

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第18卷 第1号

1985年6月

東北大学理学部

原子核理学研究施設

刊 行 規 定

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

投 稿 規 定

1. 邦文の原稿はA4版400字詰原稿用紙を使用して下さい。用語は可能な限り文部省編さん「学術用語集」によって下さい。
2. 引用文献、記号、単位、数式、文字指定等は Journal of the Physical Society of Japan の「投稿の手引」に従って下さい。
特に次の点について御注意下さい。
原稿には添字、ギリシャ文字、イタリック、ゴシック、立体、まぎらわしい大文字及び小文字を赤鉛筆で指定して下さい。但し、文中の文字記号及び数式は原則としてイタリックで組みますので、単位及び元素記号、数式中特に立体とすべき文字記号は必ず立体の指定をして下さい。英文の原稿の場合は、イタリックの方を指定して下さい。
3. 図及び表には1枚毎に「第1図」、「第2表」のように番号を付けて下さい。図は全て墨入れし、縮尺又は刷り上がり寸法を記入して下さい。但し、1/3以下の縮尺は御遠慮下さい。
4. 図及び表の挿入箇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18巻 第1号 目次

I 原子核物理

- I-1 奇核の巨大共鳴(II) ^{65}Cu 1
(核理研, 情教センター*, 教養部**)
横川 淳, 穂積 裕一, 荻野 秀夫, 小山田正幸
寺沢 辰生, 鳥塚 賀治, 川添 良幸*
宮瀬 晴久**, 坪田 博明**
- I-2 巨大共鳴領域における $^{40}\text{Ca}(e, e'p_0)$ 反応の研究 11
(核理研, 教養部*)
田中 陽, 日野 威, 川原 英明, 玉江 忠明
菅原 真澄, 坪田 博明*, 宮瀬 晴久*
- I-3 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{g.s.}$ 反応の研究(I) 15
(核理研, 教養部*)
加賀谷 聡, 庄田 勝房, 佐々木 修, 遠山 伸一
小林 毅範, 坪田 博明*
- I-4 $^{14}\text{N}(e, \pi^+)^{14}\text{C}^*$ 低励起 2^+ 状態の研究 25
(核理研, 教養部*, ソウル大**)
遠山 伸一, 佐々木 修, 小林 毅範, 加賀谷 聡
取越 正巳, 坪田 博明*, 庄田 勝房, 成 百能**
- I-5 $^{24}\text{Mg}(e, \pi^+)^{24}\text{Na}$ 反応 31
(ソウル大, 核理研*, 教養部**)
成 百能, 庄田 勝房*, 佐々木 修*
遠山 伸一*, 小林 毅範*, 加賀谷 聡*
坪田 博明**
- I-6 ^{63}Cu , ^{65}Cu , ^{59}Co の (γ, p_0) , (γ, p_1) 反応 35
(核理研, 教養部*, 情教センター**, 理学部物理***)
日野 威, 田中 陽, 川原 英明, 菅原 真澄
玉江 忠明, 宮瀬 晴久*, 坪田 博明*
川添 良幸**, 塚本 龍男***

II 物性物理

- II-1 熱中性子小角散乱装置…………… 47
(金研, 核理研*)
石田 明, 新村 信雄*, 山田 和芳*
上野 光明, 一戸 隆*, 窪田 健雄*
佐藤 正幸*, 平井 光博*
- II-2 TOF 法中性子回折による単結晶精密構造解析…………… 52
(金研)
富吉 昇一
- II-3 SnI₄ 液相における分子相関と構造…………… 61
(阪大基礎工, 核理研*, 金研**)
藤井 保彦, 小若 雅彦, 山田 和芳*
新村 信雄*, 上野 光明**
- II-4 エンコード方式によるガラスシンチレーター PSD の光学系・測定系の
評価…………… 65
(核理研)
新村 信雄, 山田 和芳, 窪田 健雄, 佐藤 正幸
- II-5 アンガーカメラ方式による位置敏感中性子シンチレーター検出器(II)…………… 75
(核理研, 理学部物理*)
新村 信雄, 山田 和芳, 窪田 健雄, 佐藤 正幸
高橋 孝弘*, 目良 充*, 菅野 祐司*
藤本 弘之*, 今野 順一*, 綿引 達也*
小山 直仁*, 笹川 修*

III 放射化学

- III-1 チオライトの加熱変化およびストロンチウムに対する吸着特性…………… 81
(選研)
三村 均

Ⅲ-2	β-ジケトン類錯体における ⁷ Beの内部反跳インプランテーション……………	90
	(筑波大化学系)	
	荘司 準, 丸山 保子, 小川 公也, 沖 雄一	
	池田 長生	
Ⅲ-3	光量子放射化-LEPSによる微量分析の基礎的研究……………	98
	(都神経科学総研, 教養部*)	
	佐藤 武雄, 加藤 豊明*	
Ⅲ-4	内標準法による光量子放射化分析……………	108
	-環境試料中の微量元素の多元素同時定量-	
	(核理研)	
	榎本 和義, 八木 益男	
Ⅲ-5	光量子放射化分析法による海藻中の主要および微量元素の定量に関する 諸検討……………	119
	(理学部化学)	
	岩田 吉弘, 井村 久則, 鈴木 信男	
Ⅲ-6	デカン玄武岩の地球化学的研究……………	125
	(理学部地学, 東大震研*, 地質調査所**)	
	青木謙一郎, 吉田 武義, 荒牧 重雄*, 倉沢 一**	
Ⅲ-7	韓国, 鬱陵島火山岩の地球化学的研究……………	139
	(理学部地学)	
	金 允圭, 吉田 武義, 青木謙一郎	
Ⅲ-8	東伊豆単成火山群の地球化学的研究……………	158
	(理学部地学)	
	宮島 宏, 吉田 武義, 青木謙一郎	
Ⅲ-9	那須北帯, 北八甲田火山群の地球化学的研究……………	175
	(理学部地学)	
	佐々木寧仁, 吉田 武義, 青木謙一郎	
Ⅲ-10	北海道, 有珠火山の岩石化学……………	189
	(山形大, 理学部地学*)	
	大場与志男, 吉田 武義*, 青木謙一郎*	

Ⅲ-11	新第三紀・靈山火山岩類の地球化学的研究……………	203
	(理学部地学, 地質調査所*)	
	吉田 武義, 阿部 智彦*, 青木謙一郎	
Ⅳ	加速器・データ処理装置稼働状況	
Ⅳ-1	昭和59年度マシン報告……………	217
	(核理研マシングループ)	
	一戸 隆, 栗原 亮, 高橋 重伸, 柴崎 義信	
	武藤 正勝, 小山田正幸, 浦澤 茂一	
Ⅳ-2	データ処理装置稼働状況……………	219
	(核理研計測グループ)	
	小山田正幸, 窪田 健雄, 佐藤 正幸, 武藤 正勝	
Ⅴ	論文リスト……………	221

I. 原 子 核 物 理

奇核の巨大共鳴 (II) ^{65}Cu

核理研, 情教センター*, 教養部**

横川 淳・穂積裕一・荻野秀夫

小山田正幸・寺沢辰生・鳥塚賀治

川添 良幸*・宮瀬晴久**・坪田博明**

Following the last report on ^{63}Cu , the giant multipole resonances in ^{65}Cu have been investigated by electron scattering. The extended multipole expansion method is again applied, and the deduced excitation energies and the widths of giant multipole resonances are compared to the data of neighbouring isotones. The background component of the spectrum, which may consist of excitations to non-resonance states can be critical in analysis of electron scattering data in the giant resonances region. It has been carefully allowed for using the γ -scaling hypothesis.

§ 1. 序

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

前回は奇核である ^{63}Cu を標的核として選び、特に縦成分を調べる為に前方角での電子散乱実験を行った³⁾。その結果 ^{63}Cu の巨大共鳴の E_R は隣接偶核 ^{62}Ni , ^{64}Zn の値に比べ低くなっている事が分かり、巨大共鳴の性質に殻構造が影響する可能性が示唆された。

今回は奇核と偶核との違いをさらに明確にすることを目的とし、 ^{65}Cu に対して前回と同様の実験を行ない、巨大共鳴領域の考察を行なった。

また基底状態のアイソスピンの大きさが異なる ^{63}Cu と ^{65}Cu の実験データを比較することにより、アイソベクトル型 (IV型) 巨大共鳴のアイソスピン依存性についての知識が得られるものと期待される。特に IV型四重極巨大共鳴のアイソスピンスプリッティングについては理

論的予言⁴⁾があるだけなので、大いに興味を持たれている。

巨大共鳴領域の応答関数には共鳴以外の励起によって生じる部分が存在しているので、巨大共鳴のより精密な研究の為にはこの部分の解明も同時に不可欠である。しかし多くの場合この部分は物理的に興味のないバックグラウンドとして取り扱われており詳しい議論が行われていない。本稿に於けるデータ解析では巨大共鳴による部分とそれ以外の部分とを同等に取り扱い、すべての応答関数のより深い理解を目的とした。

§ 2. 実 験

東北大学原子核理学研究施設 300 MeV 電子線型加速器からの電子線を⁶⁵Cu に照射し、散乱電子を大型電子線スペクトロメータ (LDM) で運動量分析した後、焦点面上にある 33 チャンネルの半導体検出器 (SSD) で検出した。実験に用いた 2 枚のターゲットの厚さ及び純度を第 1 表に、実験条件を第 2 表に示す。有効運動量移行 (q_{eff}) は励起エネルギー (E_x) が 20 MeV での値である。測定した励起エネルギー範囲は多少ばらつきがあるがおよそ 50 MeV までである。第 1 図に⁶⁵Cu の構造因子の q_{eff} 依存性を示す。また同図に今回の実験条件に対応する q_{eff} の値を、第 2 表に示した設定番号と共に矢印で示す。構造因子は遷移電荷密度として C 1 については Goldhaber-Teller 模型を、C 2, C 3, C 4 については Tassie 模型を仮定し、DWBA 計算により求めた。基底状態の電荷分布は 2 変数型 Fermi 分布

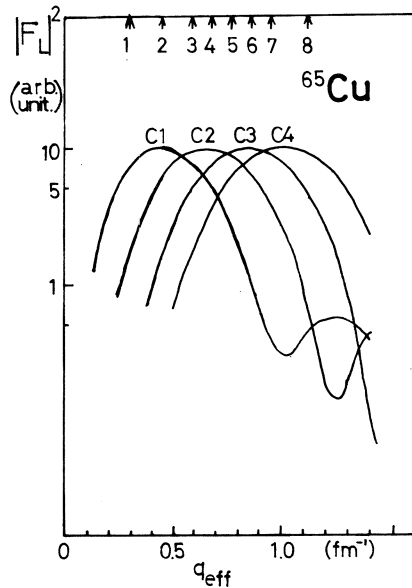
$$\rho(r) = \frac{\rho_0}{1 + \exp((r-c)/z)} \quad (1)$$

$$c = 4.271 \text{ fm}, \quad z = 0.579 \text{ fm}$$

を用いた⁵⁾。第 1 図より C 1 成分から C 4 成分までが強く励起される広い領域で実験が行なわれたことが分かる。

第 1 表 実験で使用したターゲットの厚さ及び純度。

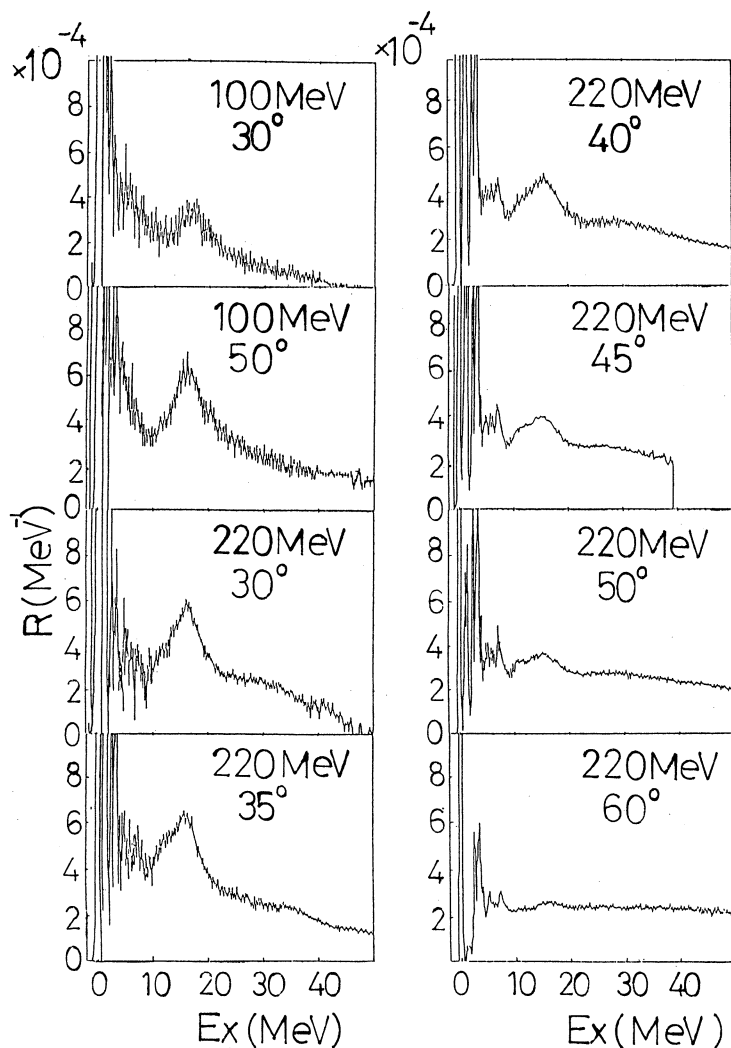
ターゲット	厚 さ	純 度
a ⁶⁵ Cu	9.58mg/cm ²	98 % 以上
b ⁶⁵ Cu	79.90mg/cm ²	99.7 %



第 1 図 ⁶⁵Cu の構造因子の q_{eff} 依存性及び実験条件に対応する q_{eff} 。

第2表 実験条件。

設定 番号	入射電子エネルギー E_i (MeV)	散乱角 θ (deg)	有効運動量移行; q_{eff} ($E_x=20$ MeV で) (fm^{-1})	ターゲット
1	100	30	0.29	a
2	100	50	0.45	a
3	220	30	0.59	a
4	220	35	0.68	b
5	220	40	0.78	b
6	220	45	0.87	b
7	220	50	0.96	b
8	220	60	1.13	b



第2図 実験によって得られた応答関数。

得られたスペクトルに輻射補正を施し、同じ条件で測定した ^{12}C の弾性散乱断面積により規格化を行なって求めた応答関数を第2図に示す。

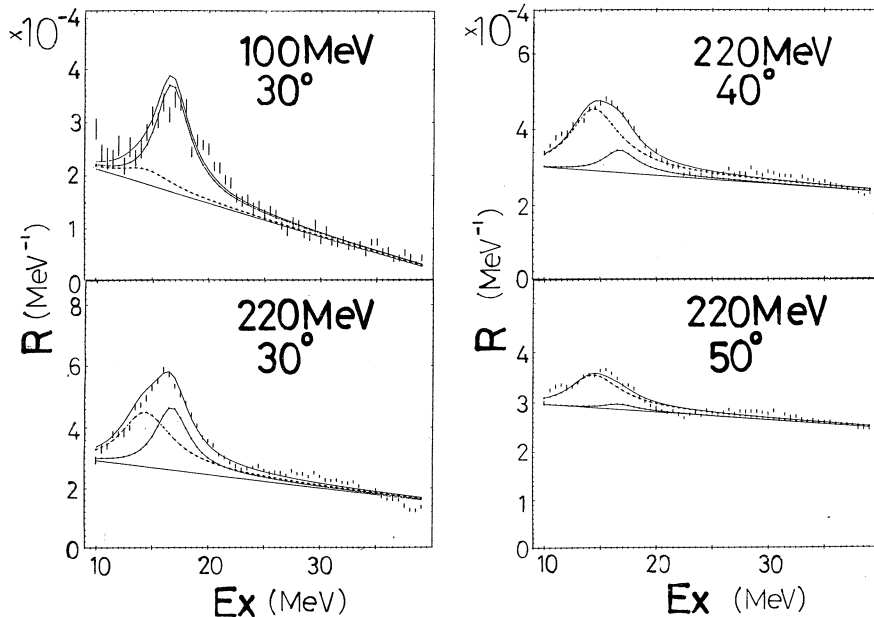
§ 3. データ解析

C1, C2の巨大共鳴に着目してそれらの存在が期待される $E_x=10\text{ MeV}$ から $E_x=39\text{ MeV}$ までの実験データに対して、前回の ^{63}Cu と同様に多重極ピーク分離の方法で解析を行なった。多重極ピーク分離の方法について以下に簡単にまとめる。

この方法に於いては、 q_{eff} と E_x の2変数関数として応答関数が得られるという電子散乱の特徴を利用し、全実験データを同時に処理して巨大共鳴の励起エネルギー及び共鳴幅を得ることを目的とする。

ある入射電子エネルギー、散乱角で測定された応答関数は、共鳴状態への励起によって生じた「構造がある部分」とそれ以外のほとんど「構造がない部分」とから出来ていると考えられる。「構造がある部分」を再現する為に次のA. B.を、「構造がない部分」を決定する為にCを仮定する。

- A. 各多重極成分の応答関数の q_{eff} 依存性は、液滴模型を仮定しDWBA計算により求めた構造因子の q_{eff} 依存性によって表される。



第3図 多重極ピーク分離の結果のスペクトルによる表示。

B. 各共鳴の応答関数の E_x 依存性は Breit-Wigner 型に従う。

C. 各スペクトルにある巨大共鳴以外の部分は直線で表される。

実験データにこれらの仮定を適用し、最小自乗法により巨大共鳴を決定するパラメータ(強度, E_R , Γ)及び共鳴以外の部分を決定するパラメータを求めた。

「構造がある部分」を再現する為に何種類の共鳴状態を考えるかが問題となる。着目している励起エネルギー領域に存在すると予想される共鳴には、アイソスカラー型単極子 (ISCO) 共鳴, アイソベクトル型双極子 (IVC1) 共鳴, アイソスカラー型四重極子 (ISC2) 共鳴, アイソベクトル型四重極子 (IVC2) 共鳴, アイソスカラー型八重極子 (ISC3) 共鳴がある。第2図を見ると C1 成分と C2 成分が強く励起される実験条件で得られた応答関数に大きい山が存在しており, またその励起エネルギーも IVC1, ISC2 の存在が予想される位置と一致している。従って, IVC1 と ISC2 とを含めた何種類かの共鳴状態の組み合わせを仮定して, それぞれの組み合わせに対してパラメータを決定した。得られた共鳴を決定するパラメータの妥当性あるいは χ^2 の大きさより, 巨大共鳴として IVC1, ISC2 の2種類のみを考えた組み合わせが最も適当であると判断された。第3図にこの結果を示す。2つの共鳴及び直線とで全実験データがよく再現されていることが分かる。

§ 4. 考 察

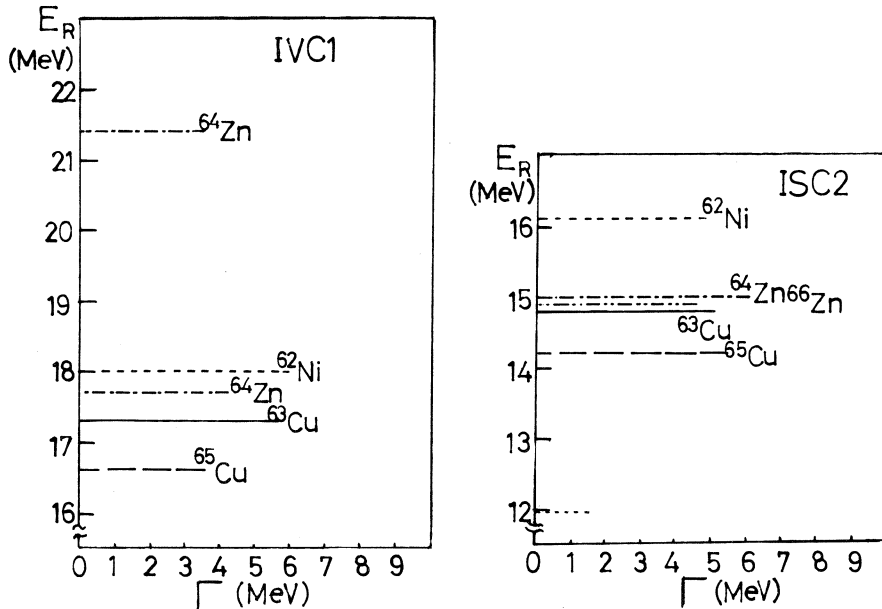
4.1 隣接偶核との比較

偶核と奇核との相違を明らかにするため, 多重極ピーク分離で得られた ^{65}Cu の巨大共鳴の

第3表 ^{62}Ni ⁸⁾, ^{63}Cu , ^{64}Zn ⁶⁾, ^{65}Cu , ^{66}Zn ⁷⁾ の各巨大共鳴の励起エネルギー, 共鳴幅及びエネルギー重み付総和則値。

核種	共鳴モード	IVC 1			ISC 2		
	パラメータ	E_R (MeV)	Γ (MeV)	EWSR (%)	E_R (MeV)	Γ (MeV)	EWSR (%)
^{62}Ni		18.0	6.0	115	11.92±0.07 16.1 ±0.2	1.53±0.02 4.7 ±0.1	16.4 94.3
^{63}Cu		17.5±0.5	5.7±0.7	78±9	14.8±0.3	5.1±0.5	88±7
^{64}Zn		17.7±0.6 21.4±0.6	4.3±0.8 3.5±0.8	63±16 40±11	15.0±0.2	6.0±0.4	49±6
^{65}Cu		16.6±0.4	3.6±0.6	79±11	14.2±0.3	5.4±0.5	76±6
^{66}Zn		not	observed		14.9±0.5	4.5±0.5	

E_R , Γ 及びエネルギー重み付き総和則値 (EWSR) を, 隣接偶核である $^{64}\text{Zn}^{6)}$, $^{66}\text{Zn}^{7)}$ の値と比較する。それらの値を前回報告した ^{63}Cu の結果と共に第 3 表に示した。ここで $^{62}\text{Ni}^{8)}$, ^{64}Zn の値は電子散乱実験, ^{66}Zn の値は α 散乱実験により得られた結果である。これらの原子



第 4 図 ^{62}Ni , ^{63}Cu , ^{64}Zn , ^{65}Cu の IVC1 共鳴, ISC2 共鳴の励起エネルギー及び幅。縦軸は共鳴エネルギー, 横軸は幅である。左が IVC1, 右が ISC2。

核の E_R および Γ の関係を第 4 図に示す。奇核である ^{63}Cu , ^{65}Cu の巨大共鳴の励起エネルギーはどちらの共鳴についても隣接偶核の対応する値より低くなっていることが分かる。この原因の 1 つとして, 奇核は偶核に比べ粒子放出の閾値が低いことが考えられる。また共鳴幅に関しては偶核と奇核との間で顕著な相違は見られなかった。

4.2 アイソスピンスプリットिंग

IV 型巨大共鳴のアイソスピンスプリットिंगと基底状態のアイソスピンの大きさとの関係は, IVC1 については Akyüz と Fallieros により⁹⁾, IVC2 については Kawazoe と Tsukamoto により⁴⁾ 理論的に計算されており, ^{65}Cu のアイソスピンスプリットिंगは ^{63}Cu に比べ広くなることが予想されている。本実験で得られた ^{63}Cu と ^{65}Cu の IV 型共鳴を比較することにより, アイソスピン依存性について実験結果と理論との比較が行なえるものと期待されていた。しかし, アイソスピンスプリットिंगについての情報は, 今回の実験結果からは得られなかった。

4.3 構造がない部分

多重極ピーク分離によって決定された「構造がない部分」は、短寿命の共鳴状態、非共鳴状態への励起等によって生じていると考えられる。ここで「構造がない部分」について y -スケーリング則¹⁰⁾を導入し、準弾性散乱の描像に基づいて考察する。

1 核子放出過程を仮定すると、非相対論的な 4 元運動量保存則より

$$\frac{(\vec{p} + \vec{q})^2}{2m_N} = \frac{\vec{p}^2}{2m_N} + \omega - \bar{\epsilon} \quad (2)$$

が成り立つ。ここで \vec{p} は初期状態の核内核子の運動量、 m_N は核子質量、 $\bar{\epsilon}$ は核子の平均分離エネルギーである。スケーリング変数として核内核子の運動量移行方向の速さ

$$y = \frac{p_{\parallel}}{m_N} \equiv \frac{\vec{p} \cdot \vec{q}}{m_N q} = \frac{\omega - \bar{\epsilon}}{q} - \frac{q}{2m_N} \quad (3)$$

を導入する。反応過程として 1 核子放出過程を仮定し、さらに横成分に含まれる環境電流 (convection current) からの寄与を無視すると、電子散乱微分断面積は、 y の 1 変数関数と運動学的関数との積として

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \sigma_M \eta_{\text{rec}} F_N^2(q_\mu^2) K(q, \omega, \theta) f(y) \frac{dy}{d\omega} \quad (4)$$

と表される。ここで σ_M は Mott 断面積、 η_{rec} は反跳因子、 $F_N^2(q_\mu^2)$ は核子の構造因子で

$$F_N^2(q_\mu^2) = \left(1 + \frac{q_\mu^2}{a^2}\right)^{-4} \quad (5)$$

ここで、 a は 855 (MeV) である。また、 $K(q, \omega, \theta)$ は運動学的に決定される量で

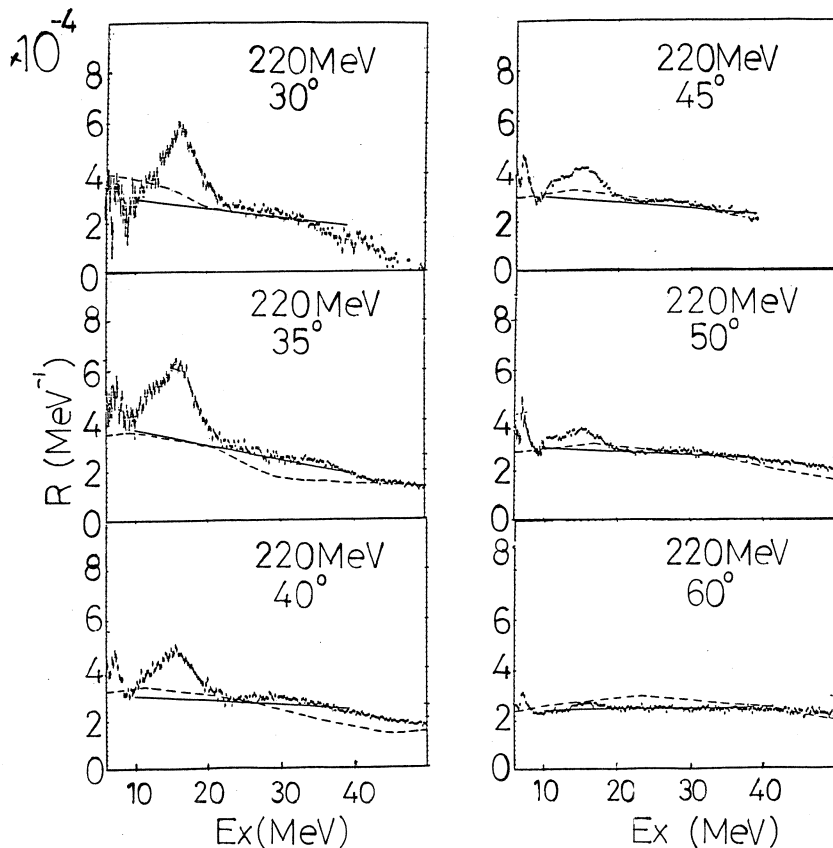
$$K(q, \omega, \theta) = Z \left(\frac{q_\mu}{q}\right)^4 \left\{ 1 - (2\mu_p - 1) \frac{q^2}{4m_N} \right\} + \left(\frac{q_\mu^2}{2q^2} + \tan^2 \frac{\theta}{2}\right) (Z\mu_p^2 + N\mu_n^2) \frac{q^2}{2m_N} \quad (6)$$

として表される。ここで μ_p は陽子の、 μ_n は中性子の磁気モーメントである。 $f(y)$ は核内核子の運動量移行方向の速度分布を表しており

$$\int f(y) dy = 1 \quad (7)$$

と規格化されている。こうして y -スケーリング則により微分断面積と核内核子の速度分布とが関係づけられ、運動量移行の大きい実験条件で得られた微分断面積より関数 $f(y)$ が求まり、その $f(y)$ より他の実験条件に対応する準弾性散乱微分断面積を評価することができる。

本実験は巨大共鳴を研究目的とした実験であり、全微分断面積に対して一核子放出過程が成



第5図 多重極ピーク分離で決定された「構造がない部分」(実線)と y -スケールリング則を用いて見積もった準弾性散乱断面積(破線)。

り立つ程運動量移行は大きくない。そこで Whitney 等によって行なわれた ^{58}Ni に対する運動量移行の大きい電子散乱実験結果に対し y -スケールリング則を適用して速度分布 $f(y)$ を求めた。核内核子の速度分布は質量数が大きく異なる核種に於いてはほぼ同じであると考えられるので ^{58}Ni より求めた $f(y)$ を用い、第4式及び Pauli の排他律による効果を取り込んで¹²⁾ 準弾性散乱微分断面積を評価した。この様にして見積もった準弾性散乱微分断面積と多重極ピーク分離によって決定された「構造がない部分」とを実験データと共に第5図に示す。運動量移行が比較的大きい領域に於いて、「構造がない部分」は y -スケールリング則及び Pauli の排他律を用いて求められた準弾性散乱断面積の見積もりと励起エネルギー依存性及び強度がよく一致していることが分かる。この様に y -スケールリング則が巨大共鳴領域のバックグラウンドの決定に於いて有効である事が示された。

運動量移行が小さい実験条件の「構造がない部分」には機器による散乱 (instrumental

scattering)が含まれている可能性がある³⁾。この機器による散乱の寄与に関しては現在実験的に検討中であり、次回にまとめて報告する予定である。

§ 5. まとめ

^{65}Cu を標的核とした前方角電子散乱実験を行なった。得られた巨大共鳴領域の応答関数の考察により、前回の ^{63}Cu と同様に ^{65}Cu のIVC1, ISC2共鳴の励起エネルギーは隣接偶核の値に比べ低くなっていることが分かった。共鳴幅については偶核と奇核との間で顕著な差異はなかった。ここで得られた結果を敷衍し、偶核と奇核との間で共鳴エネルギーの質量数依存性が一般に異なると結論づける為には、奇核に対してもより系統的に実験を行ないデータを蓄積する必要がある。

またIV型共鳴のアイソスピンスプリッティングについては、本実験結果からは確かな情報は得られなかった。これを調べる為には更に精度のよい実験を行なう必要がある。

巨大共鳴領域の応答関数の「構造がない部分」について考察し、運動量移行が比較的大きい領域に於いては y -スケーリング則を用いた準弾性散乱の描像である程度説明できた。幅の広い共鳴を研究目的とした実験のデータ解析に於いては、着目している共鳴とそれ以外の部分との分離が困難である。幅の広い巨大共鳴の実験的検証の為には非共鳴的な励起の研究も必要となり、それらを統合した原子核の模型の研究が重要である。

参 考 文 献

- 1) B. L. Berman and S. C. Fultz : Rev. Mod. Phys. **47** (1975) 713.
- 2) F. E. Bertrand : Nucl. Phys. **A354** (1981) 129.
- 3) 横川淳, 川添良幸, 荻野秀夫, 穂積裕一, 小山田正幸, 寺沢辰生, 小黑瞬, 鳥塚賀治, 宮瀬晴久, 坪田博明 : 核理研研究報告 **17** (1984) 23.
- 4) Y. Kawazoe and T. Tsukamoto : Phys. Rev. C **23** (1980) 2364.
- 5) H. Gompelman, H. J. Blaauw and C. W. de Jager : Atomic Data and Nuclear Data Table **14** (1974) 491.
- 6) A. A. Nemashkalo, N. G. Afanas'ev, Yu. V. Vladimirov, V. P. Likhachev, G. A. Savitskii and V. M. Khvasturov : JETP. Lett. **26** (1978) 422.
- 7) D. H. Youngblood : *Giant Multipole Resonances*, ed. F. E. Bertrand 133. (Harwood

academic, 1980)

- 8) 穂積裕一, 藤平力, 広田淳一, 藤井芳昭, 斎藤健治, 斎藤悌二郎, 鳥塚賀治 : 核理研研究報告**16** (1983) 21.
- 9) R. Ö. Akyüz and S. Fallieros : Phys. Rev. Lett. **27** (1971) 1016.
- 10) Y. Kawazoe, G. Takeda and H. Matsuzaki : Prog. Theo. Phys. **54** (1975) 1394.
- 11) R. R. Whitney, I. Sick, J. R. Ficenec, R. D. Kephart and W. P. Trower : Phys. Rev. C **9** (1974) 2230.
- 12) 横川淳 : 修士論文 (1985) 東北大学.

巨大共鳴領域における $^{40}\text{Ca}(e, e' p_0)$ 反応の研究

核理研, 教養部*

田中 陽・日野 威†・川原英明

玉江忠明・菅原真澄・坪田博明*

宮瀬晴久*

($e, e' p$)反応は, (e, e')反応, (r, p)反応と較べて縦, 横成分間, 横成分間の干渉が観測できる等の優位な特徴を持つが, その特徴を生かすためには放出陽子の角分布を測定することが不可欠である¹⁻³⁾。82年より我々は, パルスビームストレッチャーからの連続電子線を用いた, 陽子角分布測定可能な($e, e' p$)同時計数実験装置を製作してきたが, 先頃ほぼ完成した。今回, この装置を用いた $^{40}\text{Ca}(e, e' p_0)$ 反応実験を行い, 散乱平面外で放出陽子角分布を4点測定した。現在, データ解析中であり今回は簡単な報告に留める。

§ 1. 実験装置, 実験条件

実験は電子ライナック, パルスビームストレッチャーからの連続電子線及び($e, e' p$)同時計数装置を用い行った。同時計数装置, 実験方法は文献4, 5, 6)に詳しいのでここではふれない。但し, 上記文献中の設定条件とはやや異なる陽子検出器を今回使用したので以下に述べる。

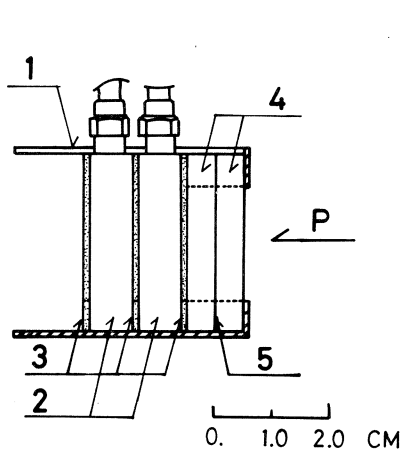
テスト実験で使用した陽子検出器は4層の半導体検出器からなる $\Delta E-E$ 型検出器(厚さは1層目 $50\mu\text{m}$, 2-4層目 $1000\mu\text{m}$)で散乱平面内に設置されていた。今回の実験では1層目 $50\mu\text{m}$, 2層目 $1000\mu\text{m}$ の表面障壁型半導体検出器からなる $\Delta E-E$ 型検出器3組と, 1層, 2層ともに $1000\mu\text{m}$ の半導体検出器からなる E 型検出器1組, 計4組の陽子検出器を散乱槽内に配置し放出陽子の角分布を電子散乱平面外で同時に4点測定した。各点での立体角の大きさを第1表に示す。

第1表 各測定点の立体角と検出器のタイプ。

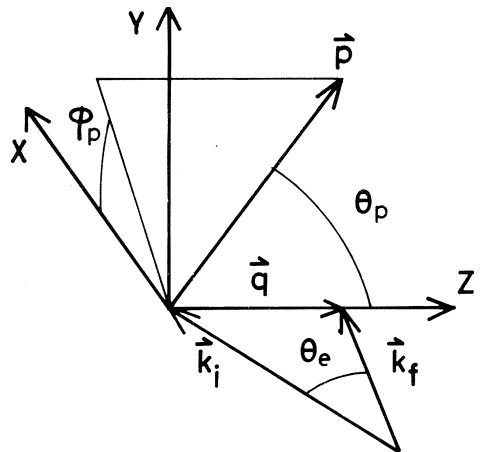
	(θ_p	φ_p)	立体角(msr)	型
立体角の大きさの違いは標的からの距離の違いによる。半導体検出器は第1図に示すようにステンレス製の円筒型	(77°	50°)	12.6	E
	(139°	50°)	18.3	$\Delta E-E$
	(77°	130°)	12.6	$\Delta E-E$
	(139°	130°)	14.4	$\Delta E-E$

† 現在 東北リコー 宮城県柴田郡柴田町

ホルダーに収められ、散乱槽内に設置された架台に固定される。Al 箔の吸収体はより高いエネルギーの陽子を検出するためにつけた。約 13 MeV の陽子まで検出可能である。



第 1 図 半導体検出器がホルダーに収められた時の様子（模式図）。
1. ホルダー, 2. 半導体検出器,
3. ガラスエポキシ製スペーサー,
4. ステンレス製スペーサー,
5. Al 箔吸収体。

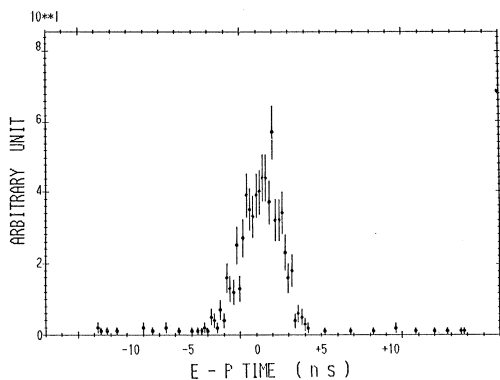


第 2 図 陽子の放出方向をあらわす (θ_p, φ_p) と散乱平面, 移行運動量方向との関係。
 \vec{P} は放出陽子運動量, \vec{q} は移行運動量,
 k_i, k_f はそれぞれ入射, 散乱電子の運動量。散乱平面は X-Y 平面。

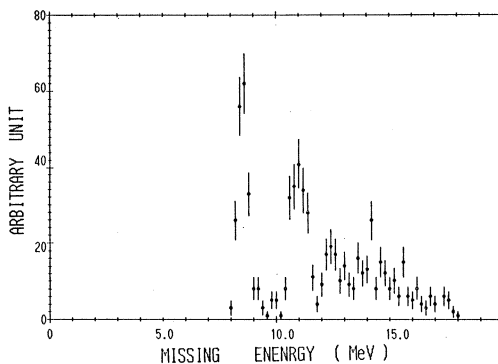
次に実験条件について述べる。照射エネルギーは 129 MeV, 散乱電子測定角 30° , 測定励起エネルギー 16.8~21.5 MeV, 移行運動量は励起エネルギー 19 MeV で 0.33 fm^{-1} である。放出陽子測定角は散乱平面, 移行運動量の向きを基準とした極座標 (θ_p, φ_p) を用いると $(139^\circ, 50^\circ)$ $(77^\circ, 50^\circ)$ $(139^\circ, 130^\circ)$ および $(77^\circ, 130^\circ)$ の 4 点である (第 2 図)。標的には厚さ 3.9 mg/cm^2 , 純度 99% の natural Ca 金属箔を用いた。

§ 2. 解 析

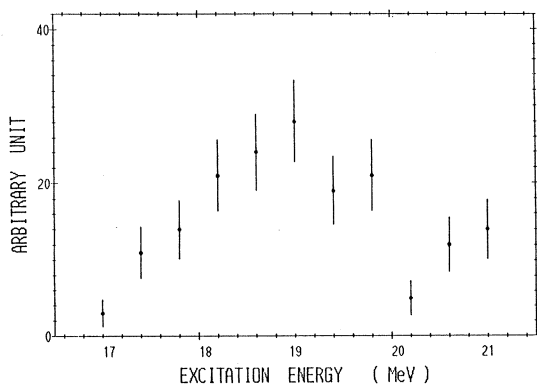
第 3 図に電子-陽子間時間差スペクトルを示す。時間差 $-5 \sim +5 \text{ ns}$ の領域で S/N 比は $\theta_p = 139^\circ, \varphi_p = 50^\circ$ の測定角で最も良く約 50, $\theta_p = 77^\circ, \varphi_p = 50^\circ$ で最も悪く約 20 であった。これは前者に較べて後者が真の事象が少なく, かつバックグラウンドが多かったためである。 S/N 比を用い測定事象計数より真の事象の計数を導出したとき, その統計誤差が最も小さくなるのは照射電子電流値が約 $0.25 (N_s/N_N) I_b$ の時である。但し, N_s/N_N は電流値 I_b のときの S/N 比である。今回, 加速器系が不調のために電流値は $150 \sim 200 \text{ nA}$ に抑えられていたが, 約 800 nA が今回の実験の望ましい電流値であった。



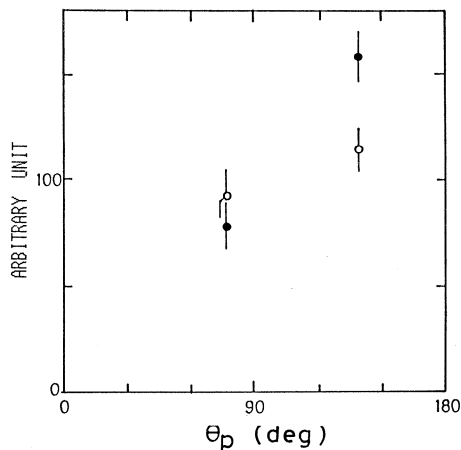
第3図 電子-陽子間スペクトル。測定点は $\theta_p=139^\circ$, $\varphi_p=50^\circ$ 。励起エネルギー $16.8\text{ MeV} \sim 21.5\text{ MeV}$ 。



第4図 missing energy スペクトラム。測定点は $\theta_p=139^\circ$, $\varphi_p=50^\circ$ 。励起エネルギー $16.8\text{ MeV} \sim 21.5\text{ MeV}$ 。



第5図 $^{40}\text{Ca}(e, e'p_0)$ 断面積。測定点は $\theta_p=139^\circ$, $\varphi_p=50^\circ$ 。横軸は励起エネルギー。縦棒は統計誤差。



第6図 $^{40}\text{Ca}(e, e'p_0)$ 角分布。励起エネルギー $16.8\text{ MeV} \sim 21.5\text{ MeV}$ で積分した。黒丸は $\varphi_p=50^\circ$, 白丸は $\varphi_p=130^\circ$ 。縦棒は統計誤差。

第4図は、時間差 $-5 \sim +5\text{ ns}$ の全ての事象の missing energy スペクトラムである。

missing energy E_M は

$$E_M = E_x - E_p - E_{\text{REC}}$$

で定義される。但し、 E_x は標的核の励起エネルギー、 E_p は放出陽子エネルギー、 E_{REC} は残留核反跳エネルギーである。 E_M は残留核の励起エネルギーとしきい値の和である。 ^{40}Ca のしきい値は 8.33 MeV で残留核 ^{39}K の励起エネルギーは下から $2.5, 2.8, 3.0, 3.5, 3.9 \dots$ MeV であり、missing energy スペクトルは $8.33, 10.83, 11.13, 11.83, 12.23 \dots$ MeV

に構造を持つ。このことと今回得られたスペクトルの間に矛盾はない。尚、標的に ^{16}O が混入している可能性があるがその影響はしきい値、 E_{REC} の違いから $E_{\text{M}} \geq 12.3 \text{ MeV}$ に現われる。 $E_{\text{M}} \leq 9.2 \text{ MeV}$ の事象を $^{40}\text{Ca}(e, e' p_0)$ 反応によるものと考え反応断面積、角分布を求めた(第5図, 第6図)。

次回のマシンタイムでは、今回と同じ実験条件でデータの統計を上げる一方、更に4点陽子角分布を測定する予定である。今回の結果の考察は、次回の実験結果と併せて別の機会に報告する。

参 考 文 献

- 1) W. E. Kleppinger and J. D. Walecka : Ann. Phys. **146** (1983) 349.
- 2) Giampalo Co' and S. Krewald : Nucl. Phys. **A433** (1985) 392.
- 3) J. S. O' Connel : Phys. Rev. C **29** (1984) 1544.
- 4) 川原英明 : 修士論文 (1985) 東北大学.
- 5) 日野威他 : 核理研研究報告 **17** (1984) 228.
- 6) 川原英明他 : 核理研研究報告 **17** (1984) 427.

$^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応の研究 (I)

核理研, 教養部*

加賀谷聡・庄田勝房・佐々木修

遠山伸一・小林毅範・坪田博明*

我々は, $^{13}\text{C}(e, \pi^-)^{13}\text{N}$ 反応によって生成された π^- 中間子のエネルギースペクトルを, $E_e = 165 \text{ MeV}$, $\theta = 70^\circ, 90^\circ, 130^\circ, 150^\circ$ で測定した。得られたスペクトルは, 仮想光子理論を用いた解析法により $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応微分断面積へと変換し, 歪曲波インパルス近似 (DWIA) による計算結果と比較した。実験値と理論値は角分布の後方では一致しているが, 前方では不一致が見られ, E0 遷移強度の抑制が示唆される。

§ 1. 研究の目的と意義

原子核による (γ, π^\pm) 反応の実験的研究は主に 1p 殻核について行なわれ, 低エネルギー ($T_\pi \lesssim 50 \text{ MeV}$) 領域においては DWIA 計算によって実験値が比較的良好に再現されてきた。しかし, LeRose 等の求めた $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ [$\theta = 90^\circ$, $T_\pi = 18, 29, 42 \text{ MeV}$] 反応微分断面積の実験値¹⁾は, それまでの DWIA 計算では再現できない程小さかった。この実験値と理論値との不一致の原因を解明することを目的として, $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応微分断面積の測定を行なった。

以下では, $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応の特徴について理論的に知られていることを述べるが, その前に DWIA 計算の枠組みと π 中間子光生成演算子について触れておく。

原子核による (γ, π) 反応は一般に DWIA によって記述され, 計算には, π 中間子の波動関数・原子核の波動関数・ π 中間子光生成演算子の 3つの要素が必要である。 π 中間子光生成演算子としては素過程振幅が用いられ, Blomqvist-Laget (BL)²⁾, Chew-Goldberger-Low-Nambu (CGLN)³⁾, Berends et al⁴⁾ によって求められたものがある。BL は (γ, π^\pm) 反応過程として第 1 図に示す様な最低次の Born 項 (\mathcal{M}_B) に現象論的に Δ 共鳴項 (\mathcal{M}_Δ) を付け加えて, (1) 式で表わされる π^\pm 中間子光生成演算子を導出している。

$$\mathcal{M}_B(\gamma + N \rightarrow N' + \pi^\pm)$$

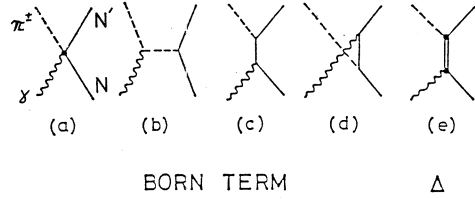
$$= \mp i \frac{\sqrt{2} e f}{m_\pi} \left[\vec{\sigma} \cdot \vec{\epsilon} \left\{ 1 \mp \frac{M_N E_\pi}{E_S (W_S + E_S)} \right\} - \frac{2 \vec{q} \cdot \vec{\epsilon} \vec{\sigma} \cdot (\vec{k} - \vec{q})}{(k - q)^2 - m_\pi^2} \right]$$

$$\begin{aligned} & \pm i \frac{\vec{\sigma} \cdot \vec{q} \vec{\sigma} \cdot (\vec{k} \times \vec{\varepsilon})}{2E_S(W_S - E_S)} \mu_{NN'} \pm i \frac{\vec{\sigma} \cdot (\vec{k} \times \vec{\varepsilon}) \vec{\sigma} \cdot \vec{q}}{2E_u(W_u - E_u)} \mu_{N'N} \\ & \pm \left. \frac{\vec{p}_{NN'} \cdot \vec{\varepsilon} \vec{\sigma} \cdot \vec{q}}{E_S(W_S - E_S)} \right] \tau_{\pm} \end{aligned} \quad (1a)$$

$$\mathcal{M}_d(\gamma + N \rightarrow N' + \pi^{\pm})$$

$$= \mp \frac{\sqrt{2}}{3} \frac{G_{rNd} G_{\pi Nd}}{Q^2 - M_d^2 + iM_d\Gamma} \left[\frac{2}{3} \vec{q} \cdot (\vec{k} \times \vec{\varepsilon}) - \frac{i}{3} \vec{\sigma} \cdot (\vec{q} \times (\vec{k} \times \vec{\varepsilon})) \right] \tau_{\pm} \quad (1b)$$

ここで、 \vec{k} , \vec{q} , \vec{p} はそれぞれ光子, π 中間子, 核子の運動量, $\vec{\sigma}$ は核子のスピン, $\vec{\varepsilon}$ は光子の偏極ベクトルである。第 1(a) 図は Kroll-Ruderman (KR) 項と呼ばれ, \mathcal{M}_B の第一項に対応する。第 1(b) 図は pion-pole 項と呼ばれ \mathcal{M}_B の第二項に対応する。第 1(c)(d) 図は nucleon-pole 項で \mathcal{M}_B の第三~五項に対応する。また, 第 1(e) 図は Δ -pole 項と呼ばれる。 π^{\pm} 中間子光生成演算子は spin flip の項が主であるが, nucleon-, Δ -pole 項の一部に spin non-flip の項が含まれている ($\vec{\sigma} \cdot \vec{q} \vec{\sigma} \cdot (\vec{k} \times \vec{\varepsilon}) = \vec{q} \cdot (\vec{k} \times \vec{\varepsilon}) + i \vec{\sigma} \cdot (\vec{q} \times (\vec{k} \times \vec{\varepsilon}))$ の右辺第 1 項に spin non-flip の部分がある。)

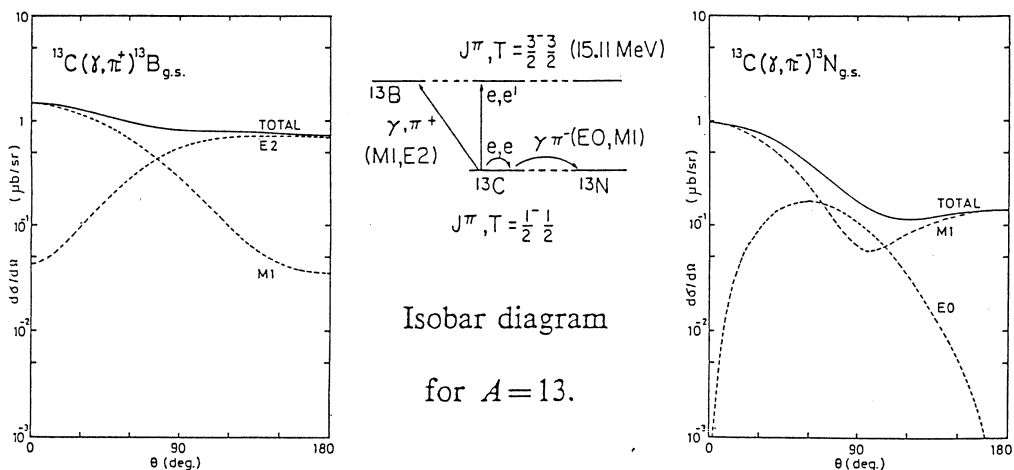


第 1 図 Blomqvist-Laget による (γ, π^{\pm}) 反応の Feynman ダイアグラム。

また, CGLN は分散公式を用いる手法により, Born 項と分散積分の和として(2)式の π 中間子光生成演算子を導出している。

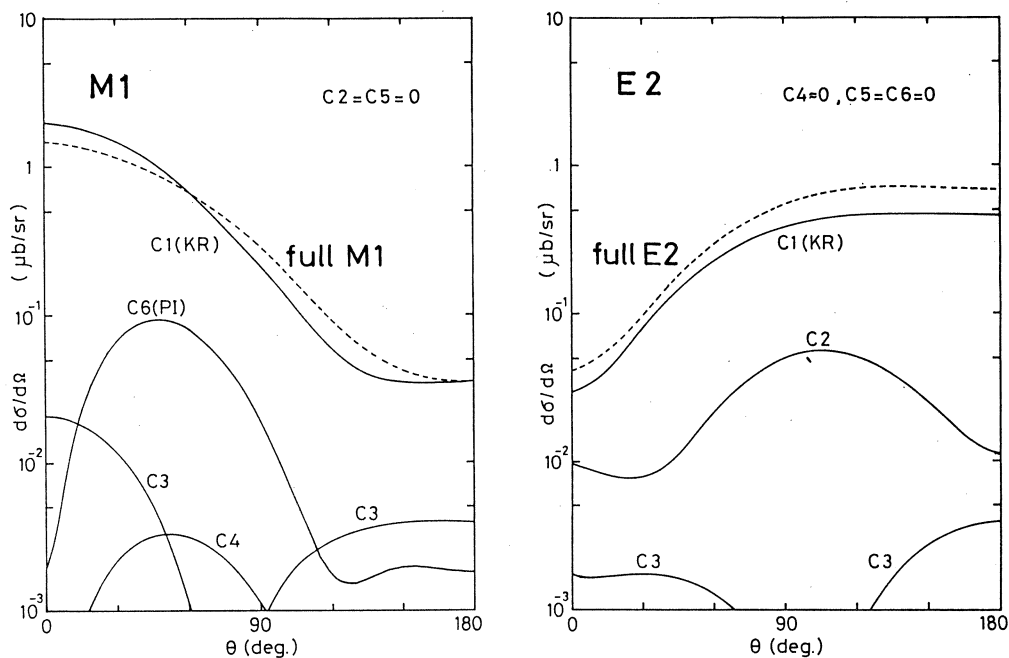
$$\begin{aligned} \mathcal{M}_{r\pi^{\pm}} = & \left[C^{(1)} \vec{\sigma} \cdot \vec{\varepsilon} + C^{(2)} \vec{q} \cdot (\vec{k} \times \vec{\varepsilon}) + C^{(3)} \vec{\sigma} \cdot \vec{\varepsilon} \vec{k} \cdot \vec{q} + C^{(4)} \vec{\sigma} \cdot \vec{k} \vec{q} \cdot \vec{\varepsilon} \right. \\ & \left. + C^{(5)} \vec{\sigma} \cdot \vec{q} \vec{q} \cdot \vec{\varepsilon} + C^{(6)} \frac{2\vec{q} \cdot \vec{\varepsilon} \vec{\sigma} \cdot (\vec{k} - \vec{q})}{(\vec{k} - \vec{q})^2 + m_{\pi}^2} \right] \tau_{\pm} \end{aligned} \quad (2)$$

第 2 図は, $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{13}\text{B}_{\text{g.s.}}$ 反応, $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応の微分断面積の角分布を DWIA 計算して比較したものである。この計算は, Ohtsubo DWIA 計算コードを用いて行なった。 π^{\pm} 光生成演算子としては CGLN, π 中間子の波動関数は SMC ポテンシャル⁵⁾ から得られるもの, 原子核の波動関数は Hauge-Maripuu⁶⁾ のものを用いている。調和振動子パラメータは, ^{13}C の電荷分布を再現する様に決定された値 $b = 1.65 \text{ fm}^7$ を用いる。第 2 図に示した様に $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{13}\text{B}_{\text{g.s.}}$ 反応は M1, E2 遷移, $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応は M1, E0 遷移である。

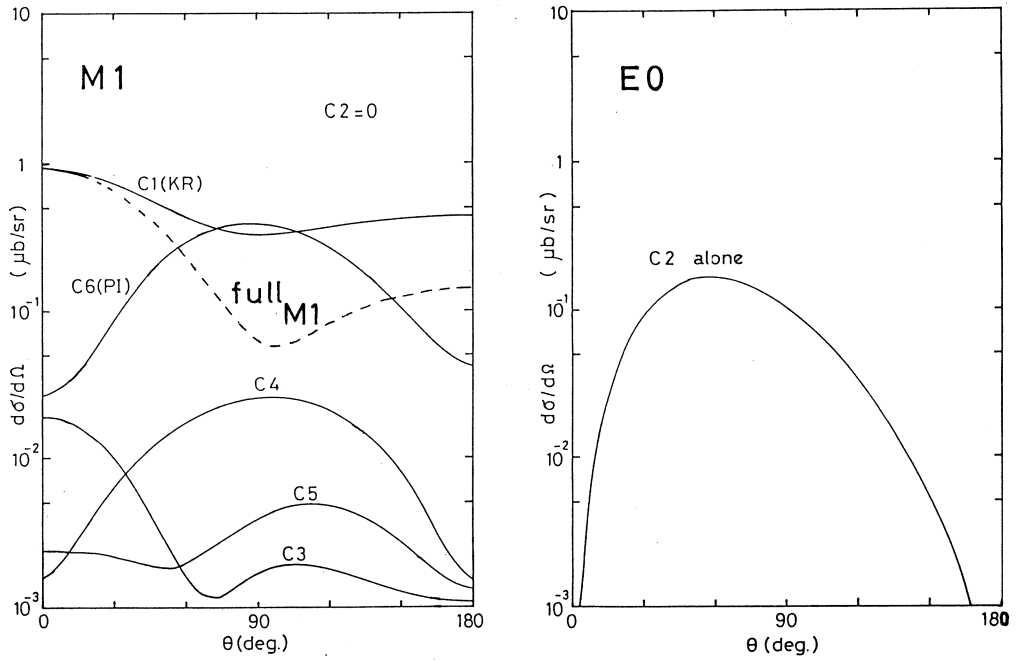


第2図 DWIA 計算による反応微分断面積の角分布 ($T_\pi = 20$ MeV)。

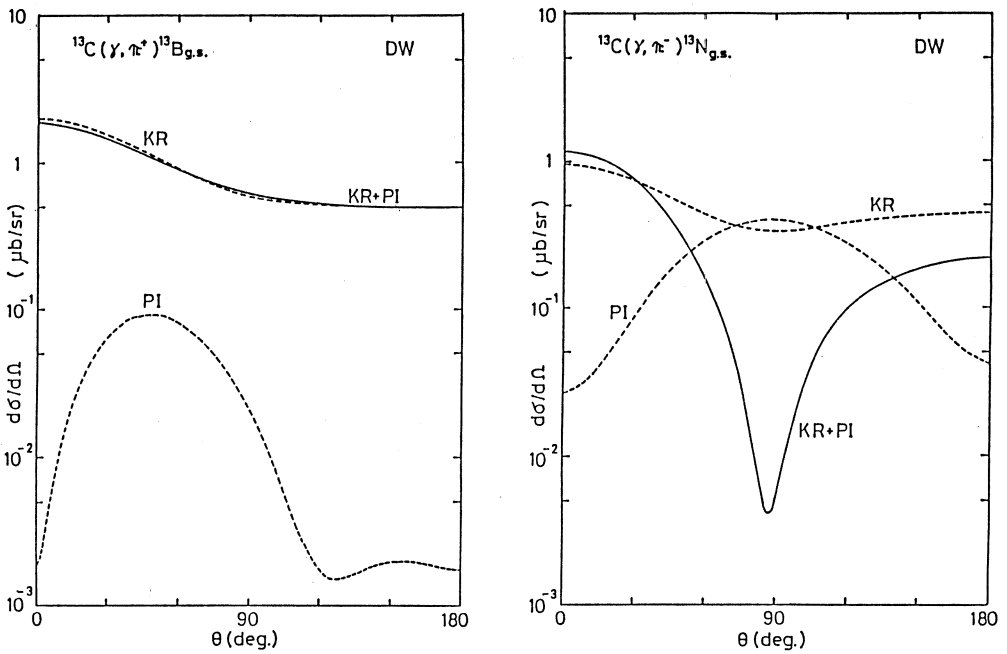
第3図, 第4図はこの2つの反応について各遷移多重極度ごとに CGLN 演算子の各項の寄与を比較したものである。 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{13}\text{B}_{g.s.}$ 反応の場合には M1, E2 遷移ともに KR 項が支配的であり, 他の項の寄与は小さい。これは低エネルギー領域の (γ, π^\pm) 反応で一般的に見られることである。ところが, $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{g.s.}$ 反応の場合には状況異なる。M1 の角



第3図 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{13}\text{B}_{g.s.}$ 反応における, CGLN演算子の各項の寄与。



第4図 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{g.s.}$ 反応における, CGLN演算子の各項の寄与。



第5図 π^\pm 光生成演算子中の Kroll-Ruderman項と pion-pole項の干渉を, $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{13}\text{B}_{g.s.}$ 反応と $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{g.s.}$ 反応について比較したもの。

分布はKR項の角分布とは異なり、 90° 付近で顕著な dip が見られる。この主な理由は、KR項と π (pion-pole) 項との干渉による。第5図にKR項と π 項との干渉の様子を示す。 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^+)^{13}\text{B}_{\text{g.s.}}$ 反応の場合には両者の干渉はほとんど見られないが、 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応の場合には両者の間で強い干渉が見られる。KR項と π 項とのこのような強い干渉は、1p殻内の遷移では $p_{1/2} \rightarrow p_{1/2}$ 遷移に特有のものであることが知られている⁸⁾⁹⁾¹⁰⁾。一方、 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応のE0遷移に寄与するのは spin non-flip の $\vec{q} \cdot (\vec{k} \times \vec{\epsilon})$ 項のみである。この項は第1図で言えば(c)~(e)の一部に由来し、従ってE0遷移に着目すると、nucleon-, 4-pole 項の寄与を調べることができる。この様に、 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応の場合には低エネルギー領域においても π^\pm 光生成演算子中のKR項以外の高次の項の寄与が大きいことが、この反応の特徴として挙げられる。

第4図から分かる様に、理論計算によればE0の角分布はM1の dip 付近でピークをもち、また後方ではM1が主であるので、微分断面積の角分布を測定することによって、E0, M1遷移強度をある程度別々に議論することができる。

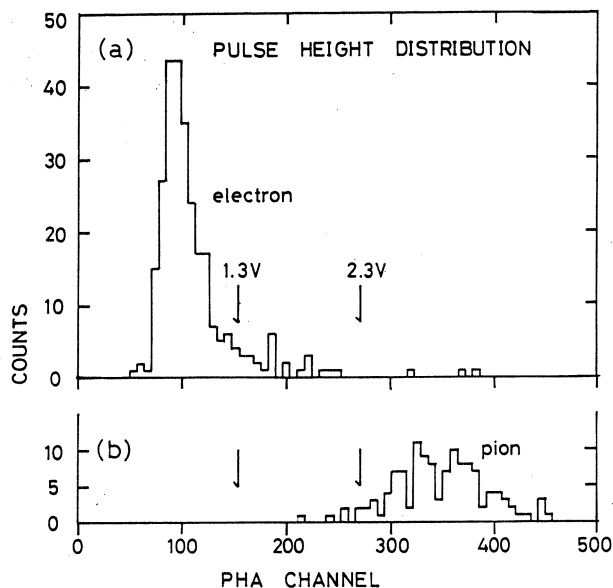
§ 2. 実 験

実験は東北大学核理研の300 MeV電子線型加速器を用いて行なった。標的から(e, π^-)反応によって放出された π^- 中間子は二重収束磁気スペクトロメータで運動量分析した後、Si(Li)半導体検出器の三重同時計数によって検出した。標的は、純度99.2%の ^{13}C 粉末を東北大学工学部金属学科の圧縮器で約 27 t/cm^2 の圧力をかけて直径22 mmの円板状に作成したものを用了。厚さは 191 mg/cm^2 , 155 mg/cm^2 である。また絶対値の効正の為の水素標的としては、LiH粉末を約 3 t/cm^2 の圧力をかけて直径20 mmの円板状に作成したものを用了。厚さは 201 mg/cm^2 である。実験条件は、入射電子エネルギー $E_e = 165 \text{ MeV}$, そのエネルギー分解能は0.3%とした。 π^- 中間子検出角度は $70^\circ, 90^\circ, 130^\circ, 150^\circ$ の4点である。尚、今まで我々のグループでは π^+ の測定を行ってきたが、 π^- の測定は行なわれなかった。これは次の様な事情による。 π^\pm の際に e^\pm が主なバックグラウンドとなるが、陽電子が標的中での e^+e^- 対生成で生じるのに対し、電子の場合にはこの他に入射電子の標的中での散乱によるもの加わる。これが対生成による e^- よりも圧倒的に多い為、 π^- 測定が困難となっていた。

今回 π^- を e^- から分離した方法は、我々のグループで π^+ を e^+ から分離してきた方法¹¹⁾と基本的には同じである。即ちSSD中での π^\pm と e^\pm の電離損失による波高分布の違いを利

用して両者の分布の谷間に波高選別器 (PHS) のバイアスを設定し、バイアスより波高の高い π^{\pm} のみを選びとった。ただし、 π^+ 測定の際には e^+ の rejection factor が 10^3 程度で充分であったのに対し、 π^- 測定の際には e^- の rejection factor は 10^6 程度必要であった。この様に rejection factor を大きくする為には PHS バイアスを高くする必要があるので、検出できる π^- 中間子の波高はより高いものに限られる。今回の実験では、 $T_{\pi} \leq 22 \text{ MeV}$ の π^- 中間子の測定が可能であった。

第6図に e と π の SSD 中での波高分布と、従前の π^+ 測定の際のバイアス (1.3 volt)、今回の π^- 測定の際のバイアス (2.3 volt) の位置を示す。PHS バイアス 2.3 volt では π の波高分布を若干切っている可能性があるが、絶対値については ${}^1\text{H}(\gamma, \pi^+)n$ 反応の実験を行ない、反応微分断面積が精度よく求められている Adamovich 等の実験値¹²⁾ に規格化することによって校正した。



第6図 SSD中での電子、 π 中間子の波高分布。(a) は運動量88MeV/cの電子、(b)は運動量81MeV/c ($T_{\pi} \approx 22 \text{ MeV}$)の π 中間子。矢印は PHS バイアスと PHA チャンネルとの対応を示す。

§ 3. 解 析

(e, π) 反応の放出 π 中間子のエネルギースペクトルから (γ, π) 反応微分断面積を求める際には、両者の間の次の関係式を用いた。

$$\int \left[\frac{d^2 \sigma(E_e, T_{\pi})}{d\Omega_{\pi} dT_{\pi}} \right]^{(e, \pi)} dT_{\pi} = \sum_l \int \left[\frac{d\sigma(E_{\gamma}, E_x^{(l)})}{d\Omega_{\pi}} \right]^{(\gamma, \pi)} N_{\gamma}(E_e, E_{\gamma}) dE_{\gamma} \quad (3)$$

ここで、 $N_{\gamma}(E_e, E_{\gamma})$ は仮想光子エネルギースペクトル、 $E_x^{(l)}$ は残留核状態 l の励起エネルギーである。

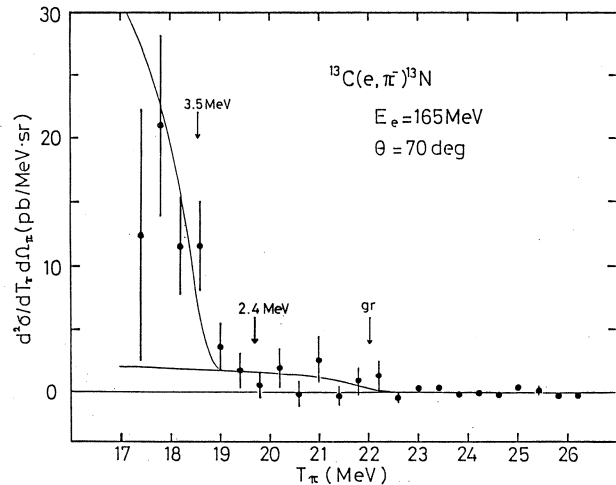
我々の実験で対象とする残留核準位は基底状態のみであり、対応する光子エネルギーの範囲は比較的狭い ($E_\gamma^{\max} = E_e - m_e$ から数 MeV)。従ってこの範囲内で $d\sigma(E_\gamma)/d\Omega_\pi$ は一定として、

$$\left[\frac{d\sigma(E_\gamma)}{d\Omega_\pi} \right]^{(\gamma, \pi)} \equiv \left[\frac{d^2\sigma(E_e, T_\pi)}{d\Omega_\pi dT_\pi} \right]^{(e, \pi)} / \left[N_\gamma(E_e, E_\gamma) \frac{dE_\gamma}{dT_\pi} \right] \quad (4)$$

という値を SSD 1 ch. ごとに求め、これを平均して (γ, π) 反応微分断面積を得た。尚、仮想光子エネルギースペクトルとしては、Tiator-Wright¹³⁾ によって導出されたものを用いた。

第7図に、今回の実験で得られた $^{13}\text{C}(e, \pi^-)^{13}\text{N}$ 反応における生成 π^- 中間子のエネルギースペクトルの一例を示す。図中の矢印の位置はそれぞれ残留核 ^{13}N を、基底状態 ($1/2^-$)、および $E_x = 2.4 \text{ MeV}$ ($1/2^+$)、 3.5 MeV ($3/2^-$, $5/2^+$) の準位に残す π^- 放出チャンネルの開ける位置である。

各準位に関する π^- のスペクトルは光子スペクトルの形を反映し、 $^{13}\text{C}(e, \pi^-)^{13}\text{N}$ 反応において残留核を特定のエネルギー準位に残す様な強い π^- 放出チャンネルがある時、これはスペクトル中の対応するエネルギーの位置に顕著な折れ曲がりとして現われる。しかし、 $E_x = 2.4 \text{ MeV}$ 付近では、スペクトルに明瞭な折れ曲がりが見られない。そこで、この準位からの π^- 放出チャンネルは弱

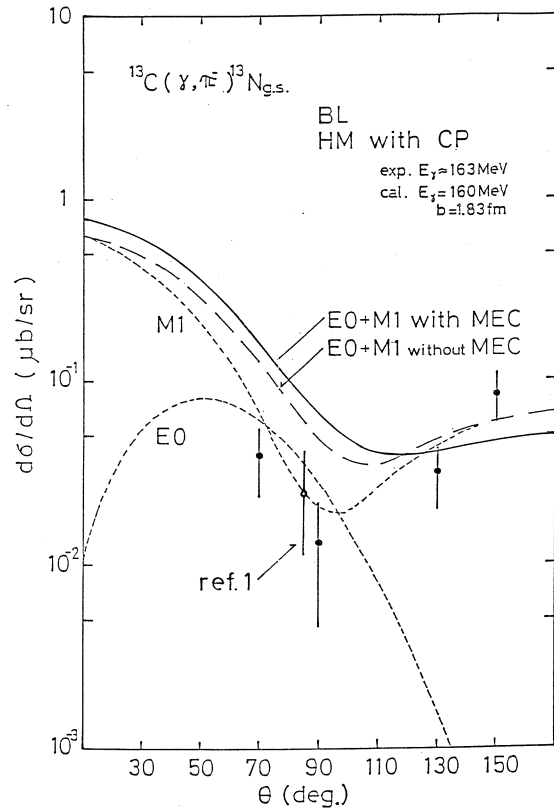


第7図 $^{13}\text{C}(e, \pi^-)^{13}\text{N}$ 反応における放出 π^- のエネルギースペクトル。矢印は、残留核 ^{13}N を $E_x = 0$ ($1/2^-$)、 2.4 ($1/2^+$)、 3.5 ($3/2^-$, $5/2^+$) MeV の準位に残す π^- 放出チャンネルの開く位置を示す。

いものと仮定し、これを無視して $0 \leq E_x \leq 3.5 \text{ MeV}$ の実験データを基にして上記の解析方法によって $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応微分断面積を求めた。また、第7図の実線はこうして得た微分断面積に光子スペクトルをかけて得られる π^- エネルギースペクトルの計算値を示している。

§ 4. 結果と考察

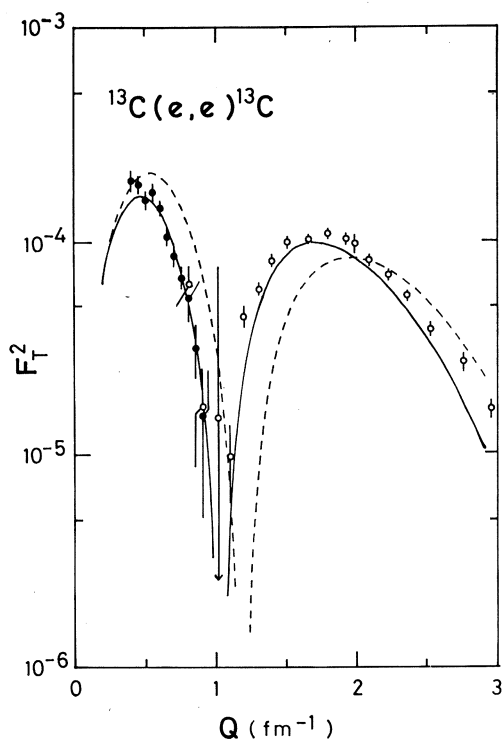
第8図に今回の実験で得られた $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応微分断面積の角分布を示す。誤差は統計誤差のみを考慮している。LeRoseらの実験値($T_\pi = 18\text{ MeV}, \theta = 90^\circ$)とは誤差の範囲内で一致している。理論計算はOhtsuboによるDWIA計算¹⁴⁾で、BL演算子(演算子の非局所性を考慮)・Hauge-Mari puuの波動関数・SMC光学ポテンシャルを用いており、原子核の芯偏極効果を $6\hbar\omega$ 励起まで取り入れている。芯偏極の残留相互作用のパラメータは ^{13}C 弾性電子散乱のM1形状因子のdip付近を再現する様に決定されている。また、調和振動子パラメータ b は、 ^{13}C の電荷分布から求めた $b = 1.65\text{ fm}$ の代わりに、M1形状因子の高運動量移行領域を再現する様に $b = 1.83\text{ fm}$ としている。このfitの様子を第9図に示す。



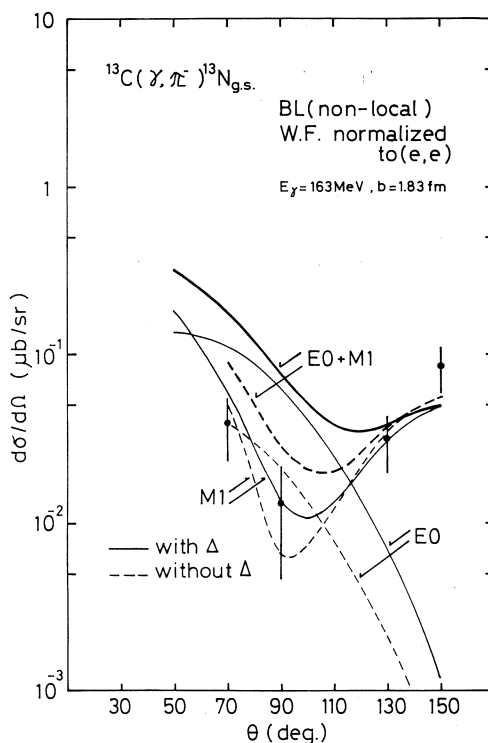
第8図 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応微分断面積の実験値と、Ohtsuboによる芯偏極効果を取り入れたDWIA計算値(文献14)との比較。白丸はLeRose et al.の実験値(文献1)。

芯偏極効果によって、 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応微分断面積の角分布は後方では1/3程度に小さくなるが、これにより実験値の再現は改善される。しかし前方では、実験値との不一致が見られる。実験値はM1のみの角分布と比較的よい一致を示すので、理論計算のE0遷移強度の抑制について検討することは有意義であろう。

次に、第10図にWrightによるDWIA計算¹⁵⁾との比較を示す(計算は文献10の定式化に基づいている)。BL演算子(演算子の非局所性を考慮)・SMC光学ポテンシャルを用いている。原子核の波動関数としては、核の磁気能率・ β 崩壊のfit値・電子散乱のM1形状因子等を再現する様に決定されたものを用いている。E0・M1の遷移強度はOhtsuboの計算値と少



第9図 ^{13}C 弾性電子散乱のM1形状因子。
 芯偏極・MEC効果を考慮したOhtsubo
 の計算値(文献14)と実験値(文献16,
 17)との比較。点線は調和振動子パラ
 メータ $b=1.65\text{fm}$ 、残留相互作用とし
 てM3Y型を選んだもの、実線は $b=1.83$
 fm としてfitしたもの。



第10図 $^{13}\text{C}(\gamma, \pi^-)^{13}\text{N}_{\text{g.s.}}$ 反応微分断面積の
 実験値と、WrightによるDWIA計算
 値(文献15)との比較。実線はfull B
 L演算子を用いた計算、点線は Δ -pole
 項を除きBorn項のみを用いた計算。

し異なるが、和については殆んど同じで、後方は実験値とよく合うがE0が主な前方では不一致が見られる。

この原因としては、原子核の波動関数の他に、 π 中間子光生成演算子中でE0遷移に寄与する nucleon- Δ -pole 項の評価が低エネルギー領域では正しくないことが考えられる。Wright は Δ -pole 項の寄与に着目して、この項を取り除いたDWIA計算も行なっている。これを第10図に点線で示してあるが、実験値をよりよく再現している。しかし、 Δ -pole 項をBL演算子から取り除くことの妥当性については理論家の間で一致した見解が得られておらず、今後の検討が望まれる。

我々は、更にE0の寄与を調べる目的で $\theta=50^\circ$ 、KR項と pion-pole 項との干渉による角度分の dip の深さを調べる目的で $\theta=110^\circ$ の測定を最近行なった。この実験結果は次回報告す

る。

DWIA 計算結果を送って下さった大阪大学の太坪久夫先生, Ohio 大学の L.E.Wright 先生に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) J. J. LeRose et al. : Phys. Rev. **C 25** (1982) 1702.
- 2) I. Blomqvist and J. M. Laget : Nucl. Phys. **A 280** (1977) 405.
- 3) C. F. Chew et al. : Phys. Rev. **106** (1957) 1345.
- 4) F. A. Berends et al. : Nucl. Phys. **B 4** (1967) 1.
- 5) K. Stricker et al. : Phys. Rev. **C 25** (1982) 952.
- 6) P. S. Hauge and S. Maripuu : Phys. Rev. **C 8** (1973) 1609.
- 7) 森本裕一 : 修士論文 大阪大学 (1983).
- 8) G. W. Reynaud and F. Tabakin : Phys. Rev. **C 23** (1981) 2652.
- 9) G. Toker and F. Tabakin : Phys. Rev. **C 28** (1983) 1725.
- 10) L. Tiator and L. E. Wright : Phys. Rev. **C 30** (1984) 989.
- 11) 大橋英雄他 : 核理研研究報告 **8** (1975) 58.
- 12) M. I. Adamovich et al. : Sov. J. Nucl. Phys. **7** (1968) 360.
- 13) L. Tiator and L. E. Wright : Nucl. Phys. **A 379** (1982) 407.
- 14) H. Ohtsubo : private communication.
- 15) L. E. Wright : private communication.
- 16) L. Lapikas et al. : Nucl. Phys. **A 253** (1975) 324.
- 17) R. Hicks et al. : Phys. Rev. **C 26** (1982) 339.

