5** (1972) 40.

編 集 委 員

齋 藤 悌二郎 (委員長) 寺 沢 辰 生
山 田 和 芳 梶 本 和 義

核理研研究報告 第17卷 第2号

1984年12月発行

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

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

RESEARCH REPORT OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

Volume 17 Number 2 December 1984

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