$^{14}\text{N}(e, \pi^+)^{14}\text{C}^*$ 低励起 2^+ 状態の研究

核理研, 教養部*, ソウル大**

遠山伸一・佐々木修・小林毅範
加賀谷聡・取越正己†・坪田博明*
庄田勝房・成百能**

§ 1. 序

今回我々は, $^{14}\text{N}(e, \pi^+)^{14}\text{C}^*$ 反応を用いて ^{14}C の低励起 2^+ 状態の実験的研究を行ったので報告する。

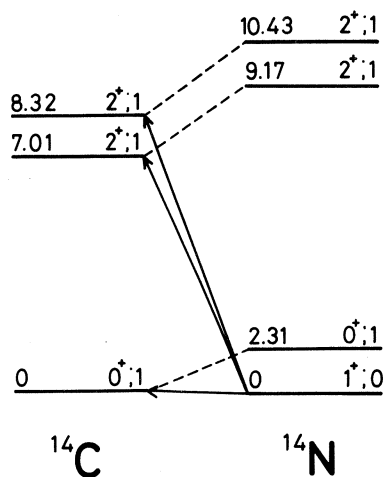
始状態を ^{14}N の基底状態とした際の今回の実験に關係する準位を第1図に示す。我々が行った実験は ^{14}N の基底状態から ^{14}C の基底状態以上約10 MeV までの励起状態へのスピン-アイソスピンモード転移である。今回の報告は ^{14}C の励起エネルギー 7.01, 8.32 MeV の2本の 2^+ 状態に關係する。

^{14}C の2本の 2^+ 状態とアナログの關係にある ^{14}N の 9.17, 10.43 MeV 状態は電子散乱により以前から調べられてきた¹⁻³⁾。これらの実験は運動量移行 0.3 fm^{-1} 以下での断面積を測定し M1 転移強度を研究したものである。

近年 (r, π^+) 反応の逆反応である $^{14}\text{N}(\pi^-, r)^{14}\text{C}^*$ の実験が行われた⁴⁾。それによれば ^{14}C の2本の低励起 2^+ 状態への強い転移強度が観測されており, 一方基底状態への転移は小さいと報告されている。

^{14}C 基底状態は β 崩壊において, 超許容遷移ながら寿命が長いという性質から, テンソル力の効果等を調べるのに興味深いものであるが^{5, 6)}, 最近行われた $^{14}\text{N}(r, \pi^+)^{14}\text{Cg.s.}$ の実験によると $E_r = 173 \text{ MeV}$ で $20 \mu\text{b/sr}$ 程度の小さい断面積である⁷⁾。

我々は従来から行ってきた p-殻核のスピン-アイソスピン 反転形転移の研究の1つとして 2^+ 残留状態への転移に關係する (r, π^+) 反応を調べた。



第1図 実験に關係する $\Delta T=1$ 準位。
矢印は (r, π^+) 転移を示す。

† 現在 Brookhaven' National Laboratory

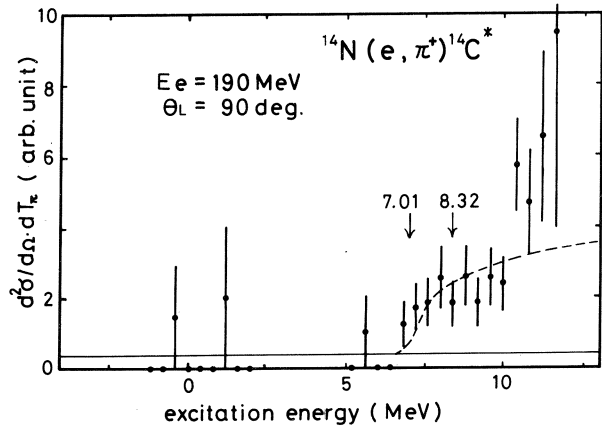
§ 2. 実験および実験結果

実験は東北大学核理研の電子ライナックから得られるパルス電子線を第2実験室散乱槽内に設置された ^{14}N 標的に照射し、発生した π^+ 中間子を測定することにより行われた。実験方法の詳細は他の文献に譲る⁸⁾。 ^{14}N 標的としては窒化ベリリウム(Be_3N_2)を用いた。

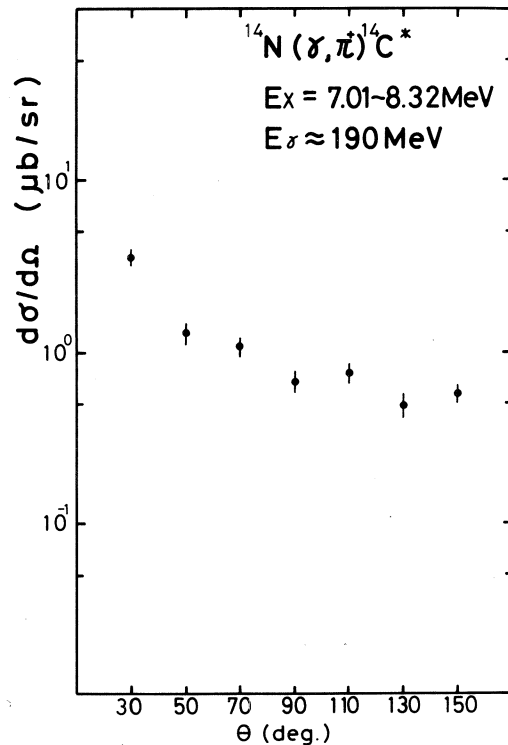
^9Be の (r, π^+) 反応のしきい値は ^{14}N の反応のしきい値よりも10 MeV以上高いため今回測定した

2^+ 状態に寄与しない。入射電子エネルギーは190 MeV, π^+ 中間子検出角は 32° , 50° , 70° , 90° , 110° , 130° , 150° である。実験から得られた π^+ 中間子エネルギースペクトルの1例を第2図に示す。横軸は ^{14}C の励起エネルギー, 縦軸は強度である。

(e, π^+) エネルギースペクトルから, (r, π^+) 反応微分断面積は各準位に対応する領域の π^+ 中間子の計数和をその領域の仮想光子数で割ることにより求められる。詳細は他の文献に譲る⁹⁾。第2図の破線の曲線は, こうして求められた (r, π^+) 反応微分断面積を仮想光子スペクトル¹⁰⁾にたたみこむことにより得られた π^+ 中間子エネルギースペクトルである。今回の解析では ^{14}C 基底状態からの寄与は小さいとして無視し, 7.01, 8.32



第2図 実験から得られる π^+ 中間子エネルギースペクトルの1例。この場合の π^+ 中間子検出角は 90° である。横軸は ^{14}C の励起エネルギー, 縦軸は強度である。破線は仮想光子理論を用いて導出された π^+ 中間子エネルギースペクトル。



第3図 エネルギースペクトルから得られた (r, π^+) 反応微分断面積。横軸は π^+ 中間子検出角。縦軸は断面積(単位は $\mu\text{b}/\text{sr}$)。

MeVの2本の 2^+ 状態の和を1つの準位と近似して行った。

エネルギースペクトルから得られた 2^+ 状態の (r, π^+) 反応微分断面積を第3図に示す。前方において強い転移強度が見られ、強いM1転移が在存することを示唆している。

§ 3. 考 察

3.1 DWIA 計算

DWIA (歪曲波インパルス近似)を用いて、 (r, π) 反応微分断面積は次のように記述される。

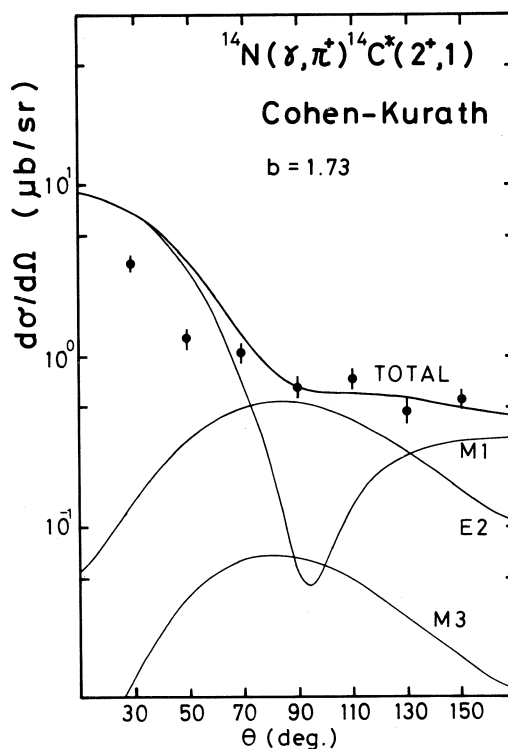
$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{(r, \pi)} = \frac{p}{k m_\pi^2} (ef)^2 \frac{1}{2J_i + 1} \sum_{M_i} \sum_{M_f} |m|^2$$

$$m = \langle J_f M_f | \phi_\pi^*(p) \sum_{n=1}^N t_n \exp(i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_n) \tau_n^\pm | J_i M_i \rangle$$

ここで p , k , m_π は π 中間子運動量, 光子運動量, π 中間子質量, $\phi_\pi^*(p)$ は発生中間子の終状態相互作用による歪曲波, t_n は (r, π) 素過程振幅, τ_n^\pm はアイソスピン昇降演算子である。 m は原子核波動関数によるマトリックスエレメントである。

^{14}C の 2^+ 状態のアナログ状態である ^{14}N の9.17, 10.43 MeV状態は以前からM1転移について研究されている¹¹⁻¹⁴⁾。それらによると ^{14}N の 2^+ 状態はp殻内2空孔状態の配位混合を用いた殻模型計算によれば $\sum B(M1; 10 \rightarrow I1)$ (I は核スピンの和)はおおよそ90%以上10MeV付近に存在する 2^+ 状態に集中している。この 2^+ 状態はCohen-Kurathの波動関数¹⁵⁾

では1本の準位であるが、実際には2本の 2^+ 状態強度にほぼ分配されることが $^{15}\text{N}(p, d)^{14}\text{N}^*$ の実験により観測され



第4図 Cohen-Kurath (8-16) 2BMEを用いて行ったDWIA計算結果。細い線は $1^+ \rightarrow 2^+$ M1, E2, M3遷移多重極度, TOTALは総和を表す。 $b=1.73$ は $^{14}\text{N}_{g.s.}$ の b パラメーターである。

ている¹⁶⁾。この原因として Warbuton らは、配位が 1p 殻内の混合ではなく $(1p)^{-4} (2s-1d)^2$ の配位混合が起きるためであると考えた¹²⁾。

我々は 2^+ 状態の波動関数として Cohen-Kurath の波動関数を用いて DWIA 計算を行った。調和振動子パラメーター b は通常は 180° 電子散乱より求められたものが用いられるが、 2^+ 状態での b パラメーターを決定する実験データがないため、 ^{14}N 基底状態の値 $b=1.73$ を用いた。計算結果を第 4 図に実験結果と併せて示す。

実験点は ^{14}C の 7.01, 8.32 MeV 状態の和であるから Cohen-Kurath の 2^+ 波動関数と比較することができると思われる。後方では計算値は実験値と良く一致するが、前方ではほぼ 2 倍実験値を過大評価する。即ち Cohen-Kurath 波動関数を用いると M1 転移強度は 2 倍程過大評価し、quenching の存在を示唆している。

我々の実験と同様にスピン-アイソスピンモードの転移強度を調べる実験として $^{14}\text{N}(\mu^-, r)^{14}\text{C}^*(E_x=7.01 \text{ MeV})$ の実験が行われている¹⁷⁾。それによると Cohen-Kurath 波動関数を用いた μ^- 捕獲率の計算値は 4 倍程度実験値を過大評価している。この食い違いは波動関数や π 中間子交換流のみでは説明がつかず、テンソル力によって起る芯偏極の効果とり入れることが重要であろうと述べられている。

$4n+2$ 核として考えた場合、 ^{14}N 以外では、 ^{10}B , ^6Li があるが両者とも (r, π^+) 反応を用いて M1 転移が実験的に研究されている^{9), 18)}。両者とも M1 転移強度が低励起状態に集中しており¹⁴⁾、Cohen-Kurath の波数関数を用いてはほぼ実験値と理論値は一致している。このことは ^6Li や ^{10}B に比べて ^{14}N の核構造が複雑であることを示していると思われる。

3.2 M1 転移強度

(r, π^+) 反応断面積は素過程振幅において我々の光子エネルギーで主要である Kroll-Ruderman 項だけを取れば、 $B(M1, q\uparrow)$ を用いて

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{(r, \pi^+)} = \frac{8\pi}{3} \frac{p}{k} \left(\frac{M}{m_\pi}\right)^2 \left(\frac{2}{\mu_p - \mu_n}\right)^2 B(M1, q\uparrow) \eta$$

と記述できる。ここで M は核子質量、 μ_p, μ_n は夫々陽子、中性子の異常磁気能率、 η は DWIA から PWIA へ移るための終状態相互作用補正因子である。 (r, π^+) 反応から求まる $B(M1; q\uparrow)$ を用いて、原子核の模型とは関係なく、

$$\sqrt{B(M1, q\uparrow)} = \sqrt{B(M1, 0\uparrow)} \left[1 - \frac{L+3}{L+1} \frac{q^2 \langle r^{2+L} \rangle}{2(2L+3)} + \frac{L+5}{L+1} \frac{q^4 \langle r^{4+L} \rangle}{8(2L+3)} \dots \right]$$

と展開することができる¹⁹⁾。ここで q は運動量移行、 $\langle r^2 \rangle$ は遷移半径である。 $B(M1, 0\uparrow)$

第1表 $B(M1; \omega \uparrow)$ ($\times 10^{-2} \text{ fm}^2$).

(r, π^+)		(e, e')		(r, r)	
$(E_x)^{a)}$	$B(M1)$	$(E_x)^{b)}$	$B(M1)$	$(E_x)^{b)}$	$B(M1)$
7.01	} 5.82 ± 0.48	9.17	1.59 ± 0.19	9.17	1.79 ± 0.31
8.32		10.43	1.69 ± 0.20		

a) ^{14}C における励起エネルギーb) ^{14}N における励起エネルギー

はほとんど $q = \omega$, 即ち photon point での値 $B(M1, \omega \uparrow)$ に等しい。

$^{14}\text{N}(r, \pi^+)^{14}\text{C}^*$ 反応の実験結果から M1 が顕著である $30^\circ \leq \theta \leq 50^\circ$ の範囲で $B(M1; q \uparrow)$ を求め、遷移半径としては電子散乱からの値²⁾を用いて決定された $B(M1; \omega \uparrow)$ の値を、電子散乱, (r, r) の実験と比較して第1表に示す。

$B(M1; \omega \uparrow)$ は, M1 転移の大きさを示すものであるから, (r, π^+) 反応は, (e, e') , (r, r) の実験に比べて約 1.8 倍程 M1 が強いことを示している。これについては今後の検討を必要とする。

参 考 文 献

- 1) P. K. Kossinyi - Demay *et al.*: Nucl. Phys. **A 81** (1966) 529.
- 2) H. -G. Clerc *et al.*: Z. Phys. **211** (1968) 425.
- 3) N. Ensslin *et al.*: Phys. Rev. **C 19** (1979) 569.
- 4) H. W. Baer *et al.*: Phys. Rev. **C 12** (1975) 961.
- 5) A. Figureau *et al.*: Nucl. Phys. **A 338** (1980) 514.
- 6) M. K. Singham *et al.*: Phys. Rev. **C 21** (1980) 1039.
- 7) K. Röhrich *et al.*: Phys. Lett. **153 B** (1985) 203.
- 8) 大橋英雄, 中原和夫, 庄田勝房: 核理研研究報告 **8** (1975) 256.
- 9) 佐々木 修: 修士論文 (1980) 東北大学.
- 10) L. Tiator *et al.*: Nucl. Phys. **A 379** (1982) 407.
- 11) H. J. Rose: Nucl. Phys. **19** (1960) 113.
- 12) E. K. Warburn *et al.*: Phys. Rev. **130** (1960) 733.

- 13) D. Kurath : Phys. Rev. **130** (1963) 1525.
- 14) L. W. Fagg : Rev. Mod. Phys. **47** (1975) 683.
- 15) H. Ohtsubo : private communication.
- 16) J. L. Snelgrove *et al.* : Phys. Rev. **187** (1969) 1259.
- 17) M. Giffon *et al.* : Phys. Rev. C **24** (1981) 241.
- 18) 山崎正晴 : 博士論文 (1980) 東北大学.
- 19) Überall : *Electron Scattering from Complex nuclei* (Academic Press ,
New York , 1971).

$^{24}\text{Mg}(e, \pi^+)^{24}\text{Na}$ 反応

ソール大, 核理研*, 教養部**

成百能・庄田勝房*・佐々木修*・遠山伸一*

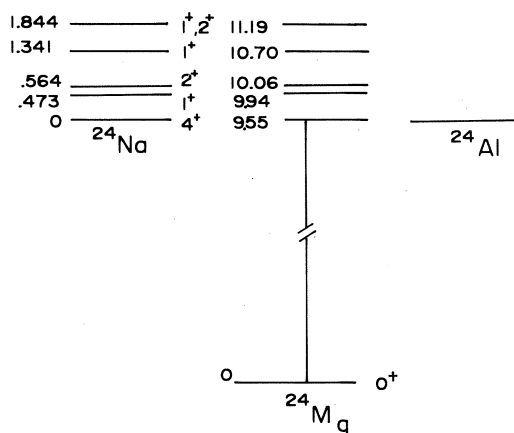
小林毅範*・加賀谷聡*・坪田博明**

§ 1. 序 論

閾値近傍での (r, π^+) 反応では, Kroll - Ruderman 項が主要項であることから, この反応を用いてスピン・アイソスピン反転型転移の研究が多く行われてきた。これらの研究では主として 1p 殻の核についての実験が行われ, 又残留核の励起エネルギーの比較的低い領域に限られていた。しかし最近 s-d 殻核である ^{28}Si についての実験が核理研のグループによって行われ, $B(M1)$ 等について議論がなされている¹⁾。Kurath²⁾ によると, 1p 殻核についての理論を拡張類推することから, s-d 殻の $A=4N$ 核では, M1 転移が比較的低い励起エネルギーのわずかの準位へ集中することが示されている。このことから比較的低い励起エネルギー状態に残す少数の準位への M1 転移強度を調べることによって, M1 転移総和則についての情報を得ることができる。

^{24}Mg は 4N 核ではあるが, $d_{5/2}$ 殻が完全に詰ってはいない。このような場合には Kurath の予想するような総和則が正しいかどうか, これを調べることは興味あることである。又スピン・アイソスピン反転型転移を調べるため, (e, e') , (r, r') , $(t, ^3\text{He})$ 反応^{3,4,5)} の実験が行われている。これらの実験結果と比較しながら, M1 転移以外の転移をみることも興味あることである。以上のことから, ^{24}Mg の (e, π^+) 反応の実験が計画された。尚 (e, e') 及び $(t, ^3\text{He})$ 反応の実験から求められたアナログ状態間の関係を第 1 図に示す。

現在実験は継続中であり, 初回の実験が 2 月に行われたばかりで, その測定結果は解析中である。従って今回の報告では, 2 月に行われた測定結果の定性的な



第 1 図 ^{24}Mg 及び ^{24}Na のアナログ状態間の関係 (文献 3 から引用)。

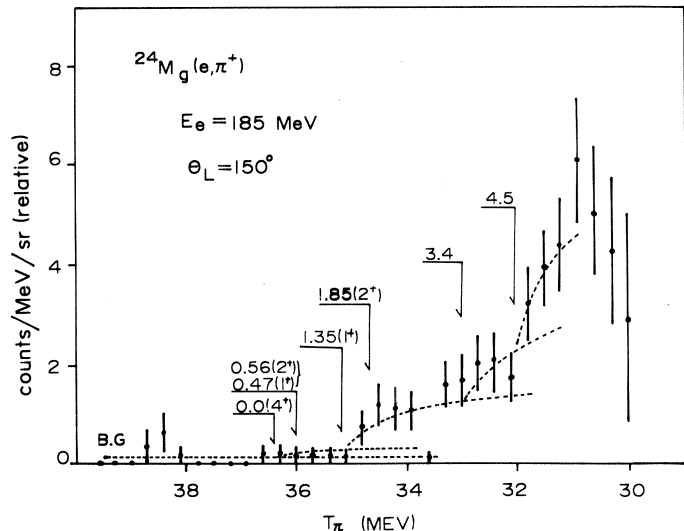
性質をのべるにとどめる。

§ 2. 実験及び測定結果

99.92%に濃縮された厚さ 154.2 mg/cm^2 の ^{24}Mg 金属板に 185 MeV の電子を直接照射した。 (e, π^+) 反応によって放出されるパイオンは磁気スペクトロメータで運動量分析され、焦点面に置かれた3層の半導体検出器で3重同時計数の方法で検出された。より詳細な測定方法は既に多く公表されているのでここでは省略する。検出角度は今回は $30^\circ, 90^\circ, 150^\circ$ (実験室系)で行った。得られたパイオンエネルギースペクトルを第2図～第4図に示す。図中の結果は単位モニターあたりの相対値であり、誤差は統計誤差のみを示している。又検出器の相対検出効率を考慮していない。但しパイオンの寿命の補正は施こしてある。

第2図は 150° の結果である。図中の B.G で示されたバックグラウンドはパイオンの存在しないと予想されるエネルギー領域での平均バックグラウンドを示す。図から分るように、 $90^\circ, 150^\circ$ の場合はバックグラウンドは無視できる程度に少ない。図中の矢印は、数値で示された ^{24}Na のエネルギー準位へ転移した場合の、パイオン運動エネルギー T_π (実験室系) の最大エネルギーの位置を示している (MeV 単位)。カッコ内はそれらの準位のスピンパリティである。これらのエネルギー準位の 1.85 MeV 以下のものは第1図に示されたものである。第2図で分るように、 $T_\pi = 35 \sim 40 \text{ MeV}$ 領域ではパイオン計数が極めて少ない。このことは ^{24}Na の基底状態 (4^+) 及び $0.47(1^+)$,

$0.56(2^+)$ MeV 準位への転移が極めて小さいことを示している。これらの準位に対応する ^{24}Mg のアナログ状態は $9.55, 9.94, 10.06 \text{ MeV}$ であり(第1図参照), (e, e') 反応でその相対的強度が測定されている。 $E_e = 56 \text{ MeV}$ の 180° 電子散乱の実験結果³⁾ は基底状態に対応する 9.55 MeV 転移が極めて小さいことを示し

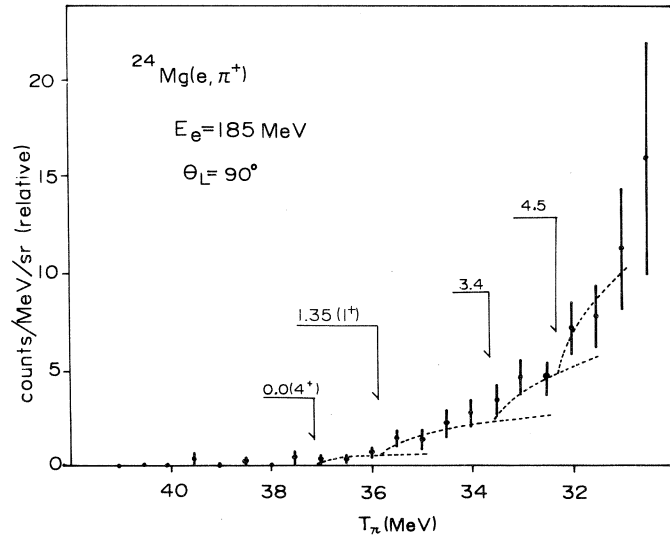


第2図 $^{24}\text{Mg}(e, \pi^+)^{24}\text{Na}$ パイオンエネルギースペクトル。
 $E_e = 185 \text{ MeV}$, $\theta_L = 150^\circ$ (詳しくは本文参照)。

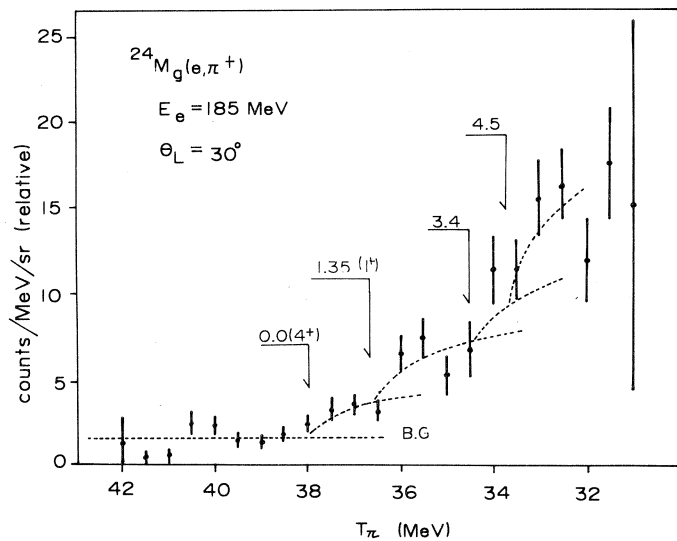
ている。一方 ($t, {}^3\text{He}$) 反応⁵⁾によると基底状態への転移強度はかなり大きい ($E_t=24$ MeV)。これは ${}^{24}\text{Na}$ の基底状態は 4^+ であり、運動量移行量に関係していることを示している。我々の (τ, π^+) の場合は運動量移行量が小さく (30° で約 0.5 fm^{-1} , 150° で約 1.4 fm^{-1})、 ${}^{24}\text{Na}$ の基底状態への転移は小さいと

考えられる。 ${}^{24}\text{Na}$ の 0.47 (1^+)、 0.56 (2^+) への転移については、 180° 電子散乱の $E_e=39$ 及び 56 MeV の結果はそのアナログ状態 9.94 (1^+) への転移強度は 10.06 (2^+) への転移に比して圧倒的に大きいことを示している。一方 ($t, {}^3\text{He}$) 反応の結果は 0.56 MeV 準位への転移強度は 0.47 MeV 準位へのものの 2 倍である。

従ってこれらの転移の様子も運動量移行量に依存すると考えることもできる。しかし、今回の我々の実験結果では、 ${}^{24}\text{Na}$ の 0.47 , 0.56 MeV 準位への転移が共に少ないことを示しており、上記の (e, e') 及び ($t, {}^3\text{He}$) 反応と異なる様子を示し、運動量移行量のみには依存すると考えることは困難である。 (e, π^+) 反応とこれらの反応との本質的な差異が存在するのかも知れな



第3図 ${}^{24}\text{Mg}(e, \pi^+){}^{24}\text{Na}$ パイオンエネルギースペクトル。
 $E_e=185$ MeV, $\theta_L=90^\circ$ (詳しくは本文参照)。



第4図 ${}^{24}\text{Mg}(e, \pi^+){}^{24}\text{Na}$ パイオンエネルギースペクトル。
 $E_e=185$ MeV, $\theta_L=30^\circ$ (詳しくは本文参照)。

い。

第1図に示されているように、 ^{24}Na の1.35, 1.85 MeVに 1^+ 及び 2^+ 準位が知られている。1.35 MeV状態は (e, e') 及び $(t, ^3\text{He})$ 反応で共に強い転移であることが示されている。今回の (e, π^+) 反応でも(150°の結果で) $T_\pi \approx 35$ MeV付近に急激な立ち上りがみられる。30°, 90°の結果にもこれに対応する立ち上りが認められる。詳しい角度依存性は解析中であるが、M1転移であることが予想される。

150°の結果で、 $T_\pi = 32$ MeV及び33 MeV近傍で急な立ち上りが認められる。同様のことが30°, 90°の結果も示している。 ^{24}Na の励起エネルギー3.4 MeV及び4.5 MeVへの転移を予想した場合の、予想エネルギースペクトルを図中に示してある(仮想光子スペクトルの相対値を示してある)。30°の結果は形がきれいではないが、更にデータを整理した上で検討する必要がある。現在のところ、 ^{24}Na の励起エネルギー1.8 MeV以上の領域でのスピン・アイソスピン型準位はよく分っていない。従って今回の (e, π^+) 反応のデータからこれらの準位への転移について議論するためには、更に実験データを整理解析し、又データを蓄積する必要がある。しかしながら、今回の実験から ^{24}Na の3.4 MeV以上の領域に強いスピン・アイソスピン反転型転移が認められたことを強調したい。

参 考 文 献

- 1) M. Torikoshi *et al.*: to be published in Nucl. Phys.
- 2) D. Kurath: Phys. Rev. **130** (1963) 1525.
- 3) L. Fagg *et al.*: Phys. Rev. C **1** (1970) 1137.
- 4) U. Berg *et al.*: Phys. Rev. C **11** (1975) 1851.
- 5) R. Peterson *et al.*: Phys. Rev. C **14** (1976) 868.

^{63}Cu , ^{65}Cu , ^{59}Co の (r, p_0) , (r, p_1) 反応

核理研, 教養部*, 情教センター**, 理学部物理***

日野 威[†], 田中 陽, 川原英明, 菅原真澄,
玉江忠明, 宮瀬晴久*, 坪田博明*, 川添良幸**,
塚本龍男***

§ 1. 序

中重核における巨大共鳴領域の (r, p_0) 反応は, これまでの研究により統計モデル・直接過程では説明できず, direct-semidirect (DSD)^{1,2)} モデルにより比較的良く説明できることが分かってきている。しかしながら, (r, p_1) , (r, p_2) 等の (r, p_0) 以外の (r, p_i) 反応については, あまり研究が行なわれてこなかった。これは連続 r 線を用いた実験が多かったために, (r, p_1) 反応の寄与を (r, p_0) 反応の寄与から分離するためには, ひじょうに統計の良いデータが必要だったためである。また, 残留核の状態が四重極表面振動・回転等の集団的な状態となる (r, p_i) 反応については, 理論的にも詳しい研究は行なわれてこなかった。

一方, 巨大共鳴に四重極表面振動・回転等の低励起集団運動が結合した効果を考慮した巨大共鳴のモデルに dynamic collective model (DCM)³⁻⁵⁾ がある。DCM では巨大共鳴と回転運動・四重極表面振動等の低励起集団運動の結合を考慮しているために巨大共鳴の構造を説明したり, 巨大共鳴から低励起集団準位への r 線転移確率を計算したりすることができる⁶⁾。このことから, 巨大共鳴と低励起集団運動との結合を考えることにより, 残留核の状態が集団的な状態となる (r, p_i) 反応についても説明ができるのではないかと予想することができる。

本実験は振動領域の原子核 ^{63}Cu , ^{65}Cu , ^{59}Co を標的に選び, 測定角度 90° における (r, p_0) , (r, p_1) 反応微分断面積を測定した。得られた断面積は, 四重極表面振動と結合した E1 巨大共鳴が陽子と相互作用することにより陽子が放出され (r, p) 反応が引き起こされるとい立場から議論した。

§ 2. 実験

実験は東北大学理学部原子核理学研究施設 300MeV 電子線型加速器から得られた電子線を直接標的に照射し, 反応により放出された陽子を広帯域磁気スペクトロメーターで運動量分析し,

[†] 現在, 東北リコー, 宮城県柴田郡柴田町

測定角度 90° における (e, p) 反応陽子エネルギースペクトルを測定した。実験には第 1 表に示した標的を用い、電子ビームに対して 30° の角度をなすように設置した。

第 1 表 実験に用いた標的。

標 的	厚さ (mg/cm ²)	同位体純度
⁶³ Cu	10.09	> 98 %
⁶⁵ Cu	9.58	> 98 %
⁵⁹ Co	9.66	nat 100 %

(e, p) 反応陽子エネルギースペクトルにおいて (e, p₁) 反応の成分は (e, p₀) 反応の成分の内に埋まっている。このため、まず、(e, p) 反応陽子エネルギースペクトルの先端部分より仮想光子理論を用いて (r, p₀) 反応微分断面積を導出する。この (r, p₀) 反応微分断面積を用いて、(e, p) 反応陽子エネルギースペクトルから (e, p₁) 反応の寄与を差し引いた後に仮想光子理論を用いて (r, p₁) 反応微分断面積を導出した。この解析方法に使用したデータは、電子線のエネルギーを 13~28 MeV まで 0.5 MeV ステップで変化させて測定した。

また、この解析方法により求めた (r, p₀), (r, p₁) 反応断面積を確認するために、⁶³Cu については、電子線エネルギーの異なる (e, p) 反応陽子エネルギースペクトルの間で差し引きを行う解析も行なった。この解析に用いたデータは、入射電子エネルギー 14.5, 15.5, 16.5, 17.5, 18.5, 19.5, 20.5, 21.5 MeV の電子線を ⁶³Cu に照射し、その際に放出される 3.5 ~ 15.3 MeV の陽子を測定することにより得た。

解析方法の詳細な説明は次節において述べる。

§ 3. 解 析

3.1 (r, p₀), (r, p₁) 反応微分断面積

(e, p) 反応陽子エネルギースペクトル $dY(E_e, E_p)/d\Omega dE_p$ は次の様を書くことができる。

$$\frac{dY}{d\Omega dE_p}(E_e, E_p) = \sum_{i=0} \frac{d\sigma_{pi}(E_i)}{d\Omega} \phi(E_e, E_i) \left(\frac{dE_i}{dE_p} \right) \quad (1)$$

ここで、

E_i ; 標的核の励起エネルギー

E'_i ; 仮想光子のエネルギー

E_e ; 電子線の運動エネルギー

E_p ; 陽子の運動エネルギー

$\sigma_{pi}(E_i)$; 残留核を第 i 励起状態に残す陽子放出断面積

$\phi(E_e, E_i)$; 仮想光子スペクトル (E_e を最大エネルギーとする連続スペクトル)

である。和は開いている励起状態のチャンネル全てについて行なう。

電子線を標的に照射した時に、残留核を第 i 励起状態に残すような反応において放出される陽子の最大エネルギー $E_{p_i}^{\max}$ には、 $E_{p_0}^{\max} > E_{p_1}^{\max} > \dots$ なる関係がある。この関係を第 1 図に模式的に示した。したがって、陽子エネルギースペクトルの $E_{p_0}^{\max} \geq E_p > E_{p_1}^{\max}$ なる領域では、基底状態と第 1 励起状態に残す陽子がエネルギースペクトルに寄与している。すなわち、

$E_{p_0}^{\max} \geq E_p > E_{p_1}^{\max}$ のところでは (第 1 図, 領域 I)

$$\frac{dY}{dE dE_p}(E_e, E_p) = \frac{d\sigma_{p_0}(E_0)}{d\Omega} \Phi(E_e, E_0) \frac{dE_0}{dE_p} \quad (2)$$

$E_{p_1}^{\max} \geq E_p > E_{p_2}^{\max}$ のところでは (第 1 図, 領域 II)

$$\frac{dY}{d\Omega dE_p}(E_e, E_p) = \frac{d\sigma_{p_0}(E_0)}{d\Omega} \cdot \Phi(E_e, E_0) \cdot \frac{dE_0}{dE_p} + \frac{d\sigma_{p_1}(E_1)}{d\Omega} \cdot \Phi(E_e, E_1) \cdot \frac{dE_1}{dE_p} \quad (3)$$

と書くことができる。

第 2 式より、 (r, p_0) 反応微分断面積は、

$$\frac{d\sigma_{p_0}(E_0)}{d\Omega} = \frac{1}{\Phi(E_e, E_0)} \cdot \frac{dY(E_e, E_p)}{d\Omega dE_p} \cdot \frac{dE_p}{dE_0} \quad (4)$$

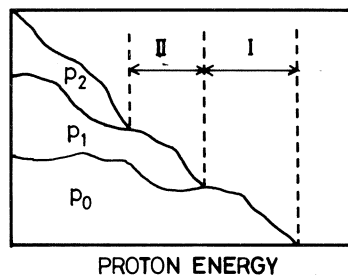
と書くことができ、実験で得られた (e, p) 反応陽子エネルギースペクトル $dY(E_e, E_p)/d\Omega dE_p$ から導出することができる。

さらに、 (r, p_1) 反応微分断面積は、第 3 式より

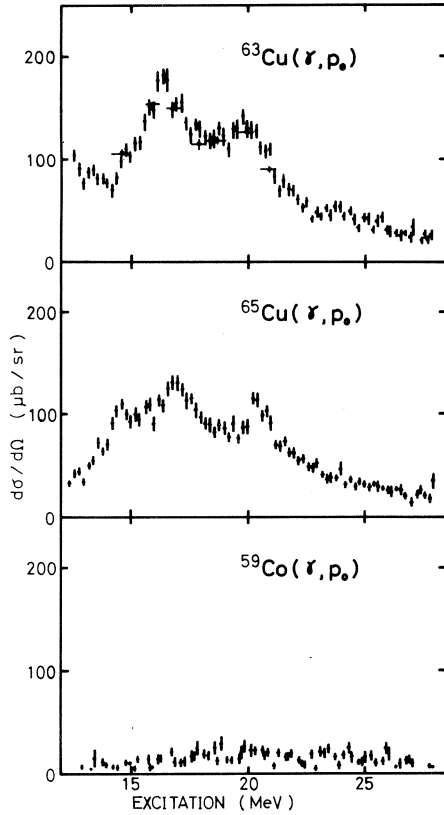
$$\frac{d\sigma_{p_1}(E_1)}{d\Omega} = \frac{1}{\Phi(E_e, E_1) dE_1} \left\{ \frac{dY}{d\Omega dE_p}(E_e, E_p) - \frac{d\sigma_{p_0}(E_{p_0})}{d\Omega} \Phi(E_e, E_0) \frac{dE_0}{dE_p} \right\} \quad (5)$$

となり、実験から得られた (e, p) 反応陽子エネルギースペクトル $dY(E_e, E_p)/d\Omega dE_p$ と第 5 式で求めた $d\sigma_{p_0}(E_0)/d\Omega$ から導出することができる。

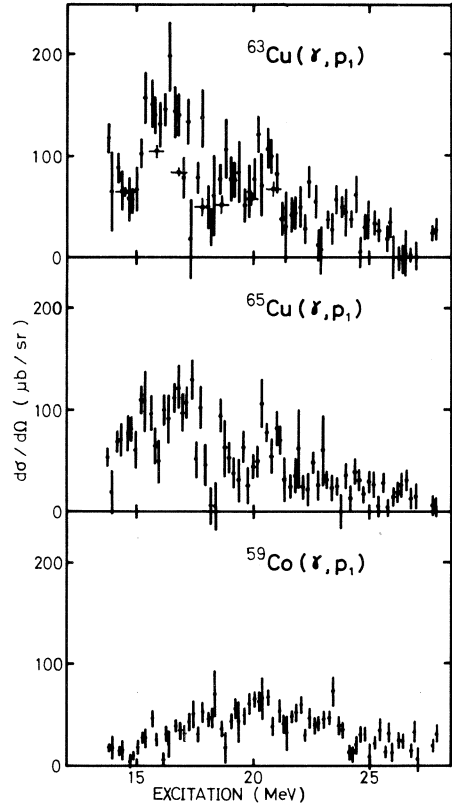
こうして得られた (r, p_0) 反応微分断面積を第 2 図の黒丸、 (r, p_1) 反応微分断面積を第 3 図の黒丸にて示す。



第 1 図 (e, p) 反応陽子エネルギースペクトルの模式図。



第2図 測定角度 90° における (γ, p_0) 反応微分断面積。黒丸は3.1で述べた方法により得られたもの、十字は3.2で述べた方法により得られたものを示す。



第3図 測定角度 90° における (γ, p_1) 反応微分断面積。黒丸は3.1で述べた方法により得られたもの、十字は3.2で述べた方法により得られたものを示す。

3.2. (e, p) 反応陽子エネルギースペクトル差し引き法による解析

(e, p) 反応陽子エネルギースペクトル $dY/d\Omega dE_p$ と単色光子による (γ, p) 反応陽子エネルギースペクトル $d\sigma/dE d\Omega dE_p$ の間には次の関係がある。

$$\frac{dY(E_e)}{d\Omega dE_p} = \int \frac{d\sigma(E)}{dE d\Omega dE_p} \phi(E_e, E) dE \quad (6)$$

ここで、

- ϕ ; 仮想光子スペクトル
- E_e ; 電子の運動エネルギー
- E ; 仮想光子のエネルギー

である。

電子の運動エネルギーの異なった電子線によって得られる (e, p) 反応陽子エネルギースペクトルの間で次の様な演算を行う。

$$\begin{aligned} & \left(\frac{dY(E_{e1})}{d\Omega dE_p} \right) + a_2 \left(\frac{dY(E_{e2})}{d\Omega dE_p} \right) + a_3 \left(\frac{dY(E_{e3})}{d\Omega dE_p} \right) + a_4 \left(\frac{dY(E_{e4})}{d\Omega dE_p} \right) \\ &= \int \frac{d\sigma(E)}{dEd\Omega dE_p} \left\{ \Phi(E_{e1}, E) + a_2 \Phi(E_{e2}, E) + a_3 \Phi(E_{e3}, E) + a_4 \Phi(E_{e4}, E) \right\} dE \\ &= \frac{dY'}{d\Omega dE_p} \end{aligned} \quad (7)$$

この式を見ると分かる様に、この演算によって得られた陽子エネルギースペクトル $dY'/d\Omega dE_p$ は、 $\{\Phi(E_{e1}, E) + a_2 \Phi(E_{e2}, E) + a_3 \Phi(E_{e3}, E) + a_4 \Phi(E_{e4}, E)\}$ なる仮想光子によって得られたエネルギースペクトルと考えることができる。

ここで、

$$\begin{aligned} E_{e1} &= 21.5 \text{ MeV} \\ E_{e2} &= 20.5 \text{ MeV} & a_2 &= -1.465 \\ E_{e3} &= 19.5 \text{ MeV} & a_3 &= 0.408 \\ E_{e4} &= 16.5 \text{ MeV} & a_4 &= 0.038 \end{aligned} \quad (8)$$

なる値をとってみると、仮想光子 $\{\Phi(E_{e1},$

$E) + a_2 \Phi(E_{e2}, E) + a_3 \Phi(E_{e3}, E) + a_4 \Phi(E_{e4}, E)\}$ の形は第4図の様になる。

したがって、このような演算により、(e, p) 反応陽子エネルギースペクトルから、単色光子に近い仮想光子による (r, p) 反応陽子エネルギースペクトルを得ることができる。

仮想光子数で規格化するため、(e, p) 反応陽子エネルギースペクトル差し引き法による陽子エネルギースペクトルを次の様に定める。

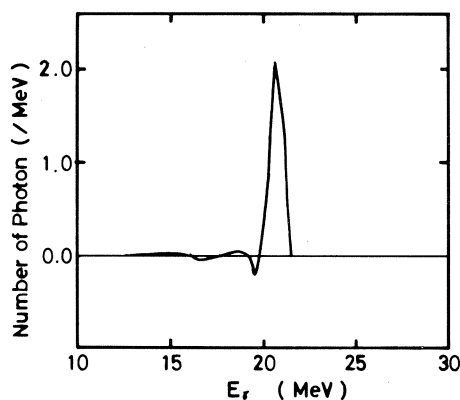
$$\frac{d\sigma'}{d\Omega dE_p} = \frac{1}{NP} \cdot \frac{dY'}{d\Omega dE_p} \quad (9)$$

ここで、

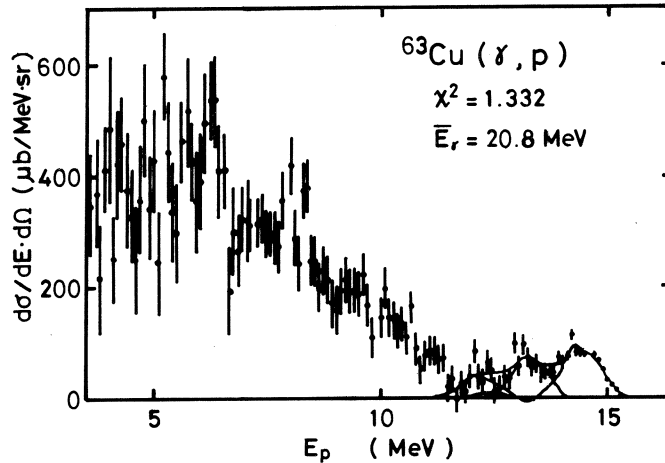
NP ; 仮想光子の光子数

$$NP = \int \{\Phi(E_{e1}, E) + a_2 \Phi(E_{e2}, E) + a_3 \Phi(E_{e3}, E) + a_4 \Phi(E_{e4}, E)\} dE \quad (10)$$

である。



第4図 第7式により得られる仮想光子スペクトル。



第5図 第8式のパラメーターを用いて、第9式により得られた $^{63}\text{Cu}(\gamma, p)$ 反応エネルギースペクトル。曲線は、陽子エネルギースペクトルに第11式の仮想光子スペクトルをフィットしている様子を表している。

例として、パラメーターを第8式の様にとった時に第9式により得られる ^{63}Cu の陽子エネルギースペクトルを第5図に示す。

(r, p_0) , (r, p_1) 反応微分断面積は第9式により得られた陽子エネルギースペクトルに光子数を1に規格化した準単色仮想光子スペクトル

$$\frac{1}{NP} \{ \Phi(E_{e1}, E) + a_2 \Phi(E_{e2}, E) + a_3 \Phi(E_{e3}, E) + a_4 \Phi(E_{e4}, E) \} \quad (11)$$

を χ^2 フィットし、 (r, p_0) 反応、 (r, p_1) 反応の強度を求めることにより得られる。

第11式による準単色仮想光子を第9式により得られた陽子エネルギースペクトルに χ^2 フィットした様子を第5図の実線にて示す。

この方法により得られた ^{63}Cu の (r, p_0) 及び (r, p_1) 反応微分断面積をそれぞれ第2図、第3図の十字にて示す。図より分かる様に、3.1において述べた解析方法により得られた結果と比較的良好に一致していることが分かる。

3.1, 3.2で述べた解析に用いた仮想光子は、いずれも、DWBAの計算結果に対する近似式であるNascimento⁷⁾等による近似式を用いた。

§ 4. 結果及び考察

第2図、第3図を見て分かるように ^{63}Cu , ^{65}Cu では (r, p_0) 反応微分断面積と (r, p_1) 反

応微分断面積はほぼ同じ形状をしており、その大きさもほぼ等しい。一方、 ^{59}Co では、 (r, p_0) 反応微分断面積は (r, p_1) 反応微分断面積に比べ大きな値となっている。また、 ^{63}Cu 、 ^{65}Cu では、17 MeV 付近にあるピークと 20 MeV 付近にある 2 つのピークが見られる。

^{63}Cu 、 ^{65}Cu については、田中⁸⁾により (r, p) 、 (r, α) 反応断面積が測定されており、Fultz⁹⁾等によって測定された (r, n) 反応断面積と合わせて、アイソスピンを考慮した統計モデルによる議論がなされている。田中により議論された $T_{>}$ 巨大共鳴・ $T_{<}$ 巨大共鳴のピークの位置と今回測定された断面積のピークの位置はほぼ一致していることから、今回測定された断面積の 17 MeV 付近のピークは $T_{<}$ 巨大共鳴に、20 MeV 付近のピークは $T_{>}$ 巨大共鳴に対応しているものと考えられる。

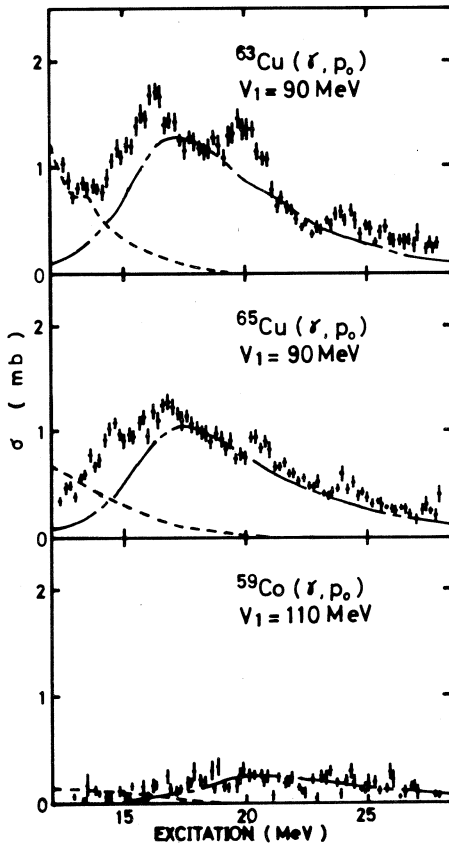
^{63}Cu 、 ^{65}Cu の測定角度 90° における (r, p_0) 反応微分断面積は、以前、田中⁸⁾にも測定されている。今回測定された ^{63}Cu (r, p_0) 反応微分断面積の励起エネルギー 20 MeV 付近には、ピークが表われているが、田中による結果には表われていない。しかし、この点を除くと、今回の測定結果と田中による測定結果は絶対値・形状共に良く一致している。

また、 ^{63}Cu 、 ^{65}Cu の (e, p_0) 反応角度分布は宮瀬¹⁰⁾等により測定されており、角度分布から E 1 成分・E 2 成分を分離した後に (r, p_0) 反応断面積に変換している。宮瀬等による結果と今回の測定結果を比較すると、両者の断面積の形状は比較的良く一致している。しかしながら、その大きさに関しては、今回の測定結果の方が、宮瀬等による測定結果よりも大きい。この食い違いの原因は良く分からないが、解析方法の違いからくる誤差があるのではないかと考えられる。

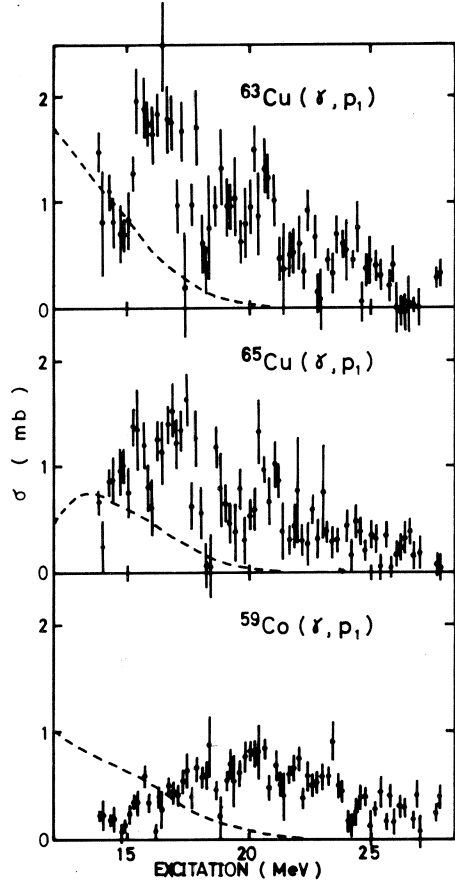
これからの議論のために測定角度 90° における反応微分断面積を放出陽子の全立体角について積分した断面積に変換する。 ^{63}Cu (r, p_0) 反応、 ^{65}Cu (r, p_0) 反応については、以前核理研において宮瀬¹¹⁾等によって測定された ^{63}Cu 、 ^{65}Cu (e, p_0) 反応角度分布のデータを用いて、放出陽子の角度について積分した断面積に変換した。その他の反応については測定角度 90° における反応微分断面積を 4π 倍して全断面積とした。こうして得られた (r, p_0) 反応断面積を第 6 図に、 (r, p_1) 反応断面積を第 7 図に示す。

励起エネルギーの測定範囲について断面積を積分した値と TRK E 1 総和則 60 NZ/A に占める割合を第 2 表に示す。

第 6 図・第 7 図における破線は統計モデルによる計算値である。図から分かるように統計モデルでは実験結果を再現することはできない。また、第 6 図における一点鎖線は DSD モデルの計算結果である。第 6 図から分かるように DSD モデルは (r, p_0) 反応断面積の大体の傾向



第6図 (r, p_0) 反応断面積の実験値と統計モデル・DSDモデルによる計算値。破線は統計モデル、一点鎖線はDSDモデル。



第7図 (r, p_1) 反応断面積の実験値と統計モデルによる計算値。

第2表 (r, p_0) 反応断面積, (r, p_1) 反応断面積との TRK E 1 総和則。

		範 囲 (MeV)	$\int \sigma dE$ (mb·MeV) 実 験 値	TRK sum rule		
				$60NZ/A$ (mb·MeV)	(%)	(%)
^{63}Cu	(r, p_0)	12.4 ~ 28.0	13.3 ± 0.1	939	1.42 ± 0.01	2.63 ± 0.04
	(r, p_1)	13.7 ~ 28.0	11.4 ± 0.4		1.21 ± 0.04	
^{65}Cu	(r, p_0)	12.3 ~ 28.1	10.7 ± 0.1	964	1.11 ± 0.01	2.01 ± 0.03
	(r, p_1)	13.7 ~ 28.0	8.7 ± 0.3		0.90 ± 0.03	
^{59}Co	(r, p_0)	12.8 ~ 28.1	2.5 ± 1.0	879	0.28 ± 0.11	0.99 ± 0.11
	(r, p_1)	13.8 ~ 28.1	6.2 ± 0.2		0.71 ± 0.02	

を再現できる。

序で述べた様に (r, p_1) 反応を正確に取り扱った理論はないので、巨大共鳴は低励起集団運動と結合しており、陽子と巨大共鳴が相互作用をして粒子振動結合を起こしているため、巨大共鳴が崩壊して陽子を放出するというモデルを考える。巨大共鳴と低励起集団運動との結合はDCMにより考慮する。DCMでは巨大共鳴は次の様に記述することができる。

$$\Psi = a_0 |1^- \rangle + a_1 |1^- \rangle \otimes |2^+ \rangle + \dots \quad (12)$$

この式の第1項は純粋なE1巨大共鳴振動子による成分であり、第2項はE1巨大共鳴振動子に四重極振動子の1振動子状態 $|2^+ \rangle$ が結合している成分である。E1巨大共鳴振動子 $|1^- \rangle$ が消滅して巨大共鳴が崩壊する際に第1項からは基底状態に遷移し、第2項からは第一励起状態に遷移すると考え、この時粒子振動結合により一番外側にある陽子が放出されると考える。複合核等により複雑な状態に遷移する割合は第1項も第2項も同じであると仮定すると (r, p_0) , (r, p_1) 反応断面積は

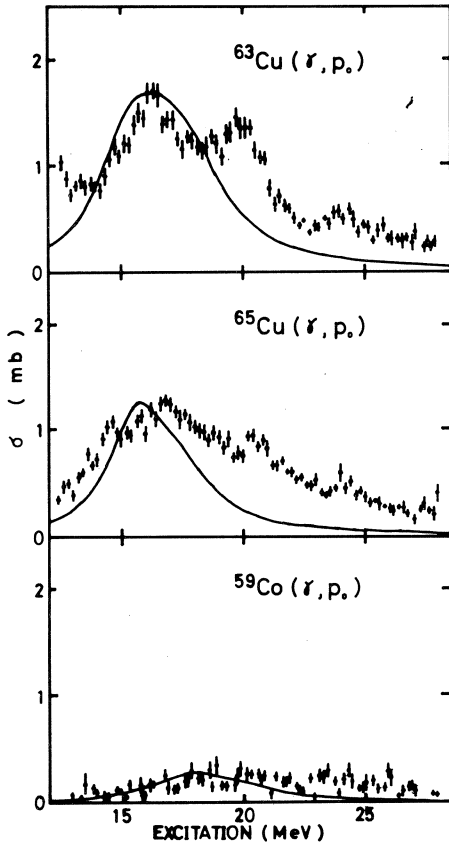
$$\begin{aligned} \sigma(r, p_0) &\propto a_0^4 \\ \sigma(r, p_1) &\propto a_0^2 a_1^2 \end{aligned} \quad (13)$$

となる。上に述べた仮定は低励起集団運動と結合した巨大共鳴からの semidirect による崩壊を考慮したことになるので、DCMの計算により得られた a_0 , a_1 を実験により得られた (r, p_0) 反応断面積に規格化して (r, p_0) , (r, p_1) 反応断面積と比較する。実際には、ローレンツ型の幅を持たせ、

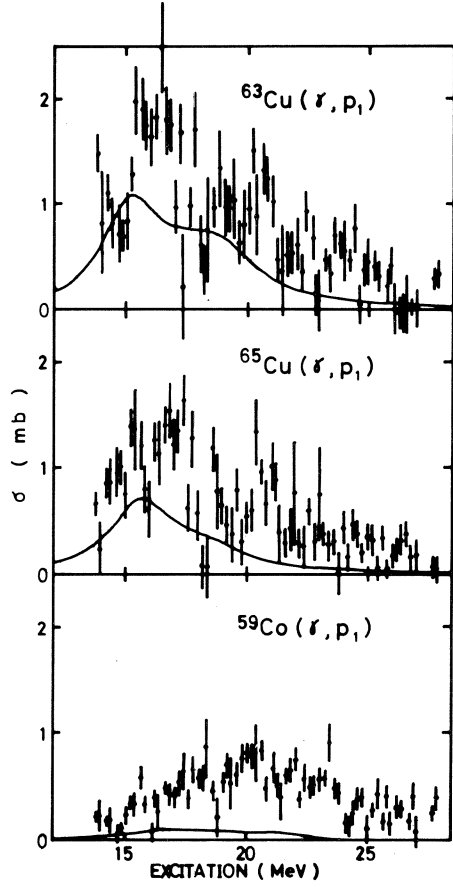
$$\begin{aligned} \sigma(r, p_0) &= C \sum_K \frac{a_{0K}^4 E_K E}{(E_K^2 - E^2)^2 + E^2 \Gamma_K^2} \\ \sigma(r, p_1) &= C \sum_K \frac{a_{0K}^2 a_{1K}^2 E_K E^2}{(E_K^2 - E^2)^2 + E^2 \Gamma_K^2} \end{aligned} \quad (14)$$

(r, p_0) 反応断面積の実験値に規格化することにより定数Cを定め、 (r, p_0) , (r, p_1) 反応断面積と比較する。この様子を第8図、第9図の実線に示す。第14式において、Kは巨大共鳴が低励起集団運動と結合していることにより分離した巨大共鳴の各状態を表している。第8図、第9図よりCuの場合は比較的良く傾向を説明しているように見える。しかし、 ^{59}Co の場合は説明できていない。

奇核の波動関数を陽子1個の波動関数と偶偶核の波動関数の積により考える。例えば、Cuの場合は、陽子1個の波動関数とNiの低励起状態の波動関数の積に展開する。 ^{59}Co についても同様である。



第8図 (r, p_0) 反応断面積の実験値とDCMにより得られた強度 $\sum_K \frac{a_{0K}^4 E_K E^2}{(E_K^2 - E^2)^2 + E^2 \Gamma_K^2}$ ここで $\Gamma_K = 3.0 \text{ MeV}$ として、大きさは実験値に規格化した。



第9図 (r, p_1) 反応断面積の実験値とDCMにより得られた強度 $\sum_K \frac{a_{0K}^2 a_{1K}^2 E_K E^2}{(E_K^2 - E^2)^2 + E^2 \Gamma_K^2}$ ここで $\Gamma_K = 3.0 \text{ MeV}$ として、大きさは (r, p_0) 反応断面積を規格化した際に得られた規格化定数を用いた。

$$|\text{proton} \rangle \otimes |\text{ground} ; 0^+ \rangle + |\text{proton} \rangle \otimes |\text{first} ; 2^+ \rangle + \dots \quad (15)$$

今回行なった計算は、巨大共鳴をDCMによる偶偶核 0^+ の巨大共鳴を考えているので、第15式の第1項目の寄与しか考慮していない。したがって、標的核の基底状態の波動関数において第15式の第2項以降の寄与が大きければ、今回行なった計算と実験結果との一致は悪くなるであろうと考えられる。標的核の基底状態の波動関数の様子を (n, d) 反応^{12,13)}、 $(d, {}^3\text{He})$ 反応^{14,15)} 等のピックアップ反応で見ると、実際に、Cu の場合には第15式の第1項の寄与が大きく、⁵⁹Co の場合には第2項以降の寄与が大きいことが分かる。これはCu の場合にはNi 関殻の外側に $2p_{3/2}$ 軌道の陽子が1個あるだけであるのに対し、⁵⁹Co の場合には一番外側の $1f_{7/2}$ 軌道

に陽子が7個あり関殻となっていないことと関係していると考えられる。

§ 5. 結 論

振動領域の原子核 ^{63}Cu , ^{65}Cu , ^{59}Co の測定角度 90° における (r, p_0) , (r, p_1) 反応微分断面積を測定した。

振動領域の原子核の (r, p_0) , (r, p_1) 反応に対して、低励起集団運動と結合している巨大共鳴が陽子との相互作用によって陽子を放出するというモデルが有効であることが分かった。今回行なった計算はひじょうに簡単なモデルなので、今後は、より理論的に厳密に取り扱ったモデルにより議論する必要がある。

(e, p) 反応陽子エネルギースペクトル差し引き法による解析は、今回、 (r, p_0) , (r, p_1) 反応の議論のためにしか用いなかったが、他のチャンネルに崩壊する成分も見ることができるので、 (r, p) 反応の反応機構についてもっと多くの情報を含んでいる。今後、議論を進め報告する。

参 考 文 献

- 1) G. E. Brown : Nucl. Phys. **57** (1964) 339.
- 2) C. F. Clement, A. M. Lane and J. R. Rook : Nucl. Phys. **66** (1965) 273.
- 3) J. Le Tourneux : Phys. Letters **13** (1964) 325.
- 4) M. Danos and W. Greiner : Phys. Letters **8** (1964) 113.
- 5) M. G. Huber, M. Danos, H. J. Weber, W. Greiner : Phys. Rev. **155** (1967) 1073.
- 6) T. J. Bowles, R. J. Holt, H. E. Jackson, R. M. Laszewski, R. D. McKeown, A. M. Nathan and J. R. Specht : Phys. Rev. C **24** (1981) 1940.
- 7) I. C. Nascimento, E. Wolyneec and D. S. Onley : Nucl. Phys. **A246** (1975) 210.
- 8) 田中俊成 : 博士論文 (1980) 東北大学.
- 9) S. C. Fultz, R. L. Bramblett, J. T. Caldwell and R. R. Harvey : Phys. Rev. **133** (1964) B1149.
- 10) 宮瀬晴久他 : 核理研研究報告 **16** (1983) 39.
- 11) 宮瀬晴久 : private communication
- 12) G. Chursin *et al.* : Nucl. Phys. **A93** (1967) 209.
- 13) L. Colli *et al.* : Nuvo Cimento **20** (1961) 1406.
- 14) G. Mairle *et al.* : Nucl. Phys. **A134** (1969) 180.
- 15) M. Niwano *et al.* : Nucl. Phys. **A377** (1982) 148.

II. 物 性 物 理

熱中性子小角散乱装置

金研, 核理研*

石田 明・新村信雄*・山田和芳*

上野光明・一戸 隆*・窪田健雄*

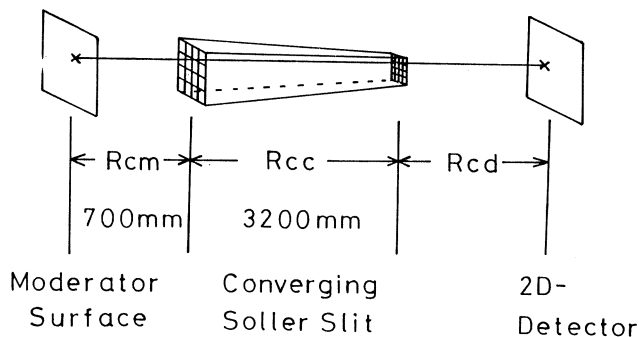
佐藤正幸*・平井光博*

§ 1. 序 論

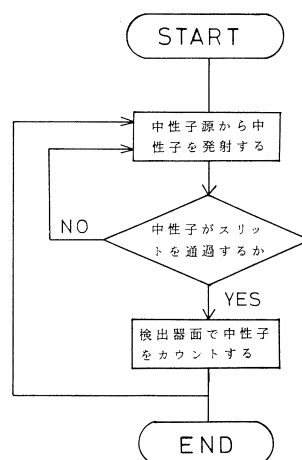
現在まで小角散乱装置は主に冷中性子源に設置されてきた。熱中性子源を用いるとある適当な Q の範囲で大きな散乱強度が得られる利点があるので、それを利用した熱中性子小角散乱装置の建設を行ってきた^{1,2)}。そこでは以下のような技術的問題がある。(1)分解能 (2)遮蔽 (3)検出効率 これらを解決するために、2次元収束ソーラースリットおよび⁶Liガラスシンチレータを用いたリング状検出器を開発した。2次元収束ソーラースリットは文献2)で述べたように、その後2号機を製作し、その性能テストを行った。

§ 2. 2号機収束型ソーラースリットのコンピューターシミュレーション

中性子源から出た中性子が収束型ソーラースリットを通して検出器に達するとき、どのようなスペクトルが現われるかコンピューターシミュレーションを行った。その時のパルス中性子源(減速材), ソーラースリット, 検出器の配置を第1図に示す。また計算の流れを第2図に示す。乱数の発生により減速材のどの点からどの方向へ中性子を発射するかを決める。その中性子がソーラースリットのメッシュを通過した場合は検出器面のどの点で検出したかを記録して再び開始点にもどる。第

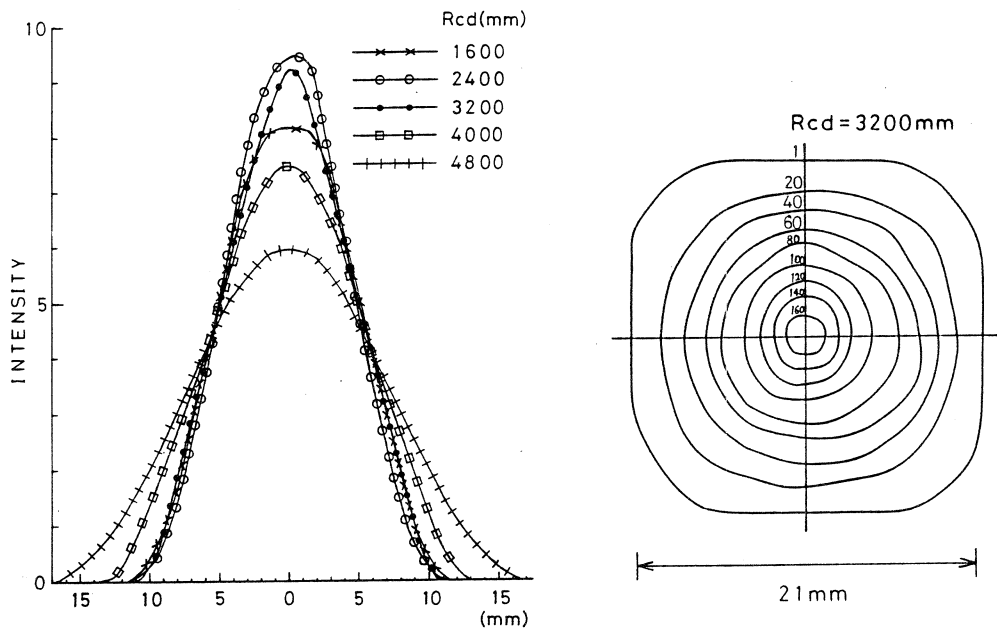


第1図 パルス中性子源, ソーラースリットおよび検出器の配置図。



第2図 コンピューターシミュレーションにおける計算の流れ図。

3図は全長 3,200mmのスリットを用い、中性子源からスリットまでの距離を 700mm とし、検出器面を動かしたとき、どのような強度分布が得られるかを示したものである。この図から、スリット-検出器間距離が 2,400mm または 3,200mm でピークが鋭くなり、焦点のボケが小さくなっているのがわかる。またこの時のスペクトルの 2次元強度分布を第 4 図に示す。



第 3 図 コンピューターシミュレーションによって得られた検出器面における強度分布図。

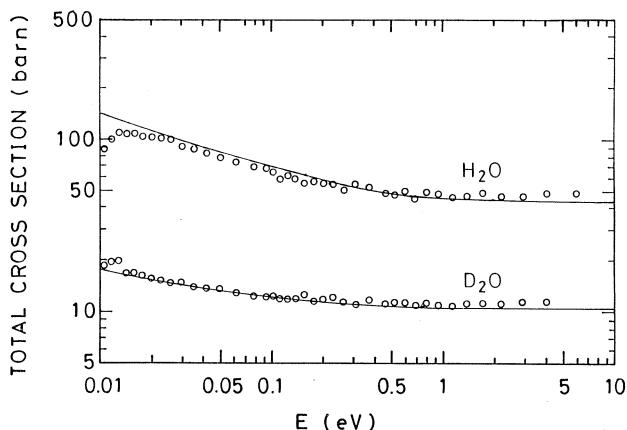
第 4 図 コンピューターシミュレーションによって得られた検出器面における 2次元強度分布図。

§ 3. 中性子透過強度の測定

この 2号機ソーラスリットを用いて水の透過強度測定を行った。石英容器に H_2O または D_2O を厚さ 1mm または 5mm 入れて透過強度測定を行った。さらに次式によって全散乱断面積 $\sigma_T(\lambda)$ を求めた。

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

これを第 5 図に示す。ここで、 $I^S(\lambda)$ 、 $I^C(\lambda)$ は試料を入れた容器および空容器からの透過強度、 N は単位体積中の分子の個数、 r は試料の厚みである。データブックの値³⁾ (第 5 図実線の値) と比べてみると、我々のデータとの一致は良好である。これから試料中の H/D 比を透過強度の波長依存性から充分求められることが判明した。

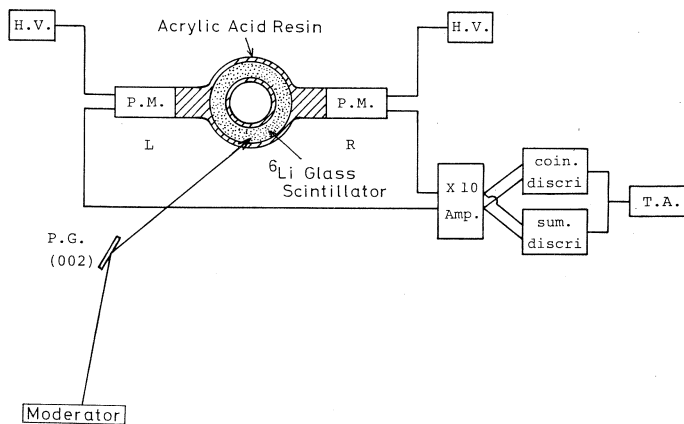


第5図 H₂OおよびD₂Oの全散乱断面積。(白丸は今
回得られたデータ, 実線はデータブックの値³⁾。

§ 4. リング状シンチレータ

第6図にリング状シンチレータの性能テスト実験の配置図を示す。リング状シンチレータはリング状アクリルにシンチレータを張りつけることにより製作した。中性子がシンチレータにあたったとき発光したシンチレーション光はアクリルを經由して左右の光電子増倍管(P.M.)で検出される。試料が等方的な場合には同じ散乱角に対して等方的な散乱が起るので、リング状シンチレータを使うことにより測定系が簡単になりデータ処理も容易になるのがリング状シンチレータの特長である。

リング状シンチレータの予備実験として高エネルギー物理学研究所のKENSでパイロリティックグラファイト(P.G.)の001面で反射させた中性子を直径7cm幅1cmのシンチレータ



第6図 リング状シンチレータの性能テスト実験の配置図。

に第6図のようにあて測定を行った。P.M.からの信号を10倍増幅し、コインシデンス(同時計数)またはサム(和)をとったものをタイム・アナライザーで測定した。

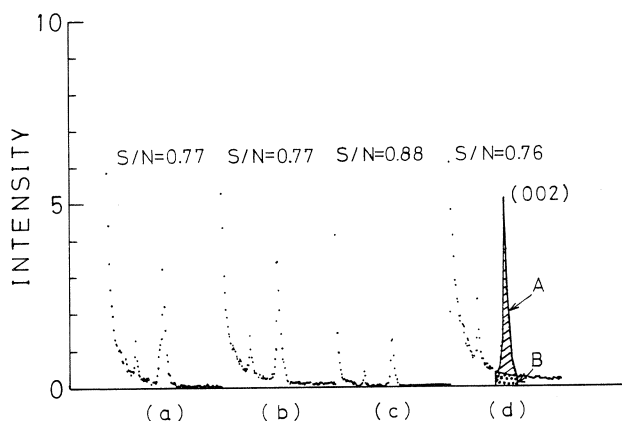
第7図は(002)反射の強度を示したものである。Aの部分にシグナル、Bの部分にノイズとする。

(a)は右からの信号、(b)は左からの信号、(c)は右と左のコインシデンス、(d)は右と左のサムを示したものである。コインシデンスをとることによって S/N 比は大きくなるが、シグナルが小さくなっている。またサムをとることによってシグナルが大きくなっているのがわかる。第8図は右と左のサムにおける(002)反射の強度をディスクリレベル(D.L.)を変えて測定したものを示す。ディスクリレベルをさげると信号は大きくなる。3.0から1.5では S/N 比はほぼ同じ

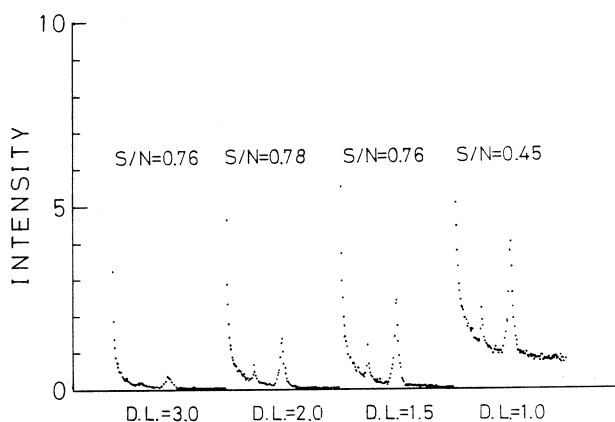
であるが、1.0では S/N 比が小さくなっている。どのディスクリレベルが最適かを現在検討中である。

このような半径の異なるリング状検出器を組み合わせることで熱中性子小角散乱装置の検出器系を製作した。第9図に8枚のリング状検出器を組み合わせたとの場所を示す。また第10図にその検出器系を小角散乱装置に設置した様子を示す。尚、この組み合わせでの測定可能な Q の範囲を第11図に示す。

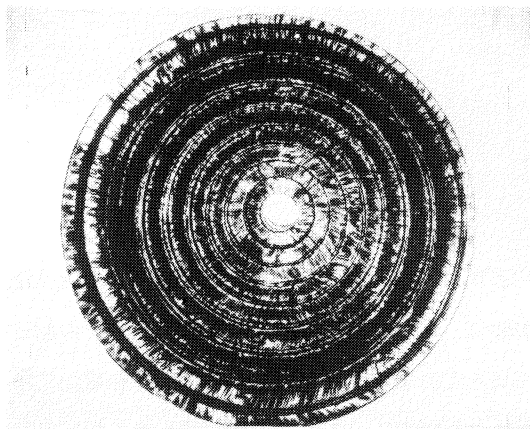
このリング状検出器を用いた小角散乱の実験を行なったが、まだ測定系が不備なためデータは得られていない。



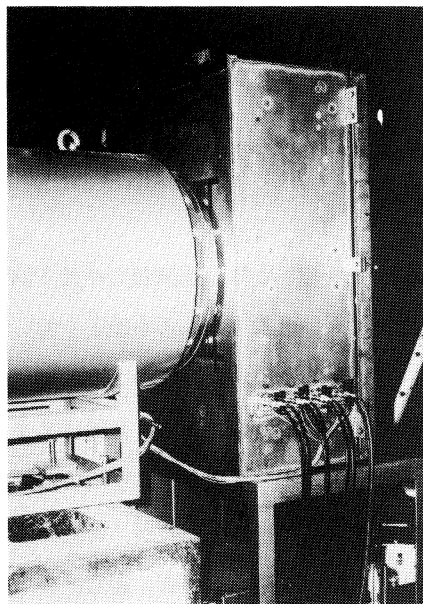
第7図 リング状シンチレータを用いたP.G.の(002)の反射強度の測定。(a)右からの信号、(b)左からの信号、(c)右と左のコインシデンス、(d)右と左のサム。



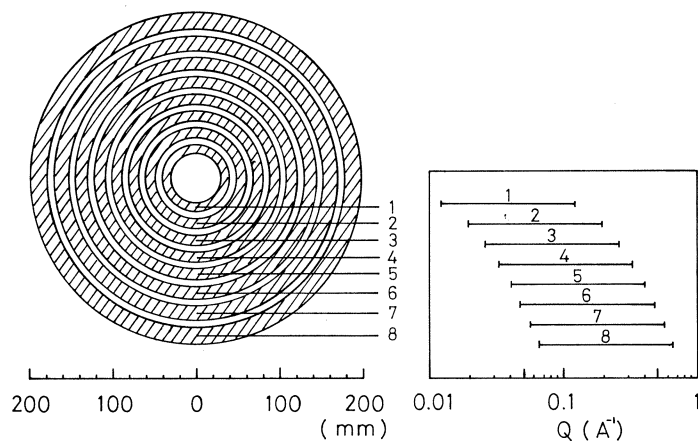
第8図 リング状シンチレータを用いたP.G.の(002)反射強度の測定。D.L.=3.0, 2.0, 1.5および1.0。



第9図 リング状検出器の外観。



第10図 検出器系を小角散乱装置に設置した様子。



第11図 8枚のリング状検出器におけるシンチレータの部分の大きさおよびそれによる測定可能な Q の範囲を示した図。

参 考 文 献

- 1) 新村信雄, 山田和芳, 杉崎康昭, 三沢正勝, 石田明: 核理研研究報告 **16** (1983) 241.
- 2) 新村信雄, 山田和芳, 石田明, 杉崎康昭, 三沢正勝: 核理研研究報告 **17** (1984) 66.
- 3) Neutron Cross Sections, BNL Report **325** (1976).

TOF 法中性子回折による単結晶 精密構造解析

金研

富吉昇一

§ 1. 序 論

TOF 法を用いた単結晶試料の中性子回折の測定はかなり早くから行われていて、東北大核理研に於ても、最初のパルス中性子を用いた実験は、銅の大きい単結晶の回折パターンの測定であった。単結晶の実験はこのように早くから試みられて来たけれども、TOF 法を用いて単結晶試料の精密構造解析を行った例はあまりないようである。これは、現在最も多く用いられている原子炉からの単色ビームを用いた単結晶の中性子回折のデータに比較して、パルス中性子で測定したデータの質が、まだ充分でないことが主要な原因と考えられる。

パルス中性子を用いる場合、通常はカウンター角 2θ を一定に固定したまま、色々な反射面の反射強度を測定し、波長依存性を適当に補正することにより結晶構造因子 F^2 を求める方法が取られている。この方法の利点は一度の測定で多くの高次反射までが取れてしまうことであり、さらに、最近 position sensitive カウンターを用いて、広い逆格子の平面、あるいは空間のデータを一度に測定してしまうことも可能になってきたが、しかしながら、このようにして一度に多くの反射強度が得られたとしても、正確な F^2 の値を求めるためには、適切な波長依存の補正をほどこさなければならず、それらは必ずしも容易ではないのが現状である。特にそのうちでも問題になるのは消衰効果 γ の補正であろう。これは試料の形状やモザイク分布など試料特有の性質により変るので非常にやっかいであり、また、次の節で説明するように、消衰効果は波長 λ に対して λ^2 で変り、 λ に対する変化量が大きく、従ってその補正量が大きくなり、データ全体の精度が悪くなる。

我々はこの問題を解決する方法は、これまでのように散乱角 2θ を固定したまま測定するのではなく、各反射に対して散乱角 2θ を変え、一定波長 λ ($\lambda = 2d \sin \theta$) にブラッグピークがあらわれるようにして測定するのが一番良いのではないかと考えている。このようにすれば一つの TOF 回折パターンに現われる高次の反射のうち、ピーク値がその波長であるような 1 個のピークしか利用しないので非常に無駄な測定をやっているように見えるが、すでに我々が報告しているよう¹⁾にその利点はたくさんある。まず、入射中性子の波長分布 $i(\lambda)$ 、吸収 $A(\lambda)$ 、検出器の効率 $\eta(\lambda)$ などの波長依存性はピークの中の範囲内に於てだけ正確であれば良い。これ

までのように利用する波長領域全体にわたり正確である必要がなくなるので精度が高くなる。また消衰効果に関しても波長依存性は考えなくても良くなり、原子炉の単色ビームの場合と全く同じに考えることができる。今回は規則化した Fe_3Al 型の結晶構造をもつ Mn_3Si について、波長固定法で測定した結果を、従来の散乱角固定法で測定した結果と比較し、さらに同じ試料に対して原子炉の単色ビームを用いて測定した結果と比較する。そして波長固定法が単結晶の精密構造解析の方法として非常に有望であることを示す。

§ 2. TOF法に於ける反射強度

観測されるブラッグピークの積分強度 I は単結晶試料の場合、入射中性子強度を i 、吸収を A 、カウンターの検出効率を η とし、消衰効果の因子を y とすると次式であらわされる：

$$I = i \cdot A \cdot \eta \cdot y \cdot Q \quad (1)$$

ここで Q は単位体積当りの平均の断面積である。 N_c を単位体積当りの単位格子の数とし、結晶構造因子を F とすると、TOF法の場合は：

$$Q = N_c^2 F^2 \frac{\lambda^4}{2 \sin^2 \theta} \quad (2)$$

また原子炉の単色ビームの場合は：

$$Q = N_c^2 F^2 \frac{\lambda^3}{\sin 2\theta} \quad (3)$$

である。両者の違いは波長で積分するか、角度で積分するかの違いによるもので、ローレンツ因子といわれている。

消衰効果は単色ビームの場合、次のような簡単な近似式で表わされることがBecker-Coppen²⁾により示されている。

$$y = \left\{ 1 + 2x + \frac{A(\theta)x^2}{1+B(\theta)x} \right\}^{-\frac{1}{2}} \quad (4)$$

ここで変数 x は：

$$x = \frac{2}{3} Q \alpha l \quad (5)$$

と表わされる。 l は散乱ビーム方向の平均の結晶の長さであり、一次消衰効果では完全結晶の散乱ビーム方向の長さ、二次の消衰効果の場合は試料のその方向の長さで、球の場合は $l = 3r/2$ である。ここで α は単色ビームの場合次式で与えられる：

$$\alpha = l \frac{\sin 2\theta}{\lambda} \quad (6)$$

ところでTOF法では我々により示されたように³⁾ x は(5)式で与えられ、 α は次のようになる：

$$\alpha = 2l \frac{\sin^2 \theta}{\lambda^2} \quad (7)$$

そのため変数 x はTOF法、単色ビーム法共に

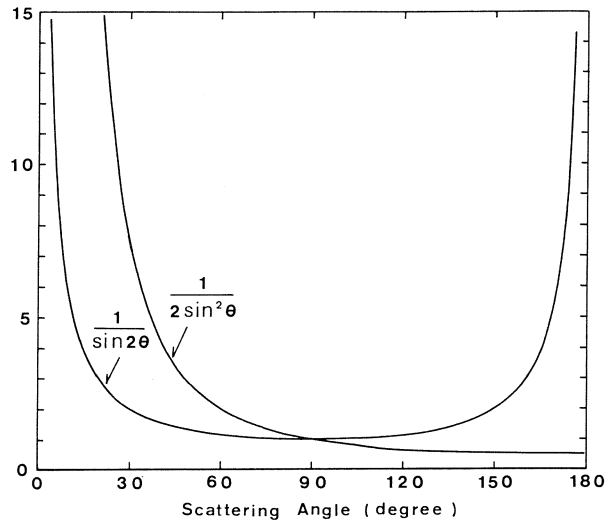
$$x = \frac{2}{3} N_C^2 F^2 \lambda^2 l^2 \quad (8)$$

となる。すなわち消衰効果はTOF法、単色ビーム法とも、 F と λ が決まれば全く同じに取り扱える。

(8)式から明らかなように、TOF法の場合色々な波長に対してBragg反射の測定を行うと、 x は λ^2 に比例して変化するため、波長に対する変化が大きく、従って消衰効果のきき方が大きくなるのが容易にわかる。(8)式に於て、例えば $\lambda = 1 \text{ \AA}$ と固定してしまえば、消衰効果は F^2 の値と(4)式の角度部分 $A(\theta)$ 、 $B(\theta)$ のみを取り入れれば良く、単色ビームの $\lambda = 1 \text{ \AA}$ の場合と全く同じに取り扱えるので、従来の方法を用いて比較的容易に消衰効果の補正を行うことが可能である。

ところで、Becker-Coppen²⁾ の消衰効果の計算値は一定の $\sin \theta$ の値に対して、 x の関数として表に与えられている。これは散乱角 2θ を固定して測定するTOF法のデーターの解析には大変都合が良い。消衰効果が大きい $2\theta =$ 一定のデーターで消衰効果のパラメーターを決定してしまい、消衰効果の小さい波長で測定した波長固定法のデーターの補正を行えば、波長固定法で得られたデーターの精度を

さらに上げることも可能であろう。
次にローレンツ因子を見れば容易にわかることだが、TOF法で波長を固定したときの反射強度の角度依存性は単色ビームの場合と異っている。第1図に $\lambda = 1 \text{ \AA}$ のときのローレンツ因子の角度依存性を示す。この図で明らかなことは散乱角 2θ が 90° より小さくなると、TOF法の方がローレンツ因子が大きくなり、積分強度が増加し、低角になればなるほどその差が開く。その比は $\cot \theta$ であら



第1図 TOF法と原子炉の単色ビーム法のローレンツ因子の角度変化。 $\lambda = 1 \text{ \AA}$ のとき、 90° 以下ではTOF法の方が大きい。

わされる。すなわち TOF 法で波長を固定した測定は単色ビームの方法に比較して、低角の低指数の反射で強い積分反射強度が得られるので、低角での測定に有利である。従って磁性体の構造解析の研究にも適していると考えられる。これは我々の常識とは違うが、これまで TOF 法では波長を固定して測定した例がほとんどなかったためにこの点に気づかなかったものと思われる。しかし、このような積分強度の増加は、分解能の式 $\Delta\lambda/\lambda = \cot\theta \cdot \Delta\theta$ から明らかのように、低角で線巾が広がることによって起っているわけで、分解能も含めて考えると、必ずしもこの方法が有利とはいえないかも知れない。

§ 3. 実験結果

中性子回折の測定は東北大 300 MeV 電子ライナックに設置されている単結晶用中性子回折装置を用いて行った。測定に用いた Mn_3Si の単結晶は、ブリッチマン法で作ったものであり、直径 5.8 mm の円柱状にしたものを試料として用いた。 Mn_3Si の TOF 法による結晶構造解析と、磁気構造解析の結果はすでに報告されている⁴⁾が、結晶構造は規則化した Fe_3Al 型である。結晶構造因子 $F(hkl)$ は次の 3 種類に分かれる：

$$h, k, l = \text{odd}, \quad b_{\text{Mn}_I} - b_{\text{Si}} = 0.81 \times 10^{-12} \text{ cm}$$

$$h, k, l = \text{even で}$$

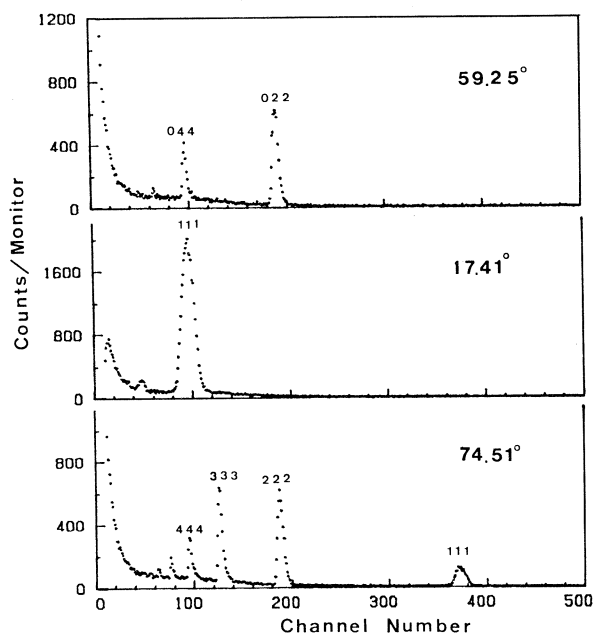
$$\frac{1}{2}(h+k+l) = \text{odd},$$

$$b_{\text{Mn}_I} - b_{\text{Si}} - 2b_{\text{Mn}_{II}} \\ = 0.81 \times 10^{-12} \text{ cm}$$

$$\frac{1}{2}(h+k+l) = \text{even},$$

$$b_{\text{Mn}_I} - b_{\text{Si}} + 2b_{\text{Mn}_{II}} \\ = 0.75 \times 10^{-12} \text{ cm}$$

ここで b は各 site の原子の核散乱振巾をあらわす。 Mn_I , Mn_{II} はそれぞれ site I, site II の Mn 原子をあらわす。この試料はほぼ完全に規則化しており、そのため結局 2 種類の散乱強度に分かれる。波長固定法の測定は $\lambda = 1 \text{ \AA}$ に対して行った。測定温度は室温である。



第2図 1 \AA にピークを持つように散乱角を変えて測定した TOF 中性子回折パターン。1 チャンネルは $16 \mu\text{sec}$ である。500 k モニター当りのカウント数を示す。

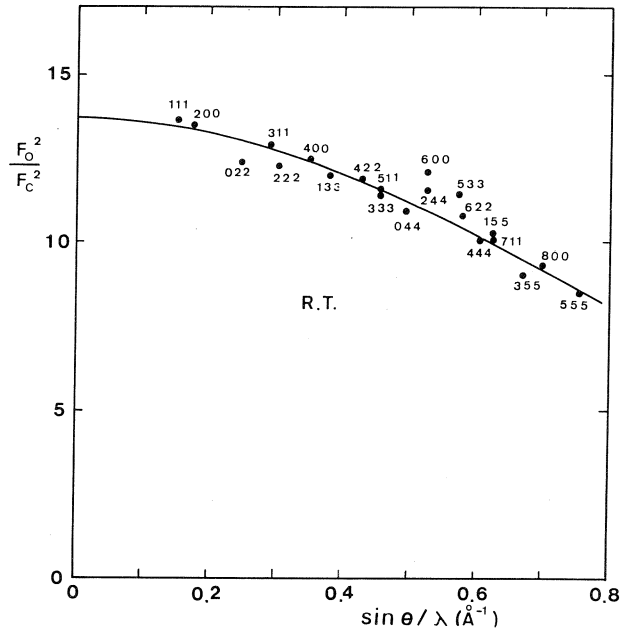
その結果の一部を第2図に示す。

カウント数はモニターカウント500 kに対して示している。各ピークの中心はほぼ94チャンネル付近にあらわれ、その線巾は低角では広く、高角では狭い。また、低角のものは強度が強い。波長に依存する入射ビームの分布 $i(\lambda)$ 、吸収 $A(\lambda)$ 、検出器の効率 $\eta(\lambda)$ に対する補正をほどこし、 $F_{\text{obs}}^2/F_{\text{cal}}^2$ を $\sin\theta/\lambda$ に対してプロットしたのが第3図である。ここに示した F_{obs}^2 のデータ

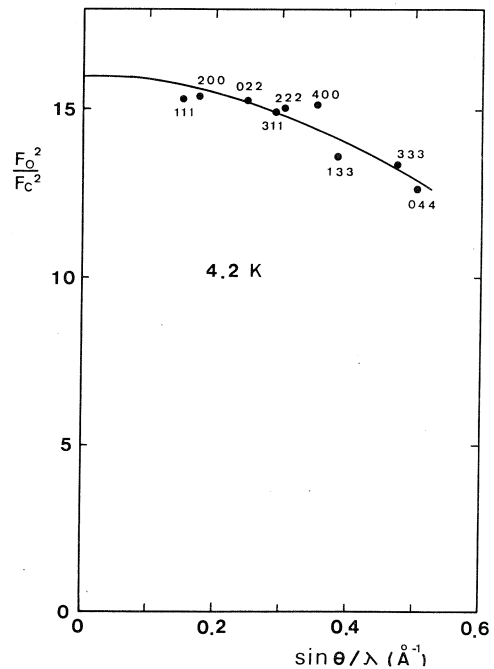
は消衰効果に対する補正を行っていない。これらの測定点は $13.7 \cdot \exp\{-0.82 \cdot (\sin\theta/\lambda)^2\}$ で表わされる曲線の近くに集まっており、それからのゆらぎはかなり小さい。これはデバイ・ウォーラー因子の補正を行うと F_{obs}^2 と F_{cal}^2 の値がかなり良く一致することを示すものである。

第4図は、同じ試料を4.2Kに於て原研3号炉のTOG中性子回折装置により単色ビーム ($\lambda=1.0\text{Å}$) で測定して得られたデータを示す。原子炉の測定データの方が $\sin\theta/\lambda$ の小さい領域に限られているがこれらのデータは $16.03 \cdot \exp\{-0.87 \cdot$

第4図 原子炉で $\lambda=1\text{Å}$ で測定したブラッグピークの積分強度、測定温度は4.2 k。曲線はデバイウォーラー因子。

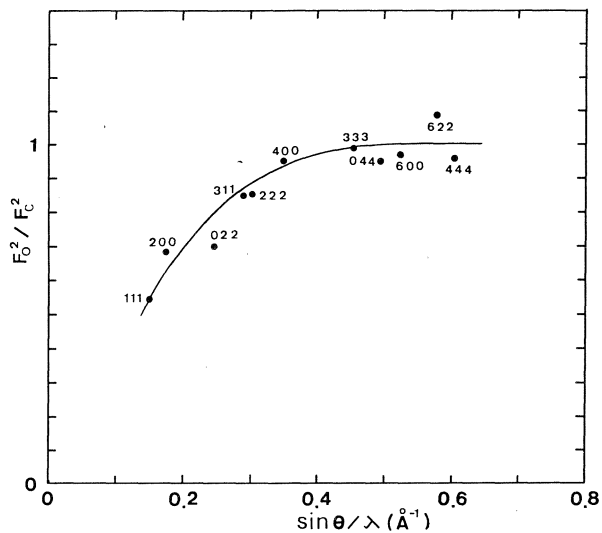


第3図 波長を1 Åに固定して測定したブラッグ反射の積分強度を F_{cal}^2 で規格化して $\sin\theta/\lambda$ の関数として示す。曲線はデバイ・ウォーラー因子の計算値。

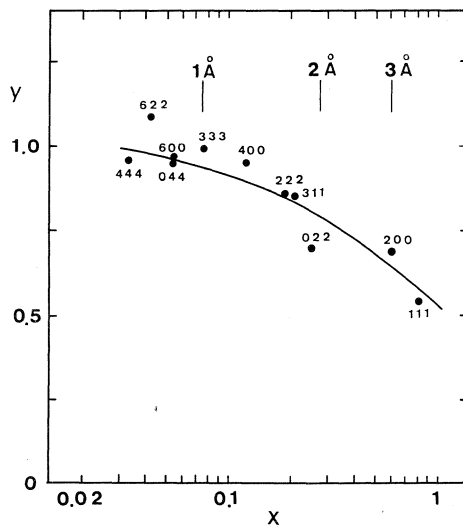


$(\sin\theta/\lambda)^2$ に乗っており、その一致の様子は、TOF法のデータとあまり差がない。このことは、原子炉のデータと東北大ライナックの $\lambda=1\text{\AA}$ のTOF法のデータがほぼ同じ水準のデータの質であることを示すものであり、波長を固定する方法が精密構造解析として非常にすぐれた測定法であることを示すものである。第3図及び第4図では消衰効果の補正は行っていないが、両者とも、デバイ・ウォラー因子の線によく乗っており、消衰効果の影響はあまり無いと見て良さそうである。

次にTOF法で通常良く採用されている散乱角を固定する方法を用いて測定した。測定は対称性の良い方向を選んで行ったので、測定時間は第3図の場合と比較してかなり短かったが、対称性の悪い反射も含めると、それほどの差は生じない。散乱角は 54.0° で333反射が丁度 1\AA に現われる角度であり、波長一定法との規格化は、333反射を用いて行った。測定された多くのブラッグ反射に対して波長の全領域にわたり、 $i(\lambda)$ 、 $A(\lambda)$ 、 $\eta(\lambda)$ の補正を行い、 $\sin\theta/\lambda$ に対してプロットすると $F_{\text{obs}}^2/F_{\text{cal}}^2$ は第5図のようになる。この図が第3図と違う点は低次指数の反射の値が非常に小さくなっていることである。これは消衰効果の影響によるものであり、長波長に現われるピークほどその値が小さくなっているこ



第5図 $2\theta=54.0^\circ$ で測定したブラッグ反射の積分強度を F_{cal}^2 で規格化して $\sin\theta/\lambda$ の関数として示す。低次数の反射は波長 λ が大きいため消衰効果による減少が大きい。



第6図 TOF法を用いて散乱角 $2\theta=54.0^\circ$ で測定したブラッグピークの積分強度を、 $F_{\text{cal}}^2 e^{-2W}$ で規格して求めた消衰効果 y 、 x は(9)式から求めた。曲線はBecker-Coppensの消衰効果の計算値を示す。(9)式のパラメーター a を用いて計算値と測定値を合わせた。

とははっきりわかる。このデーターだけからデバイ・ウォラー因子と消衰効果の因子を求めることは非常に困難であるが、デバイ・ウォラー因子に関しては、すでに波長固定法により求められているので、その値を用いると消衰効果についての値を求めることが可能となる。第6図に消衰効果 y を x の関数として示す。ここで x は(8)式に示されているように、

$$x = aF^2 \lambda^2 \quad (9)$$

とあらわされる。 a を任意パラメーターとすると、実験データーと計算値を比較することが出来る。第6図に示す曲線は Becker-Coppen の計算結果で、 $2\theta = 47.1^\circ$ でのローレンツ・モザイク分布に対する2次の消衰効果についてのものである。この曲線は1次消衰効果の計算結果とはほぼ同じであり、ガウス・モザイク分布についての2次の消衰効果では、 x の大きい値に対して、これらより減少が少し早い。実験データーは、図に示す曲線のまわりをちらばっており Becker-Coppen の消衰効果の理論により、これらのデーターが良く説明されることを示している。

この図から明らかなように、この単結晶試料の場合、波長 1 \AA 以下では消衰効果による影響はそれほど見受けられないが、波長が長くなり 2 \AA を越えると、消衰効果による減少が非常に大きくなる。そのため長波長の反射を用いる散乱角固定法は、精密構造解析には必ずしも適しているとはいえない。しかし、逆に、消衰効果の影響が大きいという点を積極的に用いれば、これまで、非常に困難であると考えられている消衰効果の補正がこの方法を用いることによりはじめて可能になるのではないかと思われる。

§ 4. 議 論

この報告に於ては、単結晶の中性子回折の測定法として、TOF法で波長を固定する場合、散乱角を固定する場合及び原子炉で単色ビームを用いる場合について、一つの同じ Mn_3Si の単結晶を用いて測定し、それらの結果を比較することを試みた。その結果明らかになったことは、予想されたように、TOF法で散乱角を固定して色々な反射を測定した場合には、消衰効果のきき方が大きくなり、今までのように、この方法だけを用いていたのでは、結晶構造の精密解析はかなり難しそうだということである。これに対して、波長を固定する方法は、波長を 1 \AA 以下に限定すれば、消衰効果のほとんどない測定が出来、かなり精度の高い構造解析が可能であることが明らかになった。ところでもう一つの重要な結果は、波長を固定する方法と、散乱角を固定する方法を組合すことにより、消衰効果の補正をほぼ完璧にほどこした解析が可能となることである。すなわち、まず、波長固定法により消衰効果の少ない測定を行い、構造

のパラメーターを決定する。次に、散乱角固定法で測定した消衰効果の大きいデータに、その構造のパラメーターを入れ、消衰効果を求める。そして理論との比較を行い、それを用いて波長固定法のデータの消衰効果の補正を行う。このようにすれば、消衰効果が少ないとして無視されていたものもほぼ完全に補正出来る。これまで、消衰効果がきいている反射のデータは捨てられるのが常であったが、このように消衰効果のきき方がはっきり分れば、捨てなければならない理由もはっきりし、解析の精度もかなり高くなるものと思われる。

これまでTOF法は単結晶の精密構造解析にはあまり適していないと考えられていたが、この結果が示すように、原子炉を用いた場合とだいたい同じ程度の解析が可能であることがはっきりした。波長を固定する方法は、色々な点で原子炉の単色ビームを用いる方法に類似しているが、原子炉と比較した場合、 $\lambda/2$ の混入の問題を全く考えないで波長を選ぶことが出来、特にモノクロメーターを用いていないので、 1 \AA 以下のモノクロメーターの反射率の悪くなる領域で有利で、また、 1 \AA 以下では、パルス中性子源の波長分布が有利であることもあり、原子炉と比較して色々な点で遜色はない。

今後の問題として、いかにしたらTOF法の測定精度が上げられるかということがあるが、一番重要なのは、現時点ではカウンターの改良ではないかと考えられる。この度の測定に於ては、1インチの He^3 カウンターを散乱面に対して垂直に置いて測定したが、このようにすると反射のスポットがカウンターのどこに当たっているかで検出感度が異なり、強度にむらが出やすい。シンチレーターのように、薄くて一様な検出感度のあるカウンターで、バックグラウンドの低いものが使用できれば、かなり精度を上げることが出来るであろう。

位置感应型カウンターはTOF法と非常に相性が良く、最近では単結晶測定用にも用いられているが、1つのピークのスポットが入るような $5 \text{ cm} \times 5 \text{ cm}$ くらいのシンチレーターで 5×5 くらいに分割して測定出来るシンチレーターが利用出来れば、波長固定法で測定するとき、低角での分解能の低下がおさえられるので、低角での分解能が要求される磁性体のスピン構造の解析などにも、TOF法が利用されるようになると予想される。

最後に、この研究にご協力いただいた核理研、新村氏、山田氏に感謝致します。また、技術的なご援助をしていただいた、窪田氏、高橋氏に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 富吉昇一：核理研研究報告 **10** (1977) 90.
- 2) P. J. Becker and P. Coppens : Acta Cryst. **A30** (1974) 129.
- 3) S. Tomiyoshi, M. Yamada and H. Watanabe : Acta Cryst. **A36** (1980) 600.
- 4) S. Tomiyoshi and H. Watanabe : J. Phys. Soc. Japan **39** (1975) 295.

SnI₄液相における分子相関と構造

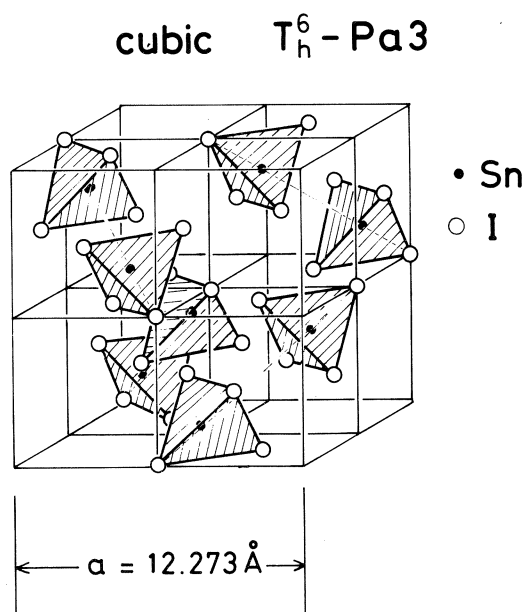
阪大基礎工, 核理研*, 金研**

藤井保彦・小若雅彦・山田和芳*

新村信雄*・上野光明**

§ 1. 序 言

分子性結晶 SnI₄ は、常圧において立方晶 ($T_h^6 - Pa3$) に属する絶縁体であり、第1図のように2組の四面体分子が、大きな隙間を隔てて配置しているめずらしい物質である¹⁾。この結晶に圧力を印加すると、著しい体積の圧縮とともに急激な電気抵抗の減少を示し、それらの変化量は、15 GPa (約15万気圧) においてそれぞれ $\Delta V/V \approx 0.5$, $\Delta\rho \approx 10^{-8} \Omega \cdot \text{cm}$ にも達する²⁻⁴⁾。そして、約15 GPa 以上では、金属的な振舞いをする事が報告されている³⁾。Fujii *et al.* は⁴⁾、この金属化の微視的機構を明らかにする目的で、金属化過程における結晶構造の変化を、ダイヤモンドアンビル高圧セル



第1図 分子性結晶 SnI₄ の常温 常圧における結晶構造。

(DAC)を用いたX線回折法で追求してきた。そして、この物質が圧力の印加とともに、著しい結晶構造の乱れを生じ、約15 GPa 以上の高圧力下では非晶質化することを見出した。第2図は、常温において観測した粉末回折パターンの圧力変化であり、20 GPa 以上では、非晶質(あるいは液体)特有のハローが見られる。この結晶 ↔ 非晶質変態は、大きい圧力履歴を伴うが可逆的である。続いて Sugai は⁵⁾、この物質の高圧ラマン散乱の実験を行い、20 GPa においても SnI₄ 四面体はその全対称モードの振動数をわずかに変えるのみで、堅固に存在することを明らかにした。すなわち、この物質の高圧非晶質状態とは、SnI₄ 四面体分子がランダムな配向をとって稠密にパッキングした構造的に無秩序状態であり、分子間のヨウ素の電子雲

の重なりによって電子伝導が生じていると考えられる。

一方、 SnI_4 四面体分子がランダムに配向した類似の状態として液体がある。融点は 145°C (常圧)であるが、約 170°C におけるX線回折によるRDFの決定⁶⁾、および液体ラマン散乱⁵⁾により、 SnI_4 四面体分子の存在が示唆されている。この液相の密度(3.7 g/cm^3)は、常温・高圧下で実現する非晶質相のそれ(7.5 g/cm^3)の約 $1/2$ であるが、これら2つの状態は、圧力-温度相図上で粘性のみ異なる連続した同一相か、あるいは、別の相として存在するのか、

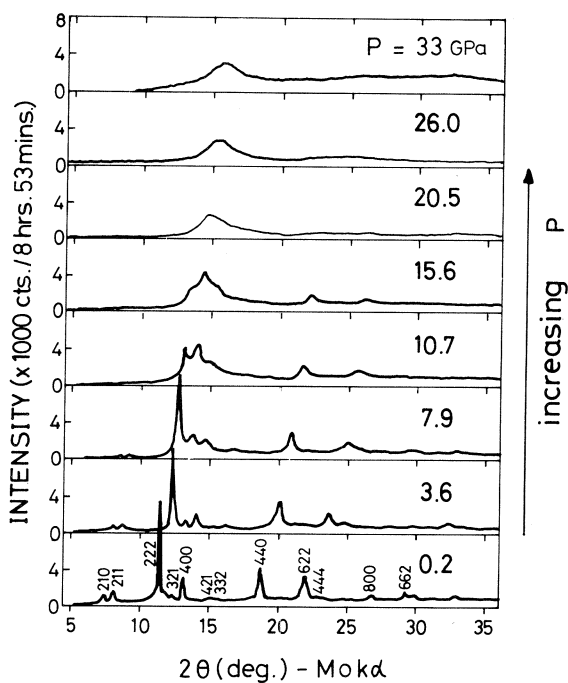
大へん興味ある問題である。

核理研における本実験は、上記研究計画の一環として、まず常圧・高温での液相の構造を、近年著しい進歩を遂げたパルス中性子法を用いて調べるため計画したものである。

§ 2. 実 験

試料は、レアメタリック製 SnI_4 (純度99.5%)を用い、あらかじめ円柱状にプレスしたものを、内径8 mmの石英管に真空封入した。中性子ビームに完浴する部分の石英ガラスの厚さは約0.2 mm、高さは50 mmであり、この部分を満すに要した試料の量は約12 gであった。この試料容器を、阪大で製作した電気炉内にセットし、温度制御を行なったが、試料上下部の温度差は約 10° あり、それぞれ 180 、 170°C であった(SnI_4 の融点= 145°C)。

中性子回折装置は、H-4ビーム孔に設置してある「TOF中性子全散乱スペクトロメーター」⁷⁾を用いた。 He^3 カウンターは、散乱角 $2\theta \approx 5$ 、 15 、 30 、 60 、 150° にセットしており、測定時間は、試料25時間、較正用V12時間、空容器5時間、ブランク3時間であった。

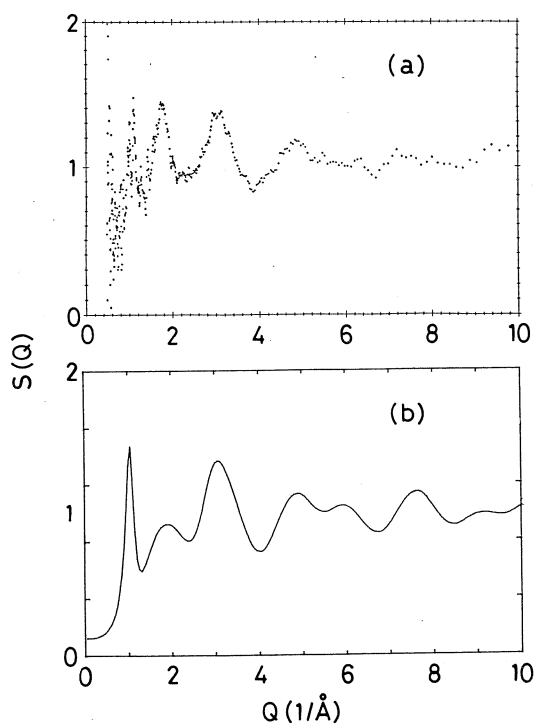


第2図 ダイヤモンドセルを用いて観測した、高圧X線粉末回折パターンの圧力変化(昇圧過程)。横軸は、 $\text{MoK}\alpha$ に対する回折角。

§ 3. 実験結果および予備的解析

5つの散乱角で測定したデータは、試料および容器による吸収、多重散乱等の各種補正を行なった。しかし、まだ全運動量空間 $0.5 < Q < 40 \text{ \AA}^{-1}$ にわたって全データを繋ぐに至っておらず、本報告では、 $2\theta = 30^\circ$ で観測した $S(Q)$ をあげるに止める [第3図(a)]。同図(b)は、 SnI_4 四面体を剛体球と仮定して、Percus - Yevick 方程式に従って計算した $S(Q)$ の一例である。用いたパラメーターは、常圧結晶中での SnI_4 の大きさから剛体球直径 $\sigma = 6.37 \text{ \AA}$ 、液相 (170°C) での密度 $\rho = 3.47 \text{ g/cm}^3$ 、そして充填率はこれから一義的に決る $\eta = 0.45$ を用いた。液相においては、四面体分子を球状に仮定し、配向の相関を無視する近似は、それ程悪いとは思えないが、相関を入れたモデルも考慮中である。

一方、高圧非晶質状態において観測されたX線ハローパターン (第2図) は、明らかに剛体球モデルでは定性的にも説明し得ず、高密度に充填した四面体分子の配向相関の重要性を示している。今後、このように好対照をなす両相における分子相関、および両相の熱力学的関係を明らかにしてゆく計画である。



第3図 (a) TOF 中性子回折法により測定された ($2\theta = 30^\circ$) $170 \sim 180^\circ\text{C}$ における SnI_4 液相の $S(Q)$ 。
(b) 剛体球モデルによる $S(Q)$ 計算値の例。

参 考 文 献

- 1) F. Meller and I. Fankuchen : Acta Cryst. **8** (1955) 343.
- 2) R. W. Lynch and H. G. Drickamer : J. Chem. Phys. **45** (1966) 1020.
- 3) B. M. Riggelman and H. G. Drickamer : J. Chem. Phys. **38** (1963) 2721.
- 4) Y. Fujii, M. Kowaka and A. Onodera : J. Phys. C **18** (1985) 789.

- 5) S. Sugai : J. Phys. C **18** (1985) 799.
- 6) R. E. Wood and H. L. Ritter : J. Amer. Chem. Soc. **74** (1952) 1763.
- 7) K. Suzuki , M. Misawa, K. Kai and N. Watanabe : Nucl. Instr. Methods **147**
(1977) 519.

エンコード方式によるガラスシンチレーター PSDの光学系・測定系の評価

核理研

新村信雄・山田和芳

窪田健雄・佐藤正幸

§ 1. 序

${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターを用い、エンコード方式でPSDを製作するにあたり、光学系、測定系につき種々検討した結果を報告する。

ガラスシンチレーターを中性子検出器として使用する時、シンチレーター内で発生したシンチレーション光は光電子増倍管(P.M.)に達して電気信号となり計数される。シンチレーターからP.M.までの光伝達系は種々のものが考えられるが、検出器系を構成するにあたり、光損失の少ないものが理想である。ここで、これらの光学系について考察をする。

§ 2. ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーター

${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターの発光過程の概略及び組成等についてはすでに記しておいた¹⁾。 ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターの物理的性質を第1表に、また2 mm厚のシンチレーターの透過率(反射含み)と蛍光の励起スペクトル、発光スペクトルを第1図に示す。

直方体のガラスシンチレーターを第2図のように孤立させて置いた場合を考える。中性子が入射し、シンチレーター内で発光したシンチレーション光の振る舞いを考察する。

第1表 ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターの物理的性質。

屈折率 (N_d)	1.56
アッペ数 (ν_d)	57.8
密度 (g/cm^3)	2.5
Li含有量 (wt%)	6.7
平均線膨張係数 ($\times 10^{-7}/\text{C}$) 100°C ~ 300°C	99
ガラス転移温度 (°C)	482
軟化温度 (°C)	521

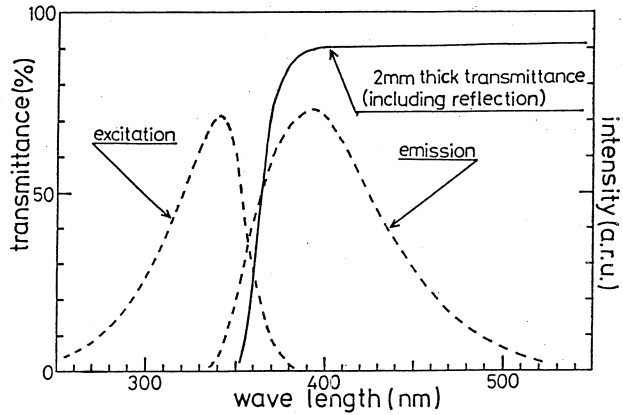
ガラスシンチレーターの屈折率を n_1 , 周囲の媒体(この場合は空気)の屈折率を n_2 とすると, $n_1 > n_2$ の場合, 臨界角 α_c が存在し

$$\sin \alpha_c = n_2 / n_1 = 1/n \quad (1)$$

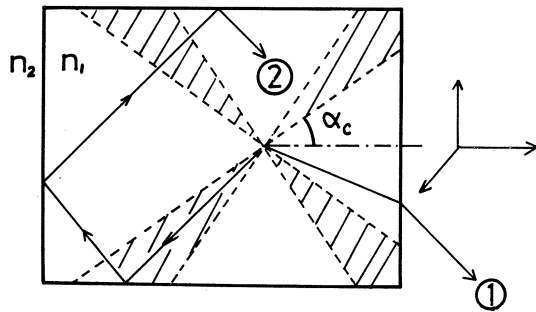
と求められる。 ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターの場合 $n_1 = 1.55$ であるから $\alpha_c = 40^\circ$ となる。

シンチレーター内で発生したシンチレーション光は放射状に発散する。第2図で光線①のように α_c

以下の角度で発射した光は界面で屈折し, 外に出て行く。一方光線②のように α_c 以上の角度で発射した光は界面で全反射し, その界面に垂直に立つ隣の界面に達するが, 幾可学的条件からその界面への発射角も α_c 以上になっているため, 結局, 最後までシンチレーターから出射できない。一般的には, $n > \sqrt{2}$ の系ではこのような光のトラップ現象が生ずる。



第1図 2 mm厚の ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターの透過率(反射含み)と蛍光の励起スペクトル及び発光スペクトル。

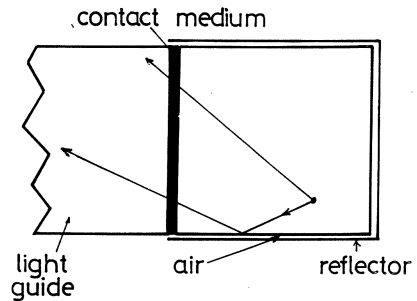


第2図 ガラスシンチレーターの光学。

§ 3. シンチレーターと光伝達媒体及び反射材

第3図に示すように, シンチレーターを用いる時は, シンチレーターの一つの面は光伝達媒体に接続され, 他の面には反射材が巻かれる。シンチレーター表面仕上げは, 反射材が接触する面は研削(くもりガラス状仕上げ)ないしは研磨(鏡面状仕上げ), 光伝達媒体が接続する面は研磨が適当である。

反射材としては, 中性子の吸収も取扱いの容易



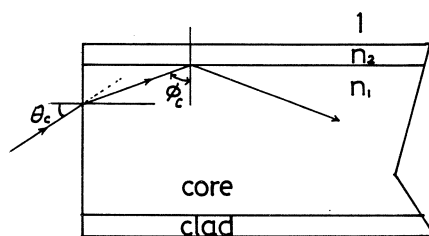
第3図 ガラスシンチレーター, 光伝達媒体, 反射材の光学。

さを考えると、アルミニウム箔を利用するのが適当である。反射材との接触面に、空気層があると、界面で全反射をするケースがあるが、グリース等でシンチレーターと反射材を接触させると、全ての光は必ずシンチレーターを出射し、反射材で反射される過程を経る。金属面での反射率は全反射率に較べて小さく損失の一因となる。一方、シンチレーターと光伝達媒体との接続にはグリース等で空気層を消失させることが必要である。シンチレーター、グリース、及び光伝達媒体の屈折率はほとんど同一であるので、シンチレーターから媒体へ向かう光の大部分は界面で全反射することなく、光伝達媒体へ伝わって行くことになる。

§ 4. 光学繊維（オプティカル・ファイバー、ライトガイド）

第4図に光学繊維の構造と、光の伝達を示す。

光学繊維は低屈折率の鞘が高屈折の芯を取り囲む二重構造である。鞘は芯よりも低い屈折率を持つため、一端から入射した光は芯と鞘の界面で全反射しながら、芯の中を進行し、他端から出射される。このような原理のため、光学繊維を屈曲しても、光の伝達は良好に行われる。



第4図 光学繊維の光学。

光学繊維の一端から入射し、芯と鞘の界面で全反射を繰り返しながら伝達して行く光学系を考える。芯、鞘及び空気の屈折率をそれぞれ、 n_1 、 n_2 、1とする。臨界入射角を θ_c 、芯から鞘への入射角を ϕ_c とする。幾何光学の関係式から

$$\left. \begin{aligned} \sin \theta_c / \sin (90^\circ - \phi_c) &= n_1 / 1 \\ 1 / \sin \phi_c &= n_1 / n_2 \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

が得られる。これから

$$\sin \theta_c = \sqrt{n_1^2 - n_2^2} \quad (3)$$

が得られる。この $\sin \theta_c$ を開口数（numerical aperture）と呼ぶ。 $2\theta_c$ を受光角と呼ぶ。この角度内に入射した光は芯と鞘の界面で全反射を繰り返しながら伝達して行く。

我々は光学繊維として三菱レイヨン市販のエスカ（商品名）を用いた。エスカは芯にメタクリル樹脂、鞘に透明弗素樹脂を用いている。エスカの光学特性を第2表に示す。これよりエスカの受光角は 62° と求められる。エスカ端面に置かれた点光源から出射する光をエスカが受取る割合は $(1 - \cos \theta_c) / 2 \approx 7.3\%$ となる。

アクリル系ライトガイドを光伝達媒体として使用した場合を考察する。(2)、(3)式で $n_2 = 1$ と

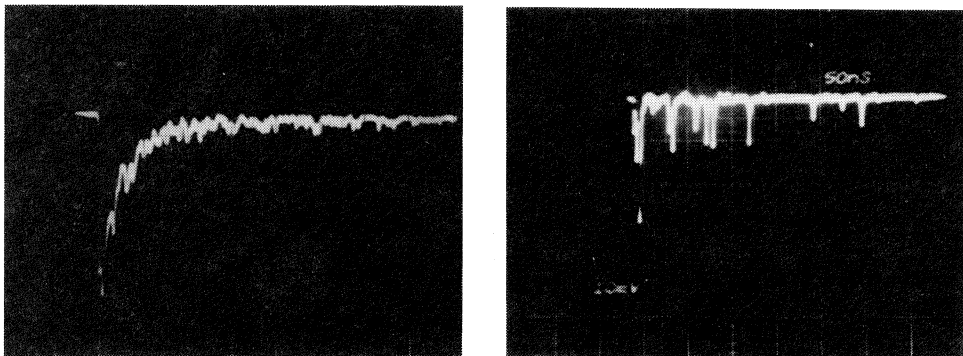
第2表 エスカの光学特性。

芯材屈折率	1.495 (n_1)
鞘材屈折率	1.402 (n_2)
開口数 (N.A.)	0.5 (N.A. = $\sqrt{n_1^2 - n_2^2}$)
受光角	60° (受光角 = $2\sin^{-1}(\text{N.A.})$)
透光率 (平行光)	50%/m (波長 400 nm)

すると、 $n_1 \leq \sqrt{2}$ の時のみ θ_c は存在する。逆に $n_1 > \sqrt{2}$ の物質の受光角は 180° となりこれに空気中から入った光は、入射面に垂直な側面では必ず全反射をすることになり、大変効率のよい光伝達媒体となる。よって、光学繊維 (最大の構造的特徴はフレキシブルである) を用いずに済む場合はアクリル系ライトガイドを利用すべきである。

§ 5. 測定系の評価

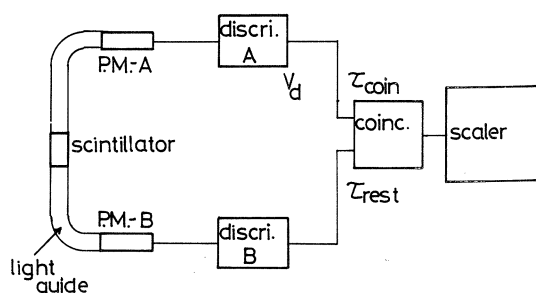
エンコード方式²⁾ではシンチレーター内で生じたシンチレーション光を光学繊維で分割して複数の P.M. に伝達させる必要がある。シンチレーション光は、P.M. に達するまでに種々の過程で損失し、ある場合には数個の光子のみが P.M. に達するようなことがある。第5図にその様子を示してある。(a)はシンチレーターを直接 P.M. に接続した時の出力波形で(b)はライトガイド等を経た後の出力波形の一例である。このように光子数が極端に少なくなっている出力波形は、光子数の揺らぎが大きいいため、観測される出力波形の外形は多種多様であるが、離散的パルス



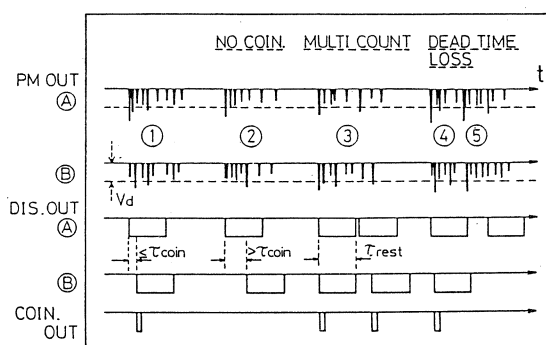
第5図 P.M. の出力波形, (a)シンチレーターを直接 P.M. に接続したとき。(b)ライトガイド等を経て、光量損失があるとき。

集団となることは共通している。そこで測定系に要求されるのは、このパルス集団を1個の中性子によるものとして計数することである。

更に、エンコード方式では、P.M.出力パルスの同時計数をとる必要が生じるが、このような離散的パルス集団間の同時計数をとるのはそれ程容易ではない。数種類の新たなパラメーターを導入することにより、これからの評価が可能となった。これを二分割エンコード方式を例にとって、第6図、第7図をもとに説明する。第6図は信号波形処理操作過程を、また第7図は各過程での出力波形(模式図)を示す。



第6図 シンチレーターからの光を2分割した後の信号処理操作過程。



第7図 第6図での各処理過程での出力模式波形。

シンチレーターからのシンチレー

ション光は二分割されP.M.-A、及びP.M.-Bに達する。それぞれの出力波形を第7図に示す。P.M.出力信号はディスクリミネーター(レベル V_d)を経ることにより、微小なパルスは切り捨てられる。レベル V_d を越えるパルスが集団の中にあると、幅 τ_{rest} の矩形波が出される。一度この信号が出ると、その後 τ_{rest} の間にレベル V_d を越えるパルスが存在してもそれらは無視される。このようにしてディスクリミネーターより出力した信号は同時計数器に入力される。同時計数時間を τ_{coin} とすると、この時間内に2つの入力があった場合、同時計数と見做し、中性子入力があったとし、相当する信号が出力される。

V_d 、 τ_{rest} 、 τ_{coin} のパラメーターを適当に定めることにより、離散的パルス集団の同時計数が可能となったわけだが、これらのパラメーターの選び方如何によっては、同時計数がないとか、多重計数や数え落としといった誤った中性子計数を引き起こす場合があるので、それについて説明する。

第7図、②、が同時計数無しの場合で、ディスクリミネーター出力波形の時間差が τ_{coin} より大きいと、同時計数と見做されない。救済措置としては、 V_d を小さくすること及び τ_{coin} を長

くすることである。

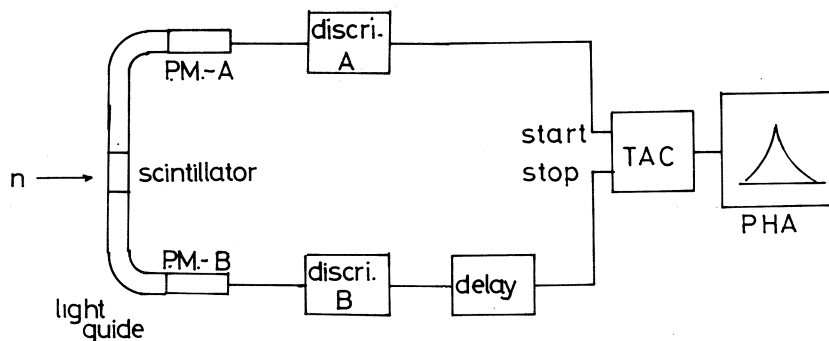
第7図, ③, が多重計数の例で, 一つのパルス集団の中で τ_{rest} 離れた時間間隔に V_d より大きいパルスが2つ以上あり, ディスクリミネーター出力が2つ以上あるとし, 2個以上の集団があると見做される。救済措置としては V_d を大きくすること及び τ_{rest} を長くすることである。

第7図, ④, が数え落としの例で, 2個の離散的パルス集団が存在し, それが接近し過ぎており, V_d より大きいパルスが τ_{rest} 内に含まれてしまい, ディスクリミネーター出力が1つしかないので, 1個の離散的パルス集団と見做される。救済措置としては τ_{rest} を短くすることである。

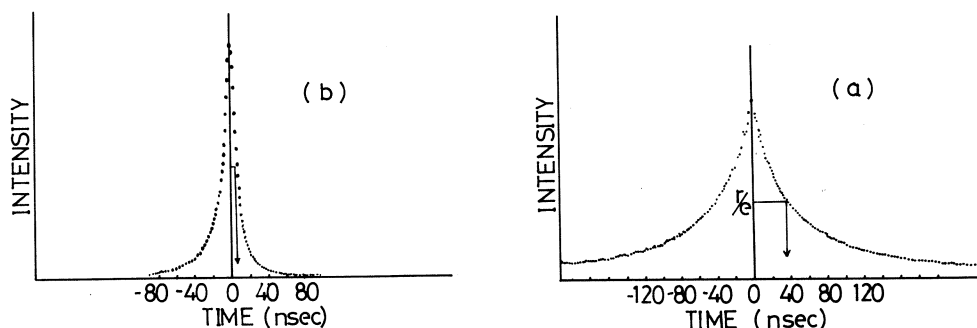
このように離散的パルス集団間で精度の良い同時計数を行う(1個の入射中性子を1個と数える)には, V_d , τ_{rest} , τ_{coin} のパラメーターに相反する要求が出てきており, パラメーター間の整合が重要になってくる。以下でパラメーターの意味を検討する。

5.1. 同時計数時間: τ_{coin}

シンチレーション光の減衰は光学系に大きく依存する。 τ_{coin} を評価するために次のような実験を行った。実験配置を第8図に示す。ディスクリミネーターBの信号を遅延, 回路に入力させた後, 時間波高変換器(TAC)のSTOPに入力させる。一方, TACのSTARTにはディスクリミネーターAの信号を直接入力する。ここで用いたディスクリミネーターは第6図のディスクリミネーターと同一で, レベル V_d を越えるパルスが離散的パルス集団にあると, それに同期して一定幅の矩形波を出力する。第8図の測定系で得られた結果を第9図に示す。図で中央のピーク位置はディスクリミネーターA, Bの出力信号が同時に発生したことを意味し, ピーク位置から離れた時間だけA, Bのディスクリミネーターからの出力信号の発生時間に差があったことを意味する。

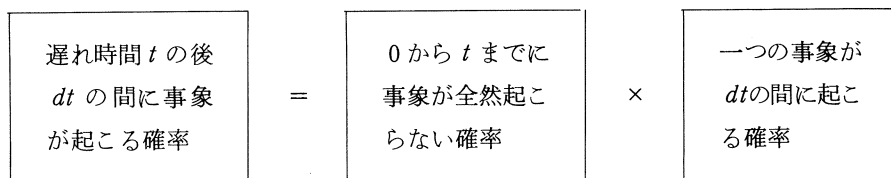


第8図 τ_{coin} を評価するための実験配置。



第9図 第8図の実験配置で得られた結果の例 (a)光損失の大きい光学系, (b)光損失の小さい光学系。

さて、第9図のスペクトルは隣接するランダムな事象間の時間間隔を示す分布関数に相当することが、次の様に証明される。まずディスクリミネーターAからの信号が時刻 $t = 0$ に起こったとする。時間 t を経た後の微小時間 dt の間にディスクリミネーターBからの信号が起る確率を調べる。この場合、時間間隔 0 から t までの間にはBからの信号は起らず、その後の時間増分 dt の間にBから信号が起こらねばならない。従って全体の確立は次の二つの過程が起こる確率の積で与えられる。

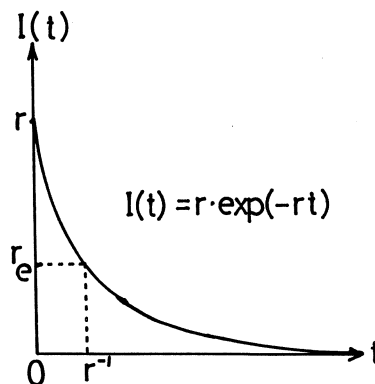


中性子が検出される平均の時間率すなわち計数率を r とする。右辺第2項の微小時間 dt 内に一つの事象が発生する確率は rdt となる。右辺第1項は平均数 rt を有するポアソン分布で 0 から t の間に事象が全然起こらない確率として求められ、 $\exp(-rt)$ となる。

そこで、

$$I(t)dt = r \cdot \exp(-rt) dt \quad (4)$$

と求まる。 $I(t)$ は隣接したランダム事象間の間隔に対する分布関数で第10図に示すような簡単な指数関数である。この図で確率が最も高い時間間隔はゼロであること



第10図 ランダムな事象間の時間間隔を示す分布関数。

がわかる。平均の時間間隔の長さは次式で計算される。

$$\bar{t} = \frac{\int_0^{\infty} t I(t) dt}{\int_0^{\infty} I(t) dt} = \frac{1}{r} \quad (5)$$

第9図(a)は光損失の大きい光学系, 第9図(b)は光損失の小さい光学系による測定結果で, 平均時間間隔の長さはそれぞれ 35 nsec, 7 nsec と見積もられる。

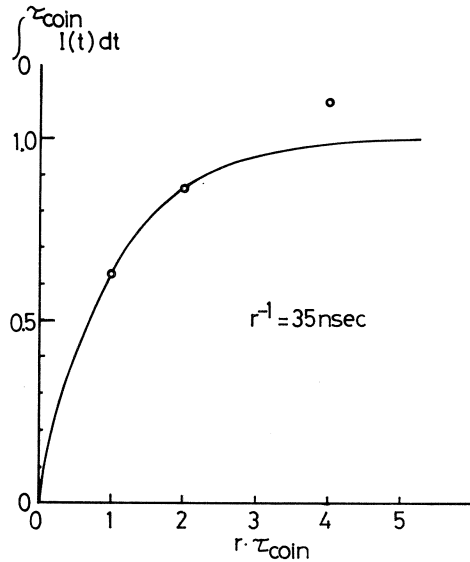
τ_{coin} をパラメーターにとっての測定は, (4) 式で $I(t)$ を 0 から τ_{coin} まで積分することに対応する。

$$\int_0^{\tau_{\text{coin}}} I(t) dt = 1 - \exp(-r \tau_{\text{coin}}) \quad (6)$$

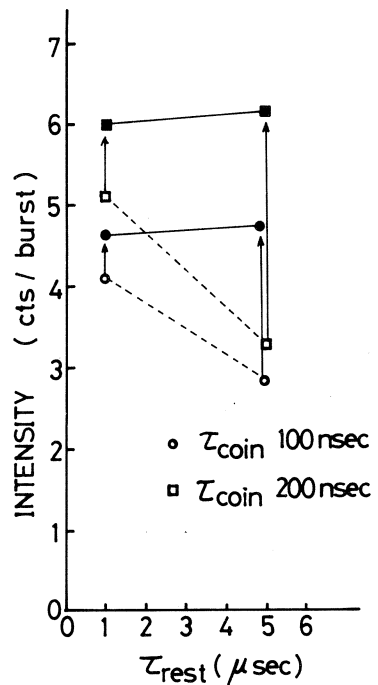
平均時間間隔が 35 nsec の光学系で, τ_{coin} をパラメーターにした時の測定結果を(6)式と併せて第11図に示す。実測値と(6)式は $r \tau_{\text{coin}} = 1$ の点で規格化してある。実測値が(6)式で良く説明されることがわかる。 $r \tau_{\text{coin}} = 4$ で実測値が大きくなっているのは, バックグラウンドの差引が施されていないためと考えられる。 τ_{coin} を平均時間間隔の 3 倍にとると, 95%以上を同時計数として取り込めることがわかる。つまり(a)の光学系では 105nsec, (b)では 21nsec の τ_{coin} がそれに相当する。

5.2. 待ち時間 (不感時間) τ_{rest}

τ_{rest} が測定系の不感時間になっていることが次の実験から証明される。パイロリティック・グラファイトの 004 Bragg 反射強度を τ_{rest} を変えて TOF 法で測定する。測定結果を第12図に示す。図で \square と \circ は異なる τ_{coin} での結果である。今ここで, τ_{rest} が不感時



第11図 τ_{coin} を変化させた時の中性子計数図。



第12図 τ_{rest} を変化させた時の中性子計数図。

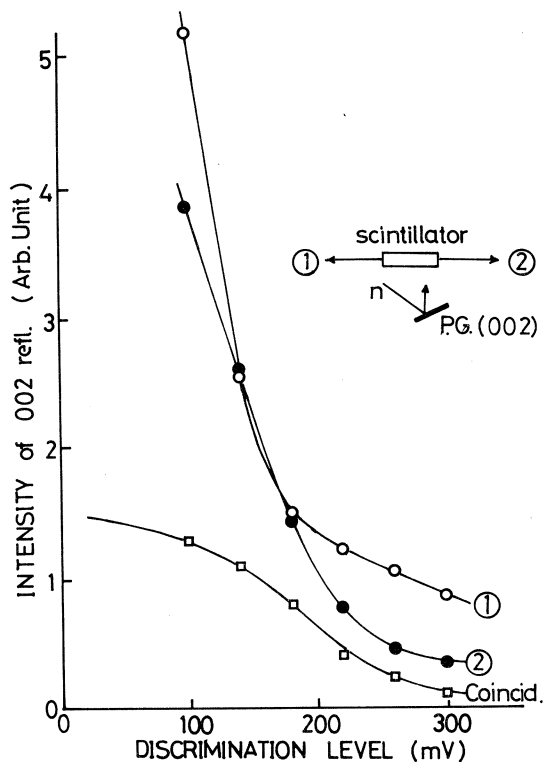
間に相当すると仮定して数え落としの補正の式で真の計算を求めてみる。

$$n = \frac{m}{1 - m \cdot \tau_{rest}} \quad (7)$$

ここで、 n は真の計数率、 m は実測計数率である。実測計数率は、004反射のTOFスペクトルの半値幅が $35 \mu\text{sec}$ で、測定は1000回のパルス中性子発生で行ったので、1秒当たりの計数率、つまり004反射の積分強度を $(35 \times 1000) \mu\text{sec}$ で割った値である。(7)式で n を計算した結果が■と●である。一定値の n が得られ、 τ_{rest} が将に測定系の不感時間に対応していることが裏付けられた。

5.3. ディスクリミネーターレベル V_d

第6図の測定系でA側のみ、あるいはB側のみ V_d を変化させて中性子散乱強度を計数した結果が第13図である。 V_d が180 mV以下になると、A、B共に計数が急激に増える。これは一つの離散的パルス集団の中の個々のパルスが計数されたもので、いわゆる多重計数である。A、Bの同時計数をとると、 V_d を小さくしたことによって生ずる多重計数が救済されていることがわかる。これは次のように解釈できよう。1回の中性子検出で発生するシンチレーション光子数は、ある揺らぎの範囲内で一定している。2分割され光学系で損失し、P.M.に達する時、全光子数は減っている。P.M.-A、及びP.M.-Bに等量の光子が達する確率は小さく、P.M.-AとP.M.-Bとでは数の異なる光子が達する確率が高い。であるから、大きい V_d でディスクリミネートすると、片方の信号しか得られず、同時計数はとれなくなる。 V_d を小さくしていくと、P.M.-A及びP.M.-Bの両方からの信号共に V_d を越える。そして、光子数の多いP.M.側では V_d を越えるパルスが複数になり、これだけを測定すると多重計数となる。



第13図 V_d を変化させた時の中性子計数。

しかし、両P.M.側で複数になる確率はずっと小さく、同時計数をとることにより正常に1個の中性子を検出・計数したことになる。

§ 6. 結 論

エンコード方式によるガラスシンチレーター-PSDの最大の特徴は高い計数効率に耐え得るPSDと期待されているが、実用化を考えるとそれ程簡単でないことが判明した。ただ決して不可能というわけではなく、その光学系・測定系の評価がなされれば、解決の糸口がつかめると考えている。ここで述べたパラメーターを取り入れたPSDをすでに建設しておく。このPSDの詳細は別報とするが、本報告で述べた評価は今後更に検討を加え改善されていくと考える。

参 考 文 献

- 1) 新村信雄, 松本明, 苅谷道郎, 原田仁平, 星埜禎男: 核理研研究報告 **13** (1980) 102.
- 2) N. Niimura, K. Yamada, T. Kubota, A. Matsumoto and S. Hoshino: Nucl. Instrum. & Methods **211** (1983) 203.

アンガーカメラ方式による位置敏感 中性子シンチレーター検出器 (II)

核理研, 理学部物理*

新村信雄・山田和芳・窪田健雄
佐藤正幸・高橋孝弘*・目良 充*
菅野祐司*・藤本弘之*・今野順一*
綿引達也*・小山直仁*・笹川 修*

§ 1. はじめに

第I報で第1図に示す光電子増倍管(P.M.)配置でのアンガーカメラ方式による位置敏感中性子シンチレーター検出器(PSD)の最適光学系をコンピュータシミュレーションで行った結果を述べた¹⁾。そこでの結果をまとめると次のようになる。

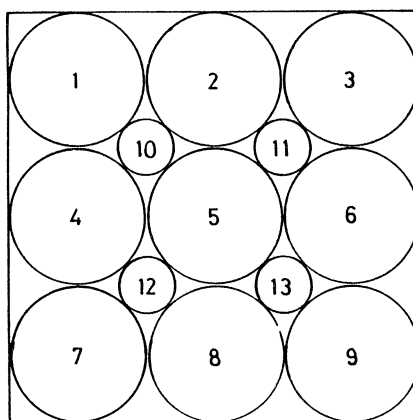
- i) 大きさの異なるP.M.の組合せで位置決めは可能である。
- ii) 空気層0.1 mm, 分散体の厚み110 mm ~ 130 mmで直線性, 分解能が最適になる。
- iii) 2"φのP.M.と5"φのP.M.規格因子は3.6である。

これらの計算結果に基づき, PSD及びその測定系を製作し, 種々の予備研究を行ったのでその結果を報告する。

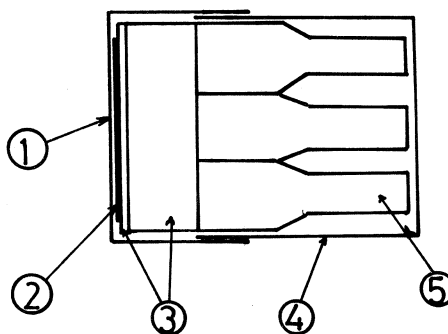
§ 2. PSDの光学系

第2図にアンガーカメラPSDの光学系の構成図を示す。

シンチレーターは直径340 mm, 厚さ1 mmの⁶Li ガラスシンチレーターで, 取扱い安全の



第1図 アンガーカメラのP.M.配置図。
大きいP.M.は5"φ 小さいP.M.は2"φ。



第2図 アンガーカメラの光学系構成。
①アルミニウム・キャップ ③分散体
②シンチレーター ④光遮蔽用アルミニウム箱
⑤P.M.

ため、厚さ10mmの光学用ガラスの上に張ってある。但し、シンチレーターと光学用ガラスの間隙には空気層が入るようにしてある。シンチレーターは製作上の都合で1/4円周のものを4枚連結したもので、接続面のPSDへの効果の検討は今後の問題として残る。

分散体 (Disperser) は PSD 全体の重量を考慮し、アクリル板を使用した。更に分散体の厚みは PSD の性能に強く依存するので、可変とし、5 cm 厚を 4 枚、1 cm 厚を 4 枚用意した。また前述のシンチレーターを張った10mm厚のガラスも分散体の役をかうので、これらの組み合わせで分散体は構成される。

P.M. は第1図に示すように5"φのもの9本と2"φのもの4本から構成される。

以上の構成要素がアルミニウムの暗箱に納められる。尚シンチレーターの中性子入射側には、光の反射材として、アルミニウム箔を張ってある。

§ 3. PSDの演算回路系

第1図のP.M.配置での中性子入射位置(L_x , L_y)は、次式によって求められる。

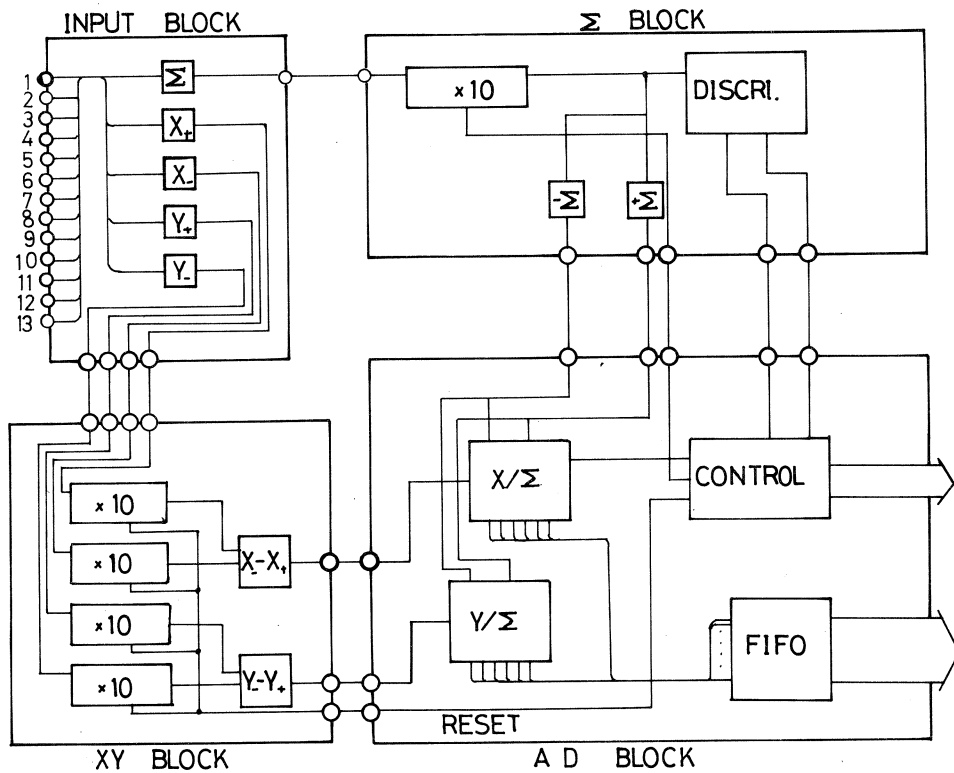
$$\left. \begin{aligned} L_x &= \{ \{ (I_3 + I_6 + I_9) + w(I_{11} + I_{13}) \\ &\quad - \{ (I_1 + I_4 + I_7) + w(I_{10} + I_{12}) \} \} \} / \Sigma \\ L_y &= \{ \{ (I_1 + I_2 + I_3) + w(I_{10} + I_{11}) \} \\ &\quad - \{ (I_7 + I_8 + I_9) + w(I_{12} + I_{13}) \} \} / \Sigma \\ \Sigma &= I_1 + I_2 + I_3 + I_4 + I_5 + I_6 + I_7 + I_8 + I_9 + w(I_{10} + I_{11} + I_{12} + I_{13}) \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

ここで I_i は i 番目の P.M. の出力、 w は 2"φ P.M. と 5"φ P.M. の規格因子である。

(1)式を第3図に示す回路系で実現した。

- ① INPUT BLOCK : (1)式の加算を行う回路で、規格因子 w は使用する抗抵値の比で調整する。現在の w は 3.6 にしてある。
- ② Σ BLOCK : INPUT BLOCK の中で Σ に相当する項は、信号の波高分析に使用できる。10倍増幅器を通した後、コンパレーターで波高の低域値、高域値、及び急速放電のリセット・レベル値を決めている。尚反転増幅器で Σ も出力している。
- ③ X・Y BLOCK : INPUT BLOCK で作られた X_+ , X_- , Y_+ , Y_- に10倍増幅した後、減算 $X = X_- - X_+$, $Y = Y_- - Y_+$ を行う回路である。
- ④ A/D BLOCK : ADC によって、最終的に $L_x = X/\Sigma$, $L_y = Y/\Sigma$ を求める。このデータは FIFO に格納され、その後コンピューター (IF-800 ; M-30) に転送されるが、ADC のトリガー、 Σ BLOCK, XY BLOCK で使用されている10倍増幅器のリセット及び FIFO

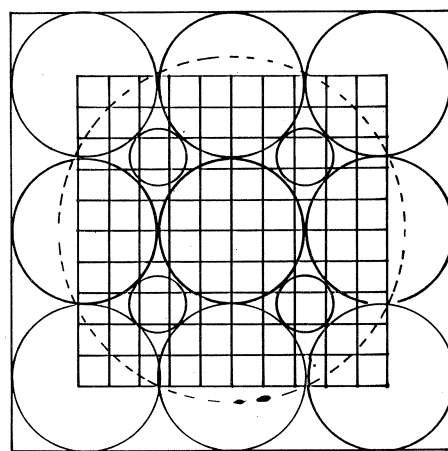
トリガー等の制御もここで行われている。



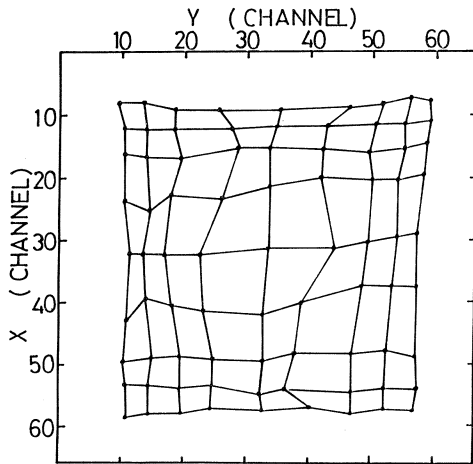
第3図 PSDの演算回路系のブロック図。

§ 4. LEDによるPSD調整

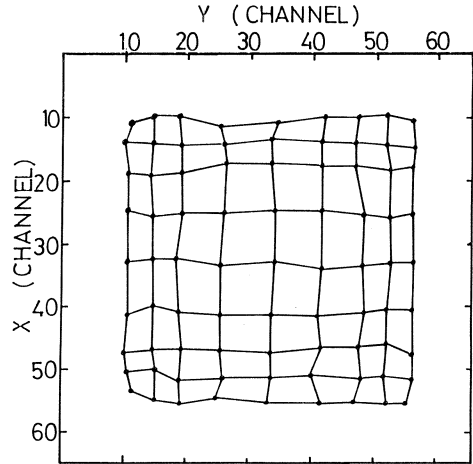
光学系、演算回路系、P.M.の調整等を行うために、LED (Light Emit Diode) を用いた調整実験を行った。第4図に示すように3cm間隔の格子点上にLEDを配置した板を製作し、シンチレーター位置に設置した。各LEDが独立に発光できる発光回路を製作した。尚、LEDの発光量及び発光回数は可変とした。PSDの直線性はP.M.印加の高電圧に依存する。次の様なステップでP.M.の高電圧調整を行った。まず、同一のシンチレーターを用い、各P.M.毎に波高分



第4図 3cm間隔の格子点状に配置したLEDとP.M.とシンチレーターの相互配置。



第5図 P.M.単独の特性曲線から得られる高電圧値を用いて決められたLED格子。

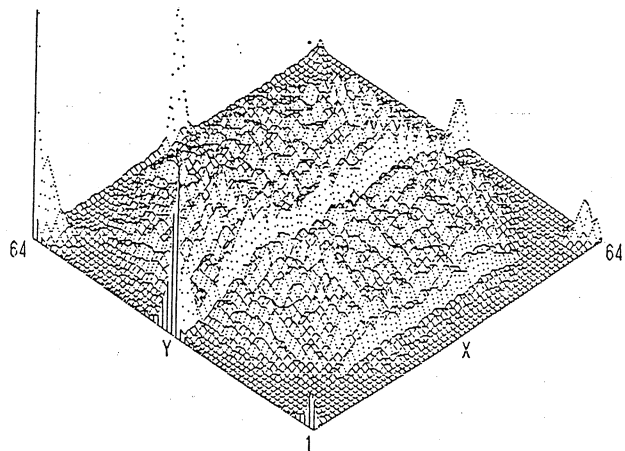


第6図 各P.M.の高電圧値を調整した後、決められたLED格子。

布の高電圧特性曲線を求めた。この結果からP.M.の初期高電圧を設定した。この高電圧で、LED格子の位置決めを行った結果が第5図である。格子はかなり歪んでいる。次に試行錯誤で高電圧の微調整を行ったが2"φP.M.と5"φP.M.夫々分離して行くと調整が容易であることが判明した。最終的に得られた結果を第6図に示すが、中心からはずれた方向での直線性は、まだ悪い。更に調整を加えるが何らかの補正が最終的には必要と考えている。

§ 5. P.M. の電気雑音と同時計数回路

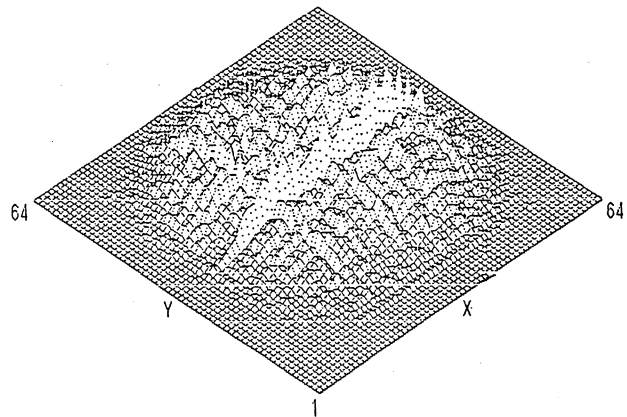
${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターで中性子が検出されたときに出るシンチレーション光は非常に微弱であるため、回路系でP.M.信号が充分取扱える大きさにするため、一般にP.M.印加の高電圧を高く設定する。このため、P.M.特有の電気雑音が多くなり、測定値のバックグラウンド増となる。但し、この電気雑音の特徴は各P.M.間に信号の相関がないので同時計数回



第7図 PSD前面にCf中性子源を置いた時、得られた結果。

路で除去可能である。

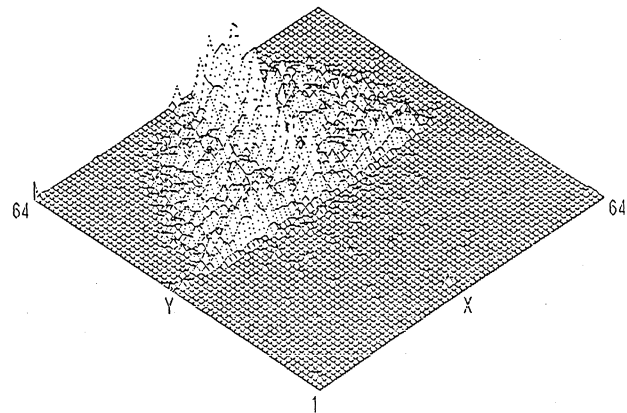
第7図にCf中性子源をPSD中心に置いた時の測定結果を示す。図の端にいくつかのピークが観測されているが、これらはP.M.の電気雑音によるものである。これを5番目と13番目のP.M.信号間で同時計数をとると第8図のように端のピークが除去できていることがわかる。



第8図 第7図を得た実験条件に、更に5番目と13番目のP.M.信号で同時計数をとった時の結果。

§ 6. 今後の課題

当該PSDのオフ・ビームでの調整後、パルス中性子を用いたテスト実験を行った。調整がくれ、最後のマシンタイムで行った実験結果が第9図である。パラフィンブロックでシンチレーター半分を覆った結果である。一応PSDとしてパルス中性子実験に使用できる用途はこれであった。以下、実用化に向けての今後の課題を列挙する。



第9図 ポリエチレンシートで散乱されたパルス中性子をPSDで受けた結果。

- i) 13本のP.M.からの信号で5本以上のP.M.から同時に信号があった場合にのみ信号と見る同時計数回路を製作する。
- ii) パルスビームを用い、PSDの性能(直線性、分解能等)を検討する。
- iii) 光学系の遮蔽を検討する。

参 考 文 献

- 1) 目良充, 新村信雄, 山田和芳, 窪田健雄, 石川義和: 核理研研究報告 15(1982)76.

Ⅲ. 放 射 化 学

チオライトの加熱変化およびストロンチウムに対する吸着特性

選研

三村 均

§ 1. 緒 言

無機イオン交換体の一種で、三次元のカゴ型構造を有するゼオライトを、高濃度のフッ酸で処理するとチオライト (Chiolite, 白雪石, $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$) が生成する。¹⁾ 著者らは、前報²⁾において、高濃度のフッ酸溶液中における、ゼオライトへのSrの分配挙動を調べたところ、かなり高い分配係数値が得られ、これはゼオライトとフッ酸との反応生成物であるチオライトが、Srに対してかなりの吸着能を有するためであろうと推定した。

従来、チオライトの吸着特性に関する報告はなく、その構造についても詳細な解析はなされていない。ただ、ケイ酸塩は SiO_4 四面体のO共有の連結構造をとるが、チオライトはこれに類似して、 AlF_6 八面体のF共有の連結構造をとり、中断層を形成していると推定されている³⁾

本研究では、この層状構造を有するチオライトの加熱変化およびSrに対する吸着特性を調べ、その放射性廃液処理への有効利用について検討した。

§ 2. 実 験

2.1 チオライトの製造

合成ゼオライトの中で、Si/Al比の低いA型 (Si/Al=1), X型 (Si/Al=1.25), およびY型 (Si/Al=2.5)を用いて、フッ酸処理を行なうとチオライトが生成する。¹⁾ 本研究では、最もチオライトが生成し易いA型ゼオライト (Baylith T-144, 西独バイエル社製) を原料とした。A型ゼオライトは、乾式法で32~48, および200メッシュに分級し、飽和 NH_4Cl 溶液の入った密封容器中に数日静置し、吸着水量を一定に保持したものを精秤して用いた。

まず、チオライトの生成条件をあらかじめ把握しておくため、A型ゼオライト一定量に対して処理フッ酸濃度を変化させ、ゼオライト構造の破壊およびチオライト生成について検討した。チオライトの生成は、処理試料の粉末X線回折*および密度測定 (トルエン使用, アルキメデス法)

* 粉末X線回折の測定条件は以下の通りである。

Target, Cu; Filter, Ni; Voltage, 30 KVP; Current, 10 mA; Scale factor, $\times 4000$;
Time const., 1 sec.; Scan speed, $2^\circ/\text{min.}$; Chart speed 2 cm/min.; Divergency, 1° ;
Receiving slit, 0.3 mm.

により調べた。

処理試料の一部は分配実験に用いて、Srに対する吸着性を以下の方法により調べた。処理試料(～200メッシュ)を100mg精秤し、トレーサーとして ^{85}Sr (核理研LINACで $^{85}\text{Sr}(r, n)$ ^{85}Sr 反応により照射製造)を含むRI溶液($10^{-2}\mu\text{Ci/ml}$, キャリアSr50ppm)20mlに添加し、25°Cで24時間振とうした。一定量の上澄液を遠心分離(3000rpm, 10分)後、その r 放射能を測定することにより、Srの分配係数(K_{Sr} , ml/g)を、以下の式により求めた。

$$K_{\text{Sr}} = \{(A_i - A_f) / A_f\} V / m \quad (\text{ml/g}) \quad (1)$$

ここで、 A_i および A_f は、初期および平衡後の放射能、 V/m は固液比である。

2.2 熱分析

チオライトの加熱変化は、理学電機製高温型示差熱天秤を用いて、示差熱分析(DTA)** および熱重量分析(TG)**を行なって調べた。なお、相変化は、焼成処理を行なった試料の粉末X線回折により検討した。

2.3 化学的安定性

10^{-4} ～5Mまでの硝酸、フッ酸、フッ化ナトリウムおよびフッ化カリウム溶液100mlに、チオライト500mgを添加し、25°Cで24時間の振とう処理を行なった。処理試料はX線回折により構造変化を調べ、さらに2.1と同様の方法により、Srの分配についても検討した。

2.4 分配に及ぼすpHおよび Na^+ 濃度の影響

A型ゼオライトを、5Mのフッ酸で処理して製造したチオライトを用いて、Srの分配に及ぼすpH(初期pH1.1～4.7)および Na^+ 濃度(NaCl , ～2M)の影響を調べた。分配実験は2.1とほぼ同様の方法で行なった。

2.5 吸着速度および吸着機構

前節で用いたものと同じチオライトを用いて、Srの吸着速度について検討した。実験は、チオライト1gを、SrのRI溶液50ml(^{85}Sr $10^{-2}\mu\text{Ci/ml}$, キャリアSr50ppm)に添加し、25°Cの恒温槽中で振とうした。一定時間毎に液中の r 放射能を測定し、Sr吸着率の時間変化を調べた。吸着率(R , %)は以下の式により求めた。

$$R = (A_i - A_f) \times 100 / A_i \quad (\%) \quad (2)$$

吸着機構については、 K_{Sr} 値の温度変化および吸着等温線を求めて検討した。 K_{Sr} 値の温度

** 熱分析の測定条件は以下の通りである。

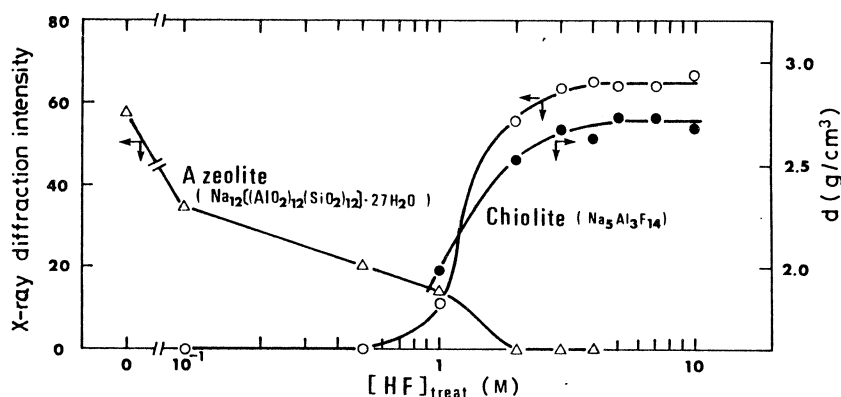
DTA range, $\pm 100\mu\text{V}$; TG range, 100 mg; Scan speed, $10^\circ\text{C}/\text{min.}$; Chart speed, 2.5 mm/min.; Temp. range, 20 mV (～1200°C); Atmosphere, in air; Thermo-couple, Pt-Pt Rh 13%; Standard sample, Al_2O_3 .

変化は、2.1と同様の方法により行ない、液温を15℃～40℃まで変化させて調べた。吸着等温線は50mg程度のチオライトを精秤して使用し、Srイオンの平衡濃度9.2～331 ppmまでの範囲におけるSrの平衡吸着量を測定して求めた。この吸着等温線の形からラングミュア型と推定されたので、ラングミュアプロットを行なった。

§ 3. 結果と考察

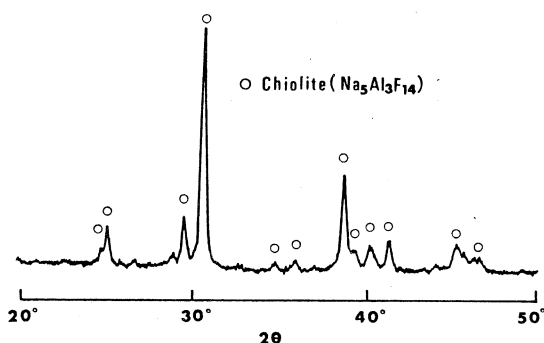
3.1 チオライトの生成

A型ゼオライトのフッ酸処理によるチオライトの生成について第1図に示した。フッ酸の処



第1図 Chiolite formed by treatment with HF.
(Zeolite, 32-48 mesh, 0.5 g; HF soln, 25ml; 25°C, 24 hr)

理濃度に対して、A型ゼオライトは $hkl(410)$ 、チオライトは $hkl(202)$ での回折線強度の変化を示している。10⁻²M以下のフッ酸処理では、A型ゼオライトの構造変化はほとんど認められないが、10⁻¹M処理から回折線強度の低下が認められ、2 M処理ではゼオライト構造は完全に消失する。一方、1 Mフッ酸処理からチオライトの生成が認められ、3 M処理まで急激にチオライト生成量が増加し、それ以上ではほぼ一定量のチオライトが生成した。これに対応して、密度変化も、A型ゼオライトが含有されている場合には、2.0程度であるが、チオライト生成に伴ない2.7程度まで急激に増加した。



第2図 X-ray diffraction pattern for chiolite.

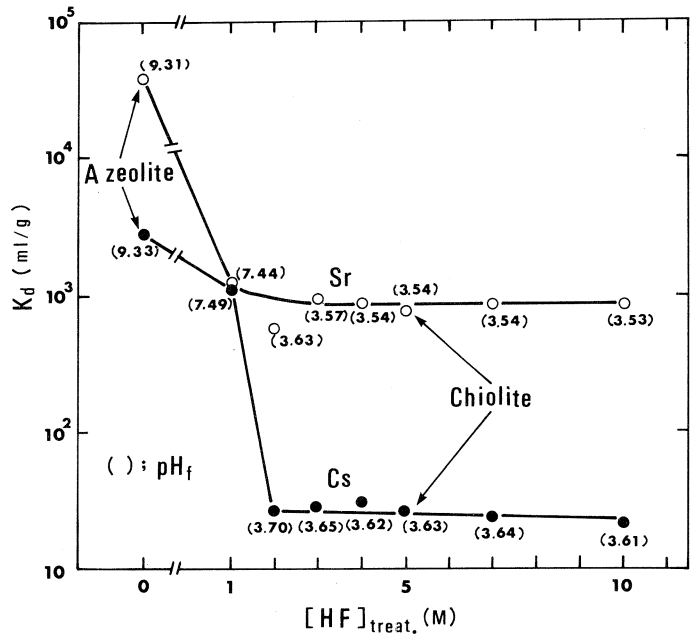
たチオライトの粉末X線回折像を示した。なお、フッ酸処理によるチオライトの生成反応は、化学量論的に進行しており、チオライト生成と同時にフッ化ケイ素ガス (SiF_4) も発生した。

これらフッ酸処理試料に対する Sr の分配係数値 (K_{Sr}) を、第 3 図に示した。未処理の A 型ゼオライトは極めて高い K_{Sr} 値 ($> 10^4$) を有するが、1 M 以上のフッ酸処理でチオライトが生成している試料においても

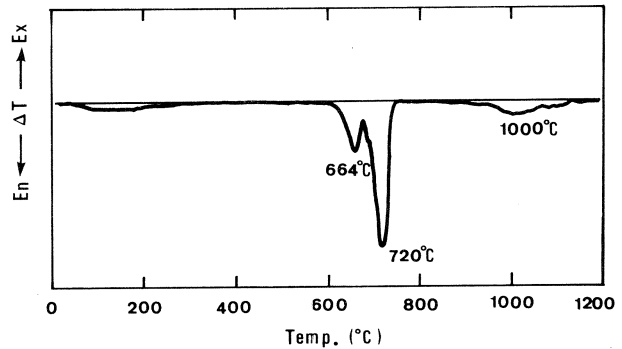
800~1000 程度のかなり高い K_{Sr} 値を示している。 K_{Sr} は 10 M 処理のものまでほぼ一定値を示した。一方、比較のため K_{Cs} 値も同様に測定したところ、A 型ゼオライトが存在する 1 M 処理のものまでは、 K_{Cs} が 10^3 以上の値を示したが、チオライト生成後は急激に低下しており、 K_{Cs} 値は 30 以下となって吸着能はかなり低下している。このことから、Sr と Cs の分離係数はほぼ 30 であり、Sr がチオライトにかなり優先的に吸着していることが分かる。

3.2 加熱変化

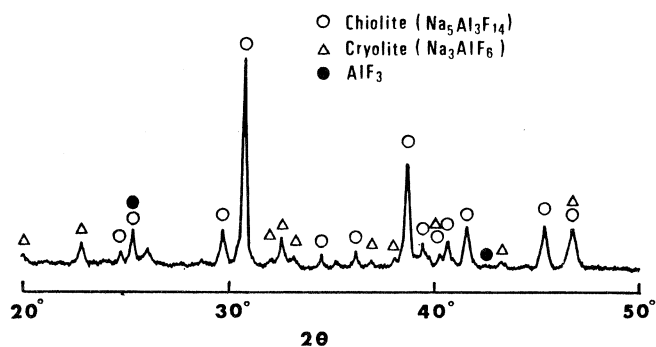
5 M のフッ酸処理により生成したチオライトの熱分析 (DTA) 結果を第 4 図に示した。600 °C 付近までは DTA 曲線にほとんど変化は認められないが、664 °C および 720 °C には 2 つの吸熱ピークが観察された。これらは、チオライトの一部が水晶石 (β -cryolite, Na_3AlF_6) および AlF_3 に熱分解し ($3\text{Na}_5\text{Al}_3$



第 3 図 K_{Sr} for chiolites.
(Chiolite, 200 mesh, 100 mg; 20 ml soln, ^{85}Sr $10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$, Carrier Sr 50 ppm, Initial pH 2.93)



第 4 図 DTA curve for chiolite.

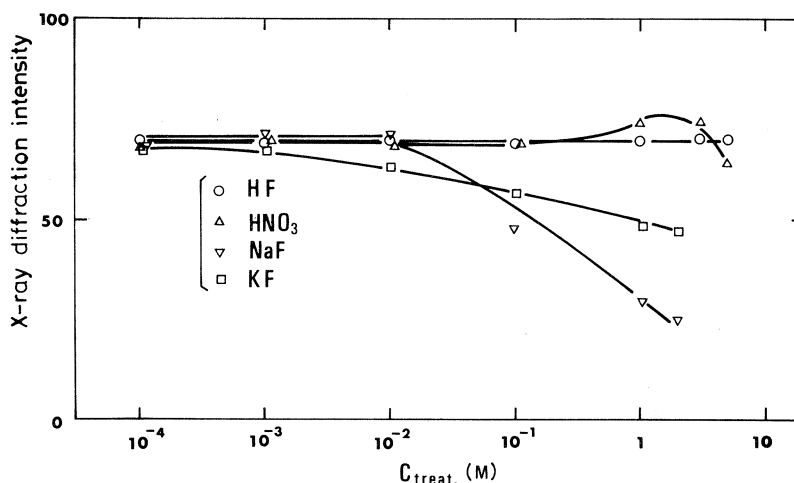


第5図 X-ray diffraction pattern for chiolite calcined at 700 °C.
(Calcining time 3hr)

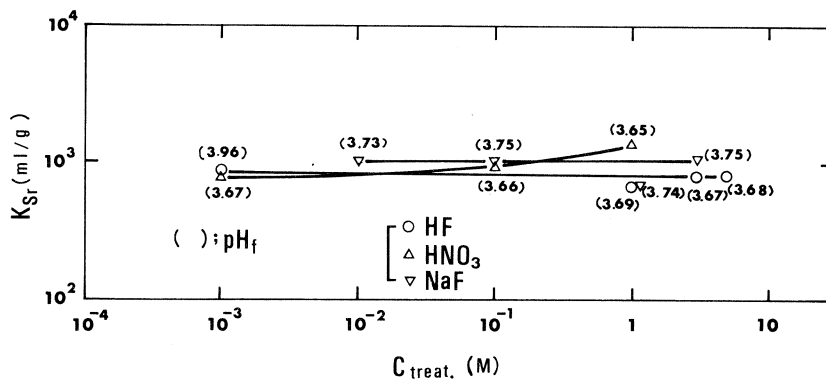
$F_{14} \rightarrow 5Na_3AlF_6 + 4AlF_3$), さらに残りのチオライトが融解したことに、それぞれ対応しているものと考えられる⁴⁾ なお、第5図にはチオライトを700 °Cで焼成処理した試料の粉末X線回折像を示した。

3.3 化学的安定性

硝酸、フッ酸、フッ化ナトリウムおよびフッ化カリウムの各溶液

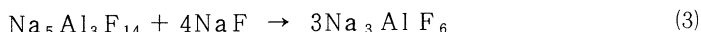


第6図 Chemical stability of chiolite.
(Chiolite, 200mesh, 500mg ; 100ml soln ; 25 °C, 24hr)

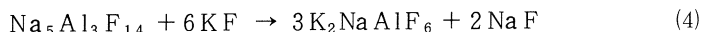


第7図 K_{Sr} for chiolites treated with HF, HNO₃ and NaF soln.
(Chiolite (treated), 200mesh, 200mg ; 20ml soln, ⁸⁵Sr 10⁻² μCi/ml, Carrier Sr 50ppm ; 25 °C, 24hr ; Initial pH 3.00)

中での、チオライトの化学的安定性について、構造変化およびSr分配の両面から検討し、その結果を第6図および第7図に示した。第6図は、処理濃度とチオライトの回折線強度 (hkl (202))との関係について示した。フッ酸処理によってはチオライト構造は全く変化せず、極めて安定であり、高濃度のフッ酸溶液中でのSrの除去に極めて有効であることが分かる。また、硝酸に対しても、1 M処理までは安定であったが、3 M以上では一部溶解が認められた。一方、フッ化ナトリウム塩溶液中では、 10^{-2} Mまでは安定であるが、それ以上では徐々に氷晶石⁴⁾の生成が認められた。これは以下の反応により進行したものと考えられる。



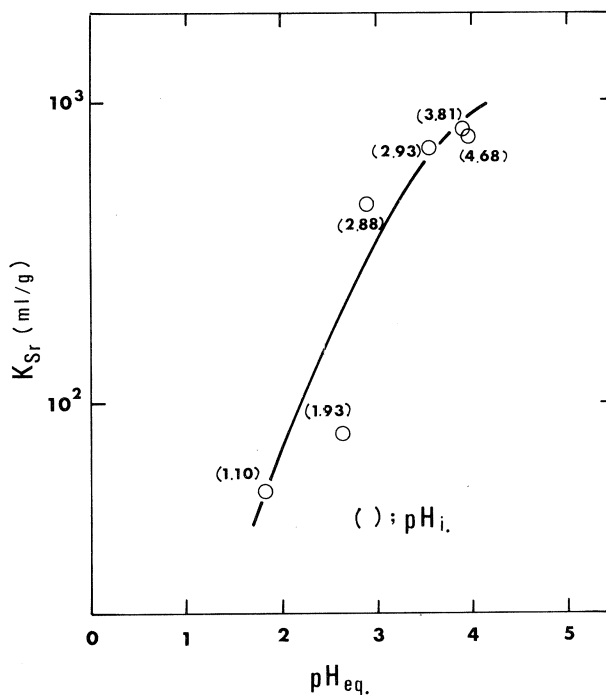
また、フッ化カリウム塩溶液中でも、以下の反応により、 10^{-2} M付近からエルパソライト (Elpasolite, K_2NaAlF_6)⁵⁾が生成するため、チオライトの回折線強度は徐々に低下する傾向が認められた。



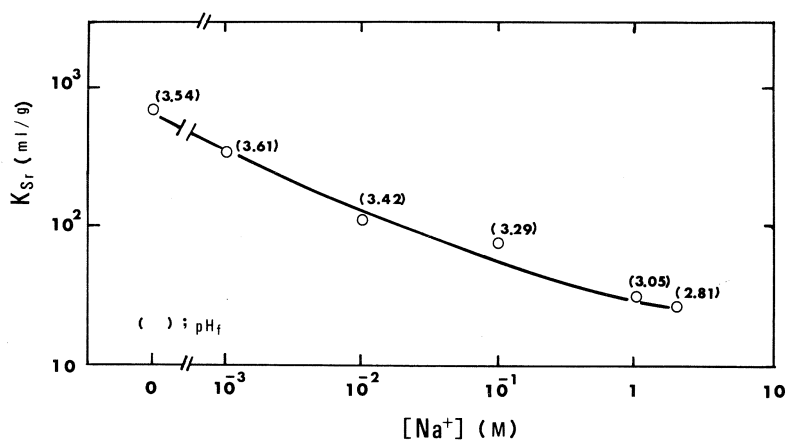
第7図には、これら処理試料の、処理濃度と K_{Sr} との関係を示した。いずれも5 M処理試料まで、ほぼ一定の 10^3 程度の K_{Sr} 値を有しており、チオライトの吸着性にほとんど変化は認められない。チオライトはSrにかなり高い吸着容量(4.32 meq./g)を有することから、NaFおよびKF処理で一部氷晶石およびエルパソライトが生成しても、その影響はほとんど認められなかった。

3.4 分配に及ぼす pH および Na^+ 濃度の影響

A型ゼオライトを5 Mのフッ酸で処理して製造したチオライトにおける、Sr分配のpH依存性を、第8図に示した。平衡pHが4付近では、 K_{Sr} は800程度の値を示したが、平衡pHに大きく依存しており、低pH領域では急激に低下する傾向が認められた。一方、比較のため氷晶石(森田化学工業



第8図 K_{Sr} vs. pH_{eq} .
(Chiolite, 200 mesh, 100 mg; 20 ml soln, $^{85}\text{Sr} 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$, Carrier Sr 50 ppm; 25°C , 24 hr)



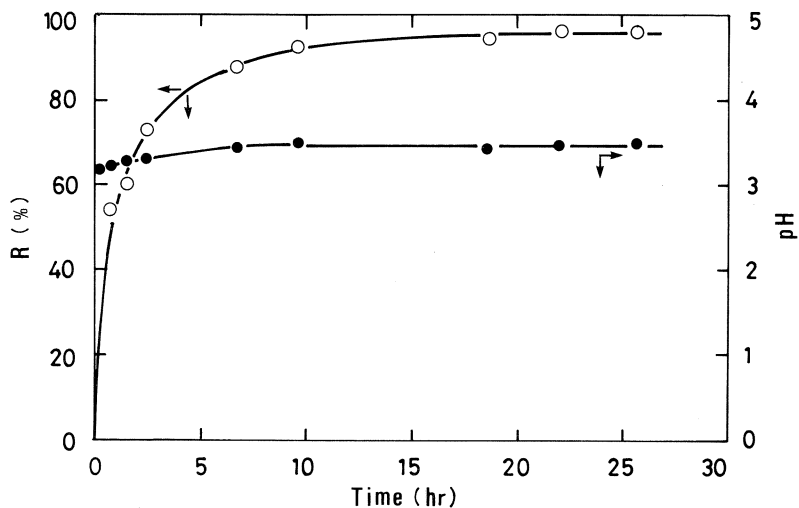
第9図 K_{Sr} vs. Na^+ concn.
(Chiolite, 200 mesh, 100 mg; 20 ml soln, ^{85}Sr $10^{-2} \mu Ci/ml$,
Carrier Sr 50 ppm; 25 °C, 24 hr)

製)の K_{Sr} 値も測定したが、10程度であり、Sr吸着能はほとんど認められなかった。

チオライトにおける K_{Sr} に対する Na^+ 濃度の影響について、第9図に示した。 Na^+ 濃度の増加に伴ない、 K_{Sr} は急激に低下する傾向が認められ、共存する Na^+ 濃度の影響はかなり大きいことが分かった。

3.5 吸着速度および吸着機構

チオライトにおけるSrの吸着率の時間変化を、第10図に示した。吸着速度はA型ゼオライトに比べるとやや低下しているが、ほぼ24時間後には平衡に達している。なお、液中のpHは、初期



第10図 Adsorption rate of Sr on chiolite.
(Chiolite, 200 mesh, 1g; 50 ml soln, ^{85}Sr $10^{-2} \mu Ci/ml$,
Carrier Sr 50 ppm; 25 °C)

にはわずかに上昇するが、10時間以後はほぼ一定のpHを示した。

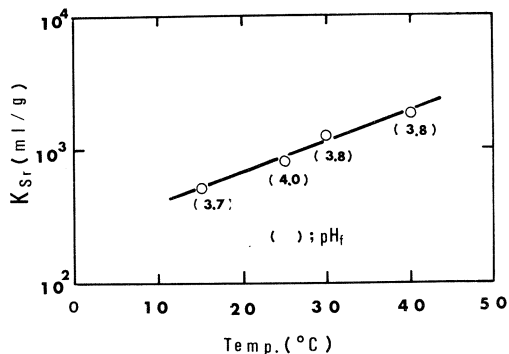
第11図には、 K_{Sr} に対する温度の影響を示した。15°~40°Cの温度範囲では、液温の上昇に伴ない、 K_{Sr} 値はほぼ直線的に増加する傾向が認められた。

吸着機構解析のため、まずイオン吸着等温線を作成した。第12図には、チオライトに対するSrイオンの吸着等温線を示した。なお、平衡pHはいずれも3.2~3.8の範囲内であった。チオライトへのSrの吸着においては、吸着速度がそれほど速くなく、しかも K_{Sr} 値が温度上昇とともに増加することからみて化学吸着と推定される。しかも定温吸着量は平衡イオン濃度が高いほど大きく、等温線の形より、その吸着機構はラングミュア型の交換吸着であろうと考えられる。ラングミュアの吸着等温式は次式で表わされる。⁷⁾

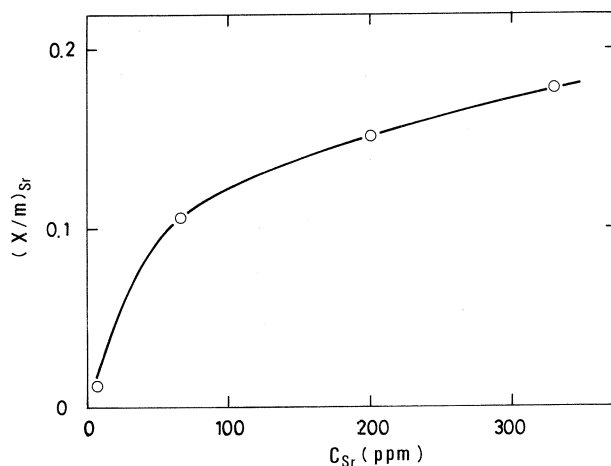
$$C_{Sr} / (X/m)_{Sr} = b_2/b_1 \cdot k + C_{Sr}/k \quad (5)$$

ここで、 $(X/m)_{Sr}$ はチオライトの単位重量当りのSrの吸着量、 C_{Sr} は吸着平衡の状態におけるSrイオンの濃度であり、 b_1 、 b_2 および k はイオン吸着エネルギーおよび吸着容量に基づく定数である。横軸に C_{Sr} 、縦軸に $C_{Sr} / (X/m)_{Sr}$ を示す時、上式が成立しているならば、正の切片を有する直線関係が得られるはずである。

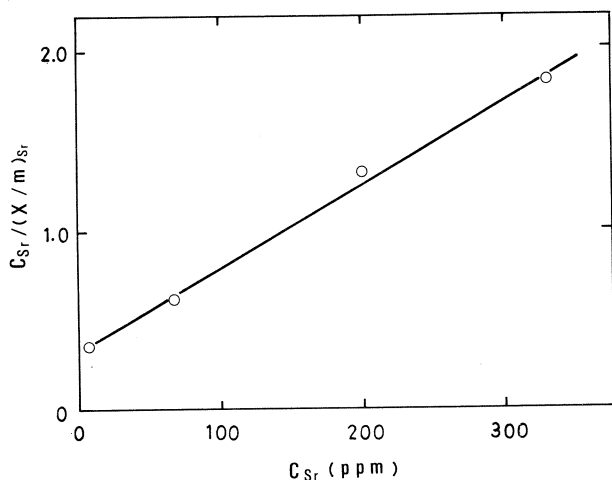
第13図には、チオライトにおけるSr吸着に対するラングミュアプロットを示した。Srイオンの平衡濃度 9.2 ~ 331 ppm までほぼ直線関係が認められ、ラングミュア型吸着で進行していることが分かる。チオライトは、 AlF_6 八面体のF共有の連結構造をとるとされており、 AlF_6



第11図 Effect of temperature on K_{Sr} .
(Chiolite, 200 mesh, 100 mg; 20 ml soln, ^{85}Sr $10^{-2} \mu Ci/ml$, Carrier Sr 50 ppm; 25°C, 24 hr; Initial pH 5.07)



第12図 Adsorption isotherm.
(Chiolite, 200 mesh, 50 mg; 20 ml soln; 25°C, 24 hr; Initial pH 5.4 - 6.6)



第13図 Langmuir plots for adsorption of Sr on chiolite.

八面体の半分は対極 2 頂点の共有, 半分は平面内の 4 頂点の共有による一種の層状構造 (中断層) で, $\{Al_3F_{14}\}_n^{5n-}$ イオンを形成している。³⁾ このため, 層間を通して進入した Sr イオンが Na と置換し, 各層間にはさみ込まれた形で化学吸着しているものと推定される。

§ 4. 結 論

- (1) チオライトは 1 M 以上のフッ酸処理により生成し, K_{Sr} は 800~1000 程度のかかなり高い値を示した。
- (2) チオライトは 664°C 付近で一部氷晶石 (β -cryolite) に熱分解し, さらに 720°C 付近で融解した。
- (3) フッ酸および硝酸にはかなり安定であるが, 10^{-2} M 以上のフッ化物塩 (NaF, KF) 溶液中では, 一部氷晶石およびエルパソライト (Elpasolite) が生成した。
- (4) K_{Sr} の pH 依存性および Na^+ 濃度の影響はかなり大きい。
- (5) チオライトへの Sr 吸着は, 24 時間でほぼ平衡に達し, 吸着量は温度上昇とともに増加した。ラングミュア型の化学吸着であり, Sr はチオライト中の層間にはさみ込まれた形で存在するものと考えられる。

参 考 文 献

- 1) 三村 均, 稲野昌利, 秋葉健一, 菅野卓治: 選研彙 **39** (1983) 85.
- 2) 三村 均, 沼野耕三, 菅野卓治: 選研彙 **40** (1984) 173.
- 3) 桐山良一, 桐山秀子: 構造無機化学 II (共立出版, 1971) p. 97.
- 4) C. N. Cochran: Trans. AIME **239** (1967) 1058.
- 5) G. A. Bukhalova and V. T. Mal'tsev: Zh. Neorgan. Kim. **10** (1965) 189.
- 6) H. Mimura and T. Kanno: J. Nucl. Sci. Technol. **22** (1985) 284.
- 7) G. E. Boyd, J. Schubert and A. W. Adamson: J. Am. Chem. Soc. **69** (1947) 2818.

β-ジケトン類錯体における⁷Beの 内部反跳インプランテーション

筑波大化学系

荘司 準・丸山保子・小川公也・

沖 雄一・池田長生

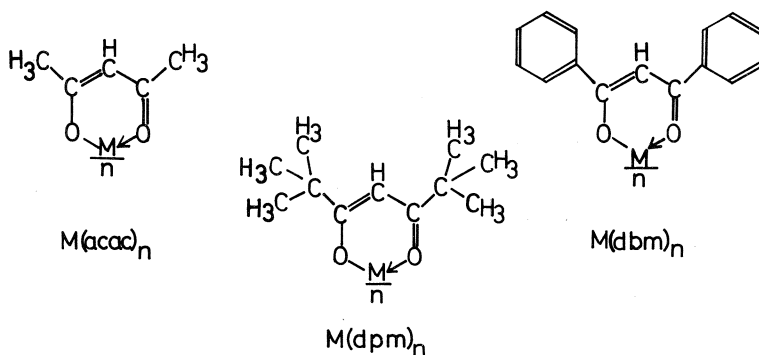
§ 1. 緒 言

錯体の反跳化学においては、中心金属の反跳挙動に着目する機会が多いが、配位子から生成するホットアトム挙動も同様に興味ある問題である。配位子から生成するホットアトムについていくつかの研究例¹⁾があるが、配位子から生成したホットアトムが中心金属を置換したという報告例はほとんどない。本研究では、単一化学種が反跳源物質とターゲット物質をかねる反跳インプランテーション(内部反跳インプランテーション)の手法により、有機系配位子をもつβ-ジケトン類錯体を対象として、最大エネルギー50 MeVでの制動放射線照射を行い、¹²C(*r*, *n*α)⁷Be反応で配位子の¹²Cから生成した⁷Beが反跳等により中心金属となる現象に着目し、各種の試料についてその錯体取率を比較した。また同時に起きている他の光核反応による中心金属についてのリテンション値を求め、⁷Beの挙動との比較を試みた。

照射試料として使用したのはβ-ジケトン類錯体で、4種のアセチルアセトン錯体(Be(acac)₂, Al(acac)₃, Cr(acac)₃, Co(acac)₃ : acac はアセチルアセトナト配位子の略、以下このように略記する)と、アセチルアセトンの両端のメチル基を他の基に置換した構造を持つトリスジベンゾイルメタナトコバルト(Ⅲ)(Co(dbm)₃ : dbm はジベンゾイルメタナト配位子の略)およびトリスジピバロイルメタナトコバルト(Ⅲ)(Co(dpm)₃ : dpm はジピバロイルメタナト配位子の

略)である。用いたβ-ジケトン類錯体の化学構造を第1図に示す。

生成した⁷Beの挙動をこれらの試料を用いて、中心金属を変化させた



第1図 Structures of Metal β-Diketonates.

場合と、配位子を変化させた場合の二つの観点から解析を試みた。

§ 2. 実 験

2.1. 照射試料の調製

$\text{Be}(\text{acac})_2$, $\text{Al}(\text{acac})_3$, $\text{Cr}(\text{acac})_3$, $\text{Co}(\text{acac})_3$ は同仁化学製の市販のものを、元素分析等により純度を確認の上そのまま使用した。

2.1.1. $\text{Co}(\text{dbm})_3$ の合成

Inorg. Synth. 記載の方法²⁾に従った。すなわち、ジベンゾイルメタン(DBM) 5g (0.022 mol) と CoCO_3 1g (0.008 mol) をエタノールに溶かし、10%過酸化水素 50ml を加えながら2時間ほど還流した。生成した緑色の沈澱を吸引濾取後クロロホルムに溶かし、アルミナラムで精製した。

2.1.2. $\text{Co}(\text{dpm})_3$ の合成

$\text{Co}(\text{dbm})_3$ と同様の方法に従った。ジピバロイルメタン(DPM) 5g (0.027 mol) と CoCO_3 1.2g (0.01 mol) をエタノールに溶かし、同様に過酸化水素を加えつゝ2時間ほど還流した。以下、 $\text{Co}(\text{dbm})_3$ と同様の方法で精製を行った。

2.2. 担体試料の調製

2.2.1. $\text{Be}(\text{dbm})_2$ の合成

Booth らの方法³⁾に従い、塩基性炭酸ベリリウム 0.3 g をとり、水 5ml に溶かし攪拌しながら加熱、6 N 塩酸を加えてやゝ酸性にした。DBM 2.2 g (0.01 mol) に、水 5ml とメタノール 2 ml を加え、さらに 6 N アンモニア水を加えて塩基性の均一の溶液にした。DBM 溶液を炭酸ベリリウム溶液に少しずつ加えて攪拌した。溶液を中性にし、析出してくる沈澱を濾取し、水洗・乾燥を行った。

第1表 Elementary Analysis of Complexes Used. (%)

		C	H	N
$\text{Be}(\text{acac})_2$	OBS	57.91	6.82	0.00
	CAL	57.95	6.80	0.00
$\text{Al}(\text{acac})_3$	OBS	55.49	6.54	0.05
	CAL	55.55	6.52	0.00
$\text{Co}(\text{acac})_3$	OBS	50.65	6.01	0.36
	CAL	50.57	5.94	0.00
$\text{Cr}(\text{acac})_3$	OBS	51.36	6.06	0.00
	CAL	51.57	6.05	0.00
$\text{Co}(\text{dbm})_3$	OBS	73.35	4.57	-0.03
	CAL	73.86	4.95	0.00
$\text{Co}(\text{dpm})_3$	OBS	65.07	9.42	0.00
	CAL	64.78	9.88	0.00
$\text{Be}(\text{dbm})_2$	OBS	79.10	5.06	-0.02
	CAL	79.10	4.86	0.00
$\text{Be}(\text{dpm})_2$	OBS	68.99	10.24	0.06
	CAL	70.36	10.19	0.00

2.2.2. Be(dpm)₂の合成

Hamond らの方法⁴⁾に従い、塩化ベリリウム 0.2 g (0.002 mol) をエタノール 10 ml に溶かし水 2 ml を加えた。この溶液にジピバロイルメタン (DPM) 1 g (0.005 mol) を加えて攪拌し、ついで濃アンモニア水を攪拌しつつ滴下し、沈澱を徐々に生成させ、吸引濾過後、水洗・乾燥した。

各試料の元素分析の結果を第 1 表に示す。

2.3. 照射

制動放射線照射は、東北大学原子核理学研究施設の電子 LINAC で行った。50 MeV に加速した電子を白金コンバーターに当てて得られる制動放射線を照射に用いた。照射時間は 8 ~ 9 時間、なお未転換電子はスイープマグネットにより除去し、電子照射による効果を防いだ。照射中試料は冷室素気流下で -130 °C 程度に冷却した。照射条件を第 2 表に示す。なお各試料は約 100 mg をとり、アルミ

第 2 表 Irradiation Conditions.

箔に包んで照射に供し、照射終了後は化学分離の直前までドライアイス中に保存し、熱

Tohoku Univ. Electron LINAC	
Max. energy of γ -ray	50 MeV
Average current	~ 150 μ A
Irradiation time	8~9 hr
Irradiation temp.	< -100 °C
(Pt Converter)	

アニーリングの防止に努めた。

Unconverted electrons were removed
by the sweep magnet

2.4. 化学分離および

放射能測定

2.4.1. 試料溶媒の調製

各担体イオンの溶液は、まずそのメタノール溶液を調製してから、その極く少量をクロロホルムに加えるという方法により調製した。

Be²⁺担体メタノール溶液は、1000 ppm Be 原子吸光用標準溶液 2 ml をほぼ乾固し、メタノールで 10 ml に定容にして調製した (22.8 mmol/l)。Al³⁺メタノール溶液は 1000 ppm Al 原子吸光用標準溶液 6.2 ml をほぼ乾固し、メタノールで 10 ml に定容にすることによって得られた (22.8 mmol/l)。Co²⁺ および Cr³⁺ 担体メタノール溶液は、それぞれの塩化物を一定量はかりとり、メタノールで 10 ml に定容にすることにより調製した (50 mmol/l)。Be(acac)₂、Be(dbm)₂、Be(dpm)₂ 担体クロロホルム溶液は、それぞれの錯体を一定量はかりとり、クロロホルムで 10 ml に定容にして調製した (50 mmol/l)。

照射済試料を溶かす溶媒には、上記の Be²⁺ 担体溶液 0.5 ml と中心金属イオン担体溶液 0.5

ml および Be 錯体担体溶液 0.5 ml にクロロホルムを加えて 100ml にしたものを使用した。最終的にクロロホルム溶液にした際のそれぞれの担体濃度は以下の通りである。Be²⁺ : 0.114 mmol/l, Al³⁺ : 0.114mmol/l, Co²⁺ : 0.25mmol/l, Cr³⁺ : 0.25mmol/l, Be(acac)₂ : 0.25mmol/l, Be(dbm)₂ : 0.25mmol/l, Be(dpm)₂ : 0.25mmol/l。

2.4.2. 溶離曲線の作成

反跳生成物である Be(acac)₂, Be(dbm)₂, Be(dpm)₂ がこの化学分離で完全に溶離されることを確認するために、以下のような実験を行った。

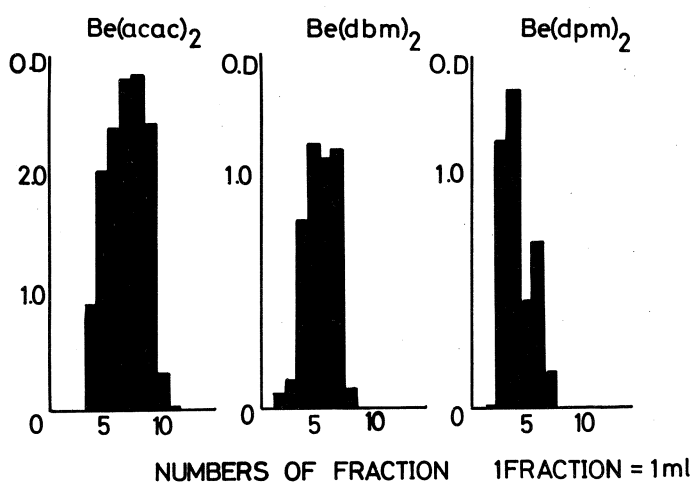
Be(acac)₂ を 10.5 mg とってクロロホルムで 50ml に希釈した (1.0 mmol/l)。それから 5ml とってアルミナカラムに通しクロロホルムで溶離した。流出液を 80 滴 (約 1ml) ずつ試料管に 20 本分取した。これをさらにクロロホルムで希釈して 5 ml にし, Be(acac)₂ の吸収極大の波長 (295 nm) での吸光度を測定して溶離曲線を求めた。Be(dbm)₂, Be(dpm)₂ についても同様の操作を行いそれぞれ 358 nm, 302 nm における吸光度測定から溶離曲線を得た。

これらの錯体についての溶離曲線を第 2 図に示す。この図からわかるように、溶出液は 15ml 以上とれば、これら Be 錯体は完全に溶離, 捕集されていると言える。

2.4.3. 化学分離

照射試料から錯体部分のみを分離するために、以下のような化学分離操作を行った。

まず照射試料を迅速に開封し, 氷冷してある担体入りクロロホルム溶媒 15ml に溶解後, その 5 ml をとりアルミナカラム (Merck 社製, Art. 1097) で錯体部分のみを溶離した。な



第 2 図 Elution Curves of Be β -Diketonates.

お分離時の温度条件を一定にするために、上記のように溶媒を氷冷した上、カラムも第3図に示すように氷のジャケットで覆ったものを使用した。試料溶媒には、予想される反跳生成物に対応する Be^{2+} イオン、中心金属イオンとBe錯体の担体を入れた。溶出液はホットプレートで加熱して5 ml に濃縮した。また未分離の試料溶液から5 ml を分取した。この際、未分離の試料溶液と錯体部分のみの溶出液は測定器に対するジオメトリーが等しくなるよう同一寸法の測定用容器に同一体積の液が入るよう特に注意を払った。

2.4.4. トレーサー実験

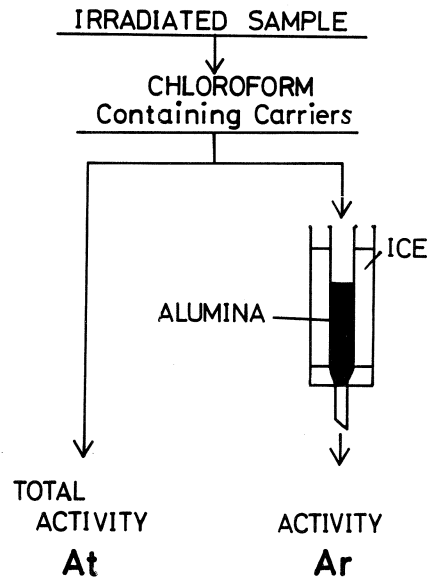
照射試料の溶液中には、たとえばアセチルアセトナト錯体の場合を例にとれば、 ${}^7\text{Be}^{2+}$ イオン、 ${}^7\text{Be}(\text{acac})_2$ 、 M^{n+} 、 $\text{M}(\text{acac})_n$ などが存在していると考えられる。そこで照射試料溶液中で、特に ${}^7\text{Be}^{2+}$ と $\text{Be}(\text{acac})_2$

間に同位体交換反応が起こる可能性があるが、反跳による効果のみを観察しようとしているのであるから、この同位体交換の程度は実測しておく必要があり、下記のようなトレーサー実験を行った。

${}^7\text{BeCl}_2$ (2.8 mCi/ μgBe) の0.1 N塩酸溶液をゆっくり乾固後、15ml の氷冷したクロロホルム (100 ml 中に0.5 ml の Be^{2+} メタノール溶液を含む (0.25 mmol Be^{2+}/l)) を加えた。ここに約100 mg の $\text{Be}(\text{acac})_2$ を溶かした。この ${}^7\text{Be}^{2+}$ を含む $\text{Be}(\text{acac})_2$ のクロロホルム溶液から、照射試料の場合と同様に5 ml をとり、氷のジャケットをつけたアルミナカラムに通し、錯体部分だけを溶離して5 ml に濃縮した。未分離の溶液からも5 ml をとり、両者の放射能を測定し、下記の式からこの分離条件下での同位体交換の割合を求めたところ $0.3 \pm 0.1\%$ であった。

$$\text{同位体交換率 (\%)} = \frac{\text{Be}(\text{acac})_2 \text{ フラクションの放射能} \times 100}{\text{未分離の溶液の全放射能}}$$

このことから、 ${}^7\text{Be}^{2+}$ イオンと $\text{Be}(\text{acac})_2$ 間での同位体交換はほとんど起らず、無視しうることがわかった。他のベリリウム錯体についても同様な結果となった。



第3図 Chemical Separation of Irradiated Samples.

2.4.5. 放射能測定およびデータ解析

放射能測定にはGe(Li)半導体検出器を用い、 γ 線スペクトロメトリーによりデータ解析を行った。

着目した核反応ならびに γ 線スペクトル上での生成核種のピークエネルギーおよび半減期を第3表に示す。それぞれ測定した試料の放射能は、 γ 線スペクトル上でのピーク面積から求め、

${}^7\text{Be}(\text{acac})_2$, ${}^7\text{Be}(\text{dbm})_2$,

${}^7\text{Be}(\text{dpm})_2$ の錯体収率およ

び中心金属のリテンション値

を下記の式から求めた。

$$R(\%) = \frac{A_r}{A_t} \times 100$$

A_r : 錯体部分だけの放射

能

A_t : 照射試料全体の放射能

第3表 Nuclear Data Concerned.

Nuclear Reaction	Peak(keV)	Half Life
${}^{12}\text{C}(\gamma, n\alpha){}^7\text{Be}$	478	53.3 d
${}^{59}\text{Co}(\gamma, n){}^{58}\text{Co}$	811	70.8 d
${}^{52}\text{Cr}(\gamma, n){}^{51}\text{Cr}$	320	27.7 d

§ 3. 結果および考察

核反応により配位子の ${}^{12}\text{C}$ から生成した ${}^7\text{Be}$ のうち錯体の中心金属として得られたものの割合(以下錯体収率と呼ぶ)と中心金属のリテンション値を第4表に示す。

まず ${}^7\text{Be}$ の錯体収率について、

アセチルアセトナト錯体で中心

金属を変えた場合に着目してみ

ると、 $\text{Be}(\text{acac})_2$, $\text{Al}(\text{acac})_3$

$\text{Cr}(\text{acac})_3$ での値にくらべて

$\text{Co}(\text{acac})_3$ についての値がかけ

離れて大きいことがわかる。ま

た錯体全般でもコバルト錯体は

全体的に大きな値を示すことも

確認された。

これらの錯体を化学構造から

比較してみると、いずれもM-

第4表 Complex Yields of ${}^7\text{Be}$ and Retention Values.

Sample	Complex Yield of ${}^7\text{Be}$ (%)	Retention (%)
$\text{Be}(\text{acac})_2$	13.1 ± 0.8	—
$\text{Al}(\text{acac})_3$	12.2 ± 2.4	—
$\text{Cr}(\text{acac})_3$	19.6 ± 0.6	7.2 ± 0.4
$\text{Co}(\text{acac})_3$	79.5 ± 2.3	3.6 ± 0.3
$\text{Co}(\text{dpm})_3$	40.3 ± 2.3	8.9 ± 0.9
$\text{Co}(\text{dbm})_3$	32.1 ± 4.7	5.9 ± 0.1

—O間が共有結合性である安定なもので、 $\text{Be}(\text{acac})_2$ は四面体4配位、 $\text{Al}(\text{acac})_3$ 、 $\text{Cr}(\text{acac})_3$ 、 $\text{Co}(\text{acac})_3$ は八面体6配位構造をもっている⁵⁻⁷⁾。このうち化学構造が同系列の3価の金属の錯体について、分光化学系列等から化学的安定度を比較すると、 $\text{Co}(\text{acac})_3$ 、 $\text{Cr}(\text{acac})_3$ 、 $\text{Al}(\text{acac})_3$ の順で安定度は低くなっている。錯体の安定度と ^7Be の錯体収率を比較してみると、安定度が低くなるにつれ ^7Be の錯体収率も小さくなっていることがわかる。これは以前当研究グループが得たフタロシアニン錯体中における ^{12}C から生成する ^7Be の錯体収率とは逆の傾向である。⁸⁾

中心金属をコバルトとして配位子を変化させた場合に注目すると、錯体の構造はどれも八面体6配位であるが、化学的安定度の順序についてはまだあまり確とした判定が下せる状況にはない。熱中性子照射の際のリテンション値等から推察すると $\text{Co}(\text{dbm})_3$ が他の2つのコバルト錯体よりかなり安定と言えそうであるが、もしそうだとすれば安定度と錯体収率の関係は負の相関となり、前述の場合とは逆の傾向となる。

次にコバルト錯体で、リテンション値と ^7Be の錯体収率を比較してみたが、特に相関があるとは認められなかった。

インプランテーションにおいて $\text{Co}(\text{acac})_3$ 中での錯体収率が他の同系統の錯体中でのものにくらべてかけ離れて大きな値をとっている例としては、Meinholdらが報告している酸化ウランとアセチルアセトナト錯体の機械的混合系でのフィッションインプランテーションの際の ^{103}Ru についての錯体収率の例がある⁹⁾。その報文では $\text{Co}(\text{acac})_3$ 中での値が異常に大きくなったことに対して、固相における化学交換を示唆しているが、メカニズムについての実験的解明はなく、本研究の場合も含めて今後の研究課題であろう。

しかし、とにかく $^{12}\text{C}(r, n\alpha)^7\text{Be}$ 反応で配位子の ^{12}C から生成した ^7Be が、その一部にはせよβ-ジケトン類錯体の中心金属を置換したことは事実である。

最後に、制動放射線照射の際に御援助を賜った東北大学理学部、八木益男助教授、榎本和義助手、ならびに吉原賢二教授、関根勉助手に厚く感謝の意を表す。

参 考 文 献

- 1) H. Müller : Naturwiss. **49** (1962) 182,
H. Müller : Z. anorg. allgem. Chem. **321** (1963) 124, など。
- 2) T. Moeller, *Inorg. Synth.* (McGRAW-HILL, New York and London, 1957) Vol. 5, p. 188.

- 3) H. S. Booth and D. G. Pierce : J. Phys. Chem. **37** (1933) 59.
- 4) G. S. Hamond, D. C. Nonhebel and Chin-Hua S. Wu : Inorg. Chem. **2** (1963) 73.
- 5) 山川浩司 : 化学の領域 **16** (1962) 683, 768, 854, 905.
- 6) 上野景平 : 金属キレート反応性の反応性, 化学と工業 **16** (1962) 892.
- 7) ドータイト試薬解説資料 No. 305, No. 308.
- 8) 沖 雄一, 荘司 準, 池田長生 : 核理研研究報告 **16** (1983) 249.
- 9) H. Meinhold and P. Reichhold : Radiochim. Acta **11** (1969) 174.

光量子放射化—LEPSによる 微量分析の基礎研究

都神経科学総研, 教養部*
佐藤武雄・加藤豊明*

§ 1. 緒 言

1954年, Basileら¹⁾が電子加速器を使って有機酸中の酸素を放射化分析して以来, 光核反応による放射化分析法は原子炉法が苦手とする軽元素($Z \leq 9$)の定量に主に適用されてきた。その後, Ge(Li)検出器と波高分析装置でデータを収集・処理する機器的方法がこの分野にも適用されて, 独特の機器光量子放射化分析法として生物試料, 岩石, 堆積物, エアロソルなどの複雑な組成の試料の多元素同時定量に有効に利用された。近年, 高純度Ge検出器(HpGe)による放射線計測が普遍化され, 100 keV以下のX線や軟 γ 線の測定に高い感度とエネルギー分解能が得られるに従ってLEPS(Low Energy Photon Spectroscopy)の応用が盛んとなり, 中性子²⁻⁶⁾や荷電粒子⁷⁾による放射化と併用した特異的な分析法が開発されている。光量子放射化分析に適用した報告⁸⁻¹¹⁾もみられるが, 未だ充分研究されていない。本法の一般的特徴に加え, HpGeによるLEPSを併用した場合の主な特長を挙げれば次のようである。

- 1) 最大エネルギーが30 MeV附近の制動放射 γ 線は, 広い領域の核について巨大共鳴領域に相当し, (γ, n)反応が主反応として高い収率で起る。生じる中性子不足核種は一般にEC壊変するので特性X線を放出する。
- 2) 特性X線の同定は容易で, 単純なスペクトルを与えHpGeで測定すれば γ 線に起因するコムトン端の顕著な出現はみられず低バックグラウンドでS/N比の高い測定条件が得られる。
- 3) EC壊変に伴なうX線発生 β^+ 放出に対する割合はZと共に増加する。軽元素ではほとんどX線の発生はなく, したがって, 生物質試料のような軽元素マトリックス中の微量諸元素の同時定量に活用できる。

上記の他にも, 光核反応で生じる核異性体からの軟 γ 線も同時に計測できるから, この利用も特長のある分析法となる。X線や軟 γ 線の吸収に起因する強度減少や試料中の自己吸収の影響, あるいは近傍元素間における K_{α} , K_{β} 線等の重なりに留意する必要があるが, Ge(Li)による γ 線スペクトロメトリーとは異なる特異性が得られ, 光量子放射化分析の適用範囲を拡大

するものと考えられる。

本報では、その基礎として $27 \leq Z \leq 82$ の諸元素から27元素を選んで東北大LINACからの30 MeV 制動輻射で放射化の後、HpGeによるLEPスペクトルを求め、主要なピーク強度より各元素の検出定量の感度を検討した。試料調製と測定条件による吸収の影響についても基礎的に研究した。また、生物体標準試料Orchard Leaves および珪酸塩標準岩石JB-1他数種を用いて実試料における感度と分析結果の信頼性についても若干の検討を加えた。

§ 2. 実 験

2.1 試 料

光核反応残留核のLEPスペクトルと比較放射能を求めるため、各元素の一定量をセルローズ粉末に加えてメノウ乳鉢で充分混和し、この混合物200mgを10mmφ、厚さ2mmのペレットに加圧成型して照射と測定に供試した。各元素は高純度(99.99%以上)の主として酸化物を用い、200mgのペレット中に各元素500~2000μgを含むように調製した。

NBS SRM-1571 Orchard Leaves は300mgを同様に10mmφ×2mmのペレットに加圧成型して用い、USGS珪酸塩標準岩石JB-1, W-2, BIR-1およびDNC-1は、それぞれ200mgをアルミニウム箔に包装し、9mmφのペレットに成型して使用した。

2.2 放射化と測定

各試料に線束モニターとして金箔を添附し石英管に5~6個ずつ並べて入れ、水冷式試料ホルダーに装着して照射した。照射は、30MeV電子ビームを厚さ2mmの白金コンバーターで制動輻射に換え、コンバーター後方約10cmの位置で試料を放射化した。照射線量は約 $10^6 \text{ R} \cdot \text{min}^{-1}$ で、大むね2時間行った。

LEPSにはCanberra社Model 7110010-7600P-30 HpGe検出器(有効体積 $100 \text{ mm}^2 \times 10 \text{ mm}$)と同社Series 30波高分析装置を用いた。エネルギー分解能は ^{55}Fe の5.9 keV X線(Mn-K α)に対して半値幅170 eV, ^{57}Co の122 keV r 線に対しては半値幅483 eVである。比較のため r 線スペクトルを測定したが、これにはCanberra社Model 7229-7600-1721 Ge(Li)検出器と同社8100型波高分析装置を用いた。測定は残留核の半減期に応じて照射直後からほぼ一ヶ月間にわたって断続的に行い、エネルギーと半減期^{12,13)}とから核種を同定しピーク面積を求めた。線量の較正は、金箔中に $^{197}\text{Au}(r, n)^{196}\text{Au}$ 反応によって生成する ^{196}Au ($T_{1/2} = 6.18 \text{ d}$)の356 keVの r 線ピーク面積計数率によって施した。

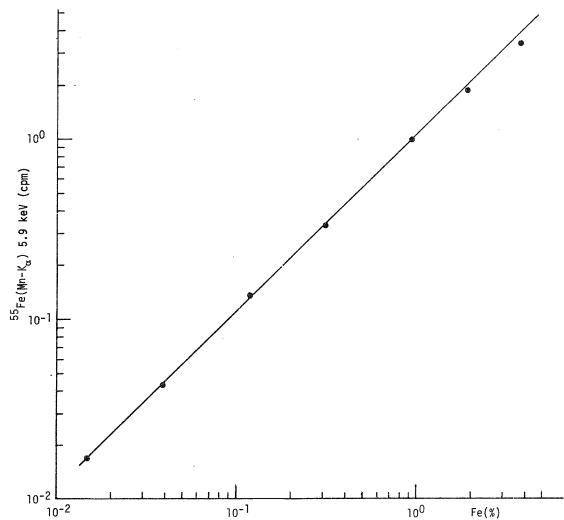
なお、LEPSの際、試料支持台はアクリル樹脂製のものを用いた。

§ 3. 結果および考察

3.1 吸収の影響

実際の測定に供される試料は生物質試料のようにペレットに加圧成型できるものの他に、アルミニウム箔に包装するものも多い。また、試料支持台材料による低エネルギーX線の吸収も考慮する必要がある。まず、 ^{241}Am の標準線源(10 μCi)を用いてHpGeと線源との間にアルミニウム箔(17 μm)1枚を置いてその影響を調べたところ、4.06, 26.3および59.6 keVの γ 線強度は、それぞれ、76.9, 97.5および99.2%に減少し、さらに、アクリル樹脂による吸収減少(I/I_0)を調べたところ、それぞれ、 $e^{-0.143t}$ 、 $e^{-0.040t}$ および $e^{-0.022t}$ (t :厚さmm)となり、4.06 keVでは厚さ1mmで約13%減少した。したがって、実際の定量分析では、試料と組成が類似の比較試料を用い、形状、厚さを同一にしないと特に10 keV以下では大きい誤差の原因となる。

つぎに、試料中の元素によるX線の自己吸収の程度を調べた。 Fe_2O_3 を30 MeV制動輻射で照射して $^{56}\text{Fe}(\gamma, n)^{55}\text{Fe}$ 反応によって ^{55}Fe を作り、これをセルローズ粉末に加えて混和の後、加圧成型して0.015~4%のFeを含むペレット(250mg, 10mm ϕ)とし5.9 keVのMn K_α X線のピーク面積計数率とFe(%)との関係を求めた。第1図のように1%Fe程度までは良い直線関係が示されたが2%以上ではFe自身による自己吸収が起り、5%では約20%吸収する。したがって原子番号の大きい元素および多量成分の分析の場合にはこの補正が必要であろう。



第1図 Relation between iron concentration and 5.9 keV Mn K_α X-ray intensity of ^{55}Fe .

3.2 LEPSの感度

各元素の合成ペレットのLEPスペクトルから主要なX線および軟 γ 線のピーク面積計数率を求め、照射終了時の値に換算し、制動輻射線束強度の補正を施こした比放射能(cpm/ μg)の値を第1表に一括した。照射時間は2時間であり、試料をHpGeに密着させて測定した時の値である。比較のため、同一試料について測定したGe(Li)検出器による γ 線スペクトルから

第1表 Production rate and detectability of the photon activation products in individual elements.

Element	Product nuclide	Half-life	HpGe		Ge(Li)		Relative detectability (HpGe/Ge(Li))	
			LEP (X, γ) (keV)	Peak area (cpm/ μ g)	γ -ray (keV)	Peak area (cpm/ μ g)		
Co	^{58m} Co	9.0 h	Co-K α	6.92	3.3	811	0.45	7.4
Ni	⁵⁷ Ni	36.0 h	Co-K α	6.92	0.32	1378	2.6	0.12
	⁶¹ Co	99.0 min		67.0	5.8			
Cu	⁶¹ Cu	3.3 h		67.0	2.5	284	2.0	1.2
	⁶⁴ Cu	12.8 h	Ni-K α	7.48	1.7	1340	0.090	19
Zn	⁶² Zn	9.1 h	Cu-K α	8.06	0.084			
				41.0	0.31	590	0.090	3.4
	⁶³ Zn	38.0 min	Cu-K α	8.06	3.1	669	6.0	0.49
	^{69m} Zn	13.8 h				439	0.084	
Ga	⁶⁸ Ga	68.0 min	Zn-K α	8.64	10.8	1078	6.6	1.7
Ge	⁶⁹ Ge	38.0 h	Ga-K α	9.25	1.4	1107	1.0	1.4
	⁷¹ Ge	11.4 d	Ga-K α	9.25	0.53			
	⁷³ Ga	4.9 h		54.0	1.6	295	10.2	0.16
As	⁷⁴ As	17.5 d	Ge-K α	9.89	0.90	596	2.2	0.43
Se	⁷³ Se	7.1 h	As-K α	10.55	0.11			
				66.0	0.96	359	0.55	1.8
	⁷⁵ Se	120.4 d	As-K α	10.55	0.013	136	0.048	0.27
	^{81m} Se	59.0 min	Se-K α	11.23	4.2			
Br	⁷⁷ Br	57.2 h	Se-K α	11.23	0.32	240	0.34	0.94
	^{80m} Br	4.4 h	Br-K α	11.92	16.2	618	1.7	9.4
				37.2	25.8			
Rb	⁸⁴ Rb	33.0 d	Kr-K α	12.68	0.39	881	0.33	1.2
	^{84m} Rb	21.0 min				464	30.6	
Sr	^{87m} Sr	2.8 h	Sr-K α	14.17	29.4	388	303	0.10
Y	⁸⁸ Y	108.0 d	Sr-K α	14.17	1.9	891	1.2	1.6
	^{87m} Y	14.0 h	Y-K α	14.96	0.70	381	5.6	0.12
Zr	⁸⁹ Zr	79.0 h	Y-K α	14.96	7.2	909	7.2	1.0
Nb	^{92m} Nb	10.2 d	Zr-K α	15.78	3.4	934	2.2	1.2
Mo	^{95m} Nb	90.0 h	Nb-K α	16.62	0.10			
	⁹⁹ Mo	66.7 h	Tc-K α	18.37	0.51	143	7.8	0.063
Cd	¹⁰⁷ Cd	6.5 h	Ag-K α	22.16	5.8			
	^{111m} Cd	48.6 min	Cd-K α	23.17	13.8	247	53.4	0.26
	¹¹⁵ Cd	53.5 h	In-K α	24.21	2.0	530	0.72	2.7

第1表 (Contd.)

Element	Product nuclide	Half-life	HpGe		Ge(Li)		Relative detectability (HpGe/Ge(Li))	
			LEP (X, r) (keV)	Peak area (cpm/ μ g)	r -ray (keV)	Peak area (cpm/ μ g)		
Sn	^{111}Cd	2.8 d	Cd-K $_{\alpha 1}$	23.17	0.39	173	0.72	0.51
	$^{117\text{m}}\text{Sn}$	14.0 d	Sn-K $_{\alpha 1}$	25.27	0.18	159	0.46	0.40
Ba	$^{133\text{m}}\text{Ba}$	38.9 h	Ba-K $_{\alpha 2}$	31.91	0.96	268	0.22	4.5
	$^{135\text{m}}\text{Ba}$	28.7 h	Ba-K $_{\alpha 1}$	32.17				
Ce	^{141}Ce	32.5 d	Pr-K $_{\alpha 2}$	35.55	0.16	148	0.81	0.20
			Pr-K $_{\alpha 1}$	36.03				
	^{139}Ce	140.0 d	La-K $_{\alpha 2}$	33.03	2.3	165	3.6	0.64
			La-K $_{\alpha 1}$	33.44				
$^{137\text{m}}\text{Ce}$	34.4 h	Ce-K $_{\alpha 1}$	34.72	0.57	255	0.013	45	
^{135}Ce	17.2 h	La-K $_{\alpha 2}$	33.03	2.2	265	0.37	6.0	
		La-K $_{\alpha 1}$	33.44					777
Nd	^{149}Nd	1.8 h	Pm-K $_{\alpha 1}$	38.72	26.8	210	24.9	1.1
	^{147}Nd	11.1 d	Pr-K $_{\alpha 2}$	35.55	0.47	533	0.12	3.9
			Pr-K $_{\alpha 1}$	35.98				
^{141}Nd	2.5 h	Pr-K $_{\alpha 2}$	35.55	723	1294	1.1	660	
Sm	^{153}Sm	340.0 d	Pm-K $_{\alpha 2}$	38.17	0.058	no r		
			Pm-K $_{\alpha 1}$	38.72				
	^{145}Sm	46.8 h	Eu-K $_{\alpha 2}$	40.90	27.4	103	24.5	1.1
Gd	^{159}Gd	18.0 h	Tb-K $_{\alpha 1}$	44.48	14.3	363	10.4	1.4
				58.0				
	^{151}Gd	120 d	Eu-K $_{\alpha 1}$	41.54	0.076	244	0.0008	97
Dy	^{159}Dy	145.0 d	Tb-K $_{\alpha 1}$	44.48	0.12	no r		
	$^{155,157}\text{Dy}$	10.2h, 8.1h	Tb-K $_{\alpha 1}$	44.48	0.75			
Tm	^{168}Tm	86.0 d	Er-K $_{\alpha 1}$	49.13	10.9	447	0.44	25
						817	0.61	18
Yb	^{175}Yb	101.0 h	Lu-K $_{\alpha 1}$	54.07	0.60	396	1.1	0.55
	^{169}Yb	30.6 d	Tm-K $_{\alpha 1}$	50.74	0.67	198	0.29	2.3
						308	0.083	8.1
Lu	$^{176\text{m}}\text{Lu}$	3.7 h	Hf-K $_{\alpha 1}$	55.79	0.64	no r		
	$^{174\text{m}}\text{Lu}$	140.0 d	Lu-K $_{\alpha 1}$	54.07	0.17	273	0.044	3.9
	^{174}Lu	3.6 y	Yb-K $_{\alpha 2}$	51.35	0.21	1240	0.0002	105
Pb	^{203}Pb	52.1 h	Tl-K $_{\alpha 1}$	72.89	0.78	279	1.2	0.65

主要な r 線ピークの面積計数率を算出して並記し、両者の比を求めて同じく第1表に示した。LEPSの適用により感度が向上する元素としては、Co(^{58m}Co)、Cu(^{64}Cu)、Zn(^{62}Zn)、Ge(^{69}Ge)、Se(^{73}Se)、Br(^{80m}Br)、Nb(^{92m}Nb)、Cd(^{115}Cd)、Ba($^{133m,135m}\text{Ba}$) および Ce(^{137}Ce)他数種の希土類元素が挙げられる。いずれも中間寿命で実試料の分析に利用し易い核種である。また、表中、 ^{62}Zn 、 ^{73}Se および ^{80m}Br の検出に、それぞれ、41.0、66.0 および 37.2 keV の r 線を利用すれば、特性X線相互の重なりによる妨害が避けられ有利な場合が考えられる。同様に、Niの定量に ^{61}Co の67.0 keVの r 線を用いれば感度の向上が期待できる。一般に、第1表の比較においてHpGe/Ge(Li)比が小さい元素であっても、マトリックス組成によってはLEPS領域のバックグラウンドが低いのでS/N比が向上し、LEPSが有利に適用できる場合が多い。生物質試料中のSrやPb、あるいは、地球化学試料中のMoがその例として挙げられる。これらのピークを実試料の分析に利用する場合の検出感度については標準試料を用いて次に述べる。

なお、原子番号が32(Ge)より大きな元素のLEPスペクトルにはGe素子に起因する K_{α} X線エスケープピークが現われるので注意を要する。

3.3 生物質試料

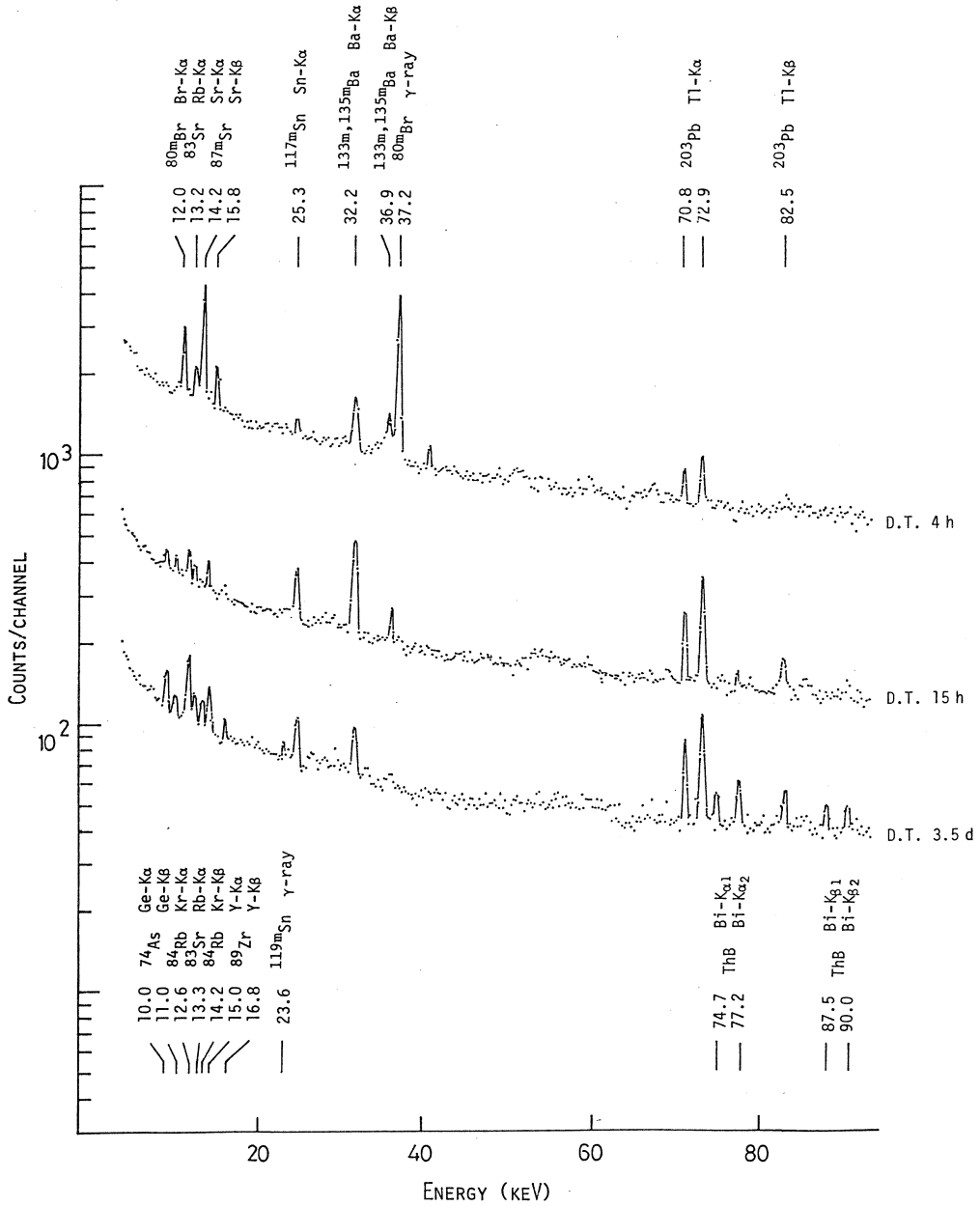
Orchard Leavesのペレットを30 MeV制動輻射で2時間照射してLEPスペクトルを測定した。冷却時間(D. T.)が4時間、15時間および3.5日のものを第2図に、9日のものを第

第2表 Limits of detection for several elements in Orchard Leaves.

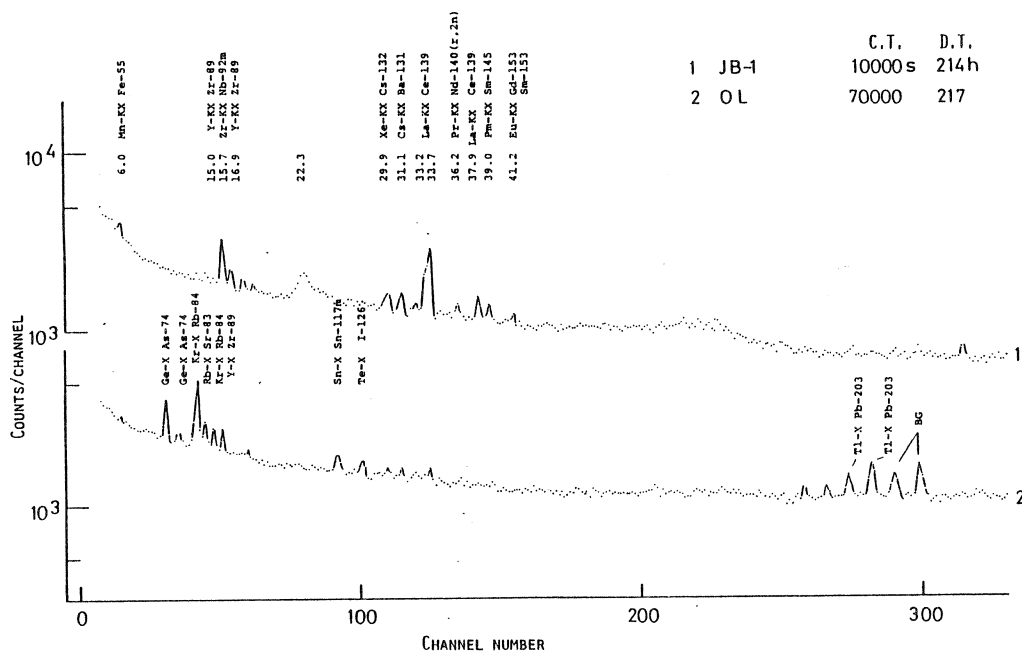
Element	Nuclide detected	LEP	Energy (keV)	Decay period	Limits of detection (μg)	
					LEPS	r -ray*
As	^{74}As	Ge - K_{α}	9.89	10 d	0.9	0.3
Ba	$^{133m,135m}\text{Ba}$	Ba - K_{α}	32.15	1 d	1.9	—
Br	^{80m}Br	r -ray	37.2	6 h	0.1	36
I	^{126}I	Te - K_{α}	27.34	10 d	0.05	0.7
Pb	^{203}Pb	Tl - K_{α}	72.86	2 d	1.4	7.5
Rb	^{84}Rb	Kr - K_{α}	12.65	10 d	0.6	0.9
Sr	^{87m}Sr	Sr - K_{α}	14.17	4 h	0.4	0.5
Zr	^{89}Zr	Y - K_{α}	14.96	10 d	0.3	0.1

* Ref. 14)

3 図に示した。各元素の定量に最も適したピークを利用した時の感度は第 2 表のようになる。感度は目的とするピーク測定のス/N比が最大となる冷却時間において、バックグラウンド強度の計数に伴う統計誤差の 3 倍 (3σ , 信頼度 > 99%) に相当するピーク強度を与える元素



第 2 図 Low-energy photon spectra taken with a HpGe detector after a 2-h irradiation of Orchard Leaves.



第3図 Low-energy photon spectra for long-lived nuclides taken with a HpGe detector after a 2-h irradiation of Orchard Leaves and JB-1 basalt.

量と定義した。比較のために既報¹⁴⁾の r 線スペクトロメトリーの感度も表中に記した。Baは r 線スペクトロメトリーでは検出できない。Br, PbおよびIにおいてLEPSにより著しい感度の向上が示され、生物体中のこれら元素の特長のある分析法となる。

3.4 珪酸塩岩石

JB-1のLEPスペクトルのうち、冷却時間が9日のものを第3図に示した。このスペクトルからOrchard Leavesと同様にして感度を求めると、Zr 5.6 μg , Nb 2.4 μg , Ba 39 μg , Ce 1.2 μg , Sm 0.8 μg などとなり、Ge(Li)による r 線スペクトロメトリーに比べて感度は必ずしも高くない。これは、JB-1では高エネルギー部の r 線によるバックグラウンドが高いことに起因している。冷却時間の短いスペクトルを用いるとBa, Ce, Cs, Mo, Rb, Nb, Sr, Y, Ni およびZrの少なくとも10元素の定量結果が得られる。

JB-1を比較試料とし、W-2, BIR-1およびDNC-1の3種の新しいUSGSの標準岩石を分析した。JB-1を試料の両側に配置して同時に放射化し、JB-1からの平均比放射能(定量目的元素からのピーク面積計数率の平均値)を試料中の定量目的元素の比放射能として含有量を算出した。結果を第3表に示した。 r 線スペクトロメトリーの結果¹⁵⁾も並記した。

第3表 Analytical results for the USGS geostandards,
W-2, BIR-1 and DNC-1.*

Element	W - 2		BIR - 1		DNC - 1	
	LEPS	r - ray	LEPS	r - ray	LEPS	r - ray
Ba	168	—	13.0	—	94	—
Ce	22.6	24.2 ± 1.5	1.8	1.9 ± 0.1	8.7	8.6 ± 0.5
Cs	0.5	—	ND	—	ND	—
Mo	1.6	—	2.5	—	1.9	—
Nb	6.3	10.4 ± 0.7	3.2	3.1 ± 0.2	4.0	5.3 ± 1.0
Ni	77.1	71.3 ± 2.2	178	173 ± 3.4	249	264 ± 9.6
Rb	16.2	19.0 ± 1.3	ND	~ 1	4.3	4.0 ± 0.2
Sr	143	190 ± 4.6	93	105 ± 1.2	140	148 ± 2.5
Y	20.2	30.5 ± 3.5	18.1	18.4 ± 0.8	26.0	21.5 ± 1.1
Zr	112	106 ± 2.4	12.8	16.7 ± 0.6	31.9	44.2 ± 1.2

* All data are in ppm. Results by LEPS are the average values from duplicate samples. Results by r -ray spectrometry with a Ge(Li) detector are the mean values of 6 separate determinations with standard deviations from the means.

Ba, Cs, Mo は LEPS により定量できる。他の元素については、両法による一致度から正確さの確認に有効に利用できよう。

本研究にあたり、御協力を賜った東北大学理学部原子核理学研究施設・八木益男助教授、榎本和義助手、同施設マシングループの皆様、ならびに東北大学教養部・鈴木励子助手に厚く御礼申し上げます。JB-1 は地質調査所・安藤厚博士より恵与をうけ使用させていただいた。また、研究費の一部は財団法人日本化学研究会より助成を受けた。付記して謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) R. Basile, J. Huré, P. Lévêque and C. Schuhl : Compt. rend. **239** (1954) 422.
- 2) J. Hertogen and R. Gijbels : Anal. Chim. Acta **56** (1971) 61.
- 3) M. H. Friedman, E. Miler and J. T. Tanner : Anal. Chem. **46** (1974) 236.

- 4) P. Voldet and W. Haerdi : Anal. Chim. Acta **87** (1976) 227.
- 5) P. Voldet and W. Haerdi : *ibid.* **97** (1978) 185.
- 6) P. A. Baedecker, J. J. Rowe and E. Steiness : J. Radioanal. Chem. **40** (1977) 115.
- 7) V. Krivan : Anal. Chem. **47** (1975) 469.
- 8) H. -P. Weise and Chr. Segebade : J. Radioanal. Chem. **37** (1977) 195.
- 9) Chr. Segebade and H. - P. Weise : *ibid.* **45** (1978) 209.
- 10) H. -P. Weise and Chr. Segebade : *ibid.* **49** (1979) 95.
- 11) Chr. Segebade , H. -U. Fusban and H. - P. Weise : *ibid.* **59** (1980) 399.
- 12) C. M. Lederer and V. S. Shirley : *Table of Isotopes*, 7th ed. (J. Wiley & Sons, New York, 1978).
- 13) Z. Řanda and Kreisinger : J. Radioanal. Chem. **77** (1983) 279.
- 14) N. Sato, T. Kato and N. Suzuki : *ibid.* **36** (1977) 221.
- 15) T. Kato and H. Yokobayashi : to be published.

内標準法による光量子放射化分析

— 環境試料中の微量元素の多元素同時定量 —

核理研

榎本和義・八木益男

§ 1. 序

定量分析においては、感度、精度、正確さ、迅速性、簡便性そして多元素同時定量の可能性など種々の特徴を有する定量法の開発が望まれる。しかしながら、これらすべての条件を兼ね備えた定量法の実現は難しい。そこで、例えばJ I Sなどの公定法では精度に重点が置かれ、日常分析法では迅速性、簡便性に重点が置かれるというように、それぞれの定量目的に応じた方法が開発され、使い分けられている。

近年、機器分析法の発達と分析データの相互比較の必要性和増加に伴い、各種標準物質（reference material）の重要性が認識されるようになってきた。そこで、化学分析においても、物理計測の標準化と同様S I単位を頂点に一次標準物質、二次標準物質そして作業標準物質を通して正確さを伝達するという考えが、米国N B Sを中心に提案されてきた。¹⁾ そして、これらの標準物質に係わる分析法はdefinitive method, reference method および field method に階級づけられてきた。definitive method は重量分析や電量分析のようにS I単位の直結した分析法であるが、すべての元素について感度良く定量できるというものではない。そのため、標準物質の保証値の決定では複数のreference method による定量値の一致が条件とされる。

この標準化の系統のなかに放射化分析法をどのように位置付け発展させていくかは重要な課題であるが、これまで報告されてきた数多くの放射化分析の研究ではこの点についての議論はほとんど行なわれていない。著者等は放射化分析のように大型の装置を使用する分析法は日常分析に利用するというよりも、むしろ標準物質の保証値の決定といったreference method としての役割にその存在意義を発揮すべきであるという認識から、高い精度と正確さを有する定量法の開発を行ってきた。²⁻⁷⁾ そして、試料調製、照射および測定といった各操作で考えられる系統誤差の要因を極力除き、定量式に実験上の補正係数や比例定数を含まないような定量法のひとつとして内標準法を新たに開発してきた。

内標準法は、試料に定量目的元素を一定量添加したものを比較試料とするため、試料と比較

試料の元素組成の相違によるマトリックス効果が相殺され、さらに試料内に共存する定量目的元素以外の元素を内標準に利用して照射線量がモニターされるために、試料内に照射された実効線量を知ることができるという特徴を持つ。また、さらに試料と比較試料との γ 線スペクトルの形状が類似しているために、等しい条件で γ 線ピーク面積の評価を行なうことができるという特徴を併せ持つ。この内標準法の定量式は以下のように与えられる。すなわち、定量目的元素を W_a g含む試料に既知量 W_a^* g添加したものを比較試料とし、試料とともに照射後、定量目的元素と内標準元素から生成する放射能の比（通常は γ 線ピーク面積比）を試料（ A_R ）と比較試料（ A_R^* ）について測定すれば、未知量 W_a gは

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

で与えられる非常に簡便な式で求めることができる。

本法は環境試料のように組成が複雑な試料中の微量元素の定量を行なうような場合、とくに有力な定量手段となることが期待される。すでに、本法は国立公害研究所配布の環境標準試料 NIES No.1 Pepperbush²⁾ や NIES No.2 Pond Sediment⁸⁾ および米国 NBS 配布の SRM 1646 Estuarine Sediment⁸⁾ 中の微量元素の定量に適用されており、新しい放射化分析法として既に確立したといえよう。一方、これらの試料で分るように環境分析では沈積物に関心が払われることが多い。これらの沈積物は湖底や海底などに堆積したもので、深さ方向に元素分析を行なっていけば、堆積した年代の環境についての情報を得ることができるという特色を持つ。このように、沈積物は農業、鉱工業および都市などによる人為的な環境の変遷や汚染を探るうえで重要な指標を与えるものであるため、各国、各研究機関は沈積物分析のための指針を与える標準試料の調製を活発に行なってきた。電子ライナックを利用する光量子放射化分析は、他の放射化分析法などでは不得手とする Ni, Zr, Y および Nb などの元素や Cr, As および Pb といった有害汚染性元素など数多くの元素の同時定量を可能にする特色ある分析法であり、上記環境試料の分析ではその偉力を十分に発揮するものである。そこで、本研究では、上記以外の環境試料である IAEA 配布の Lake Sediment およびカナダ NRCC 配布の Marine Sediment MESS-1, BCSS-1 について、内標準法による光量子放射化分析法で多元素同時定量を実施したので報告する。

§ 2. 実 験

2.1 分析試料と照射のための試料調製

試料は IAEA 配布の Lake Sediment SL-1 およびカナダ NRCC 配布の Marine Sediment

MESS-1, BCSS-1である。SL-1は米国ミシシッピ州のSardis Reservoirから採取されたものであり、MESS-1およびBCSS-1はカナダのセントローレンス湾内の2箇所から採取されたものである。

これらの試料は105℃で約4時間乾燥した。乾燥減量はSL-1, MESS-1およびBCSS-1でそれぞれ5.17%, 1.09%および0.97%であった。試料はそれぞれ約1gを正確に秤りとり、テフロン製のビーカーに移した。あらかじめ適当な濃度比となるように調製した定量目的元素の混合溶液、4M硝酸2mlおよびテトラエチルシリケート2mlを加えて良くかくはんした。ゲル化後、オープンおよび電子レンジ中で水分、エタノールおよび硝酸を蒸発させたのち、乾燥を完全にするため石英製蒸発皿に移し400℃の電気炉中で2時間加熱した。生成した粉末状試料から約300mgをとって高純度アルミニウム箔に包み、直径10mmのペレット状に成型した。また、未処理の試料もこの標準添加試料と同様ペレット状に成型した。

2.2 照射および測定

照射は加速エネルギー30MeV、平均電流150 μ Aの電子線を厚さ2mmの白金板で制動放射に転換して行なった。ペレット状の試料は石英管に封入し、照射用水冷式ホルダー内の白金コンバーター後方10~15cmの位置に固定し、3時間照射した。照射後、試料は新たにアルミニウム箔に再包装し、自動測定用の試料管に固定した。

放射能測定はGe(Li)半導体検出器を4kPHAに接続し、マイクロ・ロボットを利用した自動測定装置⁸⁾を用いて行なった。照射後、約1~5時間、3~4日、7~10日および3~4週間の4つの測定期間に分けて測定を繰り返し、定量目的元素から生成した核種より放出される γ 線がSN比良く測定できた時点でのデータを定量に利用した。

§ 3. 結果と考察

3.1 内標準元素

本実験では半導体検出器による高分解能 γ 線スペクトロメトリーの特徴を生かし、環境試料中の主要成分であるNa, Mg, Ca, Ti, MnおよびFeの6元素を内標準元素に選んだ。これらの元素より生成する核種と内標準に利用する γ 線のエネルギーを第1表(a)に示した。表から明らかなように、内標準元素からは半減期が数時間から年のオーダーのものまで生成するため、先に述べたいずれの測定期間においても複数の核種からの γ 線を内標準ピークに利用することができた。このように、定量目的元素からの γ 線と内標準の γ 線が同時に測定できることは、測定時における試料と標準添加試料とのジオメトリーに相違があった場合でもその差を相殺す

ることができ、測定からくる系統誤差を減らすうえで非常に有効である。²⁾

第1表 Nuclear data on photon activation analysis of environmental materials.

(a) Elements used as internal standard.

Element	Reaction	Half-life	γ -ray (keV)
Na	$^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$	2.602 y	1274.6
Mg	$^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$	15.02 h	1368.5
Ca	$^{44}\text{Ca}(\gamma, p)^{43}\text{K}$	22.3 h	372.9, 617.8
Ca	$^{48}\text{Ca}(\gamma, n)^{47}\text{Ca}$	4.536 d	1297.0
Ti	$^{47}\text{Ti}(\gamma, p)^{46}\text{Sc}$	83.80 d	889.3, 1120.5
Ti	$^{48}\text{Ti}(\gamma, p)^{47}\text{Sc}$	3.42 d	159.4
Ti	$^{49}\text{Ti}(\gamma, p)^{48}\text{Sc}$	43.7 h	983.5, 1037.5, 1312.1
Mn	$^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$	312 d	834.8
Fe	$^{57}\text{Fe}(\gamma, p)^{56}\text{Mn}$	2.579 h	846.8

(b) Element to be determined.

Element	Reaction	Half-life	γ -ray (keV)
As	$^{75}\text{As}(\gamma, n)^{74}\text{As}$	17.78 d	595.9
Ba	$^{136}\text{Ba}(\gamma, n)^{135\text{m}}\text{Ba}$	28.7 h	268.2
Ce	$^{140}\text{Ce}(\gamma, n)^{139}\text{Ce}$	137.2 d	165.9
Co	$^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}$	70.8 d	810.8
Cr	$^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$	27.70 d	320.1
Cs	$^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$	6.47 d	667.5
Nb	$^{93}\text{Nb}(\gamma, n)^{92\text{m}}\text{Nb}$	10.15 d	934.5
Ni	$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	36.0 h	1377.6
Pb	$^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$	52.0 h	279.2
Rb	$^{85}\text{Rb}(\gamma, n)^{84}\text{Rb}$	32.9 d	881.6
Sb	$^{123}\text{Sb}(\gamma, n)^{122}\text{Sb}$	2.68 d	564.0
Sr	$^{88}\text{Sr}(\gamma, n)^{87\text{m}}\text{Sr}$	2.80 h	388.4
Y	$^{89}\text{Y}(\gamma, n)^{88}\text{Y}$	106.6 d	898.0, 1836.0
Zn	$^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$	61.9 h	184.5
Zr	$^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$	78.4 h	909.2

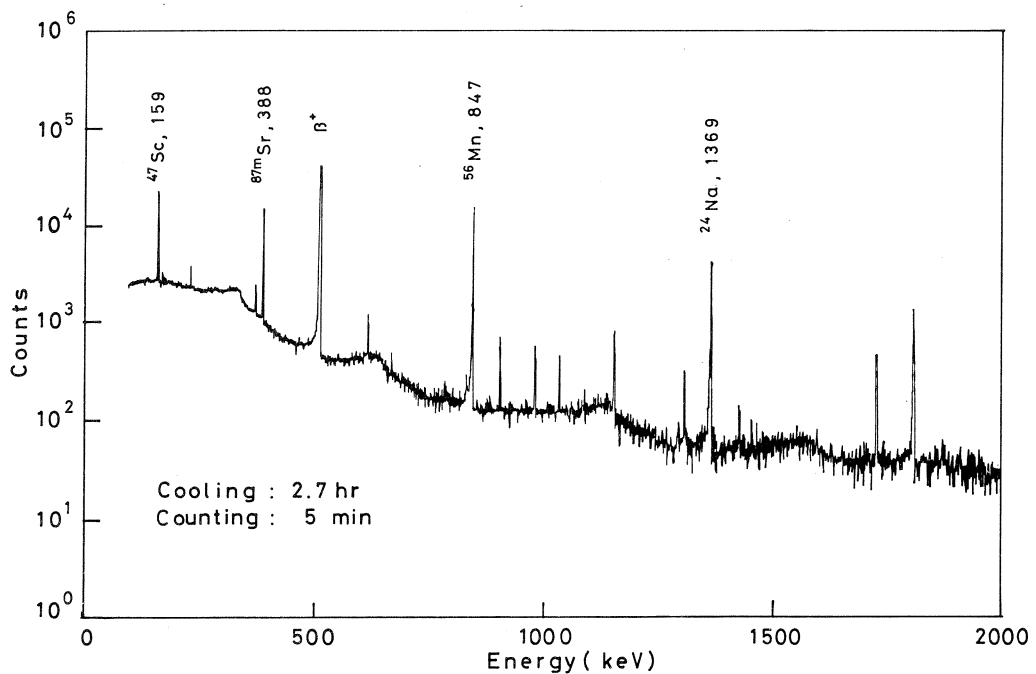
3.2 定量目的元素

定量目的元素にはAs, Ba, Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Pb, Rb, Sb, Sr, Y, ZnおよびZrの15元素を選んだ。これらの元素の定量に利用した核種とその γ 線エネルギーを第1表(b)に示した。また、参考のため環境試料の光量子放射化後の γ 線スペクトルの例として、同様の条件で照射されたNIES No.2 Pond Sedimentの γ 線スペクトルを第1～3図に示した。

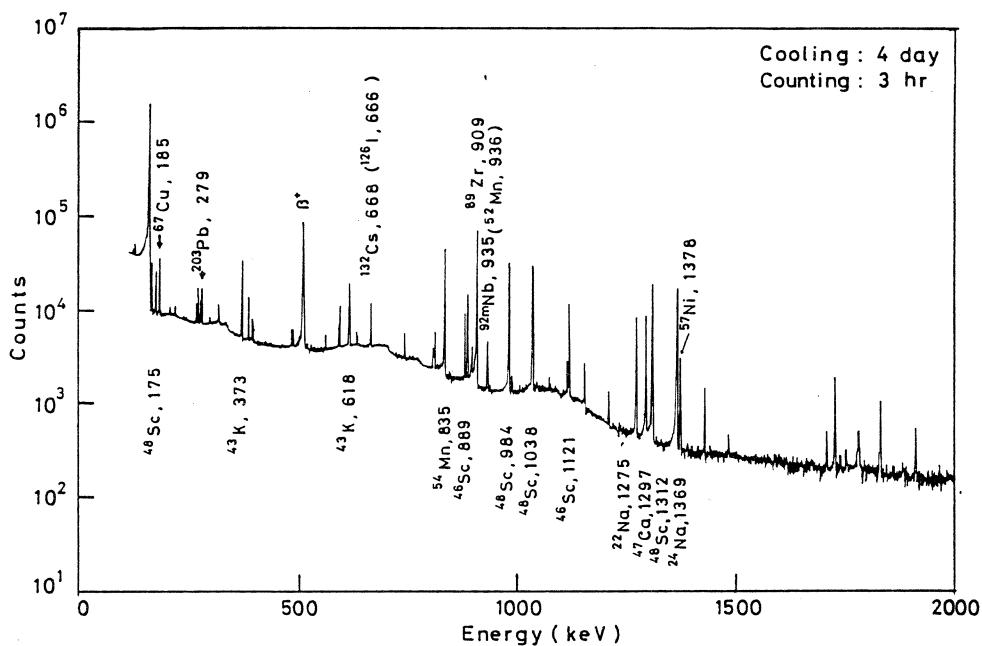
Srは半減期2.70時間の ^{87m}Sr を利用するために測定の第1ラウンドで定量された。第1図は1半減期経過後の γ 線スペクトルである。内標準にはTiからの ^{47}Sc の159.4 keV γ 線、 ^{56}Mn の846.8 keV γ 線およびMgからの ^{24}Na の1368.5 keV γ 線が利用できた。

Ba, Cs, Ni, Rb, Sb, ZnおよびZrは第2もしくは第3ラウンドで定量された。第2図は第2ラウンドでの γ 線スペクトルである。その際の内標準には、スペクトルの下に示したように ^{22}Na , ^{24}Na , ^{43}K , ^{47}Ca , ^{48}Sc および ^{54}Mn からの γ 線が利用できた。

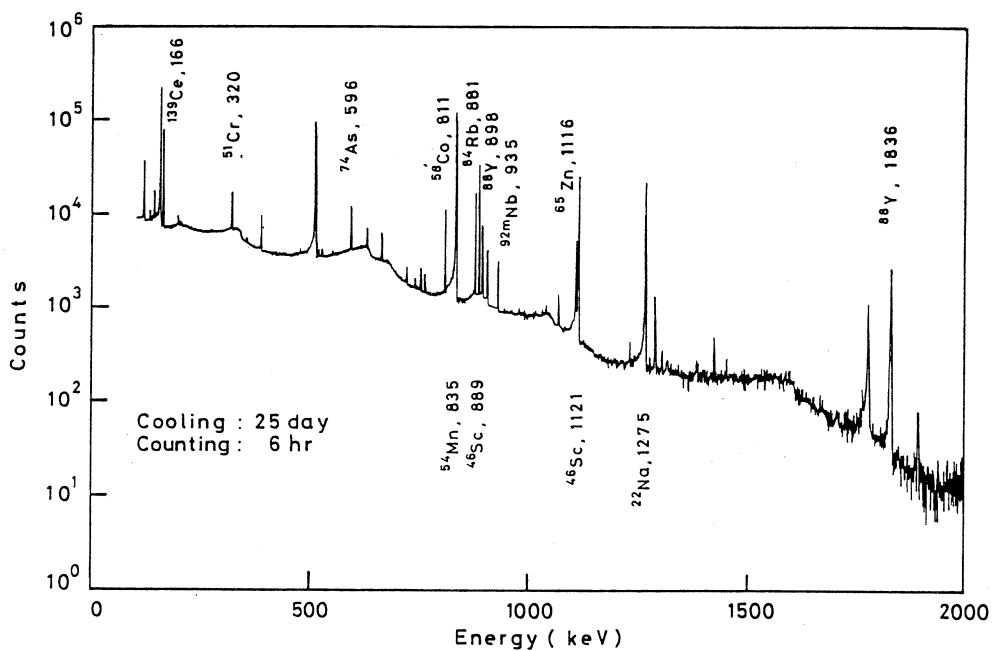
Cr, Nb, RbおよびYは第3もしくは第4ラウンドにおいて定量された。また、Ce, CoおよびAsは第4ラウンドで定量された。第3図には第4ラウンドでの γ 線スペクトルを示した。その際の内標準には、 ^{22}Na , ^{46}Sc および ^{54}Mn からの γ 線が利用された。



第1図 Gamma-ray spectrum of Pond Sediment measured at 2.7 hours after the end of bremsstrahlung irradiation.



第2图 Gamma-ray spectrum of Pond Sediment measured at 4 days after the end of bremsstrahlung irradiation.



第3图 Gamma-ray spectrum of Pond Sediment measured at 25 days after the end of bremsstrahlung irradiation.

3.3 定量結果

Lake Sediment SL-1, Marine Sediment MESS-1, BCSS-1 についての定量結果をそれぞれ第2～4表に示した。

第2表 Concentrations of trace elements in IAEA SL-1 Lake Sediment ($\mu\text{g/g}$).

Element	This work				Average	Presented
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4		
As	30.5	32.2	32.0	31.4	31.5 ± 0.8	27.5 ± 2.9 (HC)
Ba	700	630	660	670	670 ± 30	639 ± 53 (HC)
Ce	114	109	110	107	110 ± 3	113 ± 11 (HC)
Co	19.8	20.2	20.6	20.3	20.2 ± 0.3	19.8 ± 1.5 (HC)
Cr	130	125	124	121	125 ± 04	104 ± 9 (RC)
Cs	6.99	7.03	7.09	7.07	7.05 ± 0.04	7.01 ± 0.88 (RC)
Nb	15.9	15.9	17.0	16.4	16.3 ± 0.5	17 (IV)
Ni	44.0	43.9	44.9	41.2	43.5 ± 1.6	44.9 ± 8.0 (RC)
Pb	34.6	34.8	36.1	39.9	36.4 ± 2.5	37.7 ± 7.4 (RC)
Rb	109	115	114	112	113 ± 3	113 ± 11 (HC)
Sb	1.4	1.6	1.8	1.5	1.6 ± 0.2	1.31 ± 0.12 (RC)
Sr	78.5	78.6	81.3	78.7	79.3 ± 1.4	80 (IV)
Y	34.8	35.2	34.9	34.2	34.8 ± 0.4	85 (IV)
Zn	206	213	224	224	217 ± 9	223 ± 10 (HC)
Zr	150	150	149	149	150 ± 1	241 (IV)

HC ; High degree of confidence, RC ; Reasonable degree of confidence, IV ; Information value.

まず、定量の際の感度や妨害の問題について、いずれの試料にも共通して言えることを以下に述べる。

各試料中の濃度が低いまたは検出感度が良くないなどの理由で、測定の際のS/Nの比が悪かったものとしてBa, PbおよびSbが挙げられる。Baは $^{135\text{m}}\text{Ba}$ からの268.2 keV r 線が定量に利用できるが、ScおよびTiから生成する $^{44\text{m}}\text{Sc}$ の r 線が271.2 keVにあり、 $^{135\text{m}}\text{Ba}$ よりも半減期が長いために測定時期を逸するとS/N比が低下することになる。Pbは ^{203}Pb の279.2 keV r 線を利用するがBaが数100 ppm以上含まれるとBaから生成する $^{133\text{m}}\text{Ba}$ からの276.0 keV r 線のためにS/N比が低下する原因となる。Sbは数ppmないしそれ以下であるため、SL-1の場合で562 keV r 線の計数誤差は20%程度であった。

第3表 Concentrations of trace elements in NRCC MESS-1 Marine Sediment Reference Material ($\mu\text{g/g}$).

Element	This work				Average	Presented
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4		
As	9.2	9.3	10.6	11.9	10.3 \pm 1.3	10.6 \pm 1.2 (RV)
Ba	230	260	250	280	260 \pm 20	270 (SQ)
Ce	71.5	77.3	79.6	76.9	76.3 \pm 3.4	60 (SQ)
Co	9.5	9.0	11.6	11.7	10.5 \pm 1.4	10.8 \pm 1.9 (RV)
Cr	67.3	69.3	81.4	86.5	76.1 \pm 9.3	71 \pm 11 (RV)
Cs	4.5	4.5	5.0	4.7	4.7 \pm 0.2	(4) (IV)
Nb	18.1	18.1	19.0	18.8	18.5 \pm 0.5	20 (SQ)
Ni	27.3	28.5	33.0	31.1	30.0 \pm 2.6	29.5 \pm 2.7 (RV)
Pb	24	30	25	33	28 \pm 4	34.0 \pm 6.1 (RV)
Rb	95.4	97.7	112.1	105.8	102.8 \pm 7.7	100 (SQ)
Sb	0.45	0.33	0.80	0.56	0.54 \pm 0.20	0.73 \pm 0.08 (RV)
Sr	99.1	104.6	107.1	101.3	103.0 \pm 3.5	(89) (IV)
Y	33.7	34.7	38.1	36.5	35.8 \pm 1.9	35 (SQ)
Zn	206	212	234	238	223 \pm 16	191 \pm 17 (RV)
Zr	—	—	560	570		500 (SQ)

RV; Reliable value, IV; Information value,
SQ; the results of semiquantitative analysis obtained by solid source mass spectroscopy.

Cs を ^{132}Cs の 667.5 keV γ 線で定量する際に、I が存在すると ^{126}I が生成して、666.3 keV γ 線との間に重なりが生じる。そこで、あらかじめ ^{126}I から放出される 388.6 keV γ 線と 666.3 keV γ 線のピーク計数比を同一条件で測定しておき補正することにした。Nb の定量では多量に共存する Fe から ^{52}Mn が生成し、 ^{52}Mn の 935.5 keV γ 線と $^{92\text{m}}\text{Nb}$ の 934.5 keV γ 線とが重なりあうことになる。この場合にも、あらかじめ ^{52}Mn の 744.2 および 1434.1 keV γ 線と 935.5 keV γ 線とのピーク計数比を求めておき補正することにした。Zn を ^{67}Cu の 184.5 keV γ 線で定量する場合、Ga が存在すると (γ , 2n) 反応によって ^{67}Ga が生成し、同じエネルギーの γ 線を放出するため妨害になる可能性がある。しかし、本実験で分析した試料では、 ^{67}Ga から同時に放出される 300.2 keV γ 線が検出されず、妨害は無視できるものとみなすことができた。これらの他に、 γ 線の重なりによる妨害では、As を ^{74}As の 595.9 keV で定量する場合の Ca からの ^{43}K の 593.6 keV γ 線、Co を ^{58}Co で定量する場合の Ca からの ^{47}Ca の

第4表 Concentrations of trace elements in NRCC BCSS-1 Marine Sediment Reference Material ($\mu\text{g/g}$).

Element	This work				Average	Presented
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4		
As	11.6	9.4	10.7	10.1	10.5 ± 0.9	11.1 ± 1.4 (RV)
Ba	280	340	240	250	280 ± 50	330 (SQ)
Ce	66.8	55.5	56.6	59.4	59.6 ± 5.1	70 (SQ)
Co	14.3	12.6	12.3	13.4	13.2 ± 0.9	11.4 ± 2.1 (RV)
Cr	151	137	129	136	138 ± 9	123 ± 14 (RV)
Cs	3.3	2.9	2.9	3.0	3.0 ± 0.2	(4) (IV)
Nb	14.2	14.0	14.0	14.1	14.1 ± 0.1	14 (SQ)
Ni	59.1	58.8	59.1	55.6	58.2 ± 1.7	55.3 ± 3.6 (RV)
Pb	18	20	21	24	21 ± 3	22.7 ± 3.4 (RV)
Rb	90.4	90.2	87.9	87.6	89.0 ± 1.5	80 (SQ)
Sb	0.64	0.39	0.45	0.29	0.44 ± 0.15	0.59 ± 0.06 (RV)
Sr	117	105	106	109	109 ± 5	(96) (IV)
Y	23.0	20.5	21.5	22.0	21.8 ± 1.2	50 (SQ)
Zn	136	128	118	129	128 ± 7	119 ± 12 (RV)
Zr	208	224	237	203	218 ± 16	350 (SQ)

RV; Reliable value, IV; Information value, SQ; the results of semiquantitative analysis obtained by solid source mass spectroscopy.

807.9 keV r 線を挙げる事ができる。しかし、これらはいずれも ^{43}K および ^{47}Ca の減衰を待って定量することができた。

Crを ^{51}Cr で定量する場合、Feからも($r, \alpha n$)反応により ^{51}Cr が生成して妨害する場
合が考えられる。以前求めた妨害核反応のデータから, ^{10}Fe が1.6%存在するとCrの1 ppm
に相当するとみなすことができ、この値を使ってこれは補正することにした。Feは各試料の
保証値を用いると、SL-1, MESS-1およびBCSS-1のCrの定量値からそれぞれ4.2, 1.9
および2.1 ppmを差し引くことになる。この補正を行なっても、いずれの試料でも若干高い値
が得られており、今後さらに検討を要すると考えられる。また、Hgが存在すると ^{203}Hg が生
成し、Pbの定量に利用するPbの279.2 keV r 線と同じ r 線を放出して妨害となる可能性が
ある。 10 しかし、Pbの存在量に比べてHgの量は少なく、 ^{203}Pb を1半減期後に測定した場合には
全ての試料で ^{203}Hg による妨害は1%以下であるとみなすことができた。

IAEAの標準物質は各元素の保証値を high degree of confidence (HC), reasonable degree of confidence (RC) および information value (IV) に分けて示している。SL-1 ではそれぞれの試料で内標準ピークの相違による定量値の標準偏差は3%以内であり、内標準の違いによる有無の差は認められなかった。また、4個の試料での定量値の再現性も良かった。YおよびZrはIVとして示されているが、いずれも本実験の結果よりかなり高い値を示しておりより一層の検討を要する。この2元素以外はHC, RCおよびIVとして示された値と本分析値とは非常に良く一致した。

NRCCの標準物質では reliable value (RV) と information value (IV) および質量分析による半定量の値 (SQ) が示されている。MESS-1, BCSS-1ともSL-1の場合に比べて4個の試料間のデータのばらつきは大きかった。MESS-1のZrはTiを内標準にした場合は4個のばらつきは少ないが、Ti以外の元素の場合には大きくばらついた。Zrのこのようなばらつきはこれまでに例がなく、Zrの均一性についてさらに検討する必要があると考える。BCSS-1ではSL-1と同様、YとZrの定量値がSQとして示された参考値にくらべて小さかった。しかし、NRCCではSQにはファクターで3倍以内の誤差があるため、あくまでも目安として扱うように述べており、その比較は難しい。いずれの試料もRVとして示された元素では本法の値と非常に良く一致した。

以上のように、本法ではZr, YおよびNbといった他の分析法ではあまり分析されない元素を含めて多数の微量元素を正確に定量できることが示された。

§ 4. 今後の課題

本研究を通して、内標準法はマトリックス組成に起因する誤差や線量補正に係わる誤差を除くうえで非常に有力な定量手段であることが実証された。しかし、核反応による妨害や r 線の重なりによる妨害は光量子放射化など個々の放射化分析に特有の問題であり、個々の例に応じて解決すべき問題であろう。そのため、内標準法の特徴をより発揮させるうえでもそれぞれの妨害を正確に評価し、補正などを実施することが今後とも不可欠である。

これまでに、測定の自動化や定量計算の自動化は達成してきたが、今後は妨害補正まで含めた r 線スペクトルの解析の自動化を実現し、測定、解析、定量までの一貫した放射化分析システムを実現させる計画である。

また、内標準法の適用例として光量子放射化分析および荷電粒子放射化分析による一連の環境標準試料の分析を実施するとともに、LEPSによる低エネルギー r 線領域を利用した分析

も実施する予定である。

参 考 文 献

- (1) G. A. Uriano and C. C. Gravatt : CRC Crit. Rev. Anal. Chem. **6** (1977) 361.
- (2) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Chem. **79**(1983) 57.
- (3) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. (A) **83**(1984) 319.
- (4) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. (A) **83**(1984) 369.
- (5) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. (A) **91**(1985) 91.
- (6) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. (A) **91**(1985) 379.
- (7) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. (A) **91**(1985) 369.
- (8) 榎本和義 : 核理研研究報告 **17** (1984) 159.
- (9) 榎本和義, 武藤正勝, 八木益男 : 核理研研究報告 **17** (1984) 236.
- (10) K. Masumoto, T. Kato and N. Suzuki : Nucl. Instrum. Methods **157**(1978) 567.

光量子放射化分析法による海藻中の主要 および微量元素の定量に関する諸検討

理学部化学

岩田吉弘・井村久則・鈴木信男

§ 1. 序

海藻の正確な元素組成を知ることは生物地球化学および環境化学においてきわめて重要である。これまでもいくつかの成書^{1,2)}に海藻の分析値がまとめられているが、正確で系統的なデータの集積を行なった例は少なく生物地球化学等への応用はもちろん組成の一般的考察すら困難なのが現状である。

我々はこれまで生物体類似の元素組成を持つ合成標準試料(SyRM)の開発を行ない非破壊光量子放射化分析への適用を報告した。³⁾今回は海藻の正確な元素含有量を求める方法の確立を目的とし、二、三種の海藻についてサンプリングや試料処理法も含めて詳細な検討を行い、多年度にわたって同一地点でサンプリングし、分析値の集積を行った。

§ 2. 実 験

2.1 試料採取

ホソメコンブ(*Laminaria religiosa* Miyabe)およびアカモク(*Sargassum homeri* (Turher) C. Agardh)は宮城県牡鹿郡の女川湾内弁天島の岩礁で1982年11月17日、1983年6月14日および1984年5月4日の3回にわたりそれぞれ採取した。

試料には傷や付着物のない個体を選び、よく洗浄したプラスチック手袋を用い採取、口過海水で洗浄後、しずくが落ちない程度に海水をきる。一個体ずつポリエチレン袋に密封し直ちにドライアイスのはいった保冷箱に入れ凍結し、これを研究室に持ち帰り-20℃以下で凍結保存した。

1983年6月14日に採取したホソメコンブ1個体(約100g)は採取後1.5ℓの再蒸留水のはいったポリビン2本に順次浸して水洗し凍結した。またそれと一地点で生長していたほぼ大きさの等しい1個体を比較用に採取した。

2.2 乾燥および粉碎

試料は湿重量を測定後に凍結状態のまま約48時間の真空凍結乾燥を行なった。これをめのう

乳ばちあるいは高純度アルミナ製ボールミルを用い粉碎し冷蔵した。さらに使用前に85°C 2時間のオープン乾燥により恒量とし分析に供した。

2.3 非破壊光量子放射化分析

既報³⁾にしたがい分析試料および海藻の元素組成に類似のSyRMを調製し電子ライナックからの30MeVの制動放射により2~3時間放射化した。照射後5回にわたり γ 線スペクトルを測定し、定量は各核種の光電ピーク面積を比較して行なった。

§ 3. 結果と考察

海藻の微量分析のための試料処理は採取時の洗浄の有無、乾燥法、灰化法などでさまざまな方法がとられてきた。⁴⁻⁹⁾ここではコンブなどの大型海藻を大量にしかも汚染や損失なしに処理するために採取地での処理を最小限にとどめ直ちに凍結保存、これをそのまま真空凍結乾燥し

第1表 Multielement analysis of *Laminaria religiosa* Miyabe*

Element	Content***					
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5	No. 6
Na (%)	4.04 ± 0.03	3.84 ± 0.04	4.35 ± 0.04	3.53 ± 0.05	3.59 ± 0.06	3.84 ± 0.03
Mg (%)	0.986 ± 0.011	0.923 ± 0.017	1.07 ± 0.004	0.957 ± 0.013	0.931 ± 0.010	0.997 ± 0.017
Cl (%)	14.0 ± 0.3	15.6 ± 0.8	15.6 ± 0.4	10.3 ± 0.2	10.4 ± 0.2	12.5 ± 0.4
Ca (%)	0.909 ± 0.005	0.851 ± 0.005	1.08 ± 0.01	1.00 ± 0.03	0.931 ± 0.010	0.981 ± 0.03
As (ppm)	54.5 ± 1.0	51.3 ± 0.7	51.7 ± 0.4	51.9 ± 1.3	51.6 ± 1.2	55.7 ± 0.9
Br (ppm)	835 ± 30	974 ± 19	1420 ± 30	738 ± 19	637 ± 27	747 ± 11
Rb (ppm)	39.8 ± 0.7	50.8 ± 0.05	51.6 ± 0.7	40.4 ± 0.9	38.6 ± 1.6	38.9 ± 1.7
Sr (ppm)	574 ± 6	447 ± 10	628 ± 7	619 ± 9	617 ± 4	555 ± 5
I (ppm)	3020 ± 40	3400 ± 20	3120 ± 15	2150 ± 40	2250 ± 30	2940 ± 10
V (ppm)**		0.974 ± 0.029		0.786 ± 0.013	0.938 ± 0.022	
Mn (ppm)**		3.85 ± 0.16		4.99 ± 3.77	3.77 ± 0.08	
Fe (ppm)**		25.4 ± 2.2		47.1 ± 2.5	64.3 ± 1.7	
Co (ppb)**		41.5 ± 3.8		48.8 ± 2.0	46.6 ± 0.6	
Cu (ppm)**		0.48 ± 0.09		0.66 ± 0.15	0.41 ± 0.06	
Zn (ppm)**		7.48 ± 0.22		9.03 ± 0.10	7.90 ± 0.23	

* Hosome konbu, sampling date 1983. 6. 14, lyophilization for 48h and oven drying for 2h at 85°C.

**Preseparation-neutron activation analysis, (mean value $\pm 1\sigma$ for 3 determinations).

***Mean value $\pm 1\sigma$ for 4 determinations.

粉碎することとした。

海藻を直接真空凍結乾燥することによって元素の損失につながる液じゅう(ドリップ)の生成¹⁰⁾を防ぐことができ、また風乾やオープン乾燥の場合のような試料自身の収縮も少ないため、後の粉碎処理が非常に容易となり海藻の試料処理法として有効な方法であることがわかった。

第1表に1983年6月14日に採取したホソメコンブ6個体の定量結果を示す。各個体について4回分析したが、アルカリ、

アルカリ土類とハロゲンおよびヒ素の9元素の同時定量が可能であり、どの元素もRSD4%以内ときわめて精度よく定量できた。また表には微量遷移金属の定量値も合わせて示すが、これは試料を硝酸で湿式灰化し、ジエチルジチオカルバミン酸-ベンゼン系で抽出分離し、ポリスチレンを用いて固化濃縮後、中性子放射化分析したものである。¹¹⁾

第2表には定量値を湿重量ベースに換算しその平均値、最大最小値および標準偏差を示す。

微量第一遷移金属は3個体、他は6個体について調べたが全般に個体差は少なく、特にNaなど主要元素濃度はほぼ等しく微量元素もRSDをとるとAs, Rb, Sr, Iで10%程度、その他の元素もFeをのぞくと30%以内である。

次に水洗した試料および比較用に採取した試料の湿重量あたりの元素濃度を第3表に示す。ホソメコンブもアカモク同様³⁾に再蒸留水で洗浄したものはしないものに比べてほとんどの元素で濃度の低下が見られるが、それぞれの元素濃度の差はほぼ海水の組成比に一致している。そこでこの減少量が水洗による付着海水の除去によるものと仮定し、補正したのが2番目のカ

第2表 Elemental abundances of *Laminaria religiosa* Miyabe* based on the weight of wet sample.

Element	Mean	Range		S**	(n)***
Mg (%)	0.13	0.12	— 0.14	0.01	(6)
Cl (%)	1.6	1.5	— 1.8	0.1	(6)
Ca (%)	0.13	0.11	— 0.14	0.01	(6)
As (ppm)	6.9	6.0	— 7.4	0.6	(6)
Br (ppm)	110	100	— 170	27	(6)
Rb (ppm)	5.7	4.9	— 6.1	0.5	(6)
Sr (ppm)	77	69	— 88	9	(6)
I (ppm)	350	310	— 390	30	(6)
V (ppm)	0.11	0.10	— 0.13	0.02	(3)
Mn (ppm)	0.57	0.46	— 0.71	0.13	(3)
Fe (ppm)	6.3	3.1	— 9.2	3.1	(3)
Co (ppb)	6.2	5.0	— 6.9	1.1	(3)
Cu (ppm)	0.070	0.058	— 0.094	0.021	(3)
Zn (ppm)	1.1	0.90	— 1.30	0.2	(3)

* Hosome konbu, sampling date 1983. 6. 14.

** Standard deviation is given by $S = \left[\frac{\sum (x_i - \bar{x})^2}{n-1} \right]^{1/2}$

*** Number of samples

第3表 Comparison of elemental concentration of a sample washed with redistilled water with that washed with sea water.

Element	Content*		
	Sample ^a	Corrected value ^b	Reference sample ^c
Na (%)	0.35	0.53	0.53
Mg (%)	0.13	0.15	0.15
Cl (%)	1.1	1.4	1.5
Ca (%)	0.13	0.14	0.14
As (ppm)	7.4	7.4	8.8
Br (ppm)	82	93	122
Rb (ppm)	4.5	4.5	5.6
Sr (ppm)	89	90	93
I (ppm)	340	340	290

*% or ppm based on wet weight.

^a Hosome konbu, sampling date 1983. 6. 14, the freshcaught sample was successively washed with two 1.5ℓ portions of water for 30 sec.

^b See text.

^c Washed with sea water.

第4表 Seasonal variation of elemental abundances of *Laminaria religiosa* Miyabe**

Element	Content ^a					
	'84. 5. 4 ^c	(n) ^b	'83. 6. 14 ^c	(n) ^b	'82. 11. 17 ^c	(n) ^b
Na (%)	0.52	(2)	0.50 ± 0.02	(6)	0.55 ± 0.04	(3)
Mg (%)	0.12	(2)	0.13 ± 0.01	(6)	0.17 ± 0.01	(3)
Cl (%)	1.3	(2)	1.6 ± 0.1	(6)	1.4 ± 0.2	(3)
Ca (%)	0.10	(2)	0.13 ± 0.01	(6)	0.20 ± 0.1	(3)
As (ppm)	7.2	(2)	6.9 ± 0.6	(6)	20 ± 3	(3)
Br (ppm)	46	(2)	110 ± 30	(6)	160 ± 11	(3)
Rb (ppm)	4.3	(2)	5.6 ± 0.5	(6)	4.4 ± 0.5	(3)
Sr (ppm)	76	(2)	77 ± 9	(6)	84 ± 16	(3)
I (ppm)	110	(2)	350 ± 30	(6)	390 ± 160	(3)
V (ppm)*	0.074 ± 0.040	(3)	0.11 ± 0.02	(3)	0.44	(2)
Mn (ppm)*	0.53 ± 0.10	(3)	0.57 ± 0.13	(3)	0.58	(2)
Fe (ppm)*	2.4 ± 0.4	(3)	6.3 ± 3.1	(3)	5.5	(2)
Co (ppb)*	5.8 ± 2.4	(3)	6.2 ± 1.1	(3)	35	(2)
Cu (ppm)*	0.078 ± 0.020	(3)	0.070 ± 0.021	(3)	0.12	(2)
Zn (ppm)*	3.0 ± 1.4	(3)	1.1 ± 0.2	(3)	4.6	(2)

^a Based on wet weight. ^b Number of samples. ^c Sampling date

* Preseparation-neutron activation analysis. ** Hosome konbu

ラムの値である。これは第2表に見られるように個体差の最も少ないNaの減少量から洗浄によって除去された海水量を推定し(約16 ml), これと海水の組成¹⁾ から他の元素の減少量を算出し, 水洗した試料の値に加えたものである。その補正值は主要元素については比較試料とよく一致している。また微量成分についても第2表に示した個体差内でおおむね一致しており, 水洗による元素濃度の減少は主に表面に付着した海水が除去されるためと考えられる。

第4表に採取時期の異なるホソメコンブの湿重量あたりの元素組成を示す。採取日の同じ試料間での個体差は比較的小さ

さかったものの採取日が異なると大きな差が生じることがわかる。特に5月と11月の試料を比べるとIで3倍, VやCoなどが4倍以上の違いがある。

アカモクについて採取時期の異なる試料の元素濃度について示したのが第5表である。ホソメコンブと同様にほとんどの元素でかなりの違いがみられる。

この季節差あるいは生長による変化はまだ詳細な検

討を要すると思われるがMg, Ca, Asなど元素によっては明らかに増加する傾向が見られる。

第5表 Seasonal variation of elemental abundances of *Sargassum horneri* (turner) C. Agardh*

Element	Content**		
	'84. 5. 4 ^a	'83. 6. 14 ^a	'82. 11. 17 ^a
Na (%)	0.35	0.62	0.67
Mg (%)	0.25	0.27	0.55
Cl (%)	1.1	1.7	2.7
Ca (%)	0.12	0.20	0.16
As (ppm)	9.3	18	18
Br (ppm)	35	62	74
Rb (ppm)	2.0	3.1	2.8
Sr (ppm)	150	210	200
I (ppm)	58	72	87

* Akamoku

** Value for 1 sample based on wet weight.

^a Sampling date

§ 4. 結 論

本研究により海藻の試料採取から処理法そして光量子放射化による定量法までの分析法を確立し, 次にこれをいくつかの試料に適用し9元素を同時定量することにより海藻の元素組成およびその特徴に対する知見が得られた。

ホソメコンブでは, 元素組成に個体差は少ないものの, 採取時期の異なるものを比較すると多くの元素でかなり大きな違いがあった。この季節差はアカモクでも見られた。また同じ褐藻類であってもホソメコンブとアカモクでは元素組成にかなりの差が見られた。

以上により海藻を分析しその定量値を相互比較する場合にはその種はもちろん，採取時期や処理法も十分考慮する必要があることがわかった。

本研究にあたり御世話いただきました八木益男先生，榎本和義先生，マシングループの方々，ならびに農学部水産学科附属水産実験所の皆様に厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) H. J. M. Bowen : *Environmental Chemistry of the Elements* (Academic Press, 1979).
- 2) R. Elsler : *Trace Metal Concentrations in Marine Organisms* (Pergamon Press, 1982).
- 3) 鈴木信男他 : 核理研研究報告 **16** (1983) 126.
- 4) H. J. M. Bowen : J. mar. biol. Ass. U. K. **35** (1956) 451.
- 5) A. Preston *et al.* : Environ. Pollut. **3** (1972) 69.
- 6) P. Foster : *ibid.* **10** (1976) 45.
- 7) E. Lande : *ibid.* **12** (1977) 187.
- 8) 河島達郎他 : 分析化学 **31** (1982) T10.
- 9) 河島達郎他 : 日化 **1983** , 368.
- 10) 田口 正他 : 分析化学 **30** (1981) T1.
- 11) 岩田吉弘他 : 分析化学会第33年会要旨集 (1984) p. 890.

デカン玄武岩の地球化学的研究

理学部地学, 東大震研*, 地質調査所**

青木謙一郎・吉田 武義

荒牧 重雄*・倉沢 一**

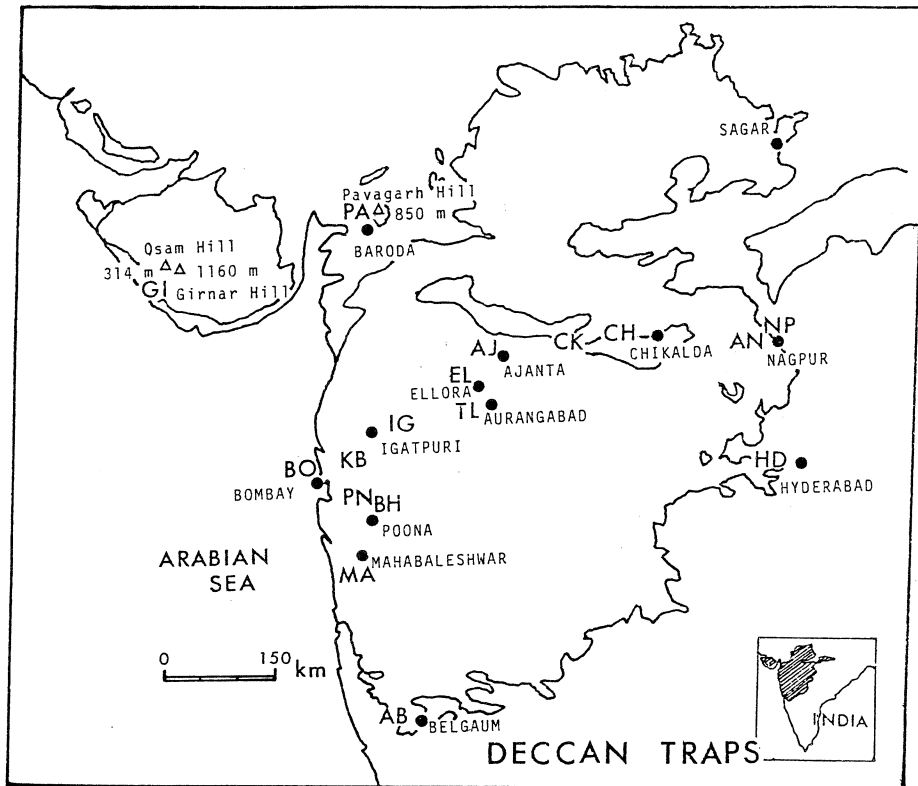
§ 1. はじめに

インド半島の中西部に広大な大地を形成しているデカン玄武岩はその分布面積約 65 km², 体積 20 万 km³ にも達し, 北米のコロンビア河玄武岩, 南アのストームバーグ玄武岩や南米のパラナ玄武岩などと共に大陸に分布する玄武岩では分布面積や体積は最大の規模を誇っている。その活動時期は上部白亜紀～第三紀初頭(100～60 Ma 前)とされ, その主活動期は約 70 Ma 前よりやや古いと考えられている。¹⁾ 全体的にみると, デカン玄武岩の層の厚さは西側において厚く約 2,000 m にも達し, 一方東側においては薄く 100～200 m である。一枚の溶岩の厚さは 1 m 以下のものから約 70 m のものまであり, 平均の厚さは約 30 m と見積もられ, 玄武岩溶岩としては非常に厚いのが特徴である。岩石学的性質からみると, デカン玄武岩の 95% 以上は, ソレイト質であり, 5% 以下のアルカリ質(アルカリ玄武岩～ネフェリナイト)のものが伴われている。

デカン玄武岩の記載岩石学的性質の研究や主成分元素の定量は古くから行なわれ, 1970 年頃までに明らかにされたそれらの特徴は Boss²⁾ によって要約されている。また第 1 次(1969～1970), 第 2 次(1972～1973) デカン高原地学総合調査(海外学術調査)による成果は荒牧, 河野³⁾ らによってまとめられている。その後デカン玄武岩の微量成分や Sr と Nd 同位体比を含む地球化学的研究が進められているが⁴⁻⁸⁾, 同一試料による系統的な岩石学的・地球化学的研究はなされていない。本報告では第 2 次デカン高原地学総合調査の際に採集された代表的なデカン玄武岩の試料についての成果を報告する。

§ 2. 試料採集地と実験方法

第 1 図にはデカン玄武岩の分布を示した。実験に用いた試料は Bombay (試料番号, BO), Thana-Khopoli (PN), Igatpuri (IG) と Girnar Hills (GI) 地域から採集した。いずれもソレイト質系列であって, アルカリ系列のものは除外した。デカン玄武岩は噴出後長期間わたり風雨にさらされたため一般に風化変質が進行し, 特に溶岩の場合顕著であり, かんらん



第1図 Map showing the distribution of Deccan basalt.

石やガラスが未変質で残存していることは非常に少ない。そこで顕微鏡による薄片観察によって風化変質の程度の最も低い岩脈と溶岩のうちピクライト質玄武岩～粗粒玄武岩から鉄玄武岩～粗粒玄武岩15個を選んだ。しかしながら一部のものではかんらん石が蛇紋石化している。

玄武岩～粗粒玄武岩の構成鉱物は日立製エネルギー分散型EPMAによって定量した。主成分は重量法に比色法と炎光光度法を併用して定量した。15微量成分のうち、Vは比色法、Fはイオン電極法、その他の13成分は東北大学理学部原子核理学研究施設において電子ライナックを利用し、30MeV加速電子を用いて光量子放射化分析法により定量した⁹⁾。微量成分はその多くが10%以下の測定誤差範囲内にあるが、Baのみはやや大きい。なおCo、CrとNiの一部は比色法および原子吸光法によって定量した。

§ 3. 記載岩石学的性質

デカン玄武岩のソレライト質系列玄武岩類は一般に少量の斑晶(10%以下)を含んでいるが、

斑晶総量1～2%以下の無斑晶質のものも少なくない。また例外的に60%も含んでいるものもある。斑晶として出現する鉱物はかんらん石、斜長石とオーザイトである。それらのうち最も普遍的に認められるものはかんらん石であって長さは通常2 mm以下であるが時に4 mmにも達する。次いで多いものは斜長石であり、長さ15mmを越えるものもあるが多くの場合、5 mm以下である。オーザイトはむしろ稀にしか認められない。

石基鉱物は斜長石、かんらん石、単斜輝石と鉄鉱物(チタン磁鉄鉱+チタン鉄鉱)が主成分であって、このほか少量～微量の石英、クリストバライト、燐灰石やアルカリ長石を伴うことがある。また完晶質石基の場合も常に少量の褐色ガラスを含んでいる。かんらん石はピジョン

第1表 Petrographic features of Deccan tholeiitic basalt.

Sp. No.	PHENOCRYST			GROUNDMASS							ROCK NAME & REMARKS
	O1	Cpx	Pl	O1	Cpx	Pl	Ore	Silica Minerals	Glass Mesost.	Others	
GI-69	++ p.a. -1.6mm	+ rare -1.2 mm	++ -2.0 mm	++ p.a.	+++ ophitic	+++ -0.7 mm	+ Mt + Il, rare	+ Qz	+ p.a.	+ K-fs + Ap	Augite picritic dolerite Medium-grained. Mesostasis charged with brown glass, Pl, K-fs, Cpx, Ore and Qz.
GI-67	+ s.a. -4 mm			++ s.a.	+++ ophitic -1 mm	+++ l. prism.	+ Mt + Il		+ a.	+ K-fs + Ap	Picritic dolerite Medium-grained.
GI-68	+ p.a. -1.6mm			++ p.a.	+++ ophitic- subophitic	++ prism. -1 mm	+ Mt + Il, rare	+ Qz?, rare	++	+ K-fs + Ap	Picritic dolerite Medium-grained. Mesostasis charged with glass, Pl, K-fs, Q?, Cpx and Ore.
GI-66	+ p.a. -0.8mm	+ rare prism. -2 mm		++ p.a.	+++ subophitic	+++ l. prism. -0.8 mm	+ Mt + Il	+ Crist.	+ rare	+ K-fs + Ap	Olivine dolerite Fine-grained.
GI-70				++ p.a.	+++ ophitic -0.8 mm	+++ l. prism. -1 mm	+ Mt + Il		+ p.a.	+ K-fs +	Dolerite Coarse-grained. Mesostasis charged with brown glass, K-fs, Pl, Fe-O1, Fe-Cpx and Ore.
PN-27	++ p.a. -1.2mm	+ rare -1.6 mm	+ p.a. -0.04mm	+++ ophitic -1.5 mm	+++ -1 mm	++ Mt { Il -0.5 mm	+ Qz	+ p.a.	+ K-fs + Ap	Olivine basalt Coarse-grained.	
BO-21	+ a. -0.3mm	+ rare -0.3mm	+ -0.6 mm	+ a.	+++	+++	+		+ p.a.	+ K-fs + Ap	Olivine and augite bearing basalt Fine-grained.
PN-21				+ s.a.	+++ ophitic -3 mm av. 1.5 mm	+++ -2 mm av. 1.5 mm	++ Mt { Il -1.2mm av. 1mm	+ Qz	+ s.a.	+ K-fs + Ap	Ferrodolerite Coarse-grained. Magnetite skeletal in form.
PN-26		+ rare 2-15 mm	+ -0.4mm	+++ ophitic -1.2 mm	+++	++ Mt { Il	+ Qz	+ s.a.	+ K-fs + Ap	Ferrodolerite Medium-grained.	
PN-30	+ rare, a.		+ m.a.	+++ subophitic -2.5 mm	+++ -3 mm	++ Mt { Il	+ Qz	++	+ K-fs + Ap	Olivine bearing ferrodolerite Coarse-grained. Mesostasis charged with Pl, K-fs, Qz, Fe-O1, Fe-Cpx, Ore and glass.	
PN-28			+ a.	+++ ophitic -5 mm	+++ -3 mm	++ Mt { Il -1.2 mm	+ Qz	++ p.a.	+ K-fs + Ap + Ho, rare	Ferrodolerite Coarse-grained. Mesostasis charged with Pl, K-fs, Qz, Fe-O1, Fe-Cpx, Ore and glass.	
PN-23			+ a. -0.5mm	+++ -0.9 mm	+++ -0.9 mm	++ Mt { Il	+ Qz	+ s.a.	+ K-fs	Ferrobasalt Coarse-grained. Magnetite skeletal to octahedral in form.	
IG-04/D		+ rare -1.8 mm	+ rare -0.4mm	+++ subophitic -0.4 mm	+++ -0.6 mm	+ Mt { Il Il>Mt		+	+ K-fs + Ap	Ferrodolerite Coarse-grained. Mesostasis charged with Fe-O1, Fe-Cpx, Ore, Pl and pale brown glass.	
BO-30			+ rare, a.	+++ subophitic -0.6 mm	+++ -1 mm	++ Mt -0.5 mm	+ Qz	+	+ K-fs + Ap	Ferrodolerite Coarse-grained. Mesostasis charged with Fe-O1, Fe-Cpx, Ore, Pl, K-fs, Qz and glass.	
PN-22			+ a.	+++ subophitic	+++ -2.5 mm av. 1.5 mm	++ Mt { Il -1.5 mm av. 1mm	+ Qz	+ s.a.	+ K-fs + Ap	Ferrodolerite Medium-grained. Mesostasis charged with Fe-O1, Fe-Cpx, Ore, Pl, K-fs, Qz and pale brown glass (rhyolitic in composition).	

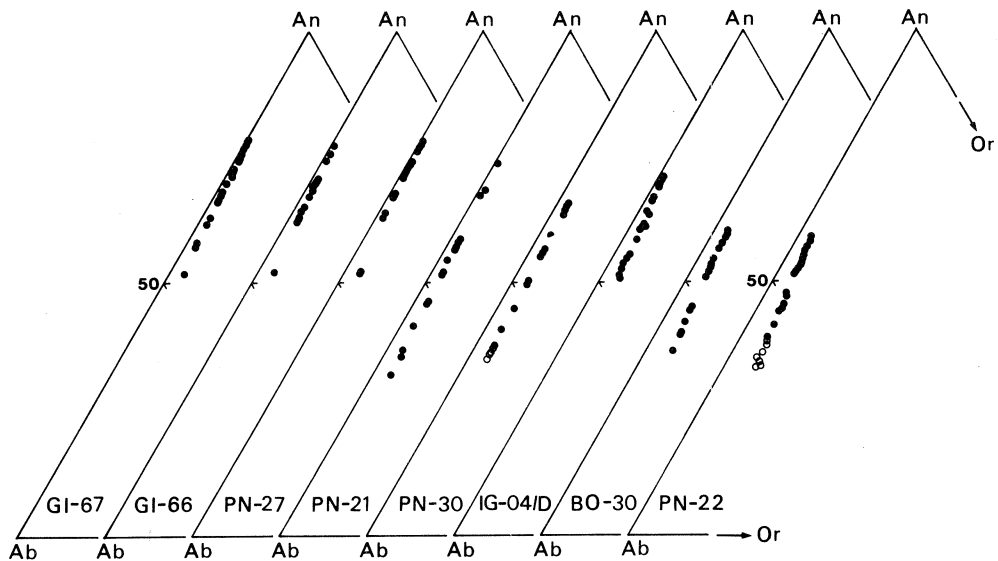
p.: partly, s.: slightly, m.: mostly, a.: altered, l.: long, prism.: prismatic

輝石との間に反応関係はなく、またMgに富む玄武岩にはオーゾイトのみが出現するが、分化の進んだ玄武岩類においてはオーゾイトと共に少量のピジョン輝石が晶出している。また極めて稀にホルンブレンドが微量存在することがある。粗粒な玄武岩や粗粒玄武岩の斜長石、かんらん石、単斜輝石と鉄鉱物の間を埋めるメソスタシスは主として褐色ガラスから成るが、微細なNaに富む斜長石、鉄かんらん石、鉄オーゾイト、鉄ピジョン輝石、チタン磁鉄鉱、チタン鉄鉱、アルカリ長石、石英や磷灰石が晶出していることがある。

第1表には実験に用いた玄武岩類の岩石学的性質の概略を一括して示した。本報告では便宜的に岩石名として、Mg値(Mg value, $100\text{Mg}/(\text{Mg}+\text{Fe})$)が40以上をピクライト質玄武岩、40~30を玄武岩、30以下を鉄玄武岩とした。またオフィティック組織を示すものを粗粒玄武岩とした。

§ 4. 鉱物の化学組成

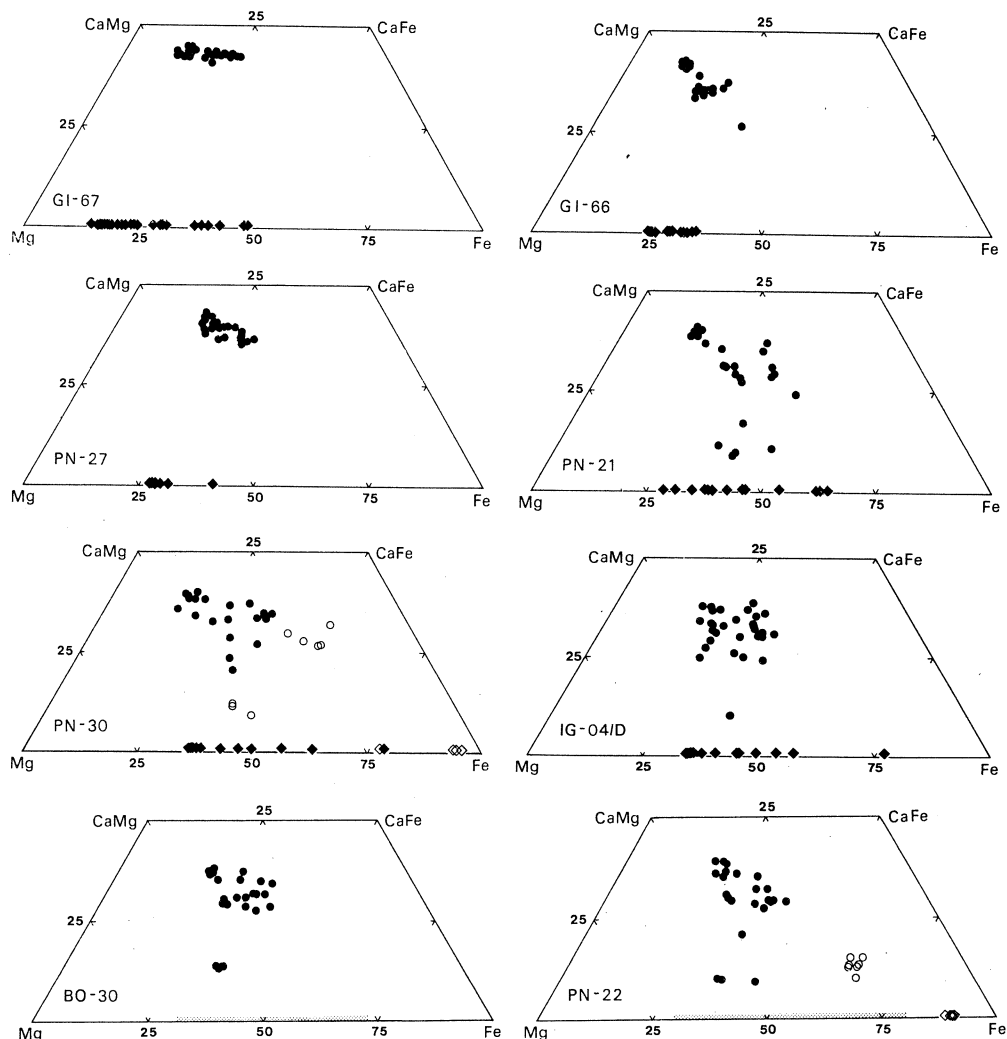
ピクライト質(粗粒)玄武岩~鉄(粗粒)玄武岩から代表的な試料8個を選んでこれらの主成分鉱物の化学組成を求めた。斜長石のAn:Ab:Or分子比とかんらん石と単斜輝石のCa:Mg:(Fe+Mn)原子比をそれぞれ第2図と第3図に点示した。なお8試料中2試料の石基かんらん石は変質しているため推定組成範囲を示した。



第2図 EPMA analyses of plagioclases in mole per cent anorthite (An), albite (Ab) and orthoclase (Or).

Solid circle = phenocrystic and groundmass plagioclase; open circle = mesostasis plagioclase.

斜長石の組成範囲は An_{79-32} であり, Or 成分は An_{79-70} のもので 0.5 ~ 1% 含まれている。Ab 成分の増加と共に Or 成分も微増し, An_{50} で 2%, An_{35} で 6% に達する。斜長石の組成範囲は他地域のソレイト系列のものとほぼ同様である。最も Ca に富む斜長石は玄武岩や粗粒玄武岩の斑晶やピクライト質粗粒玄武岩の石基に認められる。第 2 図から明らかなようにピクライト質(粗粒)玄武岩から鉄(粗粒)玄武岩へと晶出作用が進むにつれて次第に An 成分



第 3 図 EPMA analyses of olivine and clinopyroxene in atomic per cent Ca, Mg and Fe + Mn.

Solid circle = phenocrystic and groundmass clinopyroxene; open circle = mesostasis clinopyroxene; solid square = phenocrystic and groundmass olivine; open square = mesostasis olivine; dotted area = estimated composition of altered groundmass olivine.

に富むものから Ab 成分に富むものへと変化する。なおアルカリ長石は存在しているが微細なため定量できなかった。

かんらん石の組成範囲が最も広く（第 3 図）， Fa_{14} から Fa_{95} まで晶出している。斑晶と石基かんらん石は CaO を 0.2 ~ 0.4 % 含んでいるが，特に $Mg/Mg+Fe$ 比の増減とは相関関係はない。しかしながらメソスタシス中の鉄に著しく富むかんらん石の CaO はやや高く 0.5 ~ 0.6 % である。また MnO の範囲は 0.25 ~ 1.5 % であって， Fe と正の相関関係にある。最も Mg に富むかんらん石はピクライト質粗粒玄武岩（GI-67）に認められ，斑晶は Fa_{14-21} ，石基は Fa_{21-48} となっている。 NiO は Fa_{14} のかんらん石に 0.37 % 含まれているが Fa の増加と共に急激に減少し， Fa_{30} で 0.1 % 以下に減少する。斑晶・石基かんらん石の組成はピクライト質玄武岩から鉄玄武岩へと連続的に鉄が増加し， Fa_{88} まで変化する。最も鉄に富むかんらん石は針状微晶として晶出し，PN-30 では石基かんらん石外縁の最も Fe に富む組成（ Fa_{78} ）とほぼ同じ組成の Fa_{77} のものから Fa_{95} まで変化する。

単斜輝石はディオプサイド質オーゾナイト（ $Wo_{42} En_{46} Fs_{12}$ ）から晶出し， Mg 値は 80 であってかんらん石（86）よりかなり低い。その Cr_2O_3 は 0.4 ~ 1.1 % と比較的高い。しかしながら Cr_2O_3 含有量は鉄の増加と共に急激に減少する。ピクライト質粗粒玄武岩の単斜輝石は $Mg-Fe$ 置換によって $CaMg-CaFe$ 線に平行に晶出作用が進行している。玄武岩～粗粒玄武岩になるとオーゾナイトは $Mg-Fe$ 置換よりも $Ca-Fe$ 置換が顕著になり，オーゾナイトの組成範囲が広くなり，晶出経路は $CaMg$ 側から $CaFe-Fe$ 線にやや平行に進行する。鉄玄武岩～鉄粗粒玄武岩になると，オーゾナイトはやや鉄に富み，同時にピジョン輝石が晶出する。しかし石基単斜輝石の量的関係はオーゾナイト ≧ ピジョン輝石であって，ピジョン輝石の量はオーゾナイトの 1/10 以下である。かんらん石の場合と同様，最も鉄に富む単斜輝石はメソスタシスの中に出現する。鉄粗粒玄武岩 PN-30 のメソスタシスでは Mg 値 28~39 の鉄オーゾナイトと 50~55 の鉄ピジョン輝石が共存し，前者の方が量的には多いが，鉄粗粒玄武岩 PN-22 のメソスタシスでは鉄オーゾナイトは認められず，鉄ピジョン輝石のみ， Mg 値は 62~65 であって，これが単斜輝石中最も鉄に富んでいる。なおデカンソレイト質系列からは斜方輝石は全く確認できなかった。

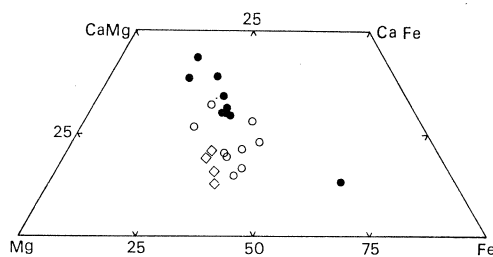
第 4 図には以上述べた玄武岩類と鉄粗粒玄武岩 PN-22 のメソスタシスの単斜輝石の平均組成を点示した。また比較のため伊豆・箱根地方と那須火山帯ソレイトの石基単斜輝石の平均組成を示した。アルカリ系列においては単斜輝石は，ディオプサイドからヘデン輝石へ $CaMg-CaFe$ 線に沿って輝石の晶出作用が進むことはよく知られているが，Kuno¹⁰⁾ はソレイト系

列玄武岩マグマにおいては輝石組成はデオプサイド側からCa-Fe線に平行に変化することを強調している。デカン玄武岩においては伊豆・箱根地方ソレイトよりもより明確にデオプサイド-鉄ピジョン輝石の晶出経路を辿っている。またAoki¹¹⁾ はかんらん石ソレイトにおいては石基に最初オーザイトのみが晶出するが、ある程度分化が進むとオーザイトと共にピジョン輝石が晶出することを示した。しかしなが

らどの様な輝石組成に達するとピジョン輝石が晶出するかは不明であった。今回の研究によってそれらについて初めて明らかにされた。それによると、 $Ca > 35$ ではオーザイトのみが晶出するが、 $Ca < 35$ になるとオーザイトと共にピジョン輝石が晶出する。伊豆・箱根地方ソレイトの石基輝石にはオーザイトとピジョン輝石が共存しているがいずれも $Ca < 35$ である。一方那須火山帯ソレイトにおいては石基輝石はピジョン輝石がオーザイトに先立って晶出している。それらの輝石成分はいずれも $Ca < 25$ である。これらの結果をまとめると、 $Ca > 35$ においてはオーザイトのみ、 $35 > Ca > 25$ においてはオーザイトに続いてピジョン輝石あるいはピジョン輝石に続いてオーザイト、 $Ca < 25$ においてはピジョン輝石がオーザイトに先立って晶出する。輝石系のMgに富む部分においてはCaMg-Mg系のほぼ中央部に共晶域が共存していると実験的に考えられているが、以上の事実はそれを支持している。

チタン磁鉄鉱は主としてウルボスピネル-磁鉄鉱固溶体からなり(98~95%)、スピネル-ハースナイトは5~2%、ピクロクロム鉄鉱-クロム鉄鉱は通常含まれていないが、存在したとしても少量であって0.4%を越えない。TiO₂の含有量が高く殆どのはウルボスピネル分子が76~60%であるがまれに55~27%のものも認められる。MnOは0.2~0.8%、時に1.4%、またMgOは0.8%以下であるが、時に1.7%にも達する。チタン磁鉄鉱の化学組成は共存する鉄を含む鉱物、かんらん石や単斜輝石の組成とは特に相関関係は認められない。チタン鉄鉱も赤鉄鉱分子は少なく、8~3%の範囲であり、副成分としてMnO 0.5~0.9% MgO 0.2~0.7%、時に1.9%を含んでいる。

鉄粗粒玄武岩メソスタシス中の鉄かんらん石や鉄ピジョン輝石などと共存している淡褐色ガラスはやや不均質な流紋岩組成である。それらの平均組成(10点分析の平均)は、SiO₂ 72.42,



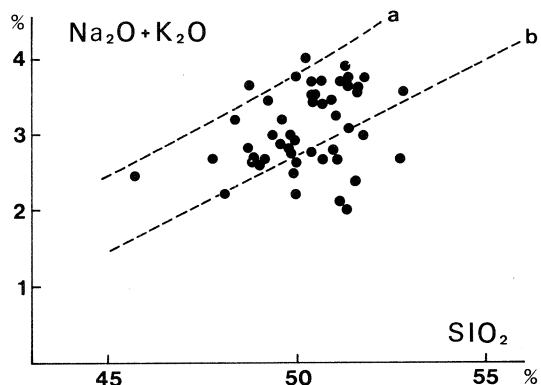
第4図 Average composition of ground-mass and mesostasis clinopyroxene. Solid circle=Deccan olivine tholeiite; open circle=Izu and Hakone tholeiite¹⁰⁾; open square=Nasu zone tholeiite.

TiO₂ 0.58, Al₂O₃ 14.69, FeO* 2.04, MgO 0.27, CaO 1.11, Na₂O 4.90, K₂O 3.99%である。これはデカン玄武岩に稀に伴って出現する流紋岩溶岩の組成に比較的類似している。このようにかんらん石ソレイト質マグマは晶出分化作用によって最終生成物としてSiO₂, Na₂OやK₂Oに富む液を生じ得ることを示している。

§ 5. 主成分

第2表には代表的なビクライト質玄武岩～鉄玄武岩の主成分と微量成分の分析値を示した。それらのSiO₂は45.8～52.8%（無水に再計算）の組成範囲である。従来から台地玄武岩類は一般に組成範囲、特にSiO₂が狭いことが指摘されているが、デカン玄武岩もその傾向を示している。しかしその他の成分の変化は比較的大きい。玄武岩はその性質からいくつかの系列に細分されているが、その1つの区分法としてSiO₂-Na₂O+K₂O関係図が用いられている。第5図にはBombay, Thana-Khopoli, Igatpuri, Bhor Ghat, Kasara-BombayとGirnar Hills地域のもを点示した。図中にしめした点線はKuno¹⁰により示されたアルカリ系列, 高アルミナ玄武岩(Al₂O₃ > 16.5%) + 高アルカリ玄武岩(Al₂O₃ < 16.5%)系列と低アルカリソレイト系列の間の境界線である。この図から明らかのように多くの玄武岩類は高アルミナ玄武岩系列の区域内に点示され、区域外にはずれるものは少ない。従ってこれらの玄武岩類は典型的な高アルカリソレイトあるいはかんらん石ソレイト系列に属することを示している。これら玄武岩類のノルム計算を行なうと、殆ど全てのものは多少酸化変質しているため10%までぐらいのノルムQが算出され、ノルムOlが現れるものは稀である。しかしながら、未変質のときのFe²⁺/Fe²⁺+Fe³⁺が0.1～0.15であると仮定してノルム計算を行なうと、Olを含むものが多く、Qを含むものは少なく、算出されたとしても5%を越えない。このことはSiO₂-Na₂O+K₂O図から決めた高アルカリソレイトあるいはかんらん石ソレイト系列に属することと一致している。

すでに述べたように玄武岩類のSiO₂

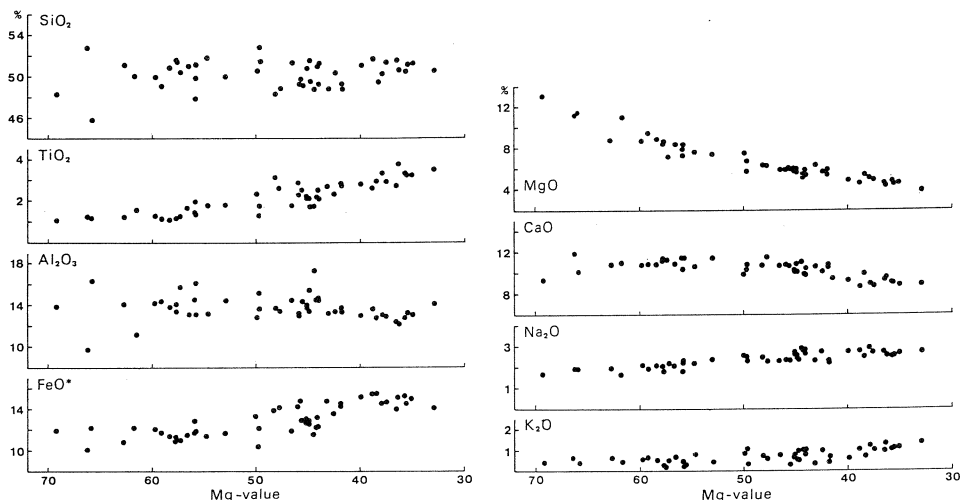


第5図 Total alkali - silica diagram.
a = boundary between alkali and high-alumina basalt series; b = boundary between high-alumina basalt and tholeiite series.

第2表 Major and trace element analyses of Deccan tholeiitic basalt.

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
Sp. No.	GI-69	GI-67	GI-68	GI-66	GI-70	PN-27	BO-21	PN-21	PN-26	PN-30	PN-28	PN-23	IG-04/D	BO-30	PN-22
Rock name	A 0 dol.	0 dol.	0 dol.	0 dol.	Dol.	0 bas.	0 A bas	F.dol.	F.dol.	0 f.dol.	F.dol.	F.bas.	F.bas.	F.dol.	F.dol.
SiO ₂	46.80	44.90	49.81	49.10	49.30	46.43	48.67	48.35	47.78	48.82	49.03	49.51	49.96	50.87	50.08
TiO ₂	1.06	1.17	1.22	1.31	1.25	1.41	1.98	2.57	3.04	2.16	2.79	3.01	2.70	2.52	3.70
Al ₂ O ₃	13.48	16.04	13.70	13.91	15.37	15.62	14.04	13.28	13.63	12.77	13.11	12.15	12.63	13.22	11.88
Fe ₂ O ₃	2.51	2.37	2.04	2.49	2.23	6.49	5.12	2.28	2.56	3.50	3.58	3.97	2.48	3.41	3.85
FeO	9.27	9.06	8.65	9.56	8.64	6.62	6.75	11.90	11.41	11.29	10.92	11.50	12.60	11.09	11.47
MnO	0.19	0.19	0.18	0.18	0.19	0.18	0.16	0.24	0.20	0.24	0.22	0.25	0.22	0.22	0.26
MgO	12.66	11.15	8.61	8.54	6.94	7.67	7.00	6.21	6.20	5.93	5.85	5.27	4.80	4.38	4.15
CaO	9.12	10.03	10.60	10.52	11.06	9.92	11.21	11.37	10.61	10.38	10.60	10.41	9.02	8.44	9.34
Na ₂ O	1.69	1.99	1.89	2.08	2.14	2.13	2.22	2.25	2.45	2.27	2.33	2.33	2.64	2.70	2.45
K ₂ O	0.43	0.41	0.69	0.60	0.57	0.49	0.20	0.56	0.69	0.45	0.63	0.65	0.54	0.98	1.24
P ₂ O ₅	0.11	0.13	0.12	0.12	0.09	0.13	0.23	0.19	0.28	0.20	0.27	0.26	0.28	0.38	0.41
H ₂ O+	2.35	1.51	1.45	1.09	1.66	1.32	1.02	0.66	0.98	0.82	0.73	0.71	0.73	0.77	0.68
H ₂ O-	0.43	0.35	0.51	0.29	0.62	2.38	1.43	0.50	0.49	0.94	0.61	0.87	0.91	1.20	1.02
Total	100.10	100.00	99.47	99.79	100.06	100.79	100.03	100.36	100.32	99.77	100.67	100.89	99.51	100.18	100.53
Ba ppm	323	420	219	249	-	189	290	326	158	325	232	183	342	426	524
Ce	12.7	14.4	22.5	22.2	19.1	18.5	27.5	20.8	41.1	25.2	29.5	36.0	45.9	64.6	62.1
Co	66.3	68.7	49.9	53.9	46.5	65.6	46.2	54.5	49.0	52.8	48.6	47.5	49.3	46.7	43.9
Cr	408	406	329	296	248	74.2	285	74.6	242	52.4	87.4	60.6	79.7	32.5	56.6
Cs	0.07	0.31	0.46	0.48	0.37	-	-	-	0.22	-	-	-	1.55	0.56	-
F	158	137	235	227	156	-	229	222	357	254	281	381	405	414	521
Nb	5.0	5.8	6.3	6.1	4.9	5.2	9.8	9.9	23.9	10.0	13.2	14.5	13.3	29.4	20.3
Ni	374	356	140	109	105	205	116	85.6	122	59.4	91.1	48.5	56.5	27.6	43.3
Rb	13.4	10.5	25.2	18.9	12.4	7.3	2.5	11.6	12.8	7.2	13.8	17.0	18.7	20.3	24.1
Sc	25.6	24.9	29.4	35.1	34.0	26.1	30.4	44.9	41.8	35.5	38.5	41.1	40.2	36.0	46.5
Sr	105	156	131	153	165	174	211	177	270	186	194	175	233	299	211
V	208	294	-	-	254	-	344	438	371	382	-	-	363	427	420
Y	21.6	23.3	22.6	24.9	25.6	22.2	28.3	30.1	32.3	23.7	34.4	37.6	44.2	37.7	47.8
Zn	98	69	81	97	66	94	96	106	134	162	139	148	132	166	162
Zr	76.8	80.1	85.8	87.0	89.0	81.8	124	122	171	128	154	184	190	193	270
⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	0.70915	0.70587	0.71779	0.71486	0.70941	0.70989	0.70646	0.70443	-	0.70599	0.70463	0.70671	0.70864	0.70562	0.70764

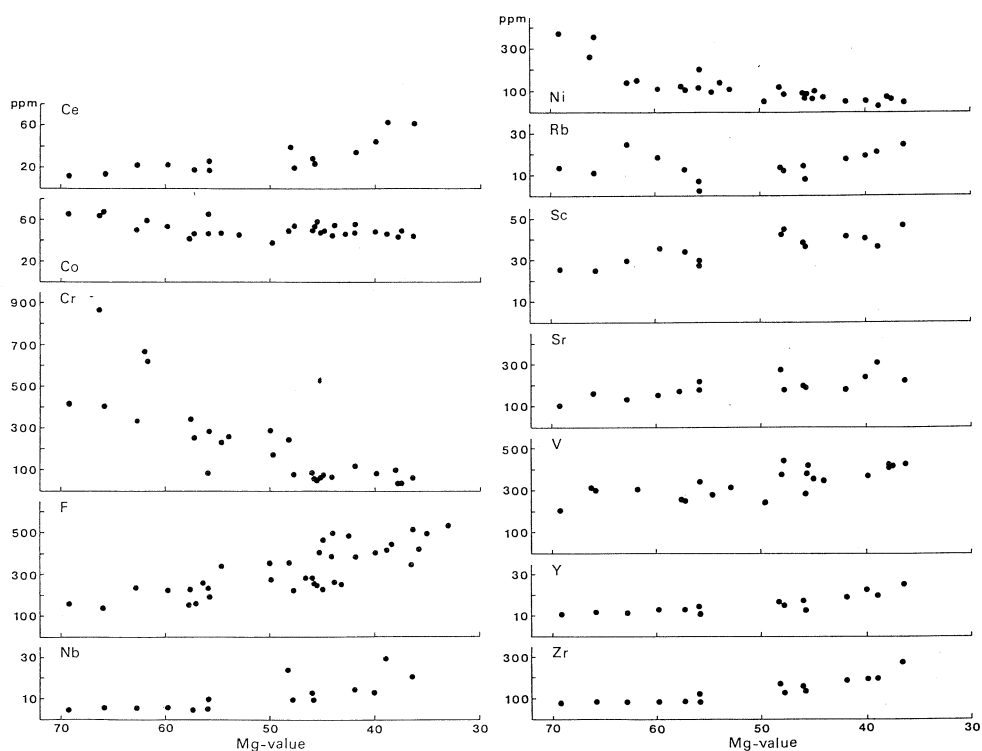
の範囲が狭いので、その代わりに分化の尺度としてMg値を用い、第6図にはMg値-主要酸化物の関係を示した。Mg値の減少と共に TiO_2 、 $\text{FeO}^*(\text{FeO} + 0.9\text{Fe}_2\text{O}_3)$ 、 Na_2O と K_2O は漸増し、 MgO は漸減する。また CaO ははじめやや漸増し、Mg値50付近から漸減するが、一方 SiO_2 と Al_2O_3 はほぼ一定である。



第6図 Major oxides - Mg-value variation diagram.

§ 6. 微量成分

第7図にはMg値と微量成分の間関係を示した。これらの微量元素はマグマ中における地球化学的挙動からコンパティブル元素、Co、CrとNiと、インコンパティブル元素、Ce、F、Nb、Rb、Sc、Sr、V、YとZrに大別される。Mg値の減少と共に、Coは漸減しているが、CrとNiはMg値が70から60～50までは急激に減少し、それ以下になるとCoと同様漸減する。一方、インコンパティブル元素Ce、F、Sc、Sr、V、YとZrはいずれも規則的に漸増する特徴を示すが、Rbのみは全体として漸増しているものの、Mg値の高いピクライト質粗粒玄武岩～玄武岩ではばらつきが大きい。以上述べた微量元素の規則的変化はデカン玄武岩の化学組成の多様性について初生マグマの単純な晶出分化作用か、上部マントルかんらん岩がほぼ同じ圧力条件下において部分融解の程度の差に大きく支配されたことを示唆している。それらについては次章において述べることにする。



第7図 Trace elements-Mg value variation diagram.

§ 7. 考 察

デカン玄武岩の殆ど全てを占めている高アルカリソレライトあるいはかんらん石玄武岩系列ピクライト質玄武岩-鉄玄武岩のこれまでに述べてきた岩石学的・地球化学的特徴を要約すると次の様になる。

(1) 斑晶としてはかんらん石が最も普遍的であり、時々斜長石が認められ、多量に含むものもあるが、オーチャイトは稀である。一方主要石基鉱物の組み合わせは系列を通じて同じであり、かんらん石は早期から晩期までオーチャイトと共存し、それらの組成はMgに富むものからFeに富むものへ連続的に変化する。ピジョン輝石はかんらん石玄武岩から晶出しはじめ、最晩期には鉄ピジョン輝石とファイアライトが共存し、鉄オーチャイトは晶出しない。また斜長石はAnに富むものからAbに富むものへ連続的に変化する。

(2) 主成分はMg値の高いものから低いものへ連続的に変化する、急激な組成変化は認められない。

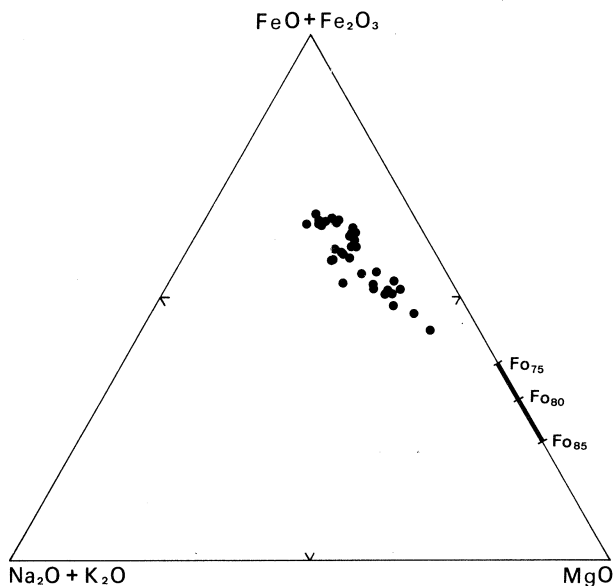
(3) 微量成分もMg値の増減と共に規則的に増加あるいは減少し、急激な変化は示さない。

最近行なわれている地球化学的研究によると⁴⁻⁸⁾, REE (希土類元素)の濃度の特徴はLREE (軽希土類元素)が濃集するコンドライト規格化パターンを示し, La/Ybは3.86 ~ 6.33, 一部にEuの弱い正あるいは負の異常が認められるが, 多くのものには認められない。また $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ は0.70393 ~ 0.71972と異常に広い範囲をもっている。

このような玄武岩類の岩石学・地球化学的性質の多様性を考察するとき, その主な要因として次のことがあげられる: 1) 上部マントルかんらん岩の部分融解の程度の差, 2) 上部マントルかんらん岩の不均一性, 3) 晶出分化作用と 4) マグマへの地殻物質の同化作用である。デカン玄武岩かんらん石ソレイト系列ではこのうちの2)と3)が重要であると考えられ, それについて言及することとする。

玄武岩質マグマの地殻物質の同化について Alexander と Paul⁵⁾ と Kurasawa⁶⁾らはSr アイソトープ初生値が主成分との間に全く相関関係が無いことから否定している。事実第1表から明らかなように $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ とMg値の高いものがあり, 一方分化の中～晩期を示すものにも低いものが認められる。 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の高い理由として基盤花崗岩類からの ^{87}Sr の選択的な移動を考える人も居るが, その機構の説明は極めて困難である。地殻物質の同化があれば当然 SiO_2 をはじめとするインコンパティブル元素の濃集が認められる筈であるが, その様な傾向はない。したがって同化作用は多様性の主要因とは考え難い。

台地玄武岩類の組成の多様性の要因として従来から晶出分化作用が強調されている。そこでBombay Thana-Khopoli, Igatpuri, Bhor GhatとGirnar Hills地域のかんらん石ソレイト系列玄武岩類を $\text{MgO}:\text{FeO}^*:\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O}$ 図(第8図)に点示した。この図から明らかなように玄武岩類は $\text{MgO}-\text{FeO}^*$ 側線にはほぼ平行に著しい鉄の濃集を示す分化経路を辿り, 高温・低酸素分圧下で晶出分化したいわゆる“Skaergaard trend”に一致する。



第8図 $\text{MgO}-(\text{FeO}+\text{Fe}_2\text{O}_3)-(\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O})$ diagram.

FeO*-MgO 側線上に $F_{0.85}$, $F_{0.80}$ と $F_{0.75}$ の組成を示したが、分化経路を MgO に富む側に外挿するとその側線のほぼ $F_{0.85-80}$ のところで交叉し、かんらん石の分別が効果的に働いた事を示し、記載岩石学的性質と合致する。微量成分についてみると、Ni はかんらん石、Cr はスピネル、Sr は斜長石、Sc は単斜輝石、V は磁鉄鉱に主として分配されるが、これらのうち、Ni と Cr は急激に減少しているが、そのほかのものは増加している。このことはピクライト質玄武岩→鉄玄武岩への分化にかんらん石の分別が大きく関与したことを示している。

K をはじめとするインコンパティブル元素、Ba, Ce, F, Rb, Sr や Zr などは上部マントルにおいてかんらん岩の主要鉱物であるかんらん石、輝石、スピネルあるいはざくろ石には殆ど含まれず、パーガサイト、フロゴパイトや燐灰石などの副成分鉱物に含まれ、部分融解の間にそれらは選択的に玄武岩質マグマ中に濃集すると考えられている。さらに低圧下の晶出分化作用においてはそれらのうち Sr は斜長石に分配されるが、その他の元素は早期晶出鉱物には分配されず、分化の中期以降で液相に濃集してくる。第 2 表に示した玄武岩類の K/Rb, K/Ce, K/F, K/Nb, K/Rb, K/Sr や K/Zr 比を比較してみると、それらの比の範囲は広い地域から採集されたにもかかわらず例外を除くとむしろ狭い。またインコンパティブル元素を初生マントルの濃度で規格化した値をみると、それらの比は典型的な大陸かんらん石ソレイトのものとも一致する。島弧高アルミナ玄武岩にみられる Ba 正の異常や Nb 負の異常は認められず、また海嶺玄武岩にみられるよりインコンパティブルな元素、K, Nb, Ba, Rb などの急激な減少も認められない。一方 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ と Rb/Sr の間には全く相関関係は認められず、マグマが生成される時、上部マントルにおいては理由は判らないが Sr アイソトープ比についてのみは非常に不均質であったことを示している。

デカンかんらん石ソレイト系列ピクライト質玄武岩～鉄玄武岩の成因はそれらの岩石学的地球化学的性質と高温高圧実験の結果を組み合わせると次の様にまとめられる。

(1) 最上部マントル(約地下 50 km 位)の比較的初生マントルと仮定されている組成に近いインコンパティブル元素を含むかんらん岩の部分融解によって、Mg に富むかんらん石ソレイト質マグマが生成された。ただしマントルは Sr アイソトープ比は非常に不均質であり、かつや Sr の濃度は低かった。

(2) かんらん石ソレイト質マグマの低圧下における少量のオーチャイトと斜長石を伴う主として Mg に富むかんらん石の晶出分別によってピクライト質玄武岩→玄武岩→鉄玄武岩が生成された。

本研究にあたり、御協力を賜わった東北大学理学部原子核理学研究施設の八木益男助教授、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RIセンターの藤田稔教授、山寺亮博士に深謝する。なお、本研究の一部に、文部省科学研究費（No. 59420015）を使用した。

参 考 文 献

- 1) I. Kaneoka : *Earth Planet. Sci. Lett.* **46** (1980) 233.
- 2) K. M. Boss : *Lithos* **5** (1972) 131.
- 3) 荒牧重雄, 河野 長 : *科学* **45** (1975) 286.
- 4) P. O. Alexander and I. K. Gibson : *Lithos* **10** (1977) 143.
- 5) P. O. Alexander and D. K. Paul : *Min. Mag.* **41** (1977) 165.
- 6) H. Kurasawa, S. Aramaki and S. S. Deshmukh : *5th Intern. Conf. Geochronol. Cosmochronol. Isotope Geol.* (1982) Abstract.
- 7) J. Mahoney, J. D. MacDougall, G. W. Lugmair, A. V. Murali, M. Das Sankar and K. Gopalan : *Earth Planet. Sci. Lett.* **60** (1982) 47.
- 8) D. K. Paul, P. Kresten, T. Ray Barman, R. H. McNutt and A. O. Brunfelt : *J. Volc. Geotherm Res.* **21** (1984) 165.
- 9) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki : *Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ.* **15** (1982) 224.
- 10) H. Kuno : *Am. Mineral.* **40** (1955) 70.
- 11) K. Aoki : *Contrib. Mineral. Petrol.* **14** (1967) 190.

韓国，鬱陵島火山岩の地球化学的研究

理学部地学

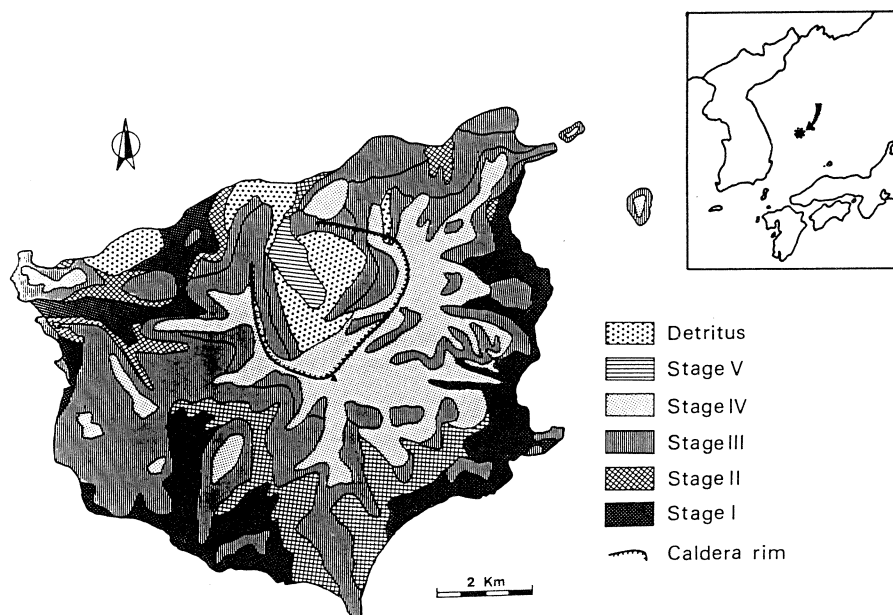
金 允圭・吉田武義・青木謙一郎

§ 1. はじめに

鬱陵島 (Ulreung Island) は、韓半島から東方約 130 km に位置し (37° 30' N, 130° 50' E), 主として第四紀に活動したアルカリ火山岩類によって構成されている。本島のアルカリ火山岩類は隠岐島後¹⁾ および隠岐島前^{2, 3)} と同じくポタシク系列に属する。しかしながらそれと比べて SiO₂ に乏しく、よりアルカリに富む特徴があり、岩石学的には極めて興味深く、古くから注目されてきた。本論では、鬱陵島火山を構成するアルカリ火山岩類の光量子放射化法等による化学分析結果を示し、さらに、その晶出分化過程を検討する。

§ 2. 鬱陵島火山

鬱陵島は海底面からの高さ約 3,000 m の大きな円錐形の火山である。本島の火山活動はその層序と岩質から五つのステージに分けられる。ステージ I, II, III の活動によって、円錐形の



第1図 Index and geological map of Ulreung volcanic island.

成層火山体が形成された。ステージⅠの噴出物は主に粗面玄武岩質であり、そのなかにまれにピクライト質玄武岩あるいはアルカリ玄武岩の岩片が包有されている。

ステージⅡ噴出物の岩質は主として粗面岩であり、少量の粗面安山岩を伴う。ステージⅢの活動は粗面岩とフォノライトの噴出が主である。ステージⅣでは大量の軽石、火山灰及び火山礫が噴出し、カルデラが形成された。軽石の岩質は粗面岩質であり、火山礫は粗面岩、粗面安山岩質である。これらの噴出物の中には深成岩の岩片が認められることがある。ステージⅤにおいてカルデラ内に、粗面岩質火砕岩と白榴石含有粗面安山岩質溶岩からなる中央火口丘が形成された。

火山噴出物の量は粗面岩が最も多く、玄武岩、粗面安山岩の順である。噴出物の組成はステージⅠからⅣにかけて、次第に珪長質になり、最後に粗面安山岩の噴出で活動が終わる。第1図に本火山の位置とともに地質図を示した。

§ 3. 分析試料の岩石学的特徴

鬱陵島の火山岩類はその K_2O/Na_2O 比とノルム長石の組成から、ポタシク系列に分類される。岩型の区分にあたっては、Solidification index (SI) 値を用いた。SI = 45 ~ 30 がピクライト質玄武岩およびアルカリ玄武岩、SI = 30 ~ 15 が粗面玄武岩、SI = 15 ~ 5 が粗面安山岩、そしてSI = 5 以下が粗面岩とフォノライトである。粗面岩とフォノライトの区分に

第1表 Modal analyses of selected Ulreung volcanic rock samples.

Rock type	P.ba					Alkali basalt					Trachybasalt					Trachyandesite			
	Anal. No.	1	2	3	4	5	6	8	10	12	13	16	17	19	20				
Olivine		30.2	10.3	11.3	14.5	2.4	tr	0.2	0.5	-	2.4	-	0.3	-	-				
Clinopyroxene		9.7	10.7	15.8	10.9	6.3	0.8	3.3	0.7	0.5	4.5	1.1	2.6	0.3	-				
Plagioclase		4.4	2.9	8.0	4.0	6.7	7.2	7.4	5.0	12.9	20.4	4.2	5.9	1.4	1.2				
Alkali feldspar		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2.5	1.4	0.4	-				
Kaersutite		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.3	6.0	0.2	-				
Ti-biotite		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.2	1.5	tr	-				
Opagues		1.4	1.0	1.1	0.7	1.6	0.3	1.4	0.3	0.6	2.1	0.5	1.0	0.4	0.8				
Groundmass		54.3	75.1	63.8	69.9	83.0	91.7	87.7	93.5	86.0	70.6	89.2	81.3	97.3	98.0				

Rock type	Trachyandesite(Lc)					Trachyte					Phonolite				
	Anal. No.	21	22	25	30	31	33	41	28	29	32	42	43	45	46
Olivine		0.2	tr	0.2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Clinopyroxene		1.4	4.0	1.2	0.4	0.7	0.4	1.4	0.8	1.6	0.6	1.8	2.1	2.8	5.2
Plagioclase		10.8	7.7	10.7	5.0	4.5	0.9	5.2	-	-	-	-	-	-	-
Alkali feldspar		1.2	1.0	3.2	12.8	16.2	25.3	10.0	6.5	24.2	5.4	3.1	5.9	8.4	7.0
Kaersutite		1.5	0.8	0.6	0.7	2.3	1.2	0.5	-	0.9	-	-	-	-	-
Ti-biotite		1.0	0.6	1.0	0.4	-	-	-	-	-	tr	-	-	-	-
Opagues		0.8	0.9	0.4	0.3	0.4	0.2	0.1	0.3	0.3	0.4	0.6	0.5	0.3	0.7
Groundmass		81.8	82.5	82.7	80.4	75.9	72.0	82.8	92.4	73.0	93.6	92.1	90.5	87.2	85.1

(Lc): includes 1.3 - 2.5 per cent leucite in the groundmass; phonolite includes 1.0 - 2.4 per cent nepheline in the groundmass; tr: trace; -: absent; P.ba: picritic basalt.

あたっては石基にカスミ石を含むものをフォノライトとした。

本島を構成する火山岩類は一般に斑晶質～やや斑晶質である。それらのモード組成を第1表に示す。カンラン石、単斜輝石、斜長石および磁鉄鉱が、ピクライト質玄武岩、アルカリ玄武岩ならびにほとんどすべての粗面玄武岩の斑晶として共通に認められる。そのモード組成は岩型により異なっている。粗面安山岩では、これらの他に、アルカリ長石、ケルスート角閃石および黒雲母が斑晶としてしばしば含まれる。粗面岩およびフォノライトの斑晶としては、単斜輝石、アルカリ長石、磁鉄鉱、ケルスート角閃石ならびに斜長石がみとめられるが、後2者はみられないことがある。粗面安山岩の中には石基に白榴石を含むものがある。第2表に各岩型における主要鉱物組み合わせとその組成範囲を示した。

ピクライト質玄武岩およびアルカリ玄武岩はステージIに活動した粗面玄武岩質集塊岩中の外来岩片としてのみ産する。おそらくステージI以前の噴出物であろう。斑晶としてカンラン石 (Fo 88-78), 透輝石 (Mg.V. 89-83), チタン普通輝石 (Mg.V. 81-74), 斜長石 (An 88-70) および磁鉄鉱を含み、肉眼的には暗褐色～黒色の斑状岩である。斑晶量はピクライト質玄武岩で50%前後、アルカリ玄武岩で20～30%である。石基は半晶質-間粒状でカンラン石 (Fo 78-74), チタン普通輝石 (Mg.V. 78-71), 斜長石 (An 84-71) ならびに磁鉄鉱からなる。カンラン石は一部イディングス石化している。

粗面玄武岩は主にステージIの噴出物として産し、その産状は溶岩流、本質岩片および岩脈である。肉眼的には黒灰色を呈し、斜長石 (An 85-68) と、少量のチタン普通輝石 (Mg.V. 78-73), カンラン石 (Fo 80-75) および磁鉄鉱を斑晶として持つ。石基は半晶質-完晶質であって斜長石 (An 73-56), チタン普通輝石 (Mg.V. 78-68), 磁鉄鉱, リンカイ石, チタン鉄鉱および二次鉱物からなる。石基斜長石は短柱状で弱い流理構造を示す。

粗面安山岩はステージIIおよびステージVの溶岩流として少量産する。ステージIIの粗面安山岩は緑灰色で無斑晶質なものと、暗灰色で斑晶質なものがある。前者はステージIIの粗面岩質集塊岩の下位に溶岩流として産する。その下部は緻密で、上部に向かって気孔が多くなる。斑晶として、2%程度の斜長石 (An 60-56) と磁鉄鉱が含まれる。石基は斜長石 (An 54-41), カリ長石, 単斜輝石および磁鉄鉱からなり、完晶質で粗面岩質組織を呈する。斑晶質粗面安山岩はステージIIの上部にみられる。斑晶として普通輝石 (Mg.V. 70-60), 斜長石 (An 60-32), ケルスート角閃石, 黒雲母および磁鉄鉱をもつ暗灰色緻密岩である。石基は完晶質で粗面岩質組織を呈し、斜長石 (An 50-32), アルカリ長石, 柱状普通輝石 (Mg.V. 70-68), ケルスート角閃石, 磁鉄鉱およびリンカイ石からなる。カルデラ南壁で発見された粗面安山岩 (第4表, 17)

第2表 Characteristic minerals of the various rock types and their compositions.

Rock types	Phenocrysts	Groundmass
Picritic basalt Alkali basalt	Olivine(Fo88-78) Diopside(Mg.V89-83) Ti-augite(Mg.V81-74) Plagioclase(An88-70) Magnetite	Olivine(Fo78-74) Ti-augite(Mg.V78-71) Plagioclase(An84-71) Magnetite Ilmenite(±)
Trachybasalt	Olivine(Fo80-75)(±) Ti-augite(Mg.V78-73) Plagioclase(An85-68) Magnetite	Ti-augite(Mg.V78-68) Plagioclase(An73-56) Magnetite Ilmenite Apatite
Trachyandesite	Olivine(Fo74-60)(±) Augite(Mg.V70-60) Plagioclase(An60-32) Alkali feldspar(±) Kaersutite(±) Biotite(±) Magnetite	Augite(Mg.V70-68)(±) Plagioclase(An54-32) Alkali feldspar Kaersutite Biotite(±) Magnetite Apatite
Leucite bearing trachyandesite	Olivine(Fo79-77) Ti-augite-augite (Mg.V78-61) Plagioclase(An52-33) Alkali feldspar Kaersutite Biotite Magnetite	Olivine(Fo78-60) Augite(Mg.V75-61) Plagioclase(An40-30) Alkali feldspar Biotite Leucite Magnetite Apatite
Trachyte	Augite(Mg.V67-48) Plagioclase(An50-28)(±) Alkali feldspar Kaersutite(±) Biotite(±) Magnetite	Olivine(Fo26-7)(±) Augite-ferroaugite (Mg.V62-41) Alkali feldspar Sodalite(±) Magnetite Apatite
Phonolite	Augite(Mg.V63-52) Alkali feldspar Magnetite	Olivine(Fo35-12) Augite-ferroaugite (Mg.V60-37) Alkali feldspar Nepheline Sodalite Magnetite Apatite(±)

質転石中には、カンラン石(Fo86-78), Al-普通輝石(Mg.V.75-73), Cr-透輝石(Mg.V.86-82), ケルースト角閃石および黒雲母の巨斑晶と斑礫岩の包有物が含まれている。

白榴石含有粗面安山岩は鬱陵火山最後の噴出物である厚さ5~10mの多孔質溶岩流を構成し、石基鉱物として白榴石を含有する点で他の粗面安山岩と異なっている。斑晶としてカンラン石

(Fo 79-77), チタン普通輝石～普通輝石 (Mg.V. 78-61), 斜長石 (An 52-33), アルカリ長石, ケルスート角閃石, 黒雲母および磁鉄鉱をもつ淡灰色～暗灰色の斑状岩である。石基は完晶質で, 斜長石 (An 40-30), アルカリ長石, 白榴石 (1～2.5%), 普通輝石, カンラン石, 黒雲母, 磁鉄鉱, リンカイ石からなる。白榴石は 0.01～0.2mm の粒状～六角形自形結晶で, 単斜輝石, 斜長石およびリンカイ石の微晶を包有する。

粗面岩には斑晶として斜長石を含むものと含まないものがある。前者はステージⅢの下部に産し, 後者は成層火山体の大部分を構成する。本岩は淡灰色～淡緑色の斑状岩であり, 斑晶としては普通輝石 (Mg.V. 67-48), アルカリ長石, 磁鉄鉱や, 時には, 斜長石 (An 50-28), ケルスート角閃石, 黒雲母を含む。石基は完晶質で粗面岩質組織を呈する。主に長柱状のアルカリ長石からなり, 普通輝石-鉄普通輝石 (Mg.V. 62-41), 磁鉄鉱, リンカイ石を含む。石基にはときにカンラン石あるいはソーダライトがみられることがある。

フォノライトは石基にカスミ石をもつことによって粗面岩と区別され, ステージⅢの粗面岩質溶岩に挟まれる溶岩流として産する。斑晶鉱物はアルカリ長石, 普通輝石 (Mg.V. 63-52), 磁鉄鉱からなる。石基はアルカリ長石, 普通輝石-鉄普通輝石 (Mg.V. 60-37), カスミ石, ソーダライト, 磁鉄鉱, リンカイ石からなり, 完晶質で粗面岩質組織を呈する。カスミ石は 0.05-0.3 mm の四角～六角形自形結晶で普通輝石に取り囲まれている。

第3表 Summary of mineralogy of the various rock types.

	Picritic basalt	Alkali basalt	Trachy- basalt	Trachy- andesite	Trachyte	Phonolite
SI	>40	40-30	30-15	15-5		5-0
K ₂ O + Na ₂ O (%)	<3.5	3.0-5.0	5.0-8.0	8.0-12		>12
Olivine (P,G)	Fo88-83	Fo87-78 Fo78-74	Fo80-75	Fo79-77 Fo78-60		Fo35-26 Fo26-7
Clinopyroxene (P,G)	Mg.V 88					Mg.V 36
Plagioclase (P,G)		An88-68 An71-57		An55-25 An48-		
Alkali-feldspar (P,G)					Or60-25 Or55-	
Feldspathoid (G)				Lc Q28Ne3Ks69 So		Ne Q10Ne77Ks13
Kaersutite (P,G)				Mg.V 69-56		
Biotite (P,G)				Mg.V 60-52		
Magnetite (P,G)	Usp74-44		Usp64-61		Usp61-50	
Ilmenite (G)		Hml2-10	Hm8-6			
Apatite (G)						

P:Phenocryst, G:Groundmass, -----:occasional occurrence.

第3表に斑晶鉱物の晶出順序と造岩鉱物組成を模式的に示す。斑晶鉱物の晶出順序は最も未分化な岩石では、まず、カンラン石 (Fo 88), 透輝石 (Mg.V. 88) および Cr に富む Ti-磁鉄鉱が晶出し、その後これらに An に富む斜長石と Ti-普通輝石が続く。さらに分化が進むと、Fo 81-73 のカンラン石, Ti-普通輝石, 斜長石および Ti-磁鉄鉱が晶出しつづける。分化とともにこれら斑晶の量比は変化し、カンラン石と単斜輝石の量は減少し、斜長石の割合が大きくなる。粗面安山岩になると、ケルスート角閃石 (Mg.V. 69), 黒雲母 (Mg.V. 60) およびアルカリ長石が晶出しはじめる。粗面岩からフォノライトでは再びカンラン石 (Fo 36-25) が晶出し、ケルスート角閃石と黒雲母は消失する。斜長石の晶出は粗面岩までで、その後はアルカリ長石のみとなる。

§ 4. 分析方法と分析結果

鬱陵島の火山岩類48試料について、湿式分析法により主成分元素の定量を行った。このうち、17試料について光量子放射法⁴⁾により、13微量元素を定量した。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。また、V は有機抽出分離後、比色分析法により、F はイオン電極法によりそれぞれ定量した。主成分元素の分析結果とノルム鉱物組成を第4表に、微量元素組成を第5表に示した。

第4表 Chemical analyses and CIPW norms of volcanic rocks from Ulreung island.

No.	P.ba		Alkali basalt					Trachybasalt					Trachyandesite			
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
SiO ₂	42.26	44.37	42.53	44.03	44.83	47.76	48.70	49.85	47.81	47.25	45.76	48.54	46.77	48.24	55.01	54.29
TiO ₂	2.71	3.16	3.39	3.37	2.97	3.24	2.52	2.99	3.29	3.20	3.04	2.92	2.98	2.99	1.72	1.67
Al ₂ O ₃	10.65	13.13	15.35	14.97	18.76	17.69	18.73	18.18	18.21	18.14	18.51	17.78	17.80	17.59	18.43	19.12
Fe ₂ O ₃	4.32	4.38	0.43	3.25	2.69	3.34	1.04	4.90	2.12	2.93	1.59	3.92	3.69	3.53	3.16	2.87
FeO	6.62	7.19	7.65	6.51	5.59	5.28	5.04	3.56	5.61	4.74	6.42	4.64	5.77	4.23	1.39	3.49
MnO	0.21	0.16	0.19	0.17	0.16	0.16	0.18	0.17	0.16	0.26	0.26	0.21	0.18	0.20	0.10	0.18
MgO	10.68	9.40	8.02	8.56	5.51	3.06	2.34	3.11	3.25	2.88	2.57	2.65	3.90	2.82	1.46	1.77
CaO	12.36	10.59	11.65	10.58	9.15	8.17	7.65	7.36	8.46	8.41	8.40	7.63	8.27	7.82	3.66	4.13
Na ₂ O	2.27	2.70	2.17	2.61	3.47	3.05	3.42	3.64	2.99	4.71	2.68	3.73	3.46	3.04	4.53	5.54
K ₂ O	0.54	0.97	1.69	1.14	1.46	3.27	4.32	3.98	3.04	1.12	3.63	3.38	2.64	3.55	5.53	5.44
H ₂ O ⁺	6.09	2.09	5.11	2.69	2.81	2.80	4.59	0.84	2.88	4.06	5.06	2.33	2.57	3.33	2.12	0.43
H ₂ O ⁻	0.50	0.60	0.73	0.84	1.47	1.00	0.26	0.44	1.03	0.99	0.63	0.83	0.82	1.22	1.98	0.21
P ₂ O ₅	0.40	0.75	0.68	0.62	0.79	0.84	0.84	0.85	0.84	0.98	0.96	0.81	0.86	1.06	0.38	0.53
Total	99.61	99.49	99.59	99.34	99.66	99.66	99.63	99.87	99.69	99.67	99.51	99.37	99.71	99.62	99.47	99.67
Q	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.63	-	-
or	3.43	5.92	10.65	7.03	9.05	20.16	26.94	23.86	18.76	6.99	22.86	20.76	16.20	22.07	34.27	32.46
ab	13.89	21.80	8.70	20.13	25.65	26.92	22.45	28.53	26.41	39.67	20.79	30.17	27.59	27.06	40.03	31.54
an	18.57	21.53	28.96	26.89	32.82	26.00	24.26	21.82	28.49	26.47	29.58	22.65	26.20	25.10	14.28	11.35
ne	3.66	0.98	5.90	1.58	2.78	-	4.38	1.47	-	1.33	1.83	1.43	1.52	-	0.09	8.56
di	35.25	21.96	22.53	18.76	7.46	8.41	8.20	7.46	7.74	8.62	6.72	8.83	8.44	6.59	1.51	4.69
hy	-	-	-	-	-	2.74	-	-	3.07	-	-	-	-	4.62	-	-
ol	11.94	13.26	14.05	12.51	10.32	2.26	5.09	3.08	3.77	3.61	7.22	2.55	6.55	-	2.18	2.75
mt	6.73	6.56	0.67	4.92	4.09	5.05	1.59	3.41	3.21	4.49	2.46	5.91	5.55	5.38	-	4.20
hm	-	-	-	-	-	-	-	2.62	-	-	-	-	-	-	3.31	-
il	5.53	6.20	6.87	6.68	5.91	6.42	5.05	5.76	6.52	6.42	6.15	5.76	5.88	5.97	3.30	3.20
ap	1.00	1.80	1.68	1.50	1.92	2.03	2.05	2.00	2.03	2.40	2.37	1.95	2.07	2.58	0.92	1.24
others	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.11	-

No.	Trachyandesite				Trachyandesite(Lc)							Trachyte				
	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32
SiO ₂	55.68	52.94	51.38	54.47	55.90	56.00	57.41	56.51	57.53	57.32	56.52	60.08	59.72	59.67	58.91	60.05
TiO ₂	1.37	2.15	2.89	1.65	1.55	1.44	1.15	1.24	1.00	1.04	1.00	1.30	0.48	0.71	0.77	0.64
Al ₂ O ₃	19.16	19.22	18.45	19.16	19.32	19.19	18.48	18.86	19.41	19.33	18.94	18.97	18.12	19.12	19.75	18.55
Fe ₂ O ₃	3.01	4.75	4.07	2.81	2.60	2.34	2.17	2.04	4.35	4.52	2.06	2.15	2.08	2.67	2.35	2.15
FeO	2.68	0.79	2.18	3.40	2.55	2.89	2.84	3.34	0.41	0.52	3.24	2.14	1.92	1.58	1.76	1.77
MnO	0.15	0.11	0.12	0.17	0.15	0.14	0.14	0.15	0.14	0.14	0.15	0.18	0.26	0.15	0.15	0.25
MgO	1.77	0.84	2.02	1.92	1.70	1.58	1.16	1.41	0.99	1.15	1.47	0.28	0.41	0.48	0.57	0.57
CaO	3.63	4.72	5.24	4.78	3.50	3.80	3.55	3.33	2.52	2.61	3.98	1.29	1.16	1.62	1.95	1.31
Na ₂ O	5.78	4.11	3.98	4.91	5.81	6.02	5.74	5.73	6.00	5.98	5.78	6.96	6.20	6.54	6.78	7.07
K ₂ O	5.53	5.38	3.94	5.14	6.25	5.35	5.72	5.65	5.97	5.98	5.48	6.17	6.16	6.67	6.21	6.30
H ₂ O ⁺	0.75	2.50	3.06	0.48	0.30	0.74	0.80	0.58	0.48	0.48	0.58	0.82	2.25	0.32	0.23	0.58
H ₂ O ⁻	0.19	1.78	1.29	0.28	0.07	0.15	0.40	0.41	0.55	0.50	0.40	0.27	0.66	0.07	0.12	0.60
P ₂ O ₅	0.41	0.66	0.90	0.60	0.39	0.26	0.35	0.31	0.26	0.17	0.37	0.07	0.13	0.16	0.16	0.11
Total	100.11	99.95	99.52	99.77	100.09	99.90	99.91	99.56	99.61	99.74	100.27	99.86	99.78	99.82	99.58	99.94
Q	-	-	1.52	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
or	32.95	33.23	24.47	30.68	37.04	31.93	34.24	33.87	35.79	35.78	32.62	36.92	37.58	39.64	36.98	37.70
ab	34.85	36.34	35.39	34.08	29.99	34.82	38.28	36.40	40.59	38.89	35.29	44.63	48.67	40.74	39.82	43.52
an	10.08	18.92	21.14	15.21	8.20	9.63	7.87	9.18	8.52	8.34	9.62	2.32	3.53	3.13	5.15	0.28
ne	7.84	-	-	4.27	10.46	9.01	5.92	6.93	5.91	6.67	7.59	8.12	2.97	8.08	9.75	9.24
di	4.22	-	-	3.83	5.22	6.15	6.24	4.53	0.84	2.00	6.39	3.15	1.27	2.59	2.84	4.55
hy	-	-	5.29	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
ol	2.06	1.53	-	3.25	1.46	1.65	1.23	2.97	1.48	1.38	2.16	0.62	1.17	-	0.42	0.10
mt	4.40	-	-	4.11	3.78	3.43	3.19	3.00	-	-	3.01	3.16	3.11	3.37	3.43	3.16
hm	-	4.96	4.28	-	-	-	-	-	4.41	4.58	-	-	-	0.36	-	-
il	2.62	1.99	5.11	3.16	2.95	2.76	2.21	2.39	1.18	1.42	2.49	0.92	1.39	1.47	1.22	1.21
ap	0.96	1.60	2.19	1.40	0.91	0.61	0.82	0.73	0.61	0.40	0.86	0.16	0.31	0.37	0.37	0.26
others	-	1.41	0.63	-	-	-	-	-	0.67	0.52	-	-	-	0.24	-	-

No.	Trachyte					Phonolite					Trachyte(Pm)					
	33	34	35	36	37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48
SiO ₂	60.05	60.75	61.49	57.53	58.56	59.18	58.23	59.60	60.07	60.54	61.83	60.20	60.52	60.45	57.12	58.13
TiO ₂	0.54	0.49	0.72	0.35	0.50	0.41	0.54	0.35	0.52	0.47	0.53	0.51	0.47	0.67	0.44	0.33
Al ₂ O ₃	19.33	18.07	18.14	18.88	19.52	19.04	19.39	18.84	18.91	19.00	18.50	19.10	18.36	18.14	19.10	18.86
Fe ₂ O ₃	1.85	2.63	3.18	1.62	1.70	1.50	1.85	1.80	1.75	1.99	1.80	2.05	2.80	1.76	1.83	1.96
FeO	2.06	1.44	0.62	1.88	1.95	2.10	2.29	2.78	2.38	2.30	2.20	1.68	1.30	2.22	1.57	1.61
MnO	0.15	0.17	0.18	0.19	0.15	0.16	0.17	0.18	0.17	0.25	0.21	0.18	0.23	0.18	0.20	0.16
MgO	0.45	0.33	0.48	0.23	0.27	0.15	0.43	0.46	0.42	0.21	0.33	0.32	0.35	0.41	0.17	0.24
CaO	1.58	0.84	1.28	1.13	1.56	1.39	1.92	1.61	1.65	0.90	0.92	1.42	0.98	1.00	1.30	1.40
Na ₂ O	6.27	6.97	5.72	5.96	6.37	7.61	7.93	6.83	6.60	7.72	7.14	6.64	7.16	7.05	6.30	5.92
K ₂ O	6.53	5.68	6.34	5.77	6.43	6.17	5.81	5.98	6.57	5.76	5.95	6.48	6.05	6.27	6.24	6.62
H ₂ O ⁺	0.44	2.02	1.00	4.32	1.87	1.25	0.66	1.12	0.35	0.39	0.38	0.70	1.04	0.73	4.10	3.84
H ₂ O ⁻	0.46	0.23	0.21	1.14	0.57	0.14	0.10	0.20	0.17	0.35	0.14	0.30	0.41	0.22	1.40	0.58
P ₂ O ₅	0.14	0.19	0.21	0.14	0.17	0.14	0.22	0.30	0.13	0.05	0.10	0.10	0.08	0.10	0.07	0.08
Total	99.85	99.81	99.57	99.14	99.62	99.24	99.54	100.05	99.69	99.93	100.03	99.69	99.75	99.20	99.84	99.73
Q	-	-	1.08	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
or	39.00	34.41	38.09	36.40	39.10	37.26	34.76	35.79	39.15	34.32	35.33	38.81	36.37	37.71	39.09	41.05
ab	42.73	54.06	49.21	49.53	41.02	40.18	38.09	44.36	40.97	47.28	50.74	43.50	48.85	45.09	41.96	41.74
an	5.37	1.27	5.06	5.01	5.84	-	0.15	3.13	2.59	0.18	0.86	3.21	0.09	-	5.73	5.60
ne	5.90	3.46	-	2.33	7.83	13.43	16.17	7.68	8.31	10.06	5.40	7.28	6.93	7.77	7.88	5.86
di	1.37	1.34	-	-	0.83	5.33	6.34	2.55	4.10	3.46	2.62	2.71	1.92	3.71	0.53	0.96
hy	-	-	1.22	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
ol	1.57	0.15	-	1.99	1.46	0.07	-	2.47	1.03	0.77	1.18	0.26	-	1.01	0.95	0.96
mt	2.71	3.87	0.51	2.51	2.54	1.86	2.72	2.64	2.56	2.91	2.62	3.01	3.64	2.03	2.81	2.98
hm	-	0.03	2.88	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.34	-	-	-
il	1.04	0.95	1.39	0.71	0.98	0.80	1.04	0.67	1.00	0.90	1.01	0.98	0.91	1.30	0.89	0.66
ap	0.33	0.45	0.49	0.35	0.41	0.33	0.52	0.70	0.30	0.12	0.23	0.23	0.19	0.24	0.17	0.19
others	-	-	0.04	1.19	-	0.73	0.23	-	-	-	-	-	0.78	1.13	-	-

Analyst: Kim, Y. K. except for 23-27 by Aoki, K. and by Ishikawa, K.

Rock type and analysis number: as in Table 2 and (Pm) for pumice.

Mode of occurrence: 1-8, 17, 18, 47, 48 pyroclastics; 11-14, 19, 34 dikes and 20-33, 35-46 lava flow.

others: C, Ac, Wo, Pf and/or Ru.

第5表 Major and trace element analyses of volcanic rocks from Ulreung island.

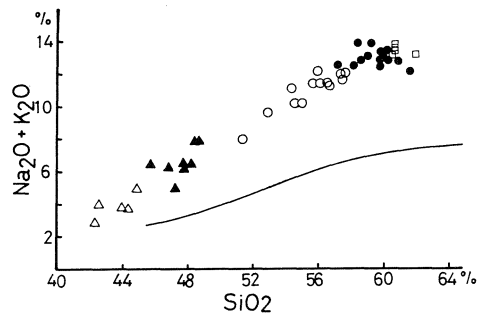
No.	Alkali basalt				Trachybasalt			Trachyandesite	
	P.ba 1	4	2	5	13	8	12	20	16
wt. %									
SiO ₂	42.26	44.03	44.37	44.83	46.77	49.85	48.54	54.47	54.29
TiO ₂	2.71	3.37	3.16	2.97	2.98	2.99	2.92	1.65	1.67
Al ₂ O ₃	10.65	14.97	13.13	18.76	17.80	18.18	17.78	19.16	19.12
Fe ₂ O ₃	4.32	3.25	4.38	2.69	3.69	4.90	3.92	2.81	2.87
FeO	6.62	6.51	7.19	5.59	5.77	3.56	4.64	3.40	3.49
MnO	0.21	0.17	0.16	0.16	0.18	0.17	0.21	0.17	0.18
MgO	10.68	8.56	9.40	5.51	3.90	3.11	2.65	1.92	1.77
CaO	12.36	10.58	10.59	9.15	8.27	7.36	7.63	4.78	4.13
Na ₂ O	2.27	2.61	2.70	3.47	3.46	3.64	3.73	4.91	5.54
K ₂ O	0.54	1.14	0.97	1.46	2.64	3.98	3.38	5.14	5.44
H ₂ O+	6.09	2.69	2.09	2.81	2.57	0.84	2.33	0.48	0.43
H ₂ O-	0.50	0.84	0.60	1.47	0.82	0.44	0.83	0.28	0.21
P ₂ O ₅	0.40	0.62	0.75	0.79	0.86	0.85	0.81	0.60	0.53
Total	99.61	99.34	99.49	99.66	99.71	99.87	99.37	99.77	99.64
ppm									
Ba	238	247	320	767	1296	1483	1286	1222	835
Ce	61.4	82.8	80.8	114	114	129	124	170	144
Co	58.5	51.2	51.6	34.2	24.6	18.9	15.7	8.6	11.4
Cr	497	231	244	73.7	34.0	23.5	11.6	4.9	9.7
Cs	0.26	n.d.	0.51	0.91	0.61	0.56	0.31	0.87	0.95
F*	678	702		961	991	999	951	664	1345
Nb	40.6	59.8	56.7	83.9	77.3	104	92.7	136	128
Ni	282	178	185	54.8	16.6	3.8	10.7	2.7	2.2
Rb	51.5	10.2	10.2	30.8	48.1	97.9	79.2	127	114
Sc	39.4	36.3	29.9	33.1	27.0	29.8	28.6	14.8	15.5
Sr	514	675	693	904	962	919	904	943	522
V**	269	219		218	180	150	134	50	57
Y	17.7	20.7	21.2	26.5	23.5	28.5	29.7	25.8	29.2
Zn	101	55	47	133	53	128	107	107	112
Zr	177	239	239	293	270	346	328	516	401

*: ion-electrode analysis; **: colorimetric analysis; n.d.: not detected;

§ 5. 鬱陵島火山岩の地球化学的特徴

鬱陵島アルカリ火山岩類はSiO₂に乏しく、TiO₂、K₂O + Na₂O、P₂O₅に富む。珩酸不飽和の程度は高く、最大16%のノルム Ne が算出される。まれに少量のノルム C, Ac, Wo, Pf, Ru をもつ岩石がみられるが、これはそれらが高いFe₂O₃/FeO比をもつためであろう。

本島の火山岩類はすべて珩酸-アル



第2図 SiO₂-total alkali diagram.

The line denote the boundaries between alkali olivine basalt series and high alumina basalt series(after Kuno, 1966). Δ : picritic basalt and alkali basalt; \blacktriangle : trachybasalt; \circ : trachyandesite; \bullet : trachyte; and \square : phonolite.

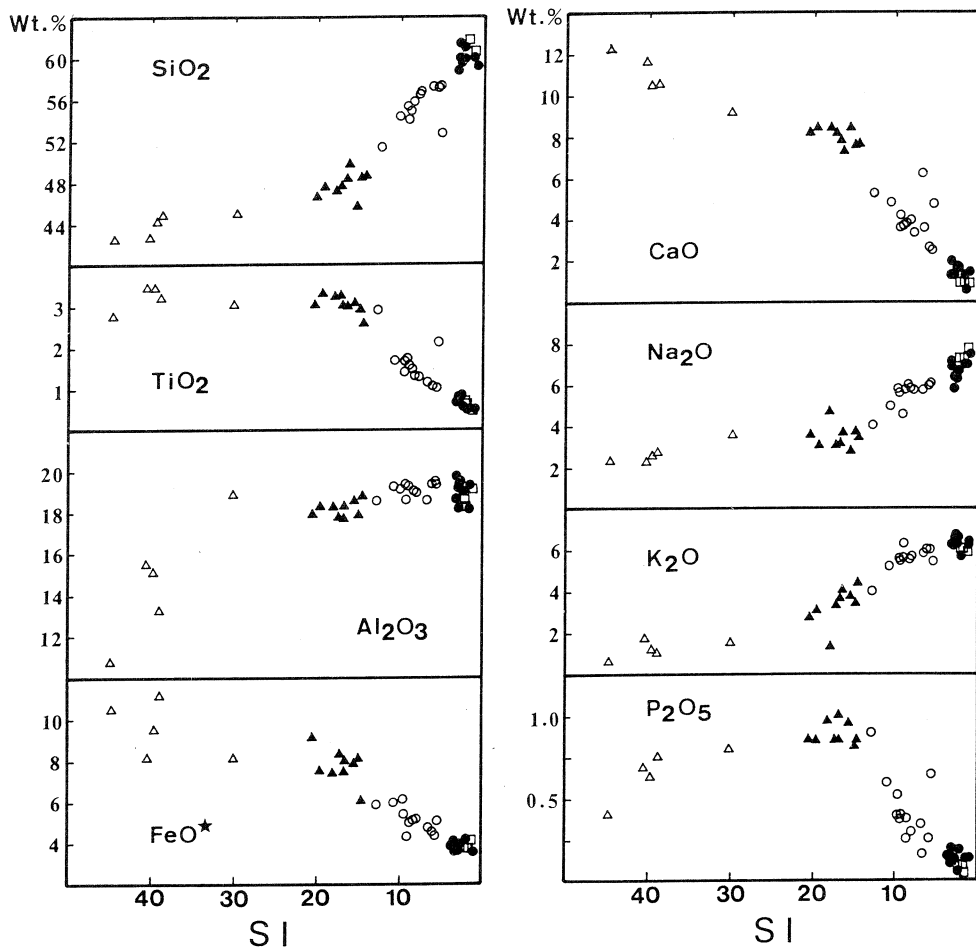
No.	Trachyandesite(Lc)		Trachyte				Phonolite	
	22	25	31	33	41	28	46	43
wt.%								
SiO ₂	56.00	57.53	58.91	60.05	60.07	60.08	60.45	61.83
TiO ₂	1.44	1.00	0.64	0.54	0.52	0.48	0.67	0.53
Al ₂ O ₃	19.19	19.41	19.75	19.33	18.91	18.97	18.14	18.50
Fe ₂ O ₃	2.34	4.35	2.35	1.85	1.75	2.15	1.76	1.80
FeO	2.89	0.41	1.76	2.06	2.38	2.14	2.22	2.20
MnO	0.14	0.14	0.15	0.15	0.17	0.18	0.18	0.21
MgO	1.58	0.99	0.57	0.45	0.42	0.28	0.41	0.33
CaO	3.80	2.52	1.95	1.58	1.65	1.29	1.00	0.92
Na ₂ O	6.02	6.00	6.78	6.27	6.60	6.96	7.05	7.14
K ₂ O	5.35	5.97	6.21	6.53	6.57	6.17	6.27	5.95
H ₂ O+	0.74	0.48	0.23	0.44	0.35	0.82	0.73	0.38
H ₂ O-	0.15	0.55	0.12	0.46	0.17	0.27	0.22	0.14
P ₂ O ₅	0.26	0.26	0.16	0.14	0.13	0.07	0.10	0.10
Total	99.90	99.61	99.58	99.85	99.69	99.86	99.20	100.03
ppm								
Ba	1380	954	767	567	375	<100	<100	184
Ce	122	123	136	140	148	180	188	179
Co	9.3	7.0	3.0	1.8	2.8	n.d.	n.d.	0.9
Cr	13.3	5.4	11.2	13.5	10.2	9.8	10.0	8.3
Cs	1.31	1.30	1.09	n.d.	0.68	1.22	0.61	0.94
F*	472	475	741	328	464	518	718	410
Nb	125	138	157	134	153	168	161	161
Ni	3.9	5.7	3.3	2.5	2.7	6.7	2.1	2.0
Rb	157	155	147	114	147	141	143	159
Sc	17.1	11.8	7.2	4.4	3.7	2.6	8.7	5.4
Sr	546	455	370	249	222	2.4	8.0	1.8
V**	66	28	21	4	14	15	24	24
Y	22.4	22.0	26.6	28.7	29.4	40.4	45.3	40.2
Zn	92	91	75	61	70	110	84	99
Zr	487	504	633	481	571	603	628	605

(Lc): leucite bearing trachyandesite; P.ba: picritic basalt.

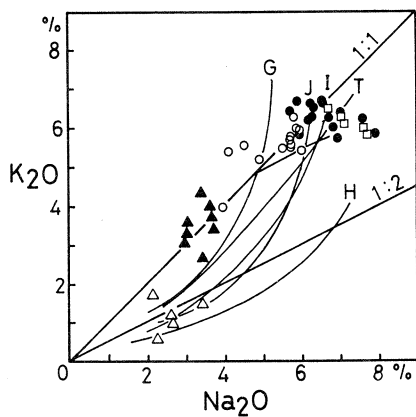
カリ図上でアルカリ岩の領域に点示される(第2図)。SiO₂の増加に伴ってアルカリは急激に増加するトレンドを示す。

SI-酸化物図(第3図)上では各酸化物はSIの減少に伴って連続的に変化している。そのうちSiO₂, Na₂OとK₂OはSIが45から15の間ではわずかに増加し、その後急激に増加する。全鉄(FeO*)とCaOはSIとともに連続的に減少する。TiO₂はピクライト質玄武岩から粗面玄武岩までほぼ一定であるが、その後急に減少する。Al₂O₃はSIが30までは増加し、その後はあまり変化しない。P₂O₅は粗面玄武岩ではわずかに増加し、粗面安山岩-フォノライトで急減する。粗面岩とフォノライトは記載岩石学的には区別できるが、全岩組成に差異は認められない。

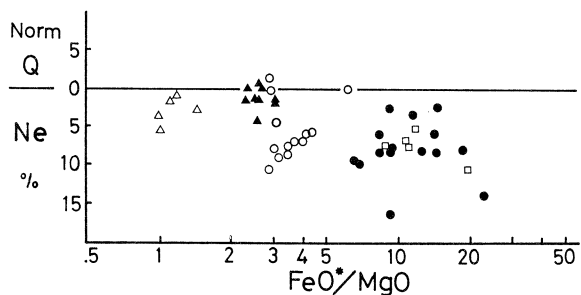
本島の火山岩類はそのほとんどがノルム Ne を持ち、アルカリ玄武岩で1.0~5.9%, フォ



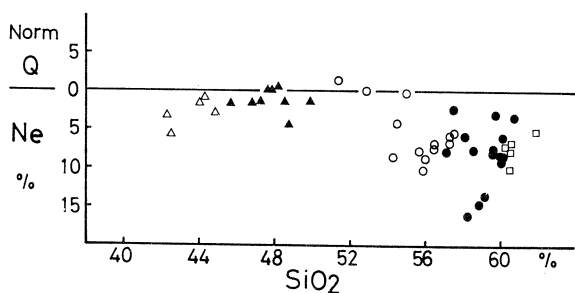
第3図 SI-major oxide variation diagram.
 FeO*: total iron as FeO.
 Symbols as in Fig. 2.



第5図 Na₂O-K₂O diagram.
 H, T, I, J and G indicate the trends of Hawaiian (Macdonald and Katsura, 1964), Tristan (Baker et al., 1964), Iki (Aoki, 1959), Jeju (Lee, 1983) and Gough (Le Maitre, 1962) alkali rock series, respectively.
 Symbols as in Fig. 2.

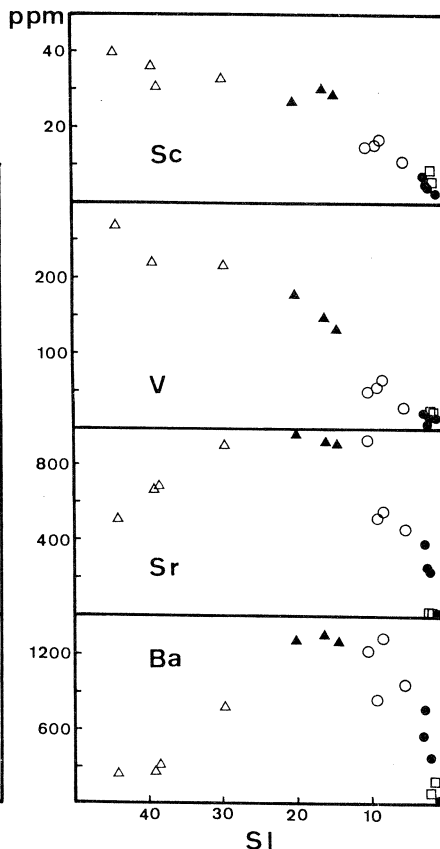
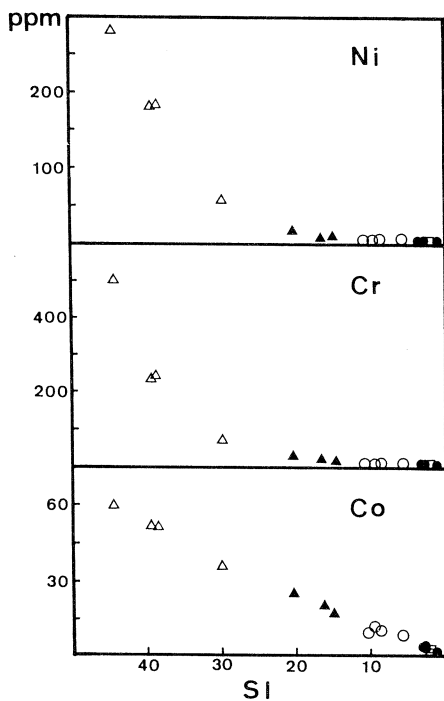


第4図 SiO₂, FeO*/MgO- norm Q-Ne diagrams.
 FeO*: total iron as FeO.
 Rocks containing both normative olivine and hypersthene plot on the horizontal at normative Q = 0 = normative Ne.
 Symbols as in Fig. 2.



第6図 SI - some trace element variation diagram.
 Pb: picritic basalt;
 Ab: alkali basalt;
 Tb: trachybasalt;
 Ta: trachyandesite;
 Tr: trachyte;
 Ph: phonolite.

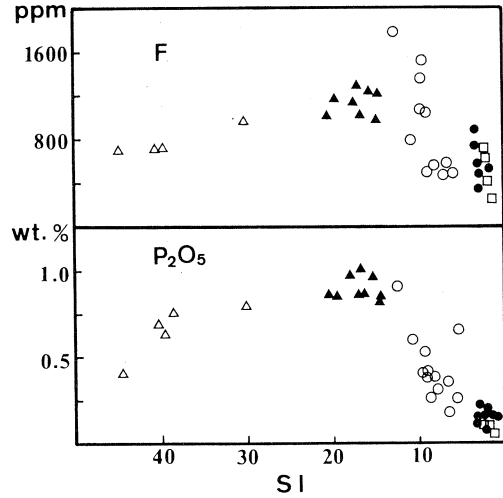
- △ Pb, Ab
- ▲ Tb
- Ta
- Tr
- Ph



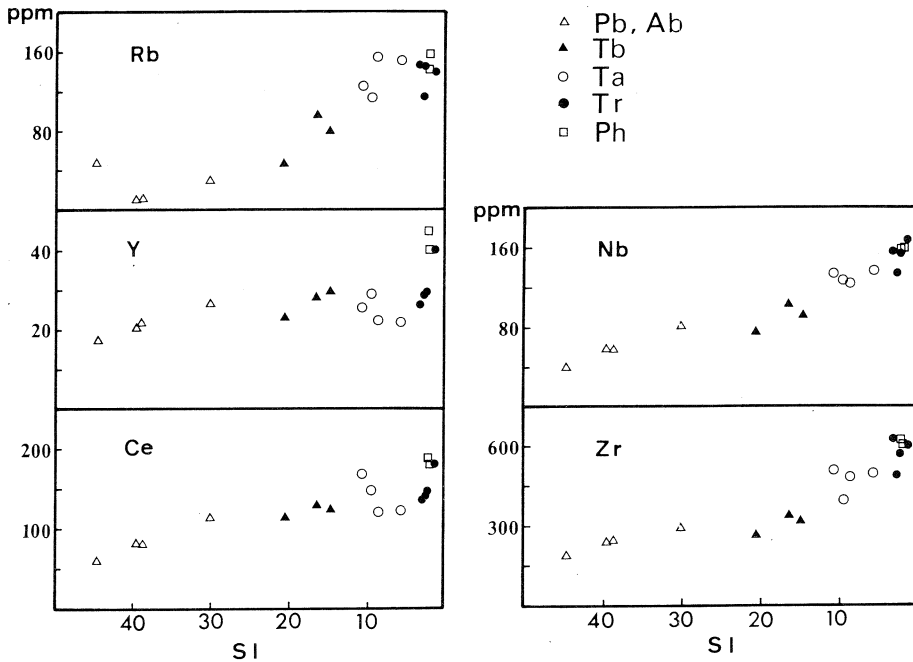
ノライトで5.4～10.0%のノルム Neが算出される。一部のノルム Ne が算出されない岩石は変質等のために二次的に高い Fe_2O_3/FeO 比をもつ岩石に限られる。ノルム Ne は SiO_2 や FeO^*/MgO 比の増加に伴って増加する。

(第4図)。

K_2O-Na_2O 図を第5図に示す。Macdonald and Katsura⁵⁾ と Coombs and Wilkinson⁶⁾ は中間組成のアルカリ岩について、 $K_2O/Na_2O=1/2$ を境にしてソーディック系列とポタシック系列をわけている。図でHawaii (H)と済州(J)はソーディック系列に属し、Gough (G)と Tristan (T) はポタシック系列に、そして壱岐(I)は中間型に属する。鬱陵島からのアルカリ玄武岩は



第7図 SI-F, P_2O_5 variation diagram. Symbols as in Fig. 6.

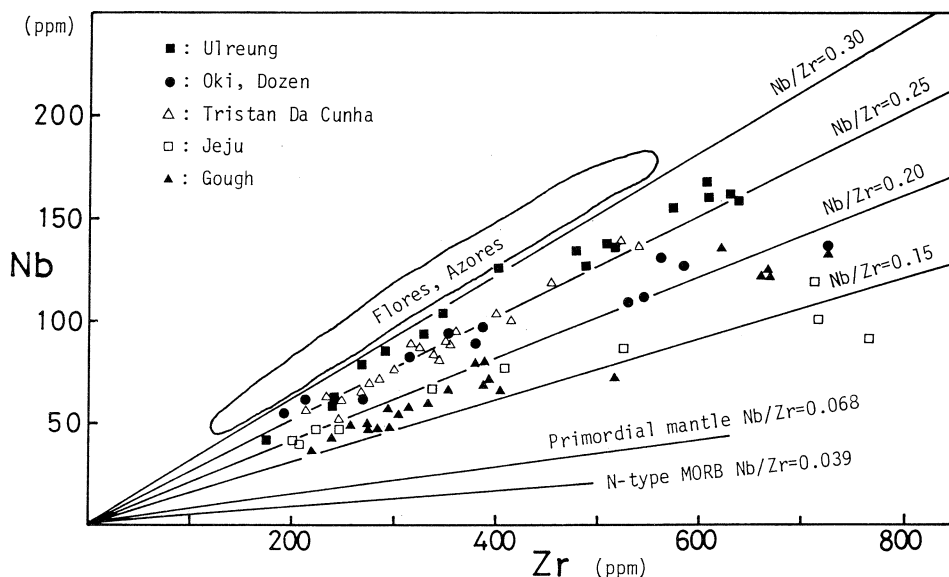


第8図 SI-some trace element variation diagram. Symbols as in Fig. 6.

$K_2O : Na_2O$ が 1 : 2 と 1 : 3 の間に点示され、粗面玄武岩からフォノライトはほぼ 1 : 1 の線上に点示される。中間組成の岩石（粗面玄武岩と粗面安山岩）は他のアルカリ岩系の岩石に比較して K_2O に富み明らかにポタシク系列に属する。粗面岩とフォノライトではより苦鉄質な岩石に比べて K_2O / Na_2O 比が小さくなる。

横軸に SI, 縦軸に各微量元素組成をとった変化図を第 6, 7, 8 図に示す。SI が減少するに従って, Ni, Cr はアルカリ玄武岩から粗面安山岩にかけて急速に減少し, 粗面岩とフォノライトではその含有量は非常に少なくなる。Co, Sc と V はアルカリ玄武岩からフォノライトまで連続的な減少を示す。一方, Sr と Ba は粗面玄武岩まで連続的に増加し, 最大になり, その後粗面安山岩からは急速に減少する（第 6 図）。F と P_2O_5 は同じような挙動を示し, 粗面安山岩まで, やや増加し, その後減少を示す。F は粗面安山岩の中でケルスート角閃石が多く含まれている岩石で最大になっている（第 7 図）。Rb は黒雲母が晶出しはじめる粗面安山岩までは増加し, 粗面岩とフォノライトではわずかに減少する。Y と Ce は粗面安山岩までは増加し, 粗面安山岩でやや減少するが, その後急激な増加を示す。一方, Nb と Zr は分化と共に連続的に増加を示す（第 8 図）。

火山が位置する Tectonic setting により, 顕著な含有量の変化を示す, Zr と Nb を軸にとり, 隠岐島前³⁾, 済州島⁸⁾, Gough⁹⁾ と Tristan¹⁰⁾ のデータを鬱陵島のデータとともに第

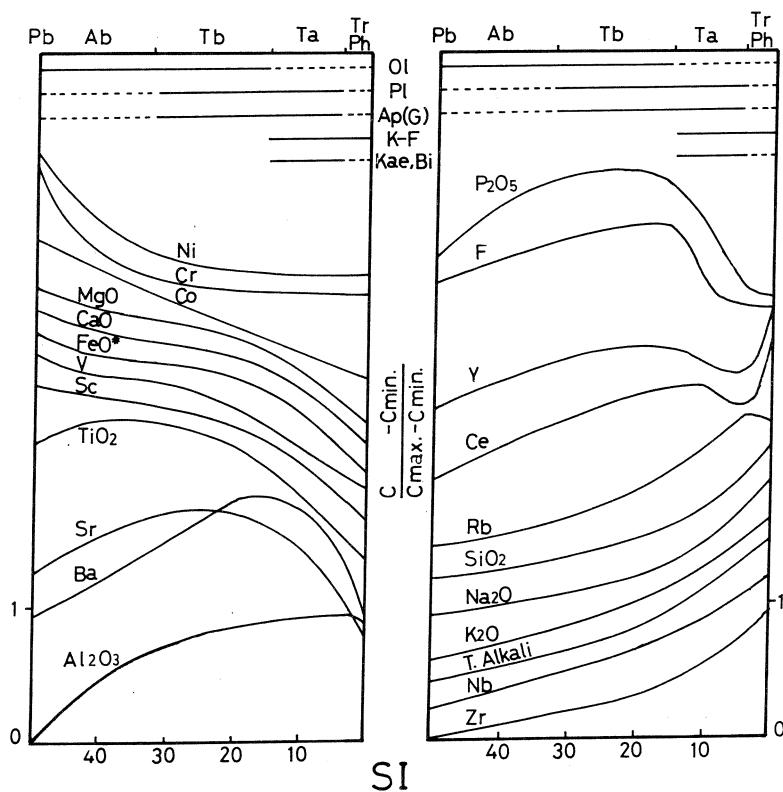


第 9 図 Zr-Nb diagram for alkali volcanic rocks from Ulreung island and other alkali rock series.
Data sources in the text.

9図に示した。これらのアルカリ火山岩類における Nb/Zr 比は初生マントルやN型MORBに比べてかなり高く、一方、Azores 諸島 Flores 火山¹⁰⁾のアルカリ岩類よりは低い。各火山毎に Nb/Zr 比はほぼ一定の値を示し、濟州島・Gough, 隠岐島前, Tristan そして鬱陵島の順に値が大きくなっている。ポタシク系列による区分と Nb/Zr 比の大小との間には明瞭な相関はない。

§ 6. 鬱陵島アルカリ火山岩類における分化に伴う元素の挙動

鬱陵島アルカリ火山岩類における分化に伴う元素の挙動を検討するために、第10図を作成した。この図では分析した全元素についてその濃度変化幅を同一に規格化し、変化幅をそろえて表示してある。すでに指摘したように、SI の減少にともない、Ni と Cr は分化の初期に急激に減少してしまう。Coは直線的に減少し、MgO, CaO, FeO*, V と Sc はほぼ同じようなパ



第10図 Variation of elemental concentration versus SI and order of crystallization. Letter symbols as in Fig. 6.

ターンで減少する。このような現象は、これらの元素が選択的に取り込まれるカンラン石、単斜輝石およびTi-磁鉄鉱のマグマからの分別を示唆している。

TiO₂, Sr, Ba, Al₂O₃とRbは分化の途中に含有量の最大値をもつ。SIの増加にともない最大値が現れる順序は、TiO₂, Sr, Ba, Rb, Al₂O₃の順である。このうち、Sr, BaとAl₂O₃は斜長石とアルカリ長石に、Rbは黒雲母に主に取り込まれる元素である。これらの元素はそれを選択的に取り込む鉱物が晶出しはじめるまでは液相中に濃集し、各鉱物が晶出を始めると減少する。これらの各元素が示す濃度のピークは実際、各鉱物の晶出開始位置によく一致している。

P₂O₅, F, YとCeは最初増加し、一旦減少するが、その後P₂O₅とFは減少の程度が弱くなり、YとCeは再び急激に増加する。P₂O₅は粗面玄武岩から減少を始めるがこれはリンカイトの晶出によるものと推定される。F, CeとYが減少を始める粗面安山岩では、ケルスート角閃石と黒雲母が斑晶として出現しはじめる。そして、Fの減少の程度が弱くなったり、CeとYが増加しはじめる粗面岩ではケルスート角閃石と黒雲母が消失し、斑晶は主にアルカリ長石となる。

SiO₂, Na₂O, K₂O, NbとZrは分化の最後まで残液に濃集し、同じようなパターンで増加を示す。

§ 7. 鬱陵島火山岩類における分別結晶作用の検討

前節に示した元素の挙動は、鬱陵島火山岩類が、アルカリカンラン石玄武岩マグマからの分別結晶作用により形成された一連の分化物であることを示唆している。すなわち、本源マグマから分化の早期にはカンラン石、単斜輝石、Ti-磁鉄鉱および斜長石が、中期にはリンカイト、ケルスート角閃石、黒雲母およびアルカリ長石、そして末期にはアルカリ長石の分別がなされ、これらの火山岩類が形成されたと推定される。

本節では鬱陵島火山岩類における分別結晶作用に関与した鉱物の組み合わせとその量比を、Wright and Doherty 法⁷⁾により検討する。計算に使用した鉱物の組成、算出された分別鉱物の組み合わせとその量比を第6表に示す。さらに、この結果と各鉱物-液間の分配係数を用いて、レーリー分別モデルに従って微量元素組成の変化についても検討した。第7表に計算に用いた分配係数を、第8表にモデル計算の結果と実際の含有量との比較表を示す。

鬱陵島のアルカリ玄武岩にはNiとCrの含有量が高いもの(No. 2, 4)と低いもの(No. 5)がある。前者(未分化アルカリ玄武岩と呼ぶ)のMg値(=100Mg/Mg+Fe⁺², Fe₂O₃/FeO =

第6表 Major element least square approximations relating various rock types from Ulreung island.

No.	Derivative wt. fract.	Fractionated mineral phases (wt. fraction)								R*
		Ol	Cpx	Mt	Pl	Ap	Kaer	Bi	K-f	
Alkali basalt (No.4) to alkali basalt (No.5)										
1.	0.7378	5.25	19.35	2.48	-	-	-	-	-	0.5976
Alkali basalt (No.5) to trachybasalt (No.8)										
2.	0.6006	7.37	4.80	2.45	23.86	-	-	-	-	2.2747
Trachybasalt (No.8) to trachyandesite (No.16)										
3.	0.7313	-	12.40	4.38	9.52	0.65	-	-	-	1.1209
Trachybasalt (No.8) to trachyandesite (No.22)										
4.	0.6948	0.43	11.76	5.68	11.29	1.06	-	-	-	1.4633
Trachyandesite (No.16) to trachyte (No.41)										
5.	0.7031	-	1.69	2.41	14.61	1.01	3.27	6.57	-	0.0034
Trachyte (No.41) to trachyte (No.28)										
6.	0.8155	-	1.16	0.59	0.50	0.17	-	-	15.56	0.0148
Trachyte (No.41) to phonolite (No.43)										
7.	0.6822	-	0.37	1.52	4.62	-	-	-	23.80	0.2200

R* = sum of squares of differences

mineral composition: olivine: Fo83 (1), Fo78 (2,3); clinopyroxene: Ca49Mg40Fe11 (1,2,3,4), Ca46Mg37Fe17 (5,6,7); plagioclase: An83 (2), An78 (3,4), An57 (5,6,7); alkali feldspar: Ca4Na44K52 (6,7); kaersutite: Mg.V66 (5); biotite: Mg.V56 (5); magnetite: Us51 (1,2,3,4), Us59 (5,6,7).

0.25)¹¹⁾は66-67で、後者(分化したアルカリ玄武岩と呼ぶ)は61である。Kesson¹¹⁾は上部マントルカンラン岩と平衡共存する本源玄武岩マグマのMg値は67-77としている。本島の未分化アルカリ玄武岩は本源マグマの組成に近く、マントルから地表に達するまでにあまり分別しなかったと推定される。この未分化アルカリ玄武岩から他の岩石を導く順序を第6表に示した。ピクライト質玄武岩(No.1)は斑晶量が多く(50%)、また変質が進み、H₂O量が高いので以下の計算には使用しなかった。

分化したアルカリ玄武岩(No.5)は未分化アルカリ玄武岩(No.4)からカンラン石、単斜輝石と磁鉄鉱を分別することにより形成され、これは、微斑晶としてみられる斜長石を除いた実際の斑晶鉱物組み合わせに一致する。分化したアルカリ玄武岩(No.5)から粗面玄武岩(No.8)を形成するにはカンラン石、単斜輝石、磁鉄鉱と斜長石を40%分別する必要がある。計算から得られた微量元素含有量は実際の組成と良い一致を示している。粗面玄武岩から粗面安山岩を形成するにあたっては以上の鉱物の他にリンカイ石の分別が必要である。粗面安山岩から粗面

第7表 Mineral-liquid distribution coefficient used in tests of the fractionation models.

	Plagioclase	Alkali feldspar	Olivine	Clino-pyroxene	Kaersutite	Biotite	Apatite	Magnetite
Sc	0.01	0.01	0.25	3.1- 5.0	6.0	8.3	0.22	3.0- 5.0
V	0.01	0.01	0.09	1.5- 1.7	32.0	50.0	0.01	10.0-25.0
Cr	0.04	0.01	1.0	5.0-10.0	6.0	5.4	0.01	5.0-10.0
Co	0.04	0.01	5.4	1.3- 2.0	3.8	23.0	0.01	8.0-10.0
Ni	0.04	0.01	10.0	2.0	3.0	1.3	0.01	8.0-12.0
Rb	0.03	0.45	0.0002	0.002	0.03	3.0	0.01	0.01
Cs	0.13	0.14	0.0043	0.00392	0.5	1.09	0.01	0.01
Sr	1.40-4.62	10.0	0.0002	0.078	0.58	0.5	2.0	0.01
Ba	0.15-1.47	6.0	0.0001	0.001	0.4	6.0	0.01	0.01
Ce	0.12	0.24	0.0008	0.04	1.98	0.3	16.6-35.0	0.03
Y	0.03	0.01	0.002	0.5	2.5	0.8	16.9-20.0	0.4
Nb	0.01	0.01	0.01	0.01	1.3	0.9	0.01	1.0- 2.5
Zr	0.01	0.27	0.01	0.1- 0.27	1.2	0.8	0.01	0.2- 0.8

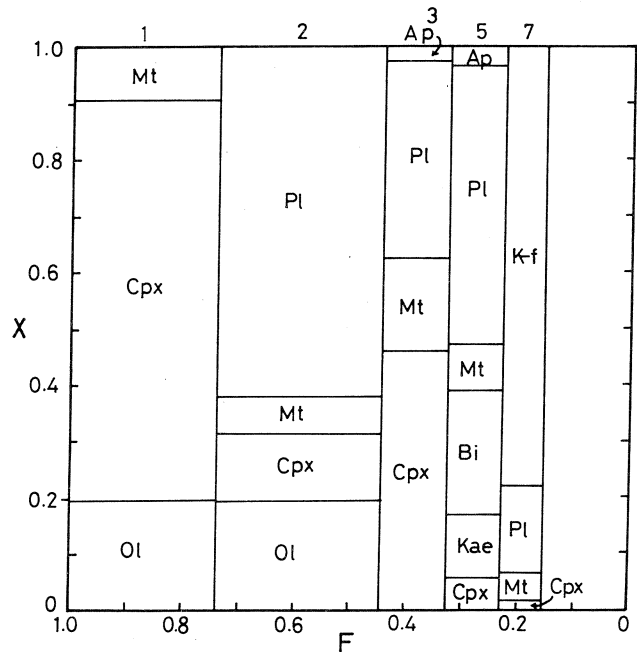
Sources of data are:

Allègre, Treuil and Minster, 1977, Contrib. Mineral. Petrol., 60, 67
 Baker, Goles, Leeman and Lindstrom, 1977, Contrib. Mineral. Petrol., 64, 324
 Baxter, Upton and White, 1985, Contrib. Mineral. Petrol., 89, 95
 Bornhorst, 1980, Ph. D. dissertation, Univ. of New Mexico, 389-406
 Cox, Bell and Pankhurst, 1979, George, Allen and Unwin, 334
 Gamble, 1984, Contrib. Mineral. Petrol., 88, 184
 Hart and Brooks, 1974, Geochim. Cosmochim. Acta, 38, 1801
 Kyle, 1981, J. Petrol., 22, 486
 Kyle, Adams and Rankin, 1979, Geol. Soc. Am. Bull., 90, 685
 Le Roex, 1985, Contrib. Mineral. Petrol., 89, 172
 Le Roex and Erlank, 1982, J. Volc. Geotherm. Res., 13, 328
 Sun and Hanson, 1976, Contrib. Mineral. Petrol., 54, 147
 Villemant and Jaffrezic, 1981, Geochim. Cosmochim. Acta, 45, 2000
 Zeilinski, 1975, Geochim. Cosmochim. Acta, 39, 728

第8表 Comparison of observed trace element abundance and those predicted on the basis of the major element modelling presented Table 7.

	Alkali basalt			Trachybasalt		Trachyandesite				Trachyte				Phonolite	
	parent		No. 1	No. 2		No. 3		No. 4		No. 5		No. 6		No. 7	
	obs.	calc.	obs.	calc.	obs.	calc.	obs.	calc.	obs.	calc.	obs.	calc.	obs.	calc.	obs.
Sc	36.3	22.7	33.1	33.1	29.8	15.3	15.5	14.9	17.1	4.3	3.7	4.1	2.6	4.8	5.4
V	219	161	218	142	150	45	57	30	66	0.2	14	14	15	13	24
Cr	231	86.4	73.7	19.6	23.5	4.5	9.7	4.1	13.3	4.5	10.2	10.2	9.8	11.7	8.3
Co	51.2	30.4	34.2	21.1	18.9	11.6	11.4	10.0	9.3	1.7	2.8	3.1	0.0	3.3	0.9
Ni	178	69.0	54.8	20.2	3.8	2.1	2.2	1.7	3.9	1.7	2.7	3.0	6.7	3.1	2.0
Rb	10.2	13.8	30.8	50.8	97.9	133	114	140	157	129	147	166	141	188	159
Cs	0.51	0.69	0.91	1.45	0.56	0.76	0.95	0.79	1.31	1.19	0.68	0.81	1.22	0.95	0.94
Sr	675	900	904	962	919	679	522	585	546	245	222	45.0	2.4	12.3	1.8
Ba	247	335	767	1230	1483	1723	835	1746	1380	448	375	88	96	83	184
Ce	82.8	111	114	182	129	152	144	116	122	148	148	169	180	200	179
Y	20.7	24.9	26.5	41.8	28.5	31.2	29.2	28.7	22.4	28.2	29.4	34.7	40.4	42.4	40.2
Nb	59.8	78.7	83.9	135	104	135	128	139	125	156	153	186	168	213	161
Zr	239	315	293	480	346	461	401	484	487	513	571	666	603	759	605

岩～フォノライトを形成する過程は2段階に分けられ、最初は単斜輝石、磁鉄鉱、斜長石、ケルスート角閃石、黒雲母とリンカイ石が分別し、その後、ケルスート角閃石と黒雲母が消失し、アルカリ長石が加わる。このうちアルカリ長石は分別相の約80%を占めるにいたる。このような鉱物の消長は微量成分元素の挙動もよく説明するものである。結局、未分化アルカリ玄武岩マグマの80%以上の分別結晶作用により最終分化物であるフォノライトが生成する。各段階での残液の量は粗面玄武岩が44%、粗面安山岩が32%、粗面岩が23%、そしてフォノライトが16%である(第11図)。



第11図 Summary of the solutions for five mass valance least square models for evolution of phonolite from alkali basalt. Plot shows weight fraction of fractionated mineral phases (X) plotted against the fraction of the residual liquid (F).

§ 8. さいごに

韓国、鬱陵島は第四紀に活動したピクライト質玄武岩、アルカリ玄武岩、粗面玄武岩、粗面安山岩、粗面岩そしてフォノライト等のアルカリ火山岩類から構成されている。噴出物の量は粗面岩が最も多く、玄武岩、粗面安山岩がそれに次ぐ。鬱陵島を構成する岩石はSiO₂が42～62%、全アルカリが3～14%のポタシク系列に属する典型的なアルカリ岩系列の火山岩である。その珪酸不飽和度はSiO₂の増加とともに次第に増加する傾向をもつ。噴出物の組成は、活動とともに次第に珪長質になり、粗面安山岩の噴出で活動が終わっている。

鬱陵島アルカリ火山岩類中の斑晶鉱物はカンラン石、単斜輝石、Ti-磁鉄鉱、ケルスート角閃石、黒雲母、斜長石、アルカリ長石そしてリンカイ石である。一連のアルカリ火山岩類が示す主成分ならびに微量成分元素組成の変化は、それらが、未分化のアルカリカンラン石玄武岩マグマから、その組成を変化させながら晶出する斑晶鉱物を分別することによって形成され

たものであることを示している。各種モデル計算に基づき、マグマの分化の早期にはカンラン石、単斜輝石、Ti-磁鉄鉱と斜長石が、中期にはリンカイ石、ケルスート角閃石と黒雲母が、そして末期には主にアルカリ長石の効果的な分別がなされたと結論される。

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ライナックマシングループの皆様、東北大学サイクロترونR I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(No.59420015)を使用した。これらの方々ならびに当局に深謝する。

参 考 文 献

- 1) M. Uchimizu: J. Fac. Sci. Univ. Tokyo, Sec. II **16** (1966) 85.
- 2) T. Tiba: J. Japan Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. **67** (1972) 357.
- 3) 金子信行, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 **16** (1983) 151.
- 4) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki: Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III, **15** (1981) 101.
- 5) G. A. Macdonald and T. Katsura: J. Petrol. **5** (1964) 82.
- 6) D. S. Coombs and J. F. G. Wilkinson: J. Petrol. **10** (1969) 440.
- 7) T. N. Wright and P. C. Doherty: Geol. Soc. Am. Bull. **81** (1970) 1995.
- 8) M. W. Lee: Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III, **16** (1983) 177.
- 9) A. P. Le Roex: J. Petrol. **26** (1985) 149.
- 10) D. A. Wood, J. Tarney and B. L. Weaver: Tectonophysics **75** (1981) 91.
- 11) S. E. Kesson: Contrib. Mineral. Petrol. **42** (1973) 93.

東伊豆単成火山群の地球化学的研究

理学部地学

宮島 宏・吉田武義・青木謙一郎

§ 1. はじめに

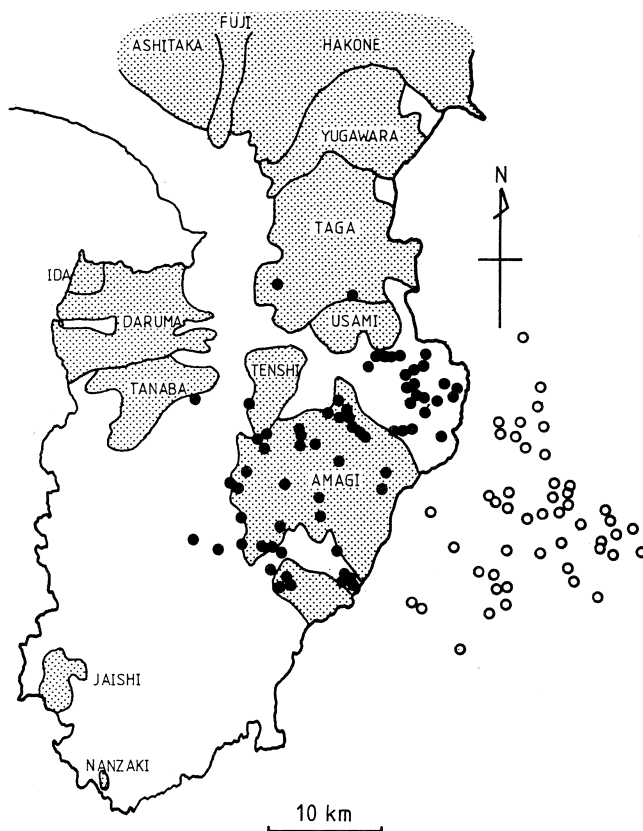
島弧における火山活動は、複数輪廻の噴火により火山体が形成される複成火山の形式を示すことが普通である。しかし、伊豆半島の東部の南北25km、東西20kmの広い地域にわたって分布する東伊豆単成火山群は、各々の火山体が一輪廻の活動によって形成された火山の集合であり、しかも、成層火山に伴う側火山ではない。このような形式の火山活動は独立単成火山群と呼ばれ、日本のようによく発達した島弧では稀な火山活動形式であり、東伊豆単成火山群の他には、山陰の阿武単成火山群など数例があるにすぎない。本火山群については、Tsuya^{1, 2)}以降多くの研究がなされているが、特に、本地域に分布する安山岩については玄武岩質マグマへの花崗岩質岩の混染作用により形成された^{3, 4)}とされている。

本報告では東伊豆単成火山群を構成する代表的岩石52個についての主成分分析結果、ならびに、そのうちの19個についての光量子放射化法による微量成分の分析結果を示した後、それら岩石の成因について検討を行う。

§ 2. 東伊豆単成火山群

伊豆半島における第四紀火山の分布を示したのが第1図である。この図には東伊豆単成火山群を構成する噴出中心の位置を東伊豆沖海底火山群^{5, 6)}の噴出中心の位置とともに示してある。後者の一部は前者の東方延長と考えられている。前者は総数75個に達し、その一部は、単成火山群の活動以前に活動した、天城火山、天子火山や宇佐美火山の噴出物の分布域に重複して分布している。その活動時期は約3万年前から約3000年前^{7, 8)}であり、これらは伊豆半島における最も新しい火山活動の産物である。

東伊豆単成火山群を構成する各噴出中心の名称を第2図に示す⁹⁾。その活動様式は噴出物の岩型により異なる。玄武岩は溶岩流およびスコリア丘を形成し、溶岩流のみからなるものも多い。噴出中心の64%は玄武岩からなるが、それらの火山体は他の岩型からなるものに比べて小型であり、その総量は全噴出物の15%にすぎない。安山岩質単成火山は溶岩流とスコリア丘から成り、明瞭な火山体をなすものが多い。その噴出中心の数は全体の27%にすぎないが、噴出

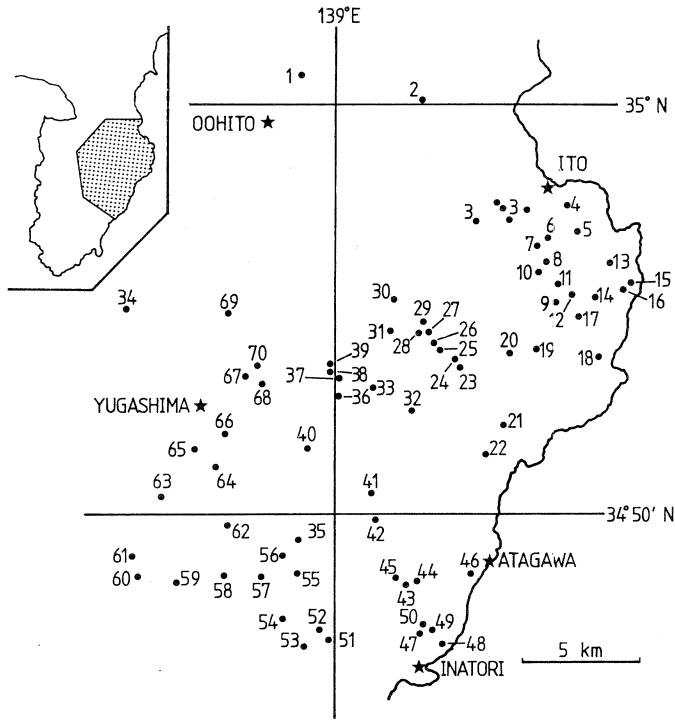


第1図 Index map showing the distribution of the Quaternary volcanoes in the Izu peninsula and the adjacent areas.

The shaded areas indicate the distribution of ejecta from the stratovolcanoes. Solid circles indicate the eruption centers of the Higashi-Izu monogenetic volcano group.

Open circles indicate the peaks of the submarine volcanoes⁵⁾.

量は全噴出物の73%を占める。デイサイト質単成火山の数は少なく、No.23, 24, 29(第2図)は溶岩円頂丘を、No.40は溶岩流、降下軽石と火砕流から成る。単成火山の岩質は時代とともに変化している。活動の前期には玄武岩と安山岩が活動し、後期になると玄武岩がなくなり、デイサイトの活動が加わる。



HIMVG-No. and name of the eruption centers

1 Takatsukayama	2 Sukumoyama	3 Hachigakubo
4 Uchino	5 Jouboshi	6 Akasaka minami
7 Kadono	8 Ikeda higashi	9 Arayama
10 Ogi	11 Ippekiko	12 Higashi ooike
13 Komuroyama	14 Chikubo	15 Kawana minami
16 Sannohara kita	17 Takamuroyama	18 Harai
19 Oomuroyama	20 Dainoyama	21 Iyuusan
22 Akakubo	23 Yahazuyama	24 Ananoyama
25 Ananokubo	26 Fujimikubo	27 Iwanokubo higashi
28 Iwanokubo nishi	29 Iwanoyama	30 Oohatano
31 Marunoyama	32 Tougasayama	33 Sugehiki
34 Funabara	35 Sekiguchigawa joryuu	36 Jizoudou 1
37 Jizoudou 2	38 Jizoudou 3	39 Jizoudou 4
40 Kawagodaira	41 Shiranutanoike	42 Amagi hi-land higashi
43 Sekiguchi 1	44 Sekiguchi 2	45 Sekiguchi 3
46 Yugaoka	47 Inatori 1	48 Inatori 2
49 Inatori 3	50 Inatori 4	51 Ooike
52 Koike	53 Ooike minami	54 Hachiyama
55 Hachiyama higashioku	56 Kannonyama higashi	57 Oodaira
58 Noborio minami	59 Numanokawa 1	60 Numanokawa 2
61 Numanokawa 3	62 Hacchou rindou	63 Hontanigawa shiryuu
64 Maruyama	65 Hachikuboyama	66 Yoichizaka
67 Nagano	68 Houkibara higashi	69 Kitanohara higashi
70 Nagano higashi		

第2図 Index map showing the locations and the names of eruption centers in the Higashi-Izu monogenetic volcano group.

Numerals give the number of each eruption center.

§ 3. 分析試料の岩石学的特徴

東伊豆単成火山群を構成する岩石のうち、玄武岩と安山岩の一部は高アルミナ玄武岩系列¹⁰⁾に属し、大部分の安山岩とデイサイトはカルクアルカリ系列に属する。各単成火山を構成する

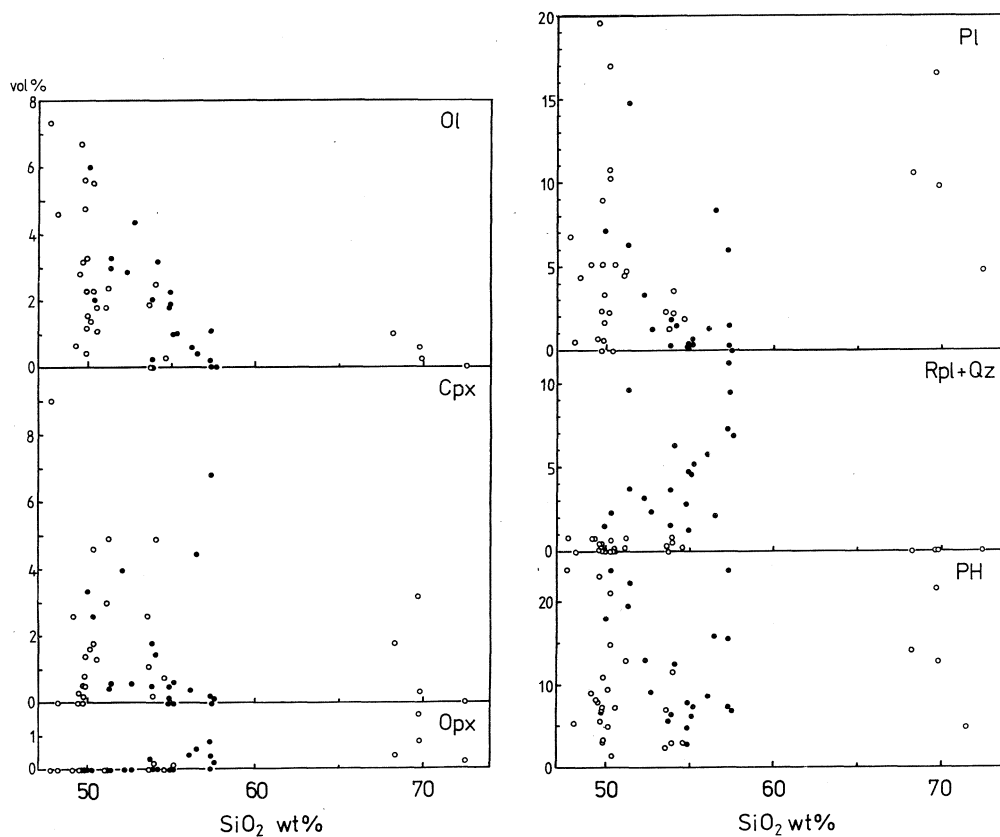
第1表 Phenocryst assemblages and modal compositions (vol. %) of the rocks from the Higashi-Izu monogenetic volcano group.

HIMVG-No.	Name of eruption center	OL	CPX	OPX	HO	PL	RPL	QZ	OPQ	PH	GM (%)
1	Takatsukayama	1.6				1.7			tr	3.3	96.7
2	Sukumoyama	4.6				0.5			tr	5.1	94.9
4	Uchino	1.8				tr			tr	1.8	98.2
5	Jouboshi	3.3				0.3			tr	3.6	96.4
6	Akasaka minami	2.5	4.9	0.2		3.6	0.6		tr	11.8	88.2
7a	Kadono	0.3	0.8			1.9	0.1		0.1	3.2	96.8
7b	Kadono	tr	0.2			2.2	0.7	0.1	tr	3.2	96.8
7c	Kadono		0.3			2.2	0.3	0.3		3.1	96.9
13a	Komuroyama	0.2	0.2	0.8		1.5	10.7	0.5	1.8	15.7	84.3
13b	Komuroyama	0.6	0.4	0.4		1.3	4.7	1.1	tr	8.5	91.5
13c	Komuroyama			tr		0.3	3.1	4.1		7.5	92.5
13d	Komuroyama	2.0	0.5	tr		0.2	2.1	1.6	tr	6.4	93.6
14	Jikubo	2.3	0.5			0.4	1.8	2.9	tr	7.9	92.1
15	Kawana minami	tr	1.1			1.3			tr	2.4	97.6
16	Sannohara kita	1.0		0.1		0.3	4.5	0.1	0.2	6.2	93.8
18	Harai	1.9	2.6			2.3	0.3		tr	7.1	92.9
19a	Oomuroyama	1.0	0.6			0.7	3.8	1.3	0.1	7.5	92.5
19b	Oomuroyama	1.8	0.1			0.2	2.2	0.6	tr	4.9	95.1
19c	Oomuroyama	1.9				0.1	0.7	0.5	tr	3.2	96.8
20	Dainoyama	tr	0.1	0.2			6.5	0.4	tr	7.2	92.8
21	Iyusan	1.1	6.8	0.4		6.0	8.7	0.8	0.1	23.9	76.1
22	Akakubo	0.4	4.4	0.6		8.4	2.2		tr	16.0	84.0
23	Yahazuyama	1.0	1.8	0.4	0.2	10.6			0.1	14.1	85.9
24	Ananoyama	0.6	3.2	0.8	0.2	16.5			0.4	21.7	78.3
25	Ananokubo	0.2	1.8	0.3		1.8	0.1	1.5	tr	5.7	94.3
28	Iwanokubo nishi	tr	0.2	0.2		1.3	0.7	5.1	0.2	7.7	92.3
29	Iwanoyama	0.2	0.3	1.7	0.3	9.7			0.4	12.6	87.4
31	Marunoyama	6.7	tr			0.7	0.5	tr	tr	7.9	92.1
32a	Tougasayama	4.4	0.6			1.2	2.4	tr	0.5	9.1	90.9
33	Sugehiki	3.2	1.5			1.5	6.3		tr	12.5	87.5
34	Funabara	5.6	0.2				tr		tr	5.8	94.2
36	Jizoudou 1	4.8	tr			2.4	0.3		tr	7.5	92.5
40b	Kawagodaira			0.2	0.1	4.7			tr	5.0	95.0
42	Amagi Hi-land higashi	0.6	2.6			5.2	0.9		tr	9.3	90.7
43	Sekiguchi 1	2.9	4.0			3.3	3.2		tr	13.4	86.6
46	Yugaoka	1.4	1.6			2.3			tr	5.3	94.7
48	Inatori 2	1.1	1.3			5.2	0.1		tr	7.7	92.3
53	Ooike minami	3.2	0.5			19.7	0.1		tr	23.5	76.5
54	Hachiyama	1.2	0.5			8.9	0.3		tr	10.9	89.1
57	Oodaira	0.4	1.4			5.3	0.5		tr	7.6	92.4
58a	Noborio minami	2.1	2.6			17.0	2.3		tr	24.0	76.0
59	Numanokawa 1	7.3	9.0			6.8	0.8	tr	tr	23.9	76.1
60	Numanokawa 2	2.8	0.3			4.3	0.8		tr	8.2	91.8
61	Numanokawa 3	2.3	0.8			3.4			0.4	6.9	93.1
62	Hacchourindou	2.3	1.8			10.8			tr	14.9	85.1
63	Hontanigawa shiryuu	5.5	4.6			10.3	0.7		tr	21.1	78.9
64	Maruyama	6.0	3.3			7.1	1.6		tr	18.0	82.0
65	Hachikuboyama	3.3	0.4			6.3	9.4	0.3	tr	19.7	80.3
66	Yoichizaka	3.0	0.6			14.8	3.7	tr	tr	22.1	77.9
67	Nagano	2.4	4.8			4.9	0.8		0.1	13.0	87.0
70	Nagano higashi	1.8	3.0			4.6	0.2		tr	9.6	90.4

OL:olivine, CPX:augite, OPX:hypersthene, PL:plagioclase, RPL:resorbed plagioclase, QZ:quartz, OPQ:opaque minerals, PH:phenocrysts, GM:groundmass.

噴出物の斑晶組み合わせとモード組成を第1表に示す。これらは斑晶に乏しく、普通は10%以下、最も多いものでも25%以下である。これはこれらの岩石が、一般に著しく斑状である那須、あるいは鳥海帯を構成する火山岩と最も異なる点の一つである。全岩組成の変化に伴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%をとった第3図を作成した。花崗岩起源の捕獲結晶と考えられている^{3,4)} 融食された Na に富む斜長石 (resorbed plagioclase) と融食された石英 (corroded quartz) の量は、 SiO_2 の増加と共に増加する傾向が認められる。カンラン石の量は SiO_2 の増加と共に急激に減少するが、その傾向は捕獲結晶に乏しい岩石グループでより顕著である。

玄武岩の斑晶組み合わせには、a. カンラン石+斜長石、b. カンラン石+普通輝石+斜長石の2種類がある。aは北部に、bは南部に主に見られる。カンラン石斑晶は一般に細粒のクロ



第3図 Modal abundances of phenocryst plotted on SiO_2 variation diagram.

Open circles indicate the rocks contain xenocrysts less than 1 vol.%.
Solid circles indicate the rocks contain xenocrysts more than 1 vol.%.

ムスピネル結晶を多く含む。融食された石英やNaに富む斜長石などを多く含むものが稀にある(No.65)が、一般には1%以下である。安山岩の斑晶組み合わせには、a. カンラン石+斜長石、b. カンラン石+斜長石+普通輝石、c. カンラン石+斜長石+普通輝石+シソ輝石の3種ある。カンラン石斑晶中に含まれるクロムスピネルの量は玄武岩に比べて少なくなる。安山岩中に含まれる捕獲結晶の量は、稀にはほとんど含まないもの(No.6, 7, 15, 18)もあるが、一般には多く、ときに、モードで10%を超えるもの(No.13a)もある(第3図)。溶岩流および降下軽石を構成するデイサイトの斑晶組み合わせは、斜長石+シソ輝石+普通角閃石+磁鉄鉱+イルメナイトであり、溶岩円頂丘を構成するものでは、斜長石+シソ輝石+普通角閃石+磁鉄鉱+イルメナイト+カンラン石+普通輝石である。後者を構成する斜長石およびシソ輝石斑晶の組成頻度分布はバイモーダルになっており¹¹⁾、それぞれ、CaあるいはMgに富む斑晶を有する。そして、カンラン石斑晶中にもわずかにクロムスピネル微晶がみられる。

微量元素の分析を行った試料のうちNo.59, 31, 36, 57と48は石基にシソ輝石を含まず、それ以外の試料には石基シソ輝石がみられる。

§ 4. 分析方法と分析結果

東伊豆単成火山群を構成する岩石のうち、代表的試料52個について、今回新たに、主成分元素の湿式分析¹²⁾を行い、さらに、そのうち19個について光量子放射化法¹³⁾による微量元素組成の定量を行った。主成分のうち、デイサイト中のMgOとCaOについては原子吸光法を用いた。光量子放射化法により分析を行った微量元素はNi, Cr, Co, Sc, Sr, Zr, Nb, Zn, Rb, Ce, CsとYの12元素である。放射化にあたっては、東北大学核理研の電子ライナックを利用して、30 MeVの加速電子を用いた。主成分組成の分析結果は第2表に、微量元素組成の分析結果は第3表に示した。

§ 5. 東伊豆単成火山群噴出物の主成分ならびに微量成分組成

東伊豆単成火山群を構成する岩石のSiO₂量は48%から73%の広い範囲に及び、一方、59%から68%の範囲の岩石を欠き、バイモーダルな性格をもつ(第4図)。玄武岩から安山岩にかけて、各酸化物量はSiO₂の増加とともに直線的に変化している。そして、デイサイトの組成は、この直線の延長上に位置している。これらの岩石はSiO₂-(Na₂O+K₂O)図¹⁴⁾上でソレイト領域と高アルミナ玄武岩領域の境界部から高アルミナ玄武岩領域の下部にかけて点示される(第5図)。

第2表 Chemical compositions (wt.%) of the rocks from the Higashi-Izu monogenetic volcanic group.

HIMVG-No.	1	4	5	6	7a	7b	13a	13b	13c	13d	13e	14	15
SiO ₂	49.87	50.44	49.36	53.99	54.59	53.93	57.32	56.01	57.36	53.80	58.28	54.85	53.65
TiO ₂	1.13	1.14	1.06	0.91	1.06	1.04	0.81	0.89	0.89	0.91	0.76	0.97	1.05
Al ₂ O ₃	18.69	18.47	18.19	17.50	17.67	18.14	16.48	15.95	15.87	16.45	15.73	16.89	17.98
Fe ₂ O ₃	2.90	2.99	3.08	3.27	2.91	3.61	3.46	3.55	3.98	3.49	4.21	3.76	5.03
FeO	6.81	6.43	6.58	5.23	5.84	4.90	4.12	5.54	4.37	6.17	3.85	4.73	3.97
MnO	0.18	0.18	0.18	0.15	0.15	0.15	0.14	0.16	0.14	0.16	0.14	0.16	0.15
MgO	5.90	6.50	7.27	5.40	4.08	4.67	4.08	4.79	3.78	5.60	3.79	5.57	4.11
CaO	10.04	9.61	10.15	9.66	8.69	9.33	7.74	7.76	7.70	8.86	7.35	8.49	9.09
Na ₂ O	2.58	2.55	2.34	2.65	3.00	2.65	2.92	3.04	3.04	2.74	2.99	2.79	3.19
K ₂ O	0.57	0.36	0.31	0.64	0.78	0.67	1.04	0.86	0.99	0.60	0.97	0.78	0.84
H ₂ O+	0.51	0.57	0.64	0.76	0.44	0.48	0.89	0.56	0.62	0.59	0.96	0.34	0.45
H ₂ O-	0.12	0.40	0.25	0.33	0.12	0.26	0.37	0.20	0.18	0.18	0.40	0.10	0.06
P ₂ O ₅	0.19	0.19	0.19	0.17	0.16	0.15	0.15	0.19	0.16	0.19	0.15	0.17	0.22
Total	99.49	99.83	100.10	100.66	99.49	100.03	99.52	99.50	99.08	99.74	99.58	99.60	99.79

HIMVG-No.	16	18	19a	19b	19c	20	21	22	23	24	25	29	31
SiO ₂	55.02	53.57	55.18	54.80	54.86	57.50	57.34	56.52	68.24	69.75	53.79	69.88	49.53
TiO ₂	0.87	1.00	0.96	0.93	1.00	0.91	0.76	0.77	0.34	0.35	0.98	0.39	0.97
Al ₂ O ₃	17.38	17.35	16.65	16.73	16.82	17.77	16.91	17.73	15.47	14.97	17.24	14.57	17.80
Fe ₂ O ₃	3.46	3.51	2.35	3.07	2.35	2.85	2.15	2.55	1.61	1.40	3.93	2.04	2.64
FeO	4.69	5.68	5.86	5.70	6.14	3.39	5.32	5.39	2.23	1.81	4.73	1.20	7.16
MnO	0.15	0.15	0.15	0.15	0.16	0.16	0.14	0.14	0.09	0.08	0.16	0.08	0.22
MgO	5.45	5.56	5.47	5.54	5.36	3.80	4.48	3.90	1.66	1.41	5.22	1.01	7.20
CaO	8.37	9.48	8.16	8.63	8.41	7.94	8.18	8.23	3.97	3.58	9.48	3.38	9.99
Na ₂ O	2.83	2.81	3.17	3.03	3.10	3.62	3.07	3.09	3.69	3.76	2.74	3.69	2.66
K ₂ O	0.76	0.58	0.85	0.73	0.75	1.22	0.84	0.82	1.79	2.03	0.56	2.02	0.54
H ₂ O+	0.38	0.48	0.19	0.57	0.52	0.36	0.23	0.21	0.69	0.59	0.60	0.45	0.78
H ₂ O-	0.10	0.15	0.07	0.04	0.10	0.08	0.08	0.13	0.08	0.00	0.20	0.18	0.19
P ₂ O ₅	0.13	0.18	0.21	0.22	0.19	0.22	0.20	0.18	0.10	0.10	0.19	0.09	0.18
Total	99.64	100.50	99.27	100.14	99.76	99.82	99.70	99.66	99.96	99.83	99.82	98.98	99.86

HIMVG-No.

Locality

1	Oohito scoria quarry on the southern foot of Mt.Takatsukayama
4	road cutting on south of the Kuzumi shrine
5	road cutting of route-135 on west of Sakasagawa
6	cliff on south of transformer substation in southwest of Akasaka
7a	cliff on south of the Matsubara filtration plant
7b	quarry on southeast of Nagase
13a	cliff along route-135 on southeast of the Ito commercial school
13b	road cutting on north of Kawana station
13c	sea cliff near the Cape Kawanazaki
13d	road cutting on Tairane
13d	road cutting in front of the Kawana Hotel
14	sea cliff on south of Sannohara
15	cape on southeast of the Kawana golf course
16	cape on northeast of Sannohara
18	quarry on north of Harai
19a	sea cliff on south of Yahatano
19b	peak of Mt.Oomuroyama
19c	quarry on north of Jounodaira
20	cliff on the southwestern foot of Mt.Dainoyama
21	sea cliff on east of Yahatano
22	cliff near south of the Cape Nakanomisaki Tunnel of route-135
23	northern peak of 816m peak of Mt.Yahazuyama
24	cliff on the northwestern foot of Mt.Ananoyama
25	road cutting along the Tougasayama toll road on 550m elevation
29	cliff on the southern foot of Mt.Iwanoyama
31	cliff on the right bank of Sugehikigawa River near Sugehiki

HIMVG-No.	32a	32b	33	36	40a	40b	40c	42	43	45	46	48	53
SiO ₂	52.70	53.32	54.02	49.70	71.79	72.55	72.48	49.08	52.27	51.16	50.04	50.54	49.67
TiO ₂	0.89	1.09	0.98	0.92	0.21	0.31	0.36	1.00	0.87	0.97	1.06	0.84	1.19
Al ₂ O ₃	16.73	17.40	16.74	18.29	14.97	14.51	13.90	17.34	18.70	18.42	17.46	17.00	20.22
Fe ₂ O ₃	3.93	3.05	3.31	2.43	1.41	1.01	0.95	3.70	1.17	0.74	2.62	5.57	1.60
FeO	4.78	5.37	5.08	7.52	1.14	1.20	1.33	5.93	6.11	7.64	7.17	4.82	5.74
MnO	0.15	0.15	0.15	0.18	0.08	0.07	0.08	0.18	0.18	0.17	0.19	0.19	0.22
MgO	6.49	6.09	6.35	6.82	0.85	0.71	0.74	7.10	5.92	6.14	6.72	5.99	6.18
CaO	3.63	8.68	8.57	10.17	2.62	2.41	2.33	12.46	9.31	10.98	10.93	10.66	11.40
Na ₂ O	2.87	2.93	2.90	2.45	3.92	3.93	3.99	2.21	2.83	2.58	2.43	2.84	2.94
K ₂ O	0.69	0.70	0.75	0.52	2.21	2.24	2.23	0.27	0.72	0.48	0.37	0.47	0.30
H ₂ O+	0.77	0.79	0.63	0.30	0.80	0.87	1.17	0.24	0.86	0.44	0.67	0.36	0.32
H ₂ O-	0.54	0.46	0.43	0.13	0.06	0.00	0.00	0.16	0.33	0.22	0.21	0.13	0.16
P ₂ O ₅	0.18	0.17	0.18	0.22	0.04	0.09	0.09	0.17	0.16	0.23	0.16	0.20	0.16
Total	99.35	100.20	100.09	99.65	100.14	99.90	99.65	99.84	99.43	100.17	100.03	99.61	100.10

HIMVG-No.	57	58a	58b	59	60	61	62	63	64	65	66	67	70
SiO ₂	49.80	50.27	49.91	47.75	49.41	49.87	50.24	50.25	49.97	51.30	51.39	51.19	51.09
TiO ₂	0.99	1.18	1.06	1.15	1.07	1.08	0.96	1.11	1.00	0.98	0.87	0.88	0.88
Al ₂ O ₃	18.50	19.15	19.35	17.99	17.87	18.47	17.45	17.94	17.98	19.20	18.65	18.65	18.52
Fe ₂ O ₃	4.92	1.26	2.56	1.19	3.49	3.94	3.15	2.56	3.59	1.13	2.54	1.69	2.67
FeO	4.37	6.30	5.33	7.13	6.24	5.74	6.03	6.69	5.77	6.43	6.18	6.54	5.46
MnO	0.16	0.17	0.13	0.17	0.18	0.17	0.17	0.16	0.15	0.23	0.15	0.15	0.16
MgO	5.79	5.99	6.47	9.10	7.79	7.15	6.97	7.54	7.45	6.62	5.85	6.32	6.99
CaO	9.64	11.28	11.17	11.73	10.23	10.42	10.81	10.77	9.54	10.03	10.19	10.62	10.31
Na ₂ O	2.85	3.03	3.08	2.98	2.45	2.60	2.87	2.65	2.91	2.75	3.07	2.92	2.84
K ₂ O	0.46	0.33	0.32	0.36	0.24	0.27	0.38	0.31	0.45	0.44	0.43	0.62	0.58
H ₂ O+	0.76	0.44	0.49	0.31	0.26	0.26	0.20	0.42	0.25	0.38	0.60	0.27	0.49
H ₂ O-	0.88	0.12	0.18	0.11	0.11	0.10	0.16	0.01	0.03	0.11	0.14	0.13	0.28
P ₂ O ₅	0.19	0.16	0.21	0.23	0.15	0.15	0.20	0.16	0.21	0.19	0.23	0.19	0.16
Total	99.31	99.68	100.26	100.20	99.49	100.22	99.59	100.57	99.30	99.79	100.29	100.16	100.43

32a	road cutting near south of the peak of Mt.Tougasayama
32b	road cutting along the Tougasayama toll road on 1005m elevation
33	cliff along the Sugehiki woodland path on 780m elevation
36	cliff on the Banjounotaki Falls of Jizoudougawa River
40a	Amagi pumice quarry on north of Kawagodaira
40b	road cutting along the Ikadaba woodland path on 790m elevation
40c	road cutting along the Ikadaba woodland path on 790m elevation
42	cliff along the Katase-Oozuku woodland path on 375m elevation
43	cliff on the right bank of Shiratagawa River near power plant
45	cliff on 200m west of the power plant
46	cliff of 800m west of Akagawa
48	sea cliff on the Cape Kuronezaki
53	cliff on the left bank of Kawazugawa River near Kawazuikadaba
57	road cutting along Izumi-Okuhara woodland path on 565m elevation
58a	cliff on the Kawazu Oodaru Falls near Nashimoto
58b	road cutting along the Noborio woodland path on 550m elevation
59	cliff on the left bank of Oginoirigawa River near Numanokawa
60	cliff on the water falls of feeder of Oginoirigawa River
61	rolling stone of Oginoirigawa River on 430m elevation
62	cliff along the Hacchou woodland path on 710m elevation
63	bed of Namezawa River on 465m elevation
64	cliff of the left bank of Iwaogawa River on 530m elevation
65	road cutting on the western foot of Mt.Hachikuboyama
66	cliff on 300m north of Yoichizaka
67	cliff on 500m west of Nagano
70	road cutting along the Kokusange woodland path on 405m elevation

第3表 Trace element compositions (ppm) of the rocks from the Higashi-Izu monogenetic volcanic group.

Loc. No.	TH-GROUP							CA-GROUP							DACITES				
	59	31	36	57	48	15	7a	65	43	32a	33	19a	22	21	13a	23	29	40a	40c
SiO ₂ wt%	47.75	49.53	49.70	49.80	50.54	53.65	54.59	51.30	52.27	52.70	54.02	55.18	56.52	57.34	57.32	68.24	69.88	71.79	72.48
FeO*/MgO	0.90	1.32	1.42	1.52	1.64	2.06	2.07	1.12	1.21	1.28	1.27	1.46	1.97	1.62	1.77	2.22	3.00	2.83	2.95
Ni (ppm)	143	92.1	80.5	38.9	53.1	22.4	14.9	68.7	74.1	96.1	111	71	24.8	40	25.4	5.4	4.9	15.4	1.6
Cr	267	181	141	77.1	83.2	9.7	16.7	124	152	194	209	123	32.0	92.6	72.6	12.6	8.3	20.3	4.1
Co	47.0	42.1	39.0	32.1	36.4	26.4	26.2	35.4	33.6	36.5	33.7	27.4	26.0	23.9	22.3	10.1	5.8	3.5	3.7
Sc	25.0	31.2	22.3	27.5	33.7	21.4	16.5	25.5	24.9	19.1	22.1	24.4	23.2	17.6	20.4	10.8	5.1	6.4	8.5
Sr	600	396	428	376	380		419	363	360	330	358	399	320	366	330	256	253	234	226
Zr	60.5	57.6	54.7	66.2	62.6	61.9	68.7	84.8	63.7	85.2	90.3	83.3	76.4	70.2	85.9	109	115	119	128
Nb	1.8	2.4	5.4	1.9		2.8	1.7	1.8	2.2	4.7	4.5	3.0	1.6	2.2	3.0	3.6	4.3	5.1	4.4
Zn	78	75	50	76	55	71	81	103	84	76	71	67	44	89	51	39	37	18	46
Rb		11.5	8.4	5.6		9.9	11.1	7.4	18.7	8.7	10.1	13.6	10.4	13.5	19.9	45.4	47.4	49.7	57.0
Cs		0.35	0.10	0.28	0.91	0.09		0.04	0.67	0.15	0.60			0.30	1.12	1.92	1.99	2.51	2.60
Ce	11.2			13.2	10.8	17.8	13.1	13.4	14.5	16.2	15.9	16.3	15.5	15.7	16.6	22.7	24.0	25.1	27.0
Y	17.7	16.7	18.4	17.3	17.7	15.5	18.6	21.2	19.8	21.1	21.2	20.3	20.0	19.3	18.8	17.0	16.7	17.4	17.1

TH-GROUP

59	Numanokawa 1	olivine-augite basalt
31	Marunoyama	quartz-augite bearing basalt
36	Jizoudou 1	augite bearing olivine basalt
57	Oodaira	olivine bearing augite basalt
48	Inatori 2	olivine-augite basalt
15	Kawana minami	olivine bearing augite andesite
7a	Kadono	olivine-augite bearing andesite

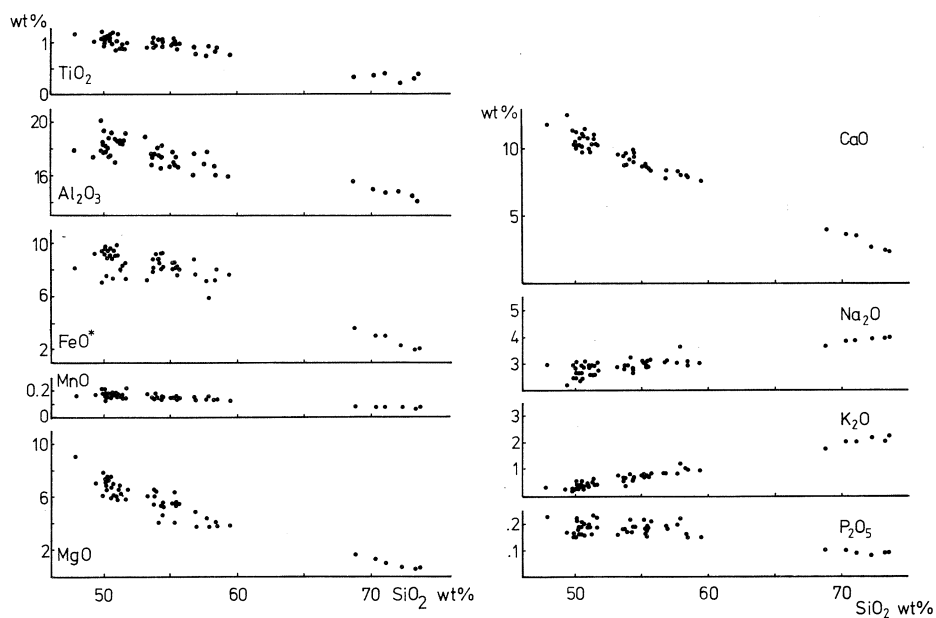
CA-GROUP

65	Hachikuboyama	quartz-augite bearing olivine basalt
43	Sekiguchi 1	olivine-augite andesite
32a	Tougasayama	quartz-augite bearing olivine andesite
33	Sugehiki	augite-olivine andesite
19a	Oomuroyama	augite-bearing olivine-quartz andesite
22	Akakubo	olivine-hypersthene bearing augite andesite
21	Iyuusan	hypersthene-quartz bearing olivine-augite andesite
13a	Komuroyama	olivine-augite-quartz-hypersthene bearing andesite

DACITES

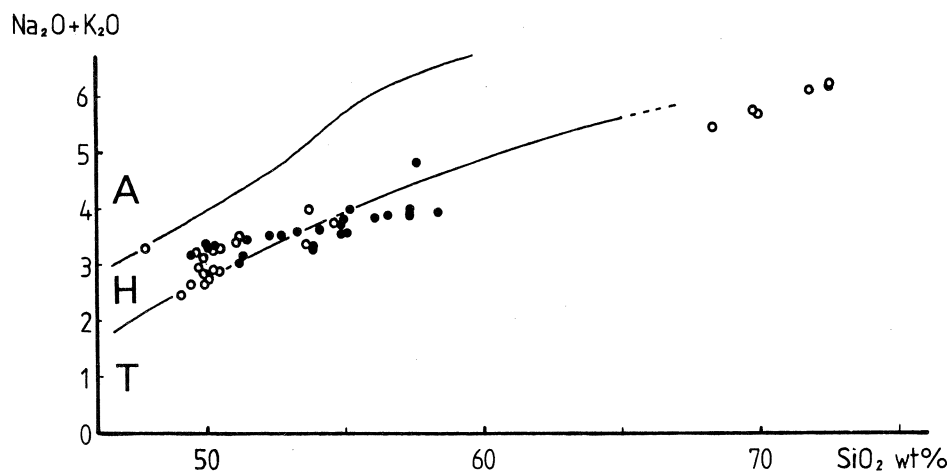
23	Yahazuyama	hornblende-hypersthene bearing olivine-augite dacite
29	Iwanoyama	olivine-augite-hornblende bearing hypersthene dacite
40a	Kawagodaira	hornblende-hypersthene bearing dacite
40c	Kawagodaira	hornblende-hypersthene bearing dacite

非アルカリ岩は、一般に、分化に伴って鉄が濃集するタイプ（ソレイト系列）とそうでないタイプ（カルクアルカリ系列）に区分されるが、第6図はその区分に用いられる図の一つである¹⁵⁾。東伊豆単成火山群を構成する岩石にはしばしば捕獲結晶が認められるが、その有無や多少と鉄の濃集の程度との間には密接な関係が認められる。すなわち、捕獲結晶をモードで1%未満しか含まない玄武岩と安山岩は TH 領域に点示され、一方、デイサイトと捕獲結晶をモードで1%以上含む玄武岩と安山岩は CA 領域に点示される（第6図）。後者の70%は捕獲結晶をモードで3%以上含有している。すなわち、東伊豆単成火山群を構成する岩石のうち捕獲結晶に乏しい岩石では SiO₂ の増加に伴い FeO*/MgO 比が急増し、一方、捕獲結晶に富む岩石では SiO₂ の増加に伴う FeO*/MgO 比の変化が小さい。以下では、前者を TH グループ、後者を CA グループと呼ぶことにする。



第4图 SiO_2 variation diagrams for major elements.

FeO^* indicates total iron as FeO .



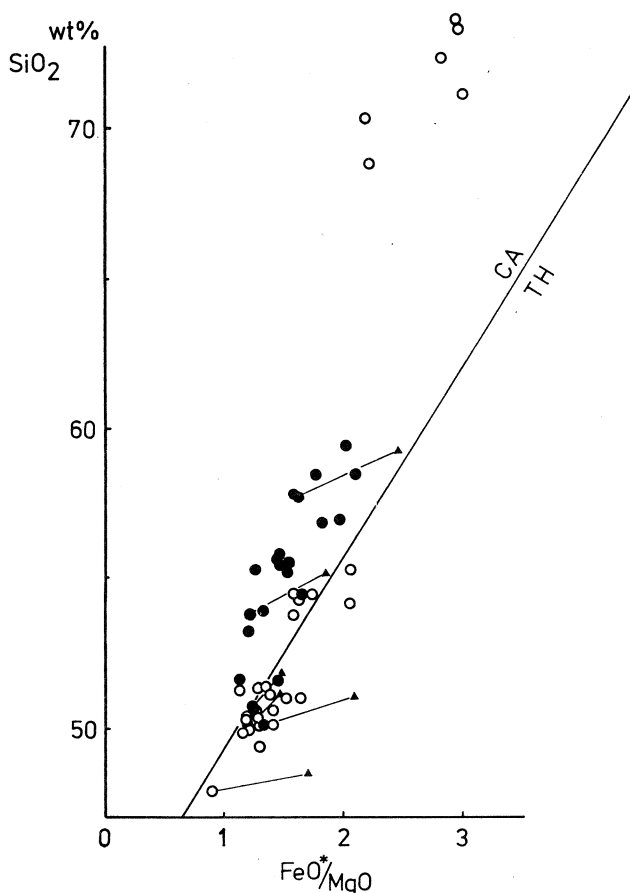
第5图 Total alkali- SiO_2 diagram for the rocks from the Higashi-Izu monogenetic volcano group.

Two curved lines indicate the boundaries¹⁴⁾ between alkali rock series (A), high alumina basalt series (H) and tholeiitic rock series (T). Symbols are the same as those in Fig. 3.

微量元素の分析を行った岩石のうちわけは TH グループが 7 試料, CA グループが 8 試料, そしてデイサイトが 4 試料である。第 3 表に示した微量元素の分析結果をもとにハーカー図を作成した(第 7 図)。TH グループの岩石における Ni と Cr の含有量は SiO_2 の増加とともに急激に減少する。CA グループでの Ni と Cr は TH グループのトレンドの上位に点示され, SiO_2 の増加とともに減少してゆくが, その濃度の変化幅は広く, 明瞭なトレンドを形成するものではない。Co の含有量でも両グループ間にわずかな差が認められるが, Sc と Sr については明瞭な差異を認めがたい。両グループ間での組成差は, 一部の主成分元素においても認められる(第 8 図)。

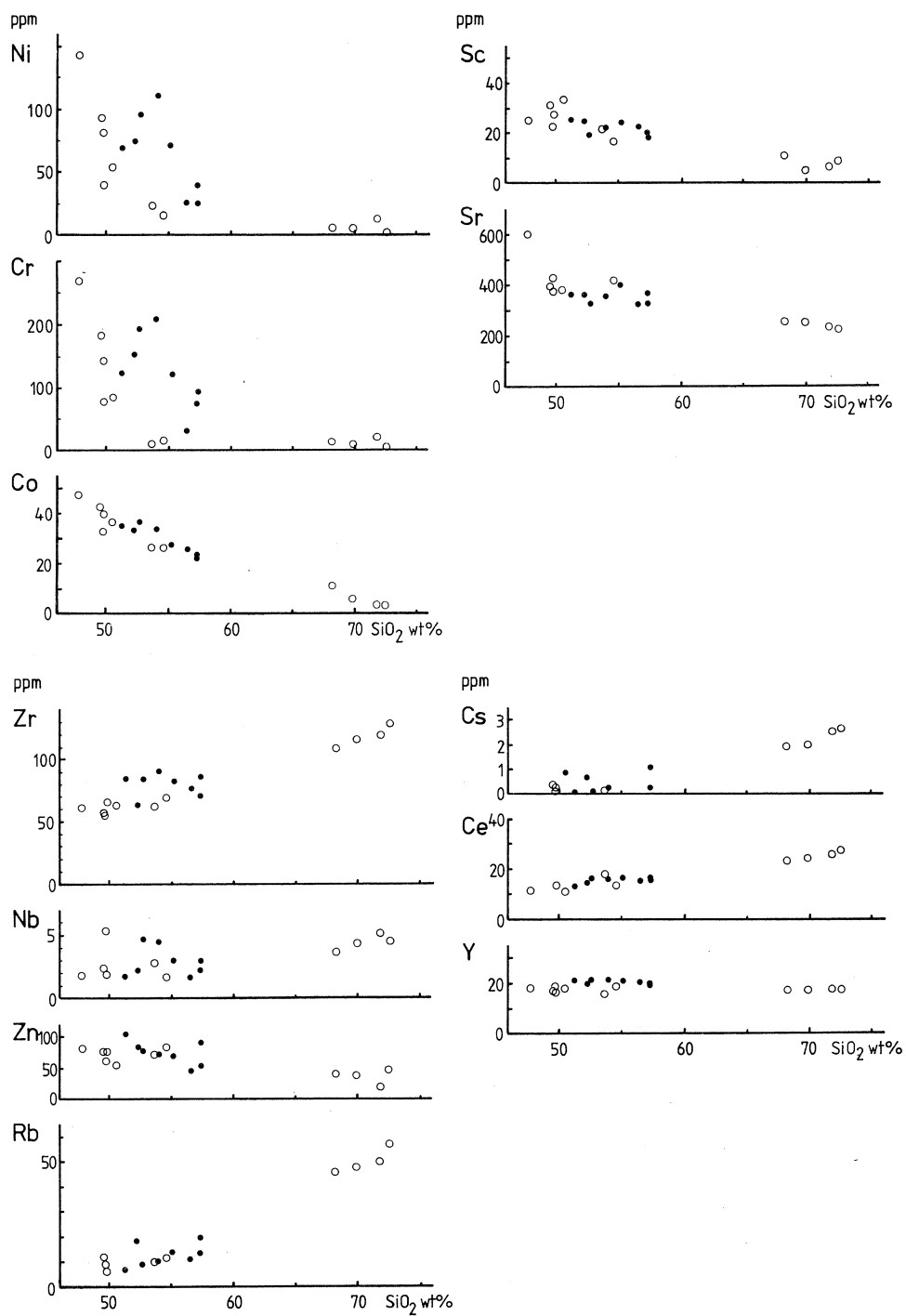
デイサイトにおけるこれらのコンパティブル元素含有量は玄武岩から安山岩が作るトレンドのほぼ延長上に点示される。カンラン石と普通輝石を含むデイサイトは, No.40a の Ni と Cr を除くと, それらを含まないデイサイトに比べて, 以上のコンパティブル元素に富んでいる。

Zr 含有量は SiO_2 の増加に伴って増加し, また, TH グループに比べ, CA グループで多い傾向が認められるが, Nb にはそのような明瞭な傾向は見られない。LIL 元素のうち, Rb,



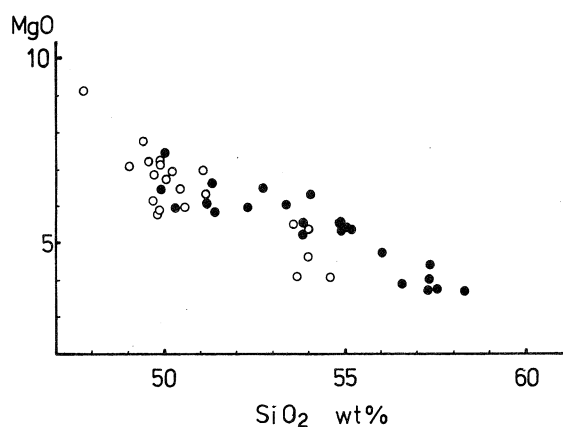
第 6 図 Whole-rock and groundmass compositions plotted on SiO_2 - FeO^*/MgO diagram.

CA and TH indicate the regions of calc-alkaline rocks and tholeiites¹⁵⁾. Solid triangles indicate the compositions of groundmass. They are connected with each whole-rock composition by solid lines. Other symbols are the same as those in Fig. 3. Open and solid circles indicate TH- and CA-group, respectively.



第7图 SiO_2 variation diagrams of trace elements.

Symbols are the same as those in Fig. 3.



第8図 SiO₂-MgO diagram for the rocks of basaltic and andesitic composition from the Higashi-Izu monogenetic volcano group.

Symbols are same as those in Fig. 3.

§ 6. 東伊豆単成火山群噴出物における斑晶-石基の組成関係

第6図に EPMA で分析した斑晶の化学組成とモード組成から計算した代表的な岩石の石基組成を示す。TH グループが示す全岩-石基組成タイラインは TH グループの全岩組成変化経路とほぼ一致している。そして、TH グループにおける主成分組成ならびに微量元素組成の変化は、それらにおける斑晶鉱物組み合わせならびにそのモードの変化と調和的である。たとえば、SiO₂ の増加に伴う Ni の急激な減少はこれらの岩石におけるカンラン石のモード変化と密接な相関がある。TH グループにおけるカンラン石の組成は岩石の SiO₂ が47% (No.59) から51% (No.48) になるに従い、Fo が86-84から85-77へと変化している。その中に含まれるクロムスピネル $Cr/(Cr+Al+Fe^{3+})=0.26$, $Al/(Cr+Al+Fe^{3+})=0.62$ が 0.37, 0.42 とそれぞれ SiO₂ の増加とともに系統的に変化している。石基の組成は斑晶鉱物が最大分別した際の分化物の組成とみることができるが、以上の TH グループの岩石に見られる現象は、このグループの示す全岩組成変化経路が主に斑晶鉱物の分別結晶作用によるものであることを強く示唆している。Ni と Cr にみられる変化から判断して、カンラン石とクロムスピネルの分別が大きく寄与したと推定される。

一方、CA グループの岩石における石基組成は CA グループの全岩組成が作るトレンドと大きく斜交している。このことは CA グループの岩石が示す全岩組成変化経路が少なくとも現在

Cs と Ce は SiO₂ の増加とともに増加するが、Y はほぼ一定の値を示す。そして、TH グループと CA グループの間には、これらの元素の含有量やトレンドに明瞭な差は認められない。デイサイト中のこれらの含有量は玄武岩から安山岩が作るトレンドの延長上に点示される。

見られる斑晶鉱物の分別のみにより形成されたものではないことを強く示唆している。

CA グループはその全岩組成変化経路と多量の捕獲結晶をもつことでTH グループと区別された。従って、本グループが示す組成変化経路の特色は多量の捕獲結晶の存在と関係している可能性が高い。

§ 7. 東伊豆単成火山群噴出物中に見られる捕獲結晶について

ここで捕獲結晶としたのは Na に富む融食された斜長石と、融食された石英である。これらを含む岩石には Mg に富むカンラン石 ($Fo = 86 - 78$) や Ca に富む斜長石 ($An = 90 - 80$) 斑晶が共存し、融食された石英の周囲には普通輝石の反応縁が、Na に富んだ斜長石の周囲には Ca に富んだ斜長石の overgrowth ができている。Mg に富むカンラン石と石英、あるいは Ca に富む斜長石と Na に富む斜長石は、明らかにマグマ中で平衡共存しえない鉱物の組み合わせ¹⁶⁾であり、融食を受けている結晶はそれを含有しているマグマとは異質のものであると思われる。特に、石英結晶は東伊豆単成火山群を構成するどの岩石中にも斑晶としては認められないものである。

融食された斜長石は一般には単一の結晶であることが多いが、中には結晶学的方位の異なる 2～3 個の結晶が集合したのも認められる。その場合、Ca に富んだ斜長石はこの捕獲結晶集合体と石基とが接する周縁部にリムを形成しているが、捕獲斜長石相互の粒間にそのような部分は認められない。また、試料 No. 13d には融食された石英と斜長石からなる集合体がみられる。この石英と石基との間には普通輝石の反応縁が、斜長石と石基との間には Ca に富んだ斜長石の overgrowth が認められる。そして、融食された石英と斜長石との間には少量の褐色ガラスが存在している。これらの観察事実は現在融食されている石英や斜長石がもともとは単独の結晶、すなわち斑晶として存在していたのではなく、鉱物の集合体すなわち岩石片であったことを示唆している。東伊豆単成火山群を構成する岩石中には以上のような捕獲結晶の他に部分融解を示す花崗岩質岩が発見されている³⁾。そのような花崗岩質岩についていくつかの化学分析がなされているが、その組成は東伊豆単成火山群を構成するデイサイトに類似している^{9, 17)}。現在、伊豆半島において花崗岩質岩の露出している所はないが、爆破地震を用いた研究^{18, 19)}によれば東伊豆単成火山群が分布する地域の地下 1～2 km には広く花崗岩質岩層が分布することが示されている。以上のことから判断して東伊豆単成火山群噴出物中に見られる捕獲結晶は、丹沢山地をはじめとする南部フォッサマグナ地域に広く分布しているようなカリ長石に乏しい花崗岩質岩、例えば、トータル岩や花崗閃緑岩等に由来していると推定される。

§ 8. CAグループの岩石が示す全岩組成変化経路について

CAグループの全岩組成変化経路は、先に述べたように、現在見られる斑晶鉱物の分別のみでは説明しえない。おそらく、そのなかに多量に見られる捕獲結晶の存在がCAグループの化学的特徴と密接に関連していると考えられる。しかしながら、CAグループの岩石の全岩組成から、その中に含有されている捕獲結晶を差し引いてもTHグループの岩石の全岩組成にはならない。この事はCAグループの示す組成変化がTHグループを形成した苦鉄質マグマと捕獲結晶の単なる機械的な混合の結果ではない事を意味している。

また、ハーカー図においてCAグループの岩石中のNiとCrが示す変化経路はかなり変動しながらもTHグループ同様に指数関数的に減少しており、CAグループを形成したマグマ中におけるカンラン石やクロムスピネル斑晶の移動分別あるいは晶出分化作用の存在を暗示している。ここで、重要なことはCAグループの岩石中に産する斑晶鉱物の組成やその量(第3図)が全岩組成の変化とともに系統的に変化している事である。例えば、カンラン石斑晶の組成は、岩石の組成が $\text{SiO}_2 = 52.70\%$ (No.32a)から 57.34% (No.21)に変化するに伴い、 $\text{Fo} = 85-79$ から $\text{Fo} = 81-78$ と変化している。そのカンラン石斑晶中に包有されるクロムスピネルの量は、その岩石の SiO_2 が増加するにつれて減少し、その組成はAlに富むものからCrに富むものに、さらにはFeに富むものへと系統的に変化している。従って、CAグループの岩石を形成したマグマ中で晶出分化作用が働いたことはまちがいない。

これまでの研究^{3,4)}では、東伊豆単成火山群を構成する岩石のうち安山岩類は酸性火成岩に由来する石英やNaに富む斜長石を多く含むことから、玄武岩質マグマが花崗岩質岩石を混染することにより形成されたとされてきた。先に述べてきた事実から、そのような花崗岩質岩を同化したマグマはある特定の苦鉄質マグマではなく、玄武岩質から安山岩質に至る広い組成範囲を持ち、独自の晶出分化作用をしていたマグマである事が分かる。このマグマがTHグループを形成したマグマとどのような関係にあるかは現在の所はっきりしない。Ni, CrやMgOに見られる両グループの変化経路の差は一連の組成変化を示しているTHグループに属するマグマと花崗岩質岩石の混合により説明することが可能である。しかしながら、THグループに属する岩石が石基シソ輝石を含まず、一方、CAグループを構成する岩石ではシソ輝石が石基にみられることや、両者の間にZr, Csや、そしておそらくY含有量にわずかではあるが差が認められることは両者を形成したマグマそのものにも多少差があったことを示しているのかもしれない。

§ 9. 2種類のデイサイトについて

東伊豆単成火山群を構成するデイサイトに2種類あることは先に述べた通りである。このうち、斑晶にカンラン石と普通輝石を持つデイサイトは斜長石とシソ輝石の斑晶核部の組成頻度分布がバイモーダルになっている¹¹⁾。また、低いmg値を持つシソ輝石斑晶には逆累帯構造がみられる。カンラン石斑晶の組成はFo=79-73であり、玄武岩中のものと比べてより鉄に富んだ組成を持っている。Caに乏しい斜長石(An=40-50)、低いmg値を持つシソ輝石(mg値=68)および普通角閃石(mg値=65-71)斑晶核部の組成は、カンラン石と普通輝石を含まないデイサイト中の各斑晶の組成とよく一致している。このような斑晶鉱物の組み合わせと主成分化学組成の特徴ならびに、NiとCr含有量から判断して、カンラン石を含むデイサイトはカンラン石を含まないデイサイト質マグマに少量の安山岩質マグマが混入した結果生成したと考えることが可能である。

§ 10. さいごに

東伊豆単成火山群は、玄武岩、安山岩と石英安山岩からなる総数75個の噴出中心を持つ。これらの岩石にはSiO₂の増加に伴いFeO*/MgOが著しく増加するグループと、そうでないグループとがある。前者(THグループ)は玄武岩質マグマの晶出分化作用により生じたと考えられ、一方、後者(CAグループ)は晶出分化作用を伴った、玄武岩～安山岩質マグマへの花崗岩質岩の混染作用により生じたと考えることができる。また、東伊豆単成火山群を構成するデイサイトには2種類あり、このうちカンラン石を含むデイサイトは、カンラン石を含まないデイサイト質マグマと安山岩質マグマの混合により生成したと考えることが可能である。

本研究にあたり、東北大学核理研の八木益男助教授、榊本和義博士ならびにライナックマシニンググループの皆様、東北大学サイクロトロンRIセンターの藤田稔教授、山寺亮博士他の皆様には微量元素の分析にあたり種々の御便宜を図っていただいた。また、著者の一人(H.M.)は、主成分元素の分析にあたって、東北大学教養部の蟹沢聡史教授、石川賢一博士の御指導をいただいた。以上の方々に深謝する。なお、本研究の一部に文部省科学研究費(No.59420015)を使用した。

参 考 文 献

- 1) H. Tsuya: Bull. Earthq. Res. Inst. **8** (1930) 409.
- 2) H. Tsuya: Bull. Earthq. Res. Inst. **15** (1937) 215.
- 3) H. Kuno: J. Fac. Sci. Univ. Tokyo Sec. 2, **9** (1954) 241.
- 4) 倉沢 一: 地球科学 **44** (1959) 1.
- 5) 葉室和親, 荒牧重雄, 加賀美英雄, 藤岡換太郎: 地震研彙報 **55** (1980) 259.
- 6) 葉室和親, 荒牧重雄, 藤岡換太郎, 石井輝秋, 田中武男, 宇都浩三: 地震研彙報 **58** (1983) 527.
- 7) 戸谷 洋, 町田 洋, 菊地隆男: 地理評 **39** (1966) 362.
- 8) 葉室和親: 地質雑 **84** (1978) 433.
- 9) 荒牧重雄, 葉室和親: 地震研彙報 **52** (1977) 235.
- 10) H. Kuno: J. Petrol. **1** (1960) 121.
- 11) 宮島 宏: 岩鉱 **78** (1983) 150.
- 12) T. Tiba: J. Geol. Soc. Japan **76** (1970) 441.
- 13) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki: Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **15** (1981) 101.
- 14) H. Kuno: Bull. Volcanol. **29** (1966) 195.
- 15) A. Miyashiro: Am. J. Sci. **274** (1974) 321.
- 16) M. Sakuyama: J. Petrol. **22** (1981) 553.
- 17) M. Hirano, K. Hamuro and N. Onuma: Geochem. J. **16** (1983) 311.
- 18) 爆被地震動研究グループ: 地震研彙報 **56** (1981) 485.
- 19) S. Asano, T. Yoshii, S. Kubota, Y. Sakai, H. Okada, S. Suzuki, T. Masuda, H. Murakami, N. Nishide and H. Inatani: J. Phys. Earth **30** (1982) 367.

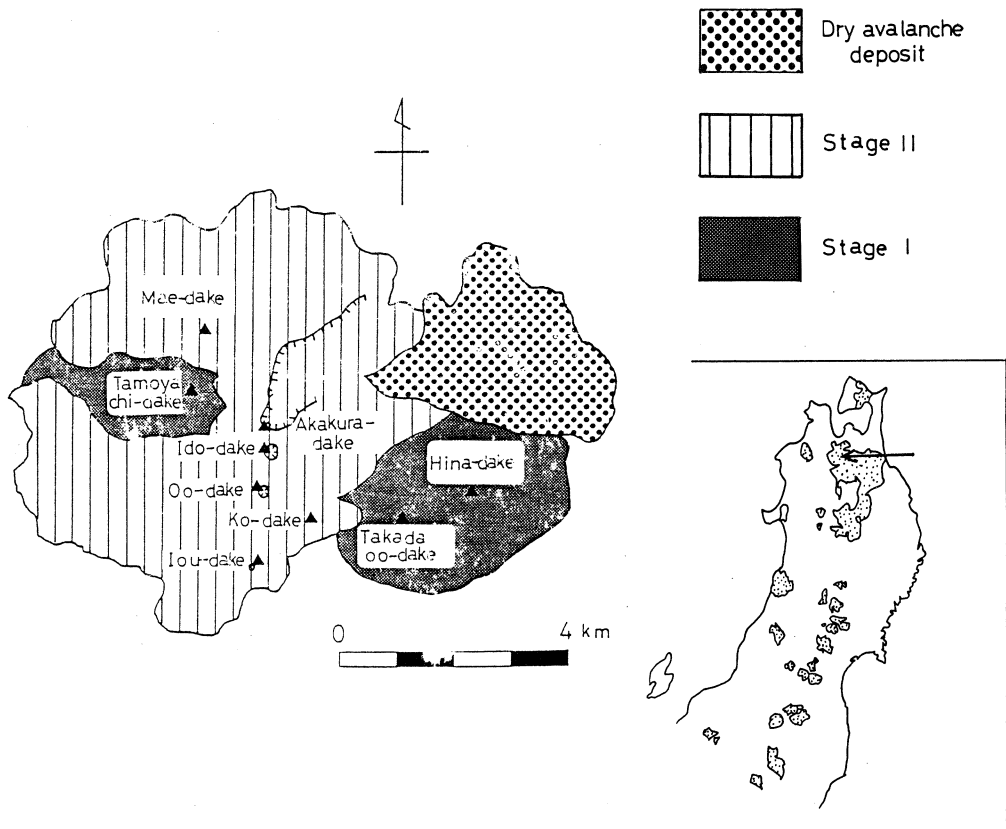
那須北帯，北八甲田火山群の地球化学的研究

理学部地学

佐々木寧仁・吉田武義・青木謙一郎

§ 1. 緒言

北八甲田火山群は，東北日本弧の火山フロント沿いに位置する（第1図）。本火山群においても，火山フロント沿いの他の多くの火山と同様，ソレアイト，カルクアルカリ両系列の岩石が共存する。本論では，これら北八甲田火山群噴出物を構成するソレアイト，カルクアルカリ両系列岩についての，光量子放射化法等により得られた主要成分元素および微量成分元素組成を示し，その組成変化経路について考察する。



第1図 Generalized geological map of the Kita-Hakkoda volcanic group.

§ 2. 北八甲田火山群

北八甲田火山群は青森市南方約30km, 北緯40°39', 東経140°18'に位置する。本火山群は, 八甲田カルデラ(カルデラ形成に関与した八甲田溶結凝灰岩のフィッシュントラック年代は $2.0 - 2.1 \times 10^6 \text{ a}^{1)}$ である)形成後にできた後カルデラ火口丘群であるが, 大岳等では火山微地形が残されており, 両者の活動の間に長期間の時間間隙があったと考えられる。本火山群には, 明瞭な東西列と南北列が認められる。

本火山群の形成史は2期に分けられる。第1期には, 東西列に属する高田大岳, 雛岳, 火山列を構成しない田茂菴岳が形成された。高田大岳は低アルカリソレライトマグマの噴出により, また, 田茂菴岳は, カルクアルカリマグマの噴出により火山体が形成された。第2期には, 東西列に属する小岳, 南北列に属する赤倉岳, 井戸岳, 大岳, 硫黄岳, 火山列を構成しない前嶽, および駒込川溶岩類, 荒川溶岩類が形成された。駒込川溶岩類, 前嶽は, サブオーディナイトソレライト, その他はカルクアルカリ岩系に属する溶岩の噴出により形成された。第2期の末期に形成された火山体には溶岩堤防等火山微地形が残されている。

§ 3. 岩石記載

北八甲田火山群を構成する岩石は, 玄武岩から石英安山岩に及び, 岩石系列はピジョン輝石質岩系²⁾(P-series)とシソ輝石質岩系²⁾(H-series)が認められる(第1表)。これは, 岩石記載上の分類であり, ここでは, 顕微鏡下で石基に斜方輝石が確認されず, 斑晶斜方輝石にピジョン輝石反応縁を有するものをピジョン輝石質岩系, 石基に斜方輝石が確認され, かつ斑晶斜方輝石が反応縁を持たないものをシソ輝石質岩系とした。

玄武岩類の大部分は, 高田大岳に見られ, カンラン石玄武岩とカンラン石含有普通輝石シソ輝石玄武岩である。また, 一部, 前嶽に普通輝石含有カンラン石玄武岩が見られる。ともにピジョン輝石質岩系に属する。玄武岩質安山岩類は, 前嶽に見られ, シソ輝石カンラン石普通輝石安山岩であり, ピジョン輝石質岩系に属する。安山岩類は以上の山体と赤倉岳最後の活動である碎屑岩類を除く大部分で見られる。岩石は, カンラン石含有シソ輝石普通輝石安山岩であり, まれに, シソ輝石普通輝石安山岩が認められる。また時に石英を含む場合がある。駒込川溶岩類がピジョン輝石質岩系であるのを除くと, 他の安山岩質溶岩類はすべてシソ輝石質岩系に属する。石英安山岩類は, 赤倉岳最後の活動である碎屑岩類の本質岩片として見られ, 石英含有カンラン石シソ輝石石英安山岩であり, シソ輝石質岩系に属する。

第1表 Phenocryst assemblages and modal compositions of the rocks from the Kita-Hakkoda volcanic group.

Name	No.	R. S		O1	Hy	Au	Mt	Pl	Qz	Gm
Oo-dake	-	H	CA-2	0.1	2.7	2.3	0.6	18.2	-	75.9
Oo-dake	2-5	H	CA-2	0.1	1.0	1.2	0.3	19.6	-	77.9
Akakura-dake	-	H	CA-2	-	2.9	4.5	0.8	23.6	tr.	68.2
Akakura-dake	2-9	H	CA-2	-	2.4	2.9	0.9	32.7	0.2	60.9
Akakura-dake	-	H	CA-2	0.3	2.5	2.7	0.7	25.0	0.1	68.7
Akakura-dake	2-2	H	CA-1	1.0	1.8	4.6	0.9	18.4	0.1	73.4
Ido-dake	2-7	H	CA-2	0.5	3.1	3.8	1.2	26.1	0.1	65.3
Ko-dake	2-4	H	CA-1	0.6	3.1	5.4	1.3	23.2	-	66.6
Ko-dake	2-3	H	CA-1	0.5	6.4	3.8	2.0	26.1	-	61.2
Mae-dake	2-1	P	S.TH	2.7	2.1	4.1	0.2	20.1	-	70.9
Komagome lava	2-8	P	S.TH	-	2.6	6.1	0.7	25.3	0.1	65.3
Tamoyachi-dake	1-5	H	CA-2	0.2	4.3	3.5	0.3	24.3	-	67.2
Takadaoo-dake	1-4	P	TH	0.7	5.5	3.2	tr.	33.1	-	57.4
Takadaoo-dake	1-3	P	TH	0.5	6.3	1.5	tr.	30.6	-	61.0
Takadaoo-dake	1-2	P	TH	5	-	-	-	22.9	-	71.2
Takadaoo-dake	1-1	P	TH	10.	-	-	tr.	20.5	-	69.4

R.S.: rock series, P: pigeonitic rock series, H: hypersthenic rock series,
 O1: olivine, Hy: hypersthene, Au: augite, Mt: magnetite, Pl: plagioclase,
 Qz: quartz, Gm: groundmass.
 Calc-alkaline rocks (CA)
 CA-1: Low Plagioclase/Pyroxene Phenocryst Type
 CA-2: High Plagioclase/Pyroxene Phenocryst Type
 Subordinate tholeiite (S.TH)
 Tholeiitic series (TH)
 tr.: trace, - : absent.

§ 4. 分析方法と分析結果

北八甲田火山群からの代表的試料10個について蛍光X線分析法により主要成分元素の定量を行った。ただし、FeO、H₂O⁺、H₂O⁻は重量法で、Na₂Oは炎光光度法を用いた。また、これらの試料について光量子放射化法³⁾により、Ba、Ce、Co、Cr、Cs、Nb、Ni、Rb、Sc、Sr、Y、Zn、Zrの13元素を定量した。10試料のうちわけは、第1期から5個、第2期から5個である。分析結果を既存のデータ⁴⁾とともに第2表に示した。北八甲田火山群噴出物の組成変化図を第2、3および4図に示す。

§ 5. 北八甲田火山群噴出物の地球化学的特徴

北八甲田火山群噴出物はSiO₂-K₂O図上で明瞭に区別できる2本のトレンドを描く。1つはSiO₂=55%以下で見られるK₂Oに乏しく、勾配が緩いトレンドであり、もう1つはSiO₂=55%以上で見られるより勾配の大きいトレンドである。これらはそれぞれ low-K andesite

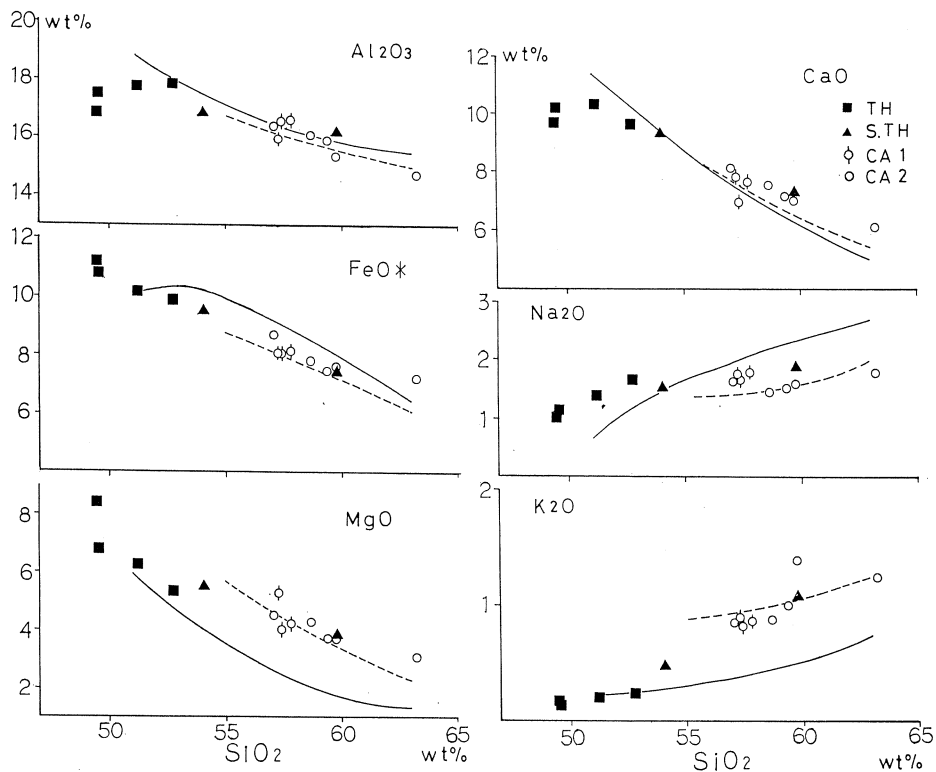
第2表 Chemical compositions of the rocks from the Kita-Hakkoda volcanic group.

	1-1	1-2	1-3	1-4	1-5	2-1	2-2	2-3	2-4	2-5	2-6	2-7	2-8	2-9
	TH	TH	TH	TH	CA-2	S.TH	CA-1	CA-1	CA-1	CA-2	CA-2	CA-2	S.TH	CA-2
wt. %														
SiO ₂	49.51	49.54	51.21	52.76	57.08	54.07	57.29	57.42	57.82	58.67	59.39	59.76	59.78	63.22
TiO ₂	0.85	0.88	0.88	0.95	0.82	0.83	0.78	0.79	0.80	0.97	1.00	0.93	0.71	0.87
Al ₂ O ₃	16.81	17.48	17.75	17.83	16.37	16.81	15.94	16.52	16.59	16.06	15.86	15.33	16.16	14.71
Fe ₂ O ₃	2.51	4.79	3.39	2.60	3.25	2.09	2.61	3.45	4.61	2.61	2.60	2.59	2.51	2.73
FeO	8.93	6.49	7.12	7.54	5.75	7.62	5.71	4.94	3.98	5.44	5.10	5.29	5.20	4.75
MnO	0.19	0.19	0.18	0.18	0.16	0.17	0.15	0.15	0.15	0.09	0.11	0.11	0.14	0.09
MgO	8.38	6.77	6.24	5.31	4.49	5.47	5.25	4.01	4.22	4.26	3.71	3.69	3.83	3.06
CaO	9.69	10.18	10.30	9.60	8.11	9.31	7.78	6.95	7.63	7.53	7.14	7.01	7.27	6.11
Na ₂ O	2.02	2.13	2.39	2.66	2.64	2.52	2.75	2.65	2.78	2.44	2.52	2.58	2.87	2.77
K ₂ O	0.16	0.13	0.20	0.24	0.85	0.47	0.89	0.81	0.85	0.87	0.99	1.38	1.07	1.23
H ₂ O ⁺	0.48	0.65	0.17	0.14	0.25	0.31	0.51	1.27	0.28	0.48	0.86	0.89	0.29	0.51
H ₂ O ⁻	0.40	0.70	0.07	0.07	0.17	0.25	0.27	0.96	0.21	0.65	0.36	0.50	0.08	0.41
P ₂ O ₅	0.07	0.07	0.09	0.10	0.07	0.08	0.07	0.07	0.08	0.14	0.11	0.09	0.08	0.12
Total	100.00	100.00	99.99	99.98	100.01	100.00	100.00	99.99	100.00	100.21	99.75	100.15	99.99	100.58
ppm														
Sc	23.6	23.5	28.1	25.0	25.0	20.5	23.2	20.9	21.0	20.0	16.4	20.2	19.4	19.9
Cr	156	101	75.6	75.8	59.4	76.5	109	39.6	44.1	57.7	36.8	40.0	58.4	33.2
Co	48.5	40.8	37.4	33.9	26.8	31.7	29.0	25.7	26.2	28.5	24.1	25.2	23.0	20.1
Ni	94.8	45.6	44.1	34.1	25.4	31.2	53.3	22.6	24.8	38.0	25.7	23.5	19.3	16.6
Zn	55	60	85	91	81	81	79	77	75	72	80	84	55	45
Rb	3.1	1.0	3.5	3.9	23.9	11.6	25.0	19.1	20.7	25.6	33.5	30.3	27.5	40.8
Cs	0.37	0.33	0.06	0.21	0.87	0.47	2.32	1.42	1.10	0.62	2.70	2.40	0.85	3.23
Sr	291	268	318	319	278	259	270	265	277	262	250	250	227	232
Ba	234	107	141	102	-	-	111	164	156	280	177	-	162	324
La	-	-	-	-	-	-	-	-	-	7.0	6.7	6.7	-	6.6
Ce	6.0	4.6	6.7	7.2	10.6	9.4	13.0	12.7	13.5	14.6	16.3	16.2	16.1	19.0
Ce*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	16.8	21.5	23.8	-	22.1
Sm*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	3.08	3.8	3.5	-	3.6
Eu*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.80	-	-	-	1.58
Tb*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.77	-	-	-	-
Yb*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2.7	3.5	-	-	3.0
Lu*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.37	0.46	0.34	-	0.39
Y	15.9	15.9	16.8	18.8	25.1	22.1	25.6	24.1	26.1	27.0	28.6	29.0	28.9	31.8
Nb	0.9	1.4	2.4	1.5	1.9	2.2	1.8	2.3	1.6	2.0	2.6	2.0	2.4	2.4
Hf*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2.2	-	-	-	-
Zr	30.3	31.5	37.8	45.5	83.9	56.5	87.4	95.8	87.1	100	116	113	90.2	132
U*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.86	0.98	0.94	-	1.3
Th*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2.6	3.9	3.5	-	3.3

* NAA method⁴⁾.

及びその延長上の玄武岩と medium-K andesite⁵⁾ およびその延長上の石英安山岩に相当している。そしてこれらのトレンドは、AFM図等(第3図)から前者はソレアイト系列に、後者はカルクアルカリ系列に相当していることがわかる。なお試料No. 2-1, 2-8は岩石記載上はPシリーズであるが組成変化経路がカルクアルカリ系列に属するサブオーディネイトソレアイト⁶⁾である。このうちNo. 2-8の組成はカルクアルカリ系列のものと区別できないが、No. 2-1はソレアイト系列とカルクアルカリ系列との中間的な組成を示している。

これら北八甲田火山群噴出物の主成分組成を組成変化図上で那須北帯平均トレンド⁶⁾と比較した(第2図)。ソレアイト系列におけるAl₂O₃とCaOは平均トレンドでは単調に減少するが、北八甲田ではSiO₂=51%付近にピークを持ち、一度増加した後減少する。那須北帯ソレ

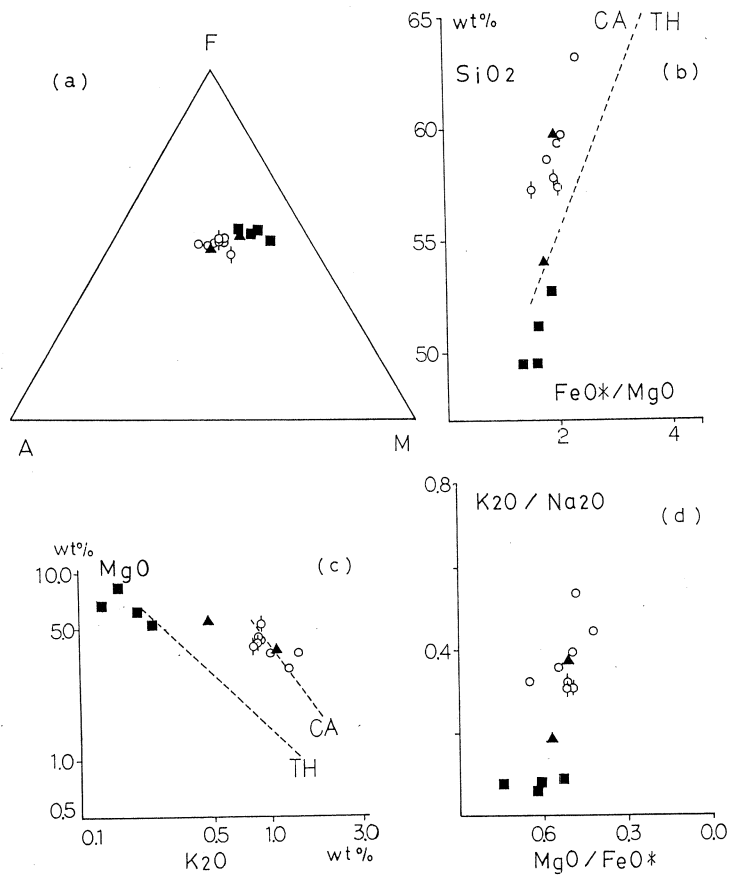


第2図 Silica (wt.%) v.s. major elements (wt.%) variation diagrams for the rocks from the Kita-Hakkoda volcanic group.

Solid and broken lines indicate the average variation trends of the tholeiite series and the calc-alkaline rock series in the northern subzone of the Nasu volcanic zone⁶⁾, respectively.

アイトにおいて全鉄は $\text{SiO}_2 = 53\%$ 付近にピークを持つが、北八甲田ソレアイトでは直線的に減少する。北八甲田ソレアイトは那須北帯ソレアイトよりも Na_2O が高い。北八甲田カルクアルカリ系列の Na_2O のトレンドは平均トレンドの勾配よりも小さく、一方、 K_2O のトレンドは平均トレンドよりも急である。

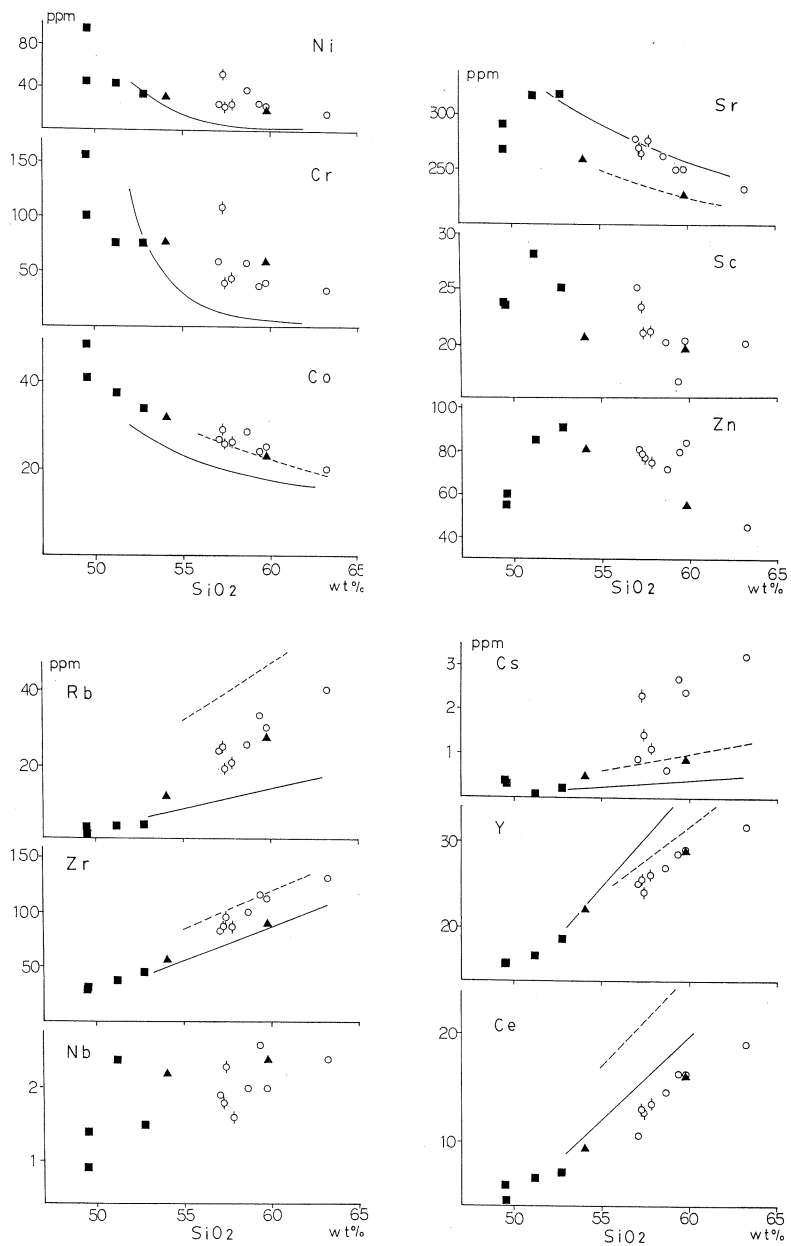
ソレアイト系列岩においては Ni , Cr , Co が $\text{SiO}_2 = 50\%$ 付近で急激に減少する(第4図)がこれはカンラン石モードの変化(後述)と調和的である。カルクアルカリ系列岩では、 Ni , Cr と SiO_2 との間の相関はあまり良くない。 Sc および Zn において $\text{SiO}_2 = 51\%$ 付近にピークが認められる。これらの微量元素もカルクアルカリ系列岩においては SiO_2 と明瞭な相関を示さない。 Sr は SiO_2 の増加とともに減少する傾向があるが、ソレアイト系列岩では $\text{SiO}_2 =$



第3図 (a) AFM diagram for the rocks from the Kita-Hakkoda volcanic group.
 (b) SiO_2 - FeO^*/MgO diagram for the rocks from the Kita-Hakkoda volcanic group.
 (c) Log-log diagram of MgO and K_2O contents in the volcanic rocks from the Kita-Hakkoda volcanic group. Average lines are quoted from Masuda and Aoki⁴⁾.
 (d) $\text{K}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ - MgO/FeO^* diagram⁹⁾ in the volcanic rocks from the Kita-Hakkoda volcanic group. Symbols are same as those in Fig. 2.

52%にピークをもつ。カルクアルカリ系列における Sr は、安達太良火山⁷⁾ の同系列岩に比較して高い。一方、サブオーディネイトソレイトの Sr はカルクアルカリ系列岩よりも低い位置にトレンドを描いている。

HFS 元素は SiO_2 の増加にともなって増加する傾向がある。Zr はソレイトとカルクアルカリ系列とは異なるトレンドを示し、サブオーディネイトソレイトはソレイト系列のト



第4图 Silica (wt.%) v.s. trace element (ppm) variation diagrams for the rocks of the Kita-Hakkoda volcanic group.

Symbols are the same as those in Fig. 2.

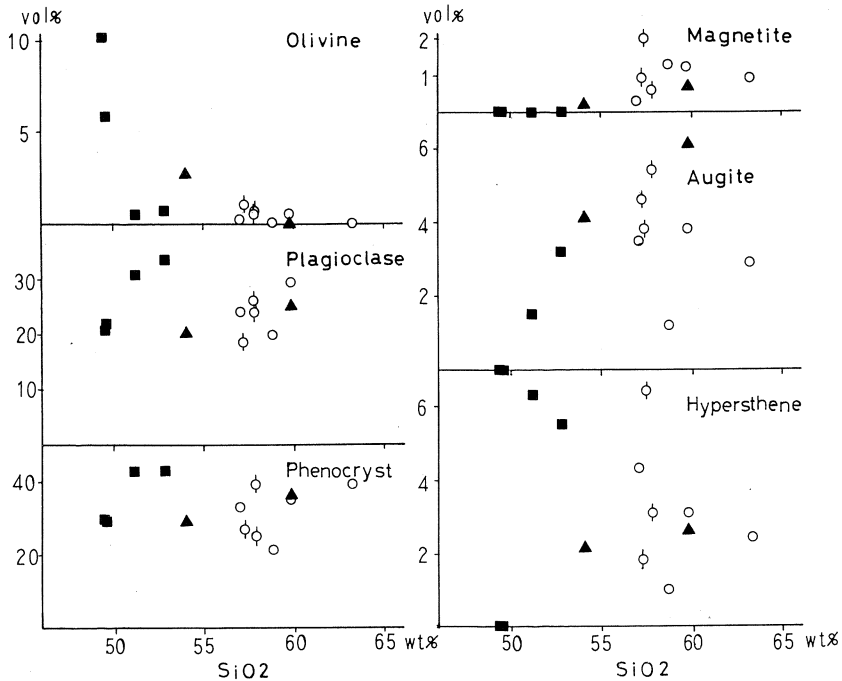
Solid and broken lines indicate the fractionation trends of the low-alkali tholeiite and calc-alkaline rock series for the rocks from the Adatara volcano.

レンド上に点示される。Nbの含有量は他の那須北帯火山に比べてかなり低い。

Rb, Y, Ceはソレイト, カルクアルカリ両系列がそれぞれ異なる組成変化経路を示している。特に, YとCeにおいて両系列のトレンドの勾配に差が認められ, カルクアルカリ系列の方が急である。カルクアルカリ岩におけるRb, CeとYの含有量は安達太良火山に比較して低い。また, ソレイトにおけるCeとYの勾配が安達太良火山のものより小さい。

§ 6. 斑晶モード組成変化の特徴

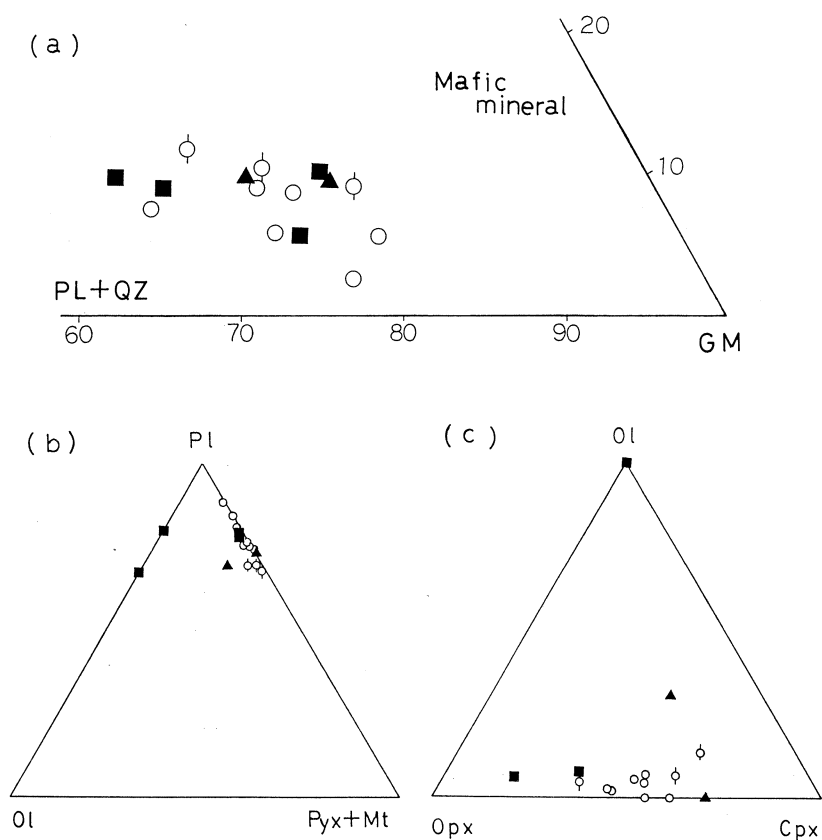
第5図に, SiO_2 重量%と各斑晶のモード組成の関係を示す。ソレイト, カルクアルカリ両系列間に全斑晶量における明瞭な差は認められない。カンラン石はソレイト系列では $\text{SiO}_2 = 49 \sim 53\%$ の間で激減するが, カルクアルカリ系列では $\text{SiO}_2 = 60\%$ までカンラン石が認められる。斜長石はソレイト系列では $\text{SiO}_2 = 49 \sim 53\%$ の間で急増し, カルクアルカリ系列では $\text{SiO}_2 = 57 \sim 63\%$ でやや増加傾向を示す。磁鉄鉱は $\text{SiO}_2 = 54\%$ 以下では稀にしか認められないが, 安山岩質になると著しく増加する。輝石は SiO_2 の増加とともに, ソレイト系列では普



第5図 Silica (wt.%) v.s. modal compositions of phenocrysts (vol.%) variation diagrams for the rocks from the Kita-Hakkoda volcanic group.

Symbols are the same as those in Fig.2.

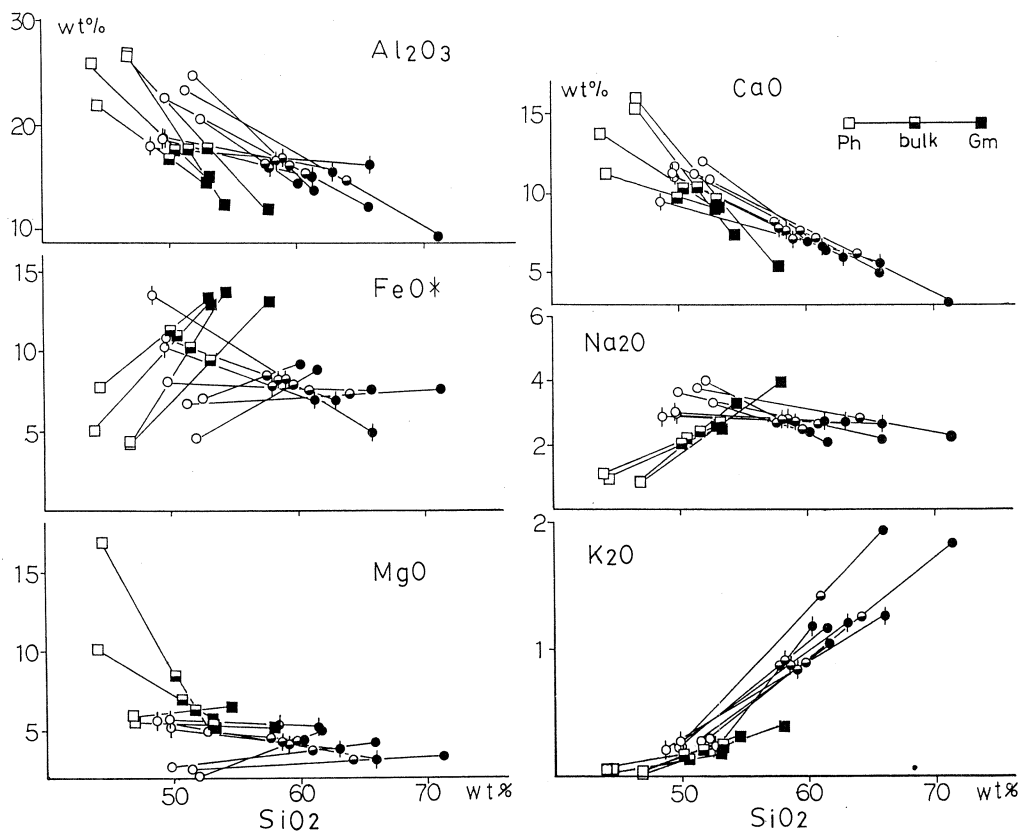
通輝石よりもシソ輝石に富むようになり、一方、カルクアルカリ系列ではシソ輝石よりも普通輝石に富むようになる。両者の違いはカンラン石-斜方輝石-単斜輝石斑晶モード三角図(第6図)上で明瞭に認められる。この図で北八甲田カルクアルカリ岩は岩手火山⁸⁾のカルクアルカリ岩に比べてより単斜輝石に富む領域に点示され、斜長石-カンラン石-輝石+磁鉄鉱斑晶モード三角図上ではより輝石と磁鉄鉱に乏しい領域に点示される。苦鉄質鉱物-斜長石+石英-石基三角図において、八幡平火山群⁹⁾にみられたような岩石系列による点示領域の差は認められない。



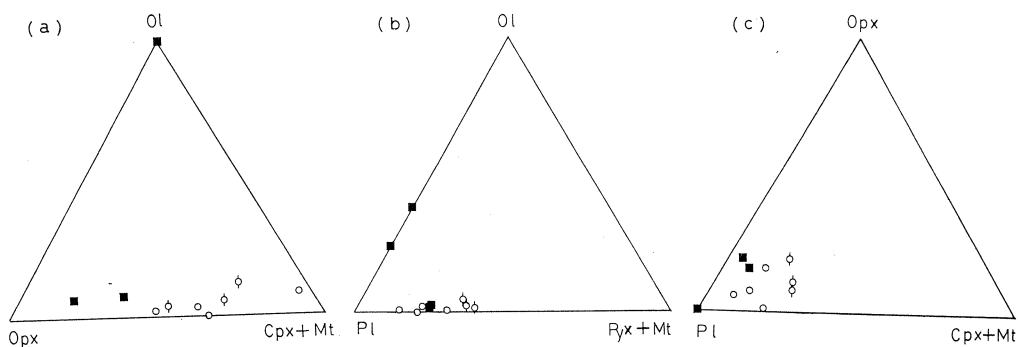
第6図 Plots in volume proportion of modal mafic minerals : plagioclase + quartz : groundmass (a), pyroxene + magnetite : plagioclase : olivine (b), and olivine : orthopyroxene : clinopyroxene (c) for the rocks from the Kita-Hakkoda volcanic group.
 Symbols are the same as those in Fig. 2.

§ 7. 北八甲田火山群噴出物の結晶分化作用

第7図は斑晶モード組成と斑晶化学組成を用いて作成した斑晶-全岩-石基組成関係図である。石基組成の変化において特徴的なことは、カルクアルカリ系列の Al_2O_3 において明瞭な2つのトレンドが認められることである。トレンド1(CA-1)では SiO_2 の増加に従って Al_2O_3 が緩やかな増加を示す。一方、トレンド2(CA-2)では SiO_2 が増加したとき Al_2O_3 は減少する。両トレンドは試料No.1-5組成から分岐している。



第7図 Variation diagrams of phenocryst, bulk and groundmass compositions of the rocks from the Kita-Hakkoda volcanic group. Square : tholeiitic rocks, circle : calc-alkaline rocks (CA-1), circle with a bar : calc-alkaline rocks (CA-2).



第8図 Plots in weight proportion modal olivine : orthopyroxene : clinopyroxene + magnetite (a), olivine : plagioclase : pyroxene + magnetite (b), orthopyroxene : plagioclase : clinopyroxene + magnetite (c). Symbols are the same as Fig. 2.

カルクアルカリ岩の石基についてこのような2本のトレンドが描ける理由を検討するために斑晶カンラン石-輝石+磁鉄鉱-斜長石, 斜方輝石-単斜輝石+磁鉄鉱-斜長石, カンラン石-単斜輝石+磁鉄鉱-斜方輝石三角図を作成した(第8図)。第8図(a)で,トレンド1を構成する岩石はトレンド2を構成する岩石グループに比べてわずかに高いカンラン石斑晶量をもつ。しかし,両グループ間に斜方輝石および単斜輝石量の有意の差は認められない。第7図(b), (c)では両グループに明瞭なモード組成の差が認められ,トレンド2の岩石グループはトレンド1の岩石グループよりも明らかに高い斜長石斑晶量を持っている。つまり,カルクアルカリ系列岩にみられる両トレンドの差に最も大きな影響を与えている鉱物は斜長石斑晶である。また,トレンド2の岩石グループは第8図(b)でソレイト系列カンラン石含有普通輝石シソ輝石玄武岩の,第8図(c)ではソレイト系列の岩石の点示される領域に点示され,トレンド2を構成する岩石の斑晶モード組成がソレイト系列岩のものと類似していることがわかる。また,トレンド1を構成する岩石は,トレンド2を構成する岩石に比べて苦鉄質である。

以上のことから,北八甲田火山群を構成する岩石は,ソレイト系列岩,サブオーディネイトソレイト,トレンド1を構成する低斜長石/輝石斑晶型カルクアルカリ岩とトレンド2を構成する高斜長石/輝石斑晶型カルクアルカリ岩の4種類に区分することができる。

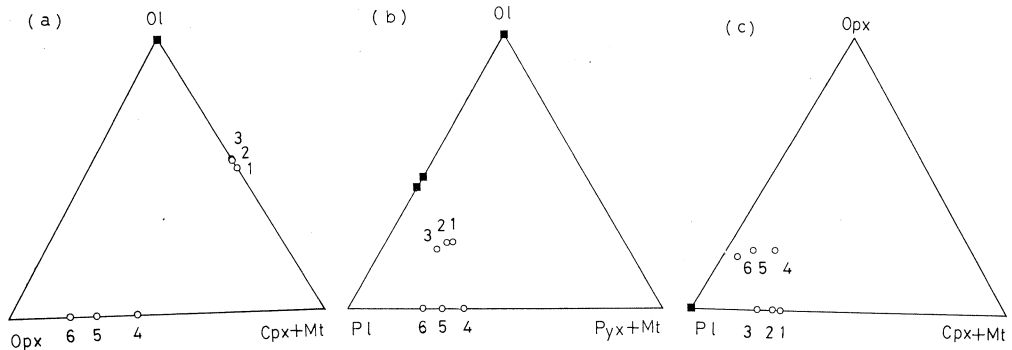
北八甲田火山群を構成する岩石における分別結晶作用を更に詳しく検討するために,分別に關与した鉱物の組み合わせと量比をWright and Donerty法¹⁰⁾により求めた。ソレイト系列岩については分析値をそのまま用いたが,カルクアルカリ岩については全岩組成のトレンドを曲線近似した結果を用いた。分別鉱物の組成についてはカンラン石と斜長石については端成

分を用い、その他の鉱物についてはEPMA分析結果を参考にした。計算結果を第3表に示し、さらに、第9図に点示した。

第3表 Fractionated mineral assemblages and their ratios calculated by the method of Wright and Doherty¹⁰⁾ for the rocks from the Kita-Hakkoda volcanic group.

	Parent	Daughter	Sum(RxR)	Ol	Cpx	Opx	Mt	Pl	Liq
1	TH 1-1	TH 1-2	0.0169	4.53	-	-	-	-	95.47
2	TH 1-2	TH 1-3	0.0289	4.73	-	-	-	5.07	90.32
3	TH 1-3	TH 1-4	0.4318	5.55	-	-	-	6.96	87.46
4	TH 1-1	TH 1-3	0.0249	8.76	-	-	-	4.23	87.08
1	CA 55	CA 56	0.0064	3.39	2.97	-	-	7.58	86.07
2	CA 56	CA 58	0.0088	5.08	4.13	-	-	11.91	78.75
3	CA 58	CA 60	0.0008	3.55	2.62	-	0.27	9.96	83.51
4	CA 60	CA 62	0.0007	-	1.49	3.51	0.93	10.09	83.99
5	CA 62	CA 64	0.0143	-	0.40	2.90	0.71	9.40	86.51
6	CA 64	CA 65	0.0137	-	-	1.22	0.29	4.84	93.59

Ol: olivine, Cpx: clinopyroxene, Opx: orthopyroxene, Mt: magnetite, Pl: plagioclase, Liq: residual liquid.



第9図 Plots in weight proportion of olivine : orthopyroxene : clinopyroxene + magnetite (a), olivine : plagioclase : pyroxene + magnetite (b), and orthopyroxene : plagioclase : clinopyroxene + magnetite (c), for the results of mixing calculations¹⁰⁾.

Symbols are the same as Fig. 2.

Calculation numbers for calc-alkaline rocks (Table 3) are also shown.

ソレイト系列岩が示す全岩組成の変化経路は、カンラン石ないしカンラン石+斜長石の分別で説明でき、実際の斑晶組み合わせとは異なっている。カルクアルカリ岩については現在斑晶として見られる鉱物の分別によってその全岩組成変化経路を説明できる。分別相の消長も実際に観察されるものと矛盾しない。ただし、カルクアルカリ岩の分化の早期において計算上得られる斜長石/輝石斑晶比は、実際に見られる値よりもかなり低い。そして、 SiO_2 の増加とともに、分別相の斜長石/輝石比は大きくなり、次第に実際の斑晶モード組成に近くなってゆく。従って、さきに述べたトレンド1、トレンド2は分化に伴い変化する分別相の量比の変化を反映していると推定される。そして、トレンド1がトレンド2に対して、より苦鉄質側での分別相に相当する。

ソレイトについてもカルクアルカリ岩についても計算上得られる分別相と斑晶モード組成との差のうち最も大きいのは斜長石の量比である。これが斜長石と苦鉄質鉱物との間の分別効果の差によるものか、あるいは他の、例えば晶出時期のずれによるものかは現在のところ明らかでない。ただし、斑晶-石基の組成関係から得られたトレンド1とトレンド2のうち粘性の高い珪長質側でのトレンドである後者の方が実際のトレンドによく一致しているという事実は分別効果の差であるという考えと調和的でない。

§ 8. さいごに

北八甲田火山群を構成する岩石はソレイト系列岩、サブオーディネイトソレイト、低斜長石/輝石斑晶型のカルクアルカリ岩、そして高斜長石/輝石斑晶型のカルクアルカリ岩からなり、この順に活動している。ソレイト系列岩、カルクアルカリ岩それぞれについてその分別結晶作用を検討したところ、次のことが明らかになった。

ソレイト、カルクアルカリ各系列岩が示す全岩組成変化経路は基本的には斑晶鉱物の分別により説明することができるが、計算上得られる分別相の組み合わせや量比は実際にみられる斑晶モード組成とは一致しない。ソレイト系列岩の全岩組成変化経路はカンラン石あるいはカンラン石+斜長石の分別で説明できるが、この経路は斜長石に富んだ斑晶と石基がつくるタイラインとは大きく斜交する。カルクアルカリ岩の組成変化経路は基本的には現在見られる斑晶鉱物の分別により説明できるが、計算上得られる分別相の量比と斑晶モード組成との間には差がある。両者の差は分化の早期に最も大きく、 SiO_2 の増加とともに次第に小さくなる。つまり、分別相は早期の低斜長石/輝石型から晩期の高斜長石/輝石型へと変化する。

ソレイト系列岩とカルクアルカリ岩の微量元素が示す組成変化経路は明瞭に異なるトレン

ドをもち、サブオーディネイトソライトは両者の中間的性質をもつ。

光量子放射化分析にあたり、東北大学核理研、八木益雄助教授、舛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終始御世話になった。また、蛍光X線分析を行うにあたり、東北大学理学部岩鉱教室藤巻宏和博士に御指導いただいた。以上の方々に深謝する。

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) 西村 進, 佐藤博之, 山田敬一: 地調月報 **28** (1977) 593.
- 2) H. Kuno : Bull. Geol. Soc. Amer. **61** (1950) 957.
- 3) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III. **15** (1981) 101.
- 4) Y. Masuda and K. Aoki : Earth Planet. Sci. Let. **44** (1979) 139.
- 5) J. B. Gill : *Orogenic andesites and plate tectonics* (Springer-Verlag, 1981).
- 6) Y. Kawano, K. Yagi and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III, **7** (1961) 1.
- 7) 藤縄明彦, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 **17** (1984) 356.
- 8) 石川賢一, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 **17** (1984) 330.
- 9) 吉田武義, 渡部 均, 青木謙一郎: 核理研研究報告 **16** (1983) 309.
- 10) T. L. Wright and P. C. Doherty : Geol. Soc. Am. Bull. **81** (1970) 1995.

北海道，有珠火山の岩石化学

山形大，理学部地学*

大場与志男・吉田武義*・青木謙一郎*

§ 1. はじめに

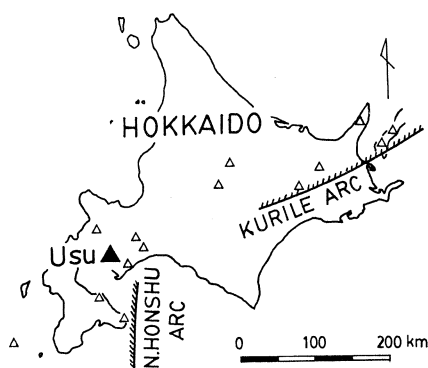
北海道の有珠火山(第1図)は1977年8月，有史以来7度目の噴火を起こし，石英安山岩質の軽石を放出した¹⁾。この火山は沖積世に入ってから洞爺カルデラの南壁部分に生じた複成火山である。外輪山は玄武岩から玄武岩質安山岩($\text{SiO}_2 = 49.36 \sim 54.33\%$)までの溶岩・スコリアからなる成層火山で山頂部に直径2 kmの火口を持つ。数千年の休止期のあと，1663年の軽石噴火にはじまる歴史時代の活動は，その後1769, 1822, 1910, 1943-45, 1977-78年とすべて

石英安山岩質($\text{SiO}_2 = 68 \sim 73\%$)マグマによるもので，小有珠・大有珠・昭和新山などの溶岩円頂丘が形成され，また1910年の水蒸気爆発を除き，いずれも本質軽石を放出した。外輪山溶岩と円頂丘溶岩および軽石との間には，時間的にも化学組成的にも大きなギャップがあり，珪酸量54%から68%までの間の岩石は存在しない。

本論では，有珠火山の代表的な岩石試料13個について，光量子放射化法等による微量元素の分析結果を示し，これまでに報告されている他の方法による結果と比較した。またこれらの結果を用いて，玄武岩から石英安山岩にいたる有珠マグマの分化，ならびにそれらの岩石化学的特徴について検討した。

§ 2. 分析試料の岩石学的特徴

分析にあたっては，主成分化学分析に用いたのと同じ粉末試料を用いた。第1表に代表的岩石の鉱物容量比を，第2表に主成分組成を示す。外輪山溶岩類S-1～6は，大体噴出順であ



第1図 Map showing the locality of the Usu volcano.
 \triangle : Volcanoes with records of eruption and fumaroles¹⁾.
 \blacktriangle : Usu volcano.

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

	S-1	S-2	S-3	S-4	S-5	S-6	C-1	C-2	C-3	C-4	C-5	C-6	C-7
plagioclase	27.9	31.8	23.3	17.3	36.3	32.3	8.5	4.9	10.8	12.6	1.2	13.1	0.4
augite	0.1	1.1	1.9	1.2	0.2	0.1	—	—	—	—	—	—	tr*
hypersthene	1.9	12.0	10.3	0.8	0.8	1.3	1.7	0.3	1.8	0.9	0.3	1.8	0.07
pigeonite	—	—	—	—	0.4	—	—	—	—	—	—	—	—
olivine	6.3	1.5	0.2	2.4	tr	—	—	—	—	—	—	—	—
magnetite	2.2	2.5	2.2	3.2	2.5	3.3	0.5	0.2	0.4	0.4	0.1	0.8	0.03
Groundmass	61.6	51.1	62.1	75.1	59.8	63.0	89.3	94.6	87.0	86.1	98.4	84.3	99.5

C-6, 7 with trace hornblende.

* xenocryst ?

Somma lavas¹⁴⁾

S-1. Aug. hyp. oli. basalt.

S-2. Aug. oli. hyp. basalt.

S-3. Oli. aug. hyp. basaltic andesite.

S-4. Hyp. aug. oli. basaltic andesite.

S-5. Aug. pig. hyp. basaltic andesite.

S-6. Aug. hyp. basaltic andesite.

Central cone (dome) lavas and pumices.

C-1. 1978 Oct. 5, pumice⁶⁾.

C-2. 1977-I pumice¹⁾.

C-3. 1943-45, Showa-shinzan lava⁶⁾.

C-4. 1853, O-Usu lava⁶⁾.

C-5. 1977-II, pumice¹⁾.

C-6. 1663 ?, Ko-Usu lava⁶⁾.

C-7. 1663, Usu-b pumice⁶⁾.

り、また円頂丘溶岩・軽石類C-1～7では、時代の新しいものほど珪酸に乏しい傾向をもつ。以下に、これら分析試料の岩石学的特徴を述べる。

2.1 外輪山溶岩

外輪山溶岩は、いづれも石灰質斜長石斑晶に富み、普通輝石とシソ輝石斑晶を含む玄武岩ないし苦鉄質安山岩である。早期の溶岩には、かんらん石斑晶を6.3% (容量) 含むものがある。また、もっとも分化の進んだ岩石では、ピジョン輝石斑晶を含む。石基の輝石は普通輝石かピジョン輝石、微斑晶はシソ輝石とそれを包む普通輝石かピジョン輝石であり、鉄苦土鉱物の組み合わせによる分類²⁾ではVc, Vd→c型となる。主成分組成においては、アルカリ(とくにK₂O)に乏しく、鉄に富むソレイト質岩であり、マグマの分化に伴う鉄の濃集がみられる。

2.2 円頂丘溶岩・軽石

円頂丘溶岩・軽石はすべてシソ輝石斑晶を含む。ノルム色指数と斜長石組成による分類³⁾では、すべて石英安山岩であり、シソ輝石質岩系²⁾に属するカルクアルカリ岩である。ノルム石英を30%以上含む岩石でも、斑晶石英を持たない。これらの斑晶組成および化学組成については、これまでの研究^{4, 5, 6)}に詳しく述べられているが、以下にその要点を列挙する。

第2表 Major (wt.%) and trace element (ppm) compositions of the rocks from the Usu volcano.

	S-1	S-2	S-3	S-4	S-5	S-6	C-1	C-2	C-3	C-4	C-5	C-6	C-7
SiO ₂	49.36	51.80	52.81	53.02	53.21	53.36	68.07	68.74	69.07	69.23	69.34	70.19	72.35
TiO ₂	0.69	0.83	0.86	0.79	0.87	0.86	0.46	0.45	0.46	0.36	0.46	0.32	0.23
Al ₂ O ₃	16.07	16.79	16.47	16.42	19.22	17.27	15.55	15.52	15.48	15.40	15.34	14.94	14.34
Fe ₂ O ₃	3.79	4.14	3.54	3.22	2.34	3.81	1.93	1.42	2.13	1.82	1.45	1.96	0.48
FeO	7.68	6.74	6.91	7.09	6.33	7.47	1.85	2.39	2.26	2.09	2.00	1.73	1.96
MnO	0.21	0.17	0.17	0.17	0.13	0.09	0.21	0.08	0.16	0.15	0.12	0.12	0.09
MgO	8.92	6.01	6.23	4.95	4.21	3.63	1.00	0.84	0.92	0.91	0.75	0.76	0.43
CaO	10.75	10.20	9.95	10.24	10.43	9.41	3.94	3.78	3.84	3.83	3.56	3.49	2.03
Na ₂ O	2.03	1.93	2.46	2.80	2.76	2.67	4.68	4.62	4.07	4.15	4.63	4.61	4.94
K ₂ O	0.18	0.46	0.43	0.58	0.53	0.51	1.26	1.10	0.99	1.08	1.02	1.06	1.29
H ₂ O ⁺	0.37	0.26	0.20	0.17	0.13	0.28	0.20	0.47	0.20	0.19	0.21	0.00	1.08
H ₂ O ⁻	0.10	0.32	0.09	0.18	0.19	0.11	0.04	0.10	0.06	0.14	0.20	0.16	0.22
P ₂ O ₅	0.12	0.33	0.23	0.16	0.11	0.31	0.33	0.28	0.15	0.21	0.32	0.33	0.09
Total	100.27	99.98	100.35	99.79	100.46	99.78	99.52	99.79	99.79	99.56	99.40	99.67	99.53
Sc-PAA	22.7	31.4	-	-	30.2	-	12.5	-	12.6	-	-	-	3.1
Sc-NAA	33.4	-	35.5	-	30.1	-	-	-	-	10.3	-	-	-
V	279	240	271	316	262	261	24	19	27	17	17	27	18
Cr	45	58	36	15	18	15	1	4	3	4	1	1	1
Cr-PAA	43.9	62.9	-	-	19.4	-	6.1	-	5.7	-	-	-	7.3
Cr-NAA	30.6	-	31.1	-	13.0	-	-	-	-	8.6	-	-	-
Co	67	69	46	43	91	51	29	19	22	35	20	28	4
Co-PAA	54.5	54.3	-	-	66.4	-	17.7	-	23.0	-	-	-	-
Co-NAA	40.8	-	33.1	-	25.7	-	-	-	-	5.2	-	-	-
Ni	86	50	36	24	31	29	13	11	10	11	11	14	5
Ni-PAA	51.0	29.2	-	-	14.6	-	0.5	-	-	-	-	-	2.2
Cu	57	53	72	93	78	80	2	1	1	5	2	1	1
Zn-PAA	88	67	-	-	91	-	79	-	103	-	-	-	58
Rb	3	4	7	7	7	7	14	13	15	12	15	12	16
Rb-ID	2.4	4.7	5.8	7.2	6.8	6.5	15.9	14.2	14.7	12.8	15.1	13.6	17.3
Rb-PAA	3.6	7.1	-	-	9.2	-	15.2	-	14.4	-	-	-	19.2
Cs-PAA	1.61	0.45	-	-	0.59	-	0.76	-	0.84	-	-	-	1.07
Sr	225	255	234	229	356	309	347	257	338	337	259	273	281
Sr-ID	220	262	232	240	333	314	322	248	346	311	254	283	306
Sr-PAA	325	316	-	-	367	-	324	-	323	-	-	-	263
87/86	.70410	.70398	.70397	.70399	.70397	.70396	.70407	.70402	.70404	.70402	.70401	.70402	.70399
Ba	103	144	158	187	120	199	431	476	431	454	454	451	452
Ba-ID	123	146	168	202	124	180	463	442	470	457	457	444	466
Ba-PAA	-	-	-	-	155	-	490	-	533	-	-	-	447
Ba-NAA	139	-	167	-	199	-	-	-	-	284	-	-	-
La-NAA	2.3	-	4.1	-	5.8	-	-	-	-	9.5	-	-	-
Ce-PAA	3.5	6.4	-	-	12.2	-	22.9	-	23.5	-	-	-	24.8
Ce-NAA	7.6	-	15.3	-	18.8	-	-	-	-	27.5	-	-	-
Sm-NAA	1.7	-	2.4	-	3.2	-	-	-	-	4.4	-	-	-
Eu-NAA	0.64	-	0.84	-	1.12	-	-	-	-	1.35	-	-	-
Tb-NAA	0.40	-	0.50	-	0.57	-	-	-	-	0.86	-	-	-
Yb-NAA	1.6	-	1.9	-	2.5	-	-	-	-	3.0	-	-	-
Lu-NAA	0.28	-	0.35	-	0.41	-	-	-	-	0.52	-	-	-
Y-PAA	15.5	18.4	-	-	25.8	-	34.0	-	33.8	-	-	-	30.2
Nb-PAA	1.2	1.3	-	-	2.8	-	2.9	-	4.7	-	-	-	3.4
Hf-NAA	0.9	-	1.1	-	1.5	-	-	-	-	2.8	-	-	-
Zr-PAA	29.2	40.1	-	-	59.0	-	116	-	119	-	-	-	120
Th-NAA	1.53	-	0.99	-	1.14	-	-	-	-	2.43	-	-	-
U-NAA	3.03	-	4.12	-	0.67	-	-	-	-	0.94	-	-	-

PAA : photon activation analyses, NAA : neutron activation analyses⁷⁾, ID : isotope dilution methods (Kurasawa and Ikeda), 87/86 : ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr by Kurasawa⁶⁾.

1) 斜長石斑晶は時代とともに $An = 37 \sim 50$ から $45 \sim 60$ と石灰質になってゆくが、これらとは別に、著しく石灰分の多い結晶 ($An = \sim 90$) も、古い時代の噴出物に含まれている。

2) シソ輝石斑晶は時代とともに $Fs = 50 \sim 58$ から $35 \sim 47$ と苦土質になってゆくが、これらとは別に著しく苦土分の多いもの ($En = \sim 30$) も、古い時代の噴出物に含まれる。

3) 上記の斑晶の他に、パーガス質角閃石が、とくに古い時代の軽石中に含まれる。稀に捕獲結晶と思われる普通輝石や石英が見出される。またクリスタル・クロット(集斑晶で、斜長石・シソ輝石・鉄鉱物・クリストバル石とガラスよりなる)が、とくに円頂丘溶岩に見出される。

4) 量的に末期活動噴出物の大半を占める 1663 年輕石は、 $SiO_2 = 73 \sim 74.5\%$ (H_2O は除く) と高い。以後、時代とともに SiO_2 は減少し 1977 ~ 78 年の噴出物では $SiO_2 = 68 \sim 70\%$ となっている。とくに 1977 - 78 年活動末期の溶岩は最も珪酸に乏しい。

5) 主成分化学組成では、岩石の高い珪酸量にもかかわらず、 K_2O 量は 1% 前後と非常に低い。

§ 3. 微量元素の分析方法と結果

3.1 分析方法

分析に用いた粉末試料は、有珠火山の代表的な岩石で、すでに主成分、各種の方法による微量元素、Sr 同位体比が測定されたものである^{5, 6, 7)}。これらの試料について新たに、Sc, Cr, Co, Ni, Zn, Rb, Cs, Sr, Ba, Ce, Y, Nb と Zr の 13 微量元素の分析を行った。定量にあたっては、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て、30 MeV 加速電子を用い、光量子放射化分析をおこなった⁸⁾。結果を既存データと共に第 2 表に示す。第 2 表で元素名のみの値は原子吸光法(大場)、PAA は光量子放射化法、NAA は中性子放射化法⁷⁾、ID とした Rb, Sr と Ba は同位体稀釈法(倉沢・池田)、Sr 同位体比は倉沢によるものである⁶⁾。

3.2 既存分析値との比較

今回光量子放射化法で測定された元素で、他の方法による既存の分析データとの比較が可能なのは、Cr, Co, Ni, Rb, Sr と Ba の 6 元素である。第 1 表に示すように、Rb, Sr と Ba は原子吸光法、同位体稀釈法、光量子放射化法、中性子放射化法とも値が類似している。Co は、S-5 において、方法による差がやや大きい。Ni は原子吸光法に比して光量子放射化法では小さい値 ($2/3 \sim 1/2$) である。C-1 ~ 7 の場合、Cr は原子吸光法では微量ゆえ、そ

第3表 Compiled and normalized compositions at SiO₂ = 50, 55, 68 and 73% of the rocks from the Usu volcano.

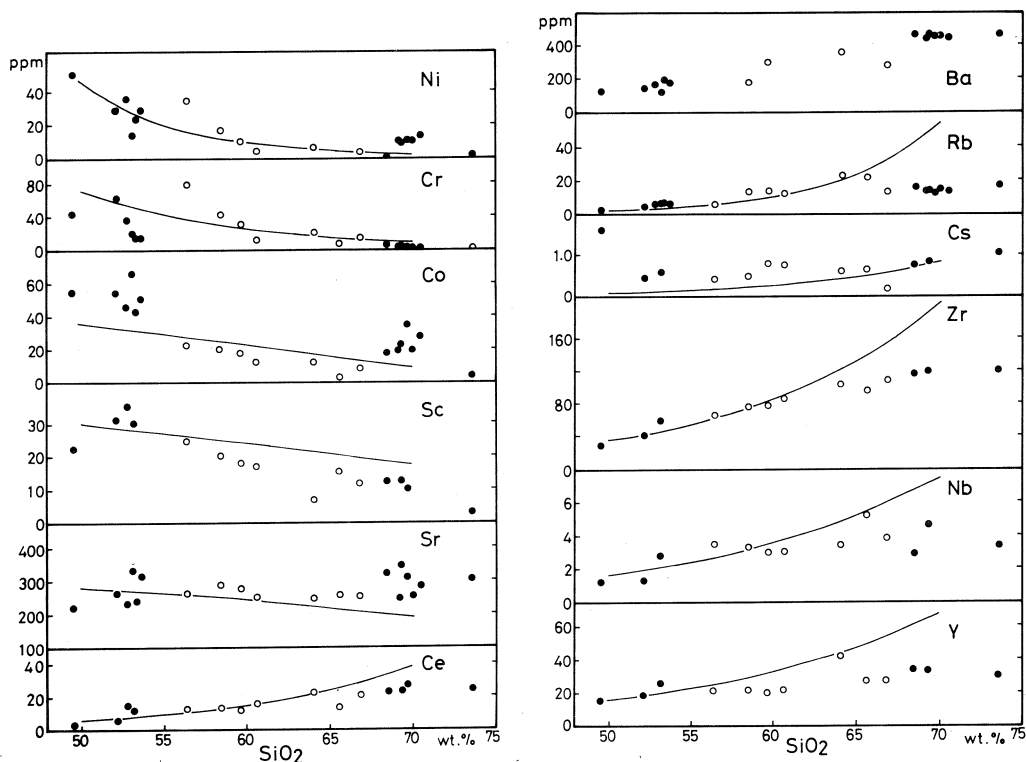
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	S	S	C	C
	S-1	S-2	S-3	S-4	S-5	S-6	C-1	C-2	C-3	C-4	C-5	C-6	C-7	S-50	S-55	C-68	C-73
wt. %																	
SiO ₂	49.46	52.11	52.78	53.32	53.14	53.69	68.56	69.28	69.40	69.77	70.05	70.54	73.65	50.00	55.00	68.00	73.00
TiO ₂	0.69	0.84	0.86	0.79	0.87	0.87	0.46	0.45	0.46	0.36	0.46	0.32	0.23	0.70	0.89	0.49	0.26
Al ₂ O ₃	16.10	16.89	16.46	16.51	19.19	17.38	15.66	15.64	15.55	15.52	15.50	15.01	14.60	16.16	17.76	15.86	14.76
Fe ₂ O ₃	3.80	4.16	3.54	3.24	2.34	3.83	1.94	1.43	2.14	1.83	1.46	1.97	0.49	3.77	3.23	1.81	1.27
FeO	7.70	6.78	6.91	7.13	6.32	7.52	1.86	2.41	2.27	2.11	2.02	1.74	2.00	7.38	6.53	2.31	1.97
MnO	0.21	0.17	0.17	0.17	0.13	0.09	0.21	0.08	0.16	0.15	0.12	0.12	0.09	0.16	0.15	0.13	0.12
MgO	8.94	6.05	6.23	4.98	4.20	3.65	1.01	0.85	0.92	0.92	0.76	0.76	0.44	8.86	3.05	1.08	0.28
CaO	10.77	10.26	9.94	10.30	10.42	9.47	3.97	3.81	3.86	3.86	3.60	3.51	2.07	10.87	9.38	4.50	2.25
Na ₂ O	2.03	1.94	2.46	2.82	2.76	2.69	4.71	4.66	4.09	4.18	4.68	4.63	5.03	2.08	2.81	4.36	4.83
K ₂ O	0.18	0.46	0.43	0.58	0.53	0.51	1.27	1.11	0.99	1.09	1.03	1.07	1.31	0.20	0.66	1.04	1.24
P ₂ O ₅	0.12	0.33	0.23	0.16	0.11	0.31	0.33	0.28	0.15	0.21	0.32	0.33	0.09	0.16	0.25	0.30	0.13
Total	100.00	99.99	100.01	100.00	100.01	100.01	99.98	100.00	99.99	100.00	100.00	100.00	100.00	100.34	99.71	99.88	100.11
ppm																	
Sc	22.7	31.4	35.5	-	30.2	-	12.5	-	12.6	10.3	-	-	3.1	26.8	33.1	15.6	3.4
V	279	240	271	316	262	261	24	19	27	17	17	27	18	266	262	35.0	20.1
Cr	43.9	62.9	36	15	19.4	15	6.1	4	5.7	4	1	1	1	50.3	17.2	4.6	0.2
Co	54.5	54.3	46	43	66.4	51	17.7	19	23.0	35	20	28	4	58.4	47.1	29.5	8.1
Ni	51.0	29.2	36	24	14.6	29	0.5	11	10	11	11	14	2.2	50.1	15.1	10.8	3.9
Cu	57	53	72	93	78	80	2	1	1	5	2	1	1	53	83	7	0
Zn	88	67	-	-	91	-	79	-	103	-	-	-	-	58	78	93	88
Rb	2.4	4.7	5.8	7.2	6.8	6.5	15.9	14.2	14.7	12.8	15.1	13.6	17.3	2.6	8.3	13.7	16.5
Cs	-	0.45	-	-	0.59	-	0.76	-	0.84	-	-	-	1.07	0.44	0.55	0.84	0.95
Sr	220	262	232	240	333	314	322	248	346	311	254	283	306	220	305	297	299
87/86	-	.70398	.70397	.70399	.70397	.70396	.70407	.70402	.70404	.70402	.70401	.70402	.70399	.70400	.70400	.70402	.70402
Ba	123	146	168	202	124	180	463	442	470	457	457	444	466	130	194	443	461
La	2.3	-	4.1	-	5.8	-	-	-	-	9.5	-	-	-	2.7	6.3	9.6	9.0
Ce	3.5	6.4	15.3	-	12.2	-	22.9	-	23.5	27.5	-	-	24.8	5.3	15.1	24.8	24.7
Sm	1.7	-	2.4	-	3.2	-	-	-	-	4.4	-	-	-	1.9	3.3	4.5	4.2
Eu	0.64	-	0.84	-	1.12	-	-	-	-	1.35	-	-	-	0.69	1.14	1.39	1.22
Tb	0.40	-	0.50	-	0.57	-	-	-	-	0.86	-	-	-	0.42	0.60	0.84	0.86
Yb	1.6	-	1.9	-	2.5	-	-	-	-	3.0	-	-	-	1.7	2.5	3.0	2.9
Lu	0.28	-	0.35	-	0.41	-	-	-	-	0.52	-	-	-	0.29	0.42	0.52	0.48
Y	15.5	18.4	-	-	25.8	-	34.0	-	33.8	-	-	-	30.2	16.2	27.0	34.4	30.9
Nb	1.2	1.3	-	-	2.8	-	2.9	-	4.7	-	-	-	3.4	1.3	2.7	3.8	3.5
Hf	0.9	-	1.1	-	1.5	-	-	-	-	2.8	-	-	-	1.0	1.5	2.6	3.1
Zr	29.2	40.1	-	-	59.0	-	116	-	119	-	-	-	120	31.8	65.3	116	120
Th	-	-	0.99	-	1.14	-	-	-	-	2.43	-	-	-	0.82	1.23	2.28	2.69
U	-	-	-	-	0.67	-	-	-	-	0.94	-	-	-	0.61	0.70	0.91	0.99

$$87/86 : ^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$$

の精度に問題があると思われる。同一元素を光量子放射化法と中性子放射化法とで分析した場合には、CrとCoは中性子放射化法がやや小さい値となっている。第3表はこれらの分析結果を整理したものである。ここで主成分についてはH₂Oを差し引いて合計を100%に補正した値である。以下ではこの表の値をもとに議論を進める。表中S-50, S-55, C-68, C-73は得られた分析結果を用いて、最小自乗法で算出したSiO₂ = 50, 55, 68, 73%における各元素の存在量である。

§ 4. 有珠火山噴出物における微量元素の挙動

第3表に示した分析結果をもとに横軸にSiO₂ wt. %を、縦軸に各微量元素濃度 (ppm) をとった組成変化図を作成し第2図に示す。比較のために、東北本州弧火山フロント沿いの火山である八幡平火山のソレライト系列岩の組成変化経路⁹⁾、および低カリウムで特徴づけられる青麻火山の安山岩～石英安山岩の組成¹⁰⁾を示してある。



第2図 Silica variation diagrams v.s. trace elements (Table 3) for the rocks of the Usu volcano.

Closed circles : Usu volcano.

Open circles : Aoso andesites to dacite¹⁰⁾.

The curved line indicates the trend of Hachimantai tholeiites⁹⁾.

有珠火山の岩石化学における問題点のうち、バイモーダルな組成分布をする苦鉄質岩と珪長質岩との成因関係が最も重要であると思われる。この点に留意しつつ、新たに得られた微量元素のデータ等をもとに、有珠火山の岩石の特徴を元素グループごとに検討する。ここでは、第1表に従って、外輪山溶岩をS系列、円頂丘溶岩および軽石をC系列と略記する。

1群. S系列からC系列にかけて減少する元素 : Ni, Cr, Co, Sc, V, Cu.

これらのうち、特にNi, Cr, VとCuの減少は著しい。NiとCrは分化早期のS系列のなかで、すでに著しい減少を示す。ただし、大部分の石英安山岩におけるNiとCoは、玄武岩と最もSiO₂の多い石英安山岩を結んだ曲線より高い値を示している。CuはS系列ではむしろ増加傾向を示すが、C系列では著しく少ない。Scも一度増加した後単調に減少する。

2群. S系列からC系列にかけて増加する元素 : Ba, Rb, Th, Cs, REE, Y, Zr, Nb. イソコンパティブル元素であるCeとYは玄武岩から石英安山岩へと増加している。ただし、

玄武岩から苦鉄質安山岩へとこれらが増加するのに対して、石英安山岩内では SiO_2 が増えてもこれらは明瞭な増加を示さない。これは他のBa, Rb, Zr, Nb等の大部分のインコンパティブル元素についても言え、石英安山岩内では、これらの濃度はほとんど一定であり、苦鉄質岩で認められる SiO_2 の増加に伴うこれら元素の増加が認められない。S-1(第2表)においてCsが異常に高いがこれはUにおける異常と同じく2次的な付加¹¹⁾によるものかもしれない。S-1を除けばCsは SiO_2 の増加に伴い単調に増加している。

3群. S系列とC系列とで、差の少ない元素: Sr, Zn, Sr同位体比.

Srの存在量はC系列でやや増加する傾向はみられるが、これは八幡平火山⁹⁾での傾向(SiO_2 量とSr量は逆相関)とは異なる。

以上のうち、REE^{11, 12, 13)}とSr同位体比^{7, 11)}についてはそれぞれ詳しい研究がある。

有珠火山の場合、安山岩質岩石($\text{SiO}_2 = 54 \sim 68\%$)を欠くので、組成変化の傾向はあまり明確ではないが、微量元素が示す、S系列からC系列にいたる組成変化は、玄武岩質マグマの分別結晶作用による組成変化に一般的なものである。

§ 5. 有珠マグマの分化について

有珠火山の玄武岩から石英安山岩までを、母マグマから分別結晶によって導くモデル計算が行われている¹⁴⁾。第4表にその計算結果を示す。母マグマ組成については、外輪山溶岩の最も未分化な岩石の化学組成(第2表, S-1)にかんらん石を5 wt.%加えた組成(第4表, L_1)とした。これから、外輪山溶岩で最も分化した岩石(第2表, S-5)の石基組成(第4表, L_2)を導く第一段階と、さらにひきつづき昭和新山溶岩の石基組成で示される珪長質岩(第4表, L_3)を導く第二段階の、それぞれについて、差し引かれるべき固相(結晶)の化学組成(第4表, X_1, X_2)と、それらのノルム鉱物量を示した。 L_1 の45%が L_2 、さらにその30%が L_3 、つまり、有珠の母マグマの13.5%が昭和新山の石基で示されるような珪長質岩となる。

Srは玄武岩質マグマの分別結晶に際して、選択的に斜長石に入りやすい。しかし、残液中のSr濃度は斜長石のみに関係するわけではない。すなわち、斜長石の晶出量、その他の共生する輝石、鉄鉱等の量にもよる。上のモデルで、有珠マグマの分化には斜長石が主な分別結晶となるので、斜長石の分別によってSrやBa濃度がどう変化するかをレイリー分別モデルに従って計算した。斜長石のマグマに対するSrとBaの分配係数は2および0.6と0.3を用いた。この場合、斑晶全体の見掛けの分配係数については他の鉱物の分配係数は無視できる。第3図は、S系列とC系列についての実測値を落としたものである。実線および破線で連なった点

第4表 Fractional crystallization model of the rocks from the Usu volcano, partly modified after Oba (1966)¹⁴⁾

Oxides	L1	L2	L3	X1	X2	Norm	X1	X2
SiO ₂	49.07	56.09	73.08	43.18	48.81	Q	0.00	0.00
TiO ₂	0.66	1.38	0.40	0.07	1.80	or	0.00	4.14
Al ₂ O ₃	15.35	11.82	14.35	18.17	10.74	ab	8.29	22.93
Fe ₂ O ₃	3.62	4.67	1.71	4.67	7.43	an	45.18	15.07
FeO	8.00	9.39	1.60	5.84	10.10	ne	0.00	0.00
MnO	0.20	0.21	0.13	0.19	0.24	Di wo	7.22	12.81
MgO	10.72	6.12	0.47	14.42	8.54	Di en	5.42	8.18
CaO	10.27	7.37	3.05	12.59	9.22	Di fs	1.07	3.80
Na ₂ O	1.94	3.11	4.03	0.98	2.71	Hy en	0.00	13.10
K ₂ O	0.17	0.84	1.18	0.00	0.70	Hy fs	0.00	6.08
						Ol fo	21.37	0.00
Ba	98	169	482			Ol fa	4.66	0.00
		(193)	(431)			mt	6.77	10.77
Sr	214	202	245			il	0.13	3.42
		(243)	(319)					

L₁: Parental magma of Usu I-type S. L. + olivine 5%¹⁴⁾
 L₂: Derived andesitic magma (groundmass of VII-type S. L.)
 L₃: Dacitic magma (groundmass of Showa-shinzan dome lava)

1) L₁ (100) - X₁ (55) = L₂ (45)

2) L₂ (100) - X₂ (70) = L₃ (30)

* trace elements: calculated abundances using Rayleigh fractionation model. Used distribution coefficients D are arbitrary estimated from analyses of bulk rocks and plagioclases, or literatures as follows (see text).

$$D^{Ba} = 0.6^{1)}, 0.3^{2)}; D^{Sr} = 2.0^{1), 2)}$$

1) step 1 (from basaltic to andesitic liquids).

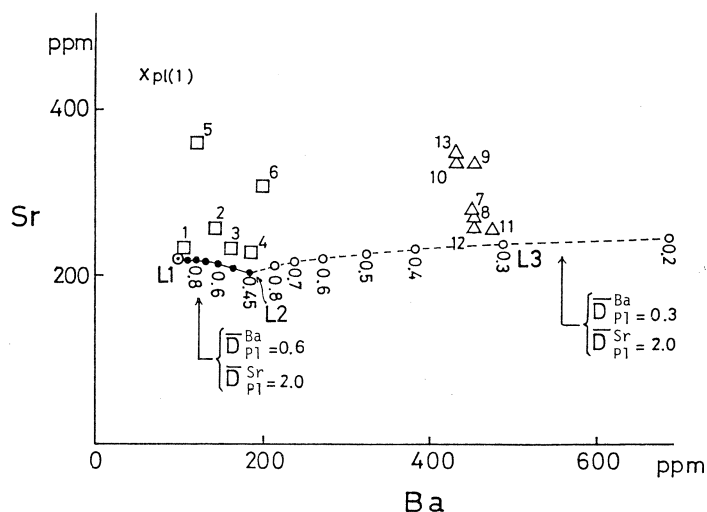
2) step 2 (from andesitic to dacitic liquids).

** Chemical compositions of X₁, X₂, and X₃ are calculated as both normative Q and Ne equal 0, by resetting the ferric-ferrous ratios.

は、それぞれ上述のモデルに従って分化したときの残液の量に対する予想されるBaとSrの量である。この図で、実測値と、完全な分別結晶作用モデルで計算した値とはほぼ類似している。つまり、有珠火山のマグマ分化は、大局において単純な分別結晶作用で説明することが可能である。

§ 6. 有珠珪長質岩の組成変化

有珠珪長質岩が主として外輪山溶岩をもたらしたソレライト質マグマの著しい分化によって生じたとする考えは、Sr同位体比がすべての有珠の岩石についてはほぼ一定であることから支持される。しかしながら、有珠珪長質岩の中でも最も珪酸に富む1663年のUs-b降下軽石が量的には大部分を占め、また、これらの珪長質岩には2節に述べたような化学組成・鉱物組



第3図 Sr v.s. Ba diagram, showing theoretical trend lines after Rayleigh fractionation model.

Open circles : basaltic rocks (S-series).

Open triangles : salic rocks (C-series).

Cross : assumed original magma.

Full line : theoretical trend of the somma lavas.

Broken line : theoretical trend of the dome lavas and pumices.

Numbers accompanying to the trend lines : ratios of residual magma.

D^{Ba} and D^{Sr} : distribution coefficients of plagioclase used in the calculations.

成上の特徴がある。これらの特徴は、単なる玄武岩質マグマの分化では十分に説明することはできず、珪長質マグマ溜りに、より苦鉄質なマグマが注入され、その後、両マグマの混和があったとする考えが提案されている^{4, 5, 6)}。

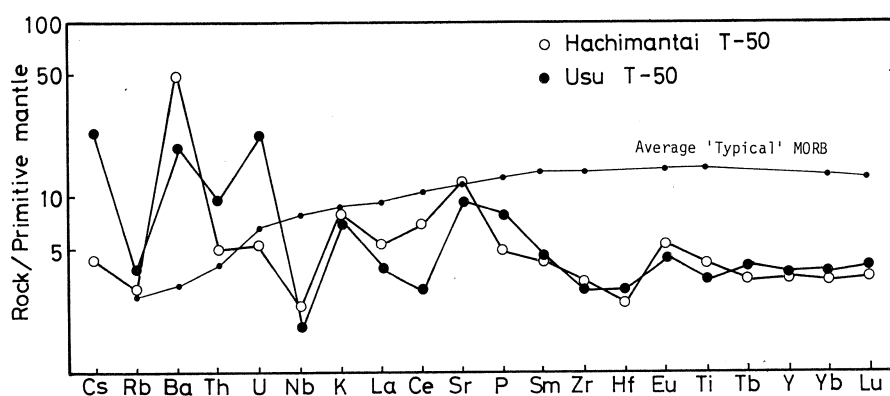
先に示した、大部分の石英安山岩における、コンパティブル元素であるNiとCoの異常は東北本州弧のカルクアルカリ岩においてしばしば認められる現象^{9, 15)}である。これは、石英安山岩を形成した始源マグマが現在みられる有珠ソレイトマグマよりも、よりこれらのコンパティブル元素に富んだものであったか、あるいは苦鉄質鉱物やそれを含んだマグマの混入¹⁵⁾があったことを示唆している。しかしながらCrやScに異常が認められないことから、後者の可能性は小さい。またNiやCoを含まない斜長石などの分別による効果も同様の理由ならびにSrが苦鉄質安山岩から石英安山岩までほとんど一定であることから否定的である。しかし、珪長質岩の組成変化については、細部にわたって不確実な点も多く、さらに検討を要する。たとえば、REEの存在量に関して、それらの存在量パターンや岩石の分化に伴うパターンの変化か

ら、(マグマ分化)+(何かの作用)と言う主張もある¹³⁾。

第2図からも明らかなように有珠ソレライトが、特にインコンパティブル元素組成において八幡平ソレライトと非常に類似しているのに対して、有珠珪長質岩は八幡平ソレライトの分化経路から大きくはずれ、青麻火山低カリウムカルクアルカリ岩の分化経路の延長上に点示される。両者はともに一部岩石中に角閃石をもつ等、共通点も多い。先のNiとCoにおける異常とも考え合わせると、有珠低カリウム珪長質岩は青麻低カリウムカルクアルカリ岩と成因的に関連するものであろう。

§ 7. 有珠ソレライトの岩石化学的特徴

有珠ソレライトの岩石化学的特徴を検討するため、始源マントル組成による規格化パターンを作成し、八幡平火山のソレライト(T-50)⁹⁾および平均的Mid-oceanic ridge basalt (MORB)^{16, 17)}のパターンとともに第4図に示した。図上で左側が右側のものに対してよりインコンパティビリティの高い元素である。図から明らかなように、有珠火山のソレライトは平均的MORBに比較して、REEおよびHF S元素濃度が非常に低く、一方、Sr, K, U, BaとCsが正の存在比異常を示し、典型的な島弧型の規格化パターンをもっている^{17, 18)}。有珠ソレライトと同じ島弧型のソレライトである八幡平ソレライトと比較した場合、両者のパターンは基本的には相似であるが前者は後者に比べてLREEやNb, Baが低いのに対して、U, Th, CsそしてPが高い特徴がある。有珠ソレライトはコンパティブル元素濃度においても八幡平



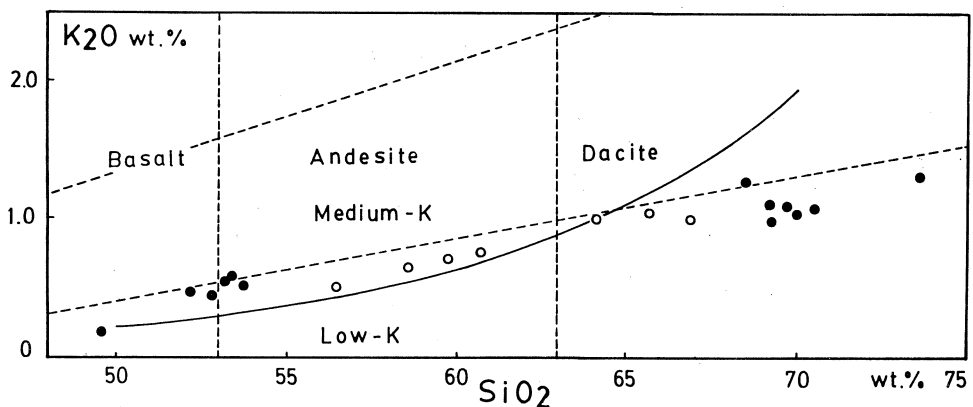
第4図 Normalized abundance patterns for moderately to highly incompatible elements in tholeiitic basalts and average 'typical' MORB¹⁶⁾. Elemental concentrations are normalized to the "primitive" mantle abundances^{16, 17)}.

ソレイトと異なる特徴をもつ。すなわち前者は後者に比べてCoが非常に高く、一方、Crは低い。この傾向は珪長質岩にも認められる。Niは両者ともほとんど同じトレンドを示す。

§ 8. 低カリウム珪長質火山岩

有珠火山の岩石の特徴の一つは、低カリウムであることであろう(第5図)。とくに、珪長質岩は、珪酸量が73%に達するにもかかわらず、 K_2O は1.0%程度である。このような例は、世界的に見ても多くはなく、太平洋西部の千島、東北日本、伊豆マリアナ弧に沿った火山フロント近くの火山、およびトンガ-ケルマデック列島、また南大西洋のサウスサンドイッチ島に産する。具体例をあげると、恐山障子岳溶岩(67.86/0.81; H_2O を除いた SiO_2/K_2O , 以下、同様)²⁰⁾、十和田御倉山溶岩(68.91/0.96)²¹⁾、青麻火山火砕流堆積物(67.01/1.00)¹⁰⁾、明神礁軽石(68.49/0.96)²²⁾、オーストラリア東岸に漂流した、トンガでの海底火山の産物と思われる軽石(67.02・73.75/0.64・0.75)²³⁾などである。さらにこれらをBaとSr量の資料が得られたものだけについて第5表にあげる。

BaとSrは、Kと似た挙動を示す。すなわち、有珠珪長質岩は、同程度の珪酸量の岩石と比べた場合これらの元素に乏しい。低カリウムの珪長質火山岩のみを比較すると、有珠の場合かなりBaに富み、Srも多い。これは、日本-千島-サイパンの低カリウム珪長質岩($SiO_2 = 69 \sim 73\%$)の平均値($Ba = 445, Sr = 285$)²⁴⁾と類似し、西南太平洋地域のそれらと異なる。低カリウムの珪長質火山岩は、島弧発生の早期の火山島や海洋地域の島弧に特徴的である



第5図 Diagram of K_2O-SiO_2 for the rocks of the Usu volcano.
 Closed circles :Usu volcano.
 Open circles :Aoso andesites to dacite¹⁰⁾.
 The curved line indicates the trend of Hachimantai tholeiites⁹⁾
 The boundary lines are cited from Gill (1981)¹⁹⁾.

第5表 Silica, potash, Ba and Sr contents of representative low-K salic volcanic rocks.

No.	SiO ₂	K ₂ O	Ba	Sr	Rem.
1	69.40	1.09	436	324	Historic lavas and pumices, Usu (av. of 6 analyses).
2	73.63	1.29	447	263	1663 pumice, Usu.
3	73.73	1.05	-	160	Drifted pumice from South Sandwich Is ^{22, 23} .
4	73.36	1.01	249	117	First stage lavas of Wainimala, Viti Levu, Fiji. (av. of 2 analyses) ²³ .
5	71.7	0.65	345	175	Lava of Curtis Is., Kermadec ^{30, 31} .
6	68.41	0.61	210	160	Obsidian fragment in tephra from Raoul Is., Kermadec ^{30, 32} .
7	73.51	1.47	610	130	Glass, pumice from Metis Shoal, Tonga ³³ .
8	65.33	1.11	280	300	Dacites from Fonualei, Tonga (av. of 11 analyses) ³³ .
9	73.46	1.08	383	-	Lava from Kamuishu Is., Mashu caldera, Hokkaido ¹¹ .
10	70.35	1.07	445	285	Low-K salic volcanic rocks from Japan-Kuriles-Saipan (av. of 19 analyses) ²⁴ .
11	70.16	1.00	268	243	ditto, S.W. Pacific regions (av. of 7 analyses) ²⁴ .
12	67.01	1.00	280	260	Low-K calc-alkaline dacite, Aoso ¹⁹ .

SiO₂, K₂O : H₂O free basis wt. %
Ba, Sr : in ppm.

と言われている²⁵。トンガ・ケルマデック、フィジー、サウスサンドイッチ列島はこのよう
な例であるが、東北日本、千島弧のような発達中期の島弧（二重弧）でも、青麻、十和田、恐山、
有珠、摩周の例で示されるような低カリウム珪長質火山岩が産し、これらが火山フロントを構
成していることは注目すべきことであろう。

これらの低カリウム珪長質岩とともに産する苦鉄質岩もまた低カリウムであり、初生マグマ
の性質を、分化後も反映していると思われる²⁰。南西太平洋地域の島弧に産する低カリウム
岩を“島弧型ソレライト系”と呼んでいる²⁶が、SiO₂-K₂O 関係では有珠珪長質岩は、明ら
かにこの系と同じ範囲に入る。しかし、有珠の場合はそれらに比べてBaとSrが高く、La/Yb
比も3.2~3.8¹¹と“島弧型ソレライト”の珪長質岩の1~2に比較して高い値を示している。

§ 9. ま と め

玄武岩ないし苦鉄質安山岩と石英安山岩が、バイモーダルに産する有珠火山の岩石について、
光量子放射化法によって13種の微量元素の分析を行った。異なる分析法によって得られている
データと比較した結果、良い一致をみた。有珠火山の岩石の化学的特徴として、全体として低
K・Rbであること、玄武岩から石英安山岩へとNi, Cr, VとCuの減少が著しいこと、逆に
Baは著しく増加すること、Sr量とその同位体比の変化の少ないことなどが挙げられる。Sr-
Ba関係図などを用いて、有珠マグマの全岩組成変化は基本的には、斜長石を主とする分別結
晶作用で説明することが可能であることを示した。また、歴史時代（1663年以後）の有珠珪
長質岩の組成変化についても検討した。最後に、有珠ソレライトおよび、低カリウム珪長質岩
としての有珠石英安山岩を、他地域のものと比較し、これらが比較的BaとSrに富むことなど
を示した。

有珠火山に関して、北海道大学の勝井義雄教授には常に有益な御教示をいただいている。光量子放射化分析にあたり、東北大学核理研の八木益雄助教授、榎本和義博士ならびにマシングループの方々、東北大学サイクロトロンR Iセンターの藤田稔教授、山寺亮博士ならびに職員の方々に御協力を賜わった。また、東北大学理学部岩鉱教室の大沼晃助助教授ならびに藤巻宏和博士には常々有益な議論をしていただいている。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学研究費（Nos. 59420015 と 59540509）を使用した。

参 考 文 献

- 1) Y. Katsui, Y. Oba, K. Onuma, T. Suzuki, Y. Kondo, T. Watanabe, K. Niida, T. Uda, S. Hagiwara, T. Nagao, J. Nishikawa, M. Yamamoto, Y. Ikeda, H. Katagawa, N. Tsuchiya, M. Shirahase, S. Nemoto, S. Yokoyama, T. Soya, T. Fujita, K. Inaba, and K. Koide : J. Fac. Sci., Hokkaido Univ. Ser. 4, **18** (1978b) 385.
- 2) 久野 久 : 火山および火山岩 (岩波書店, 1954) p. 255.
- 3) T. N. Irvine and W. R. A. Barager : Can. J. E. Sci. **8** (1971) 523.
- 4) K. Okumura, T. Soya, K. Ono, and H. Satoh : Abs. 1981 AVCEI Sympo. Volc. Soc. Japan (1981) 267.
- 5) 大場与志男, 勝井義雄 : 岩鉱 **78** (1983) 123.
- 6) Y. Oba, Y. Katsui, H. Kurasawa, Y. Ikeda, and T. Uda : J. Fac. Sci., Hokkaido Univ. Ser. 4, **20** (1983) 275.
- 7) H. Masuda, S. Nishimura, T. Ikeda, and Y. Katsui : Chem. Geol. **15** (1975) 251.
- 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) 霜鳥 洋, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **16** (1983) 301.
- 11) Y. Katsui, Y. Oba, S. Ando, S. Nishimura, Y. Masuda, H. Kurasawa, and H. Fujimaki : J. Fac. Sci., Hokkaido Univ. Ser. 4, **18** (1978a) 499.
- 12) H. Fujimaki : Ph. D. Thesis, Fac. Sci. Univ. Tokyo (1977) p. 162.
- 13) 藤巻宏和, 倉沢 一 : 地球 **27** (1981) 175.

- 14) Y. Oba : J. Fac. Sci., Hokkaido Univ. Ser. 4, **11** (1966) 185.
- 15) 藤縄明彦, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **17** (1984) 356.
- 16) S. S. Sun : Geochim. Cosmochim. Acta. **46** (1982) 179.
- 17) E. Nakamura, I. H. Campbell and S. S. Sun : Nature (in press).
- 18) T. Yoshida and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III, **16** (1984) 1.
- 19) J. B. Gill : *Orogenic andesites and plate tectonics*. (Springer-Verlag, Berlin, 1981) p. 390.
- 20) 富樫茂子 : 岩鉱 **72** (1977) 45.
- 21) M. Chiba : Bull. Volcanologiq. **29** (1966) 545.
- 22) 新野 弘, 森本良平, 小坂丈予 : 火山第2集 **5** (1960) 134.
- 23) W. B. Bryan : Carnegie Inst. Year B. **68** (1970) 187.
- 24) A. Ewart : *Trondhjemites, dacites, and related rocks*, F. Baker (ed.) (Elsevier Sci. Publ. Co., Amsterdam, 1979) p. 13.
- 25) J. B. Gill : Contr. Mineral. Petrol. **27** (1970) 79.
- 26) P. Jakes and J. B. Gill : Earth Planet. Sci. Lett. **9** (1979) 17.
- 27) W. B. Bryan : Geol. Mag. **105** (1968) 431.
- 28) I. G. Gass, P. G. Harris and M. W. Holdgate : Geol. Mag. **100** (1963) 321.
- 29) A. Gledhill and P. E. Baker : Earth Planet. Sci. Lett. **19** (1973) 369.
- 30) A. Ewart, R. N. Brothers and A. Mateen : Volc. Geoth. Res. **2** (1977) 205.
- 31) W. B. Bryan : *Trondhjemites, dacites, and related rocks*. F. Baker (ed.) (Elsevier Sci. Publ. Co. Amsterdam, 1979) p. 581.
- 32) E. F. Lloyd and S. Nathern : N. Z. Geol. Surv. Bull., **95** (1981) p. 105.
- 33) A. Ewart, W. B. Bryan : *The Western Pacific*. P. J. Coleman (ed.). (Univ. W. Aust. Pr., Perth.) p. 503.

新第三紀，靈山火山岩類の地球化学的研究

理学部地学，地質調査所*

吉田武義・阿部智彦*・青木謙一郎

§ 1. はじめに

宮城県中南部から福島県北部にかけての地域では，先第三紀基盤岩類を覆って，新第三紀火山岩類が広く分布している。このうち中新世初期から中期にかけて活動した苦鉄質～中性火山岩類は，仙台の南部地域のものは高館層，福島の東部地域のものは靈山層と呼ばれている^{1,2)}。

靈山およびその周辺の火山岩類については，その組成から未分化で始源的な火山岩であると考えられる，カンラン石玄武岩が存在する¹⁾ ことによって古くから注目され，多くの岩石学的研究がなされている^{3,4,5,6)}。本論文では，東北地方新生代火山岩類の地球化学的性質を明らかにする研究の一環として，これら靈山，天明山⁷⁾ および高館火山岩類⁸⁾ のうちの，主に玄武岩類について，主成分ならびに光量子放射化法による微量成分元素の分析を行ったので，その結果を報告し，さらにそれらの地球化学的特徴について議論する。

§ 2. 靈山火山岩類

靈山火山岩類は中新世の陸上における火山活動によって形成され，溶岩流，火山砕屑岩類および岩脈として産する¹⁾。靈山層についての地質，火山層序は八島¹⁾，周藤・八島⁴⁾ に詳しく述べられている。靈山層は下部から砂質頁岩，凝灰岩・集塊質凝灰岩・火山砕屑岩層からなり，溶岩は下部に安山岩および石英安山岩があり，玄武岩，安山岩が上部に位置する。流紋岩は八島¹⁾ によると比較的初期の活動の産物と見られる。靈山層は東縁を除いて大部分陸成層であって，西部へと次第に断層による陥没によって厚くなる。つまり，靈山層の堆積の場は東部では浅海を示し，西部へと次第に陸成層を示したものと推定されている¹⁾。

靈山層の東部に分布する天明山火山岩類の活動は下部と上部に区分でき，このうち，下部には普通輝石カンラン石玄武岩・含カンラン石玄武岩などの溶岩流が，上部にはシソ輝石安山岩溶岩流などが認められる⁷⁾。

高館火山岩類は仙台市の南部，名取川の南と阿武隈川の北，東西約12 km，南北約18 kmの地域に分布し，主として玄武岩～安山岩質溶岩流とそれらの火砕岩類から成る。層厚約60～250 mである⁹⁾。

§ 3. 分析試料の岩石学的特徴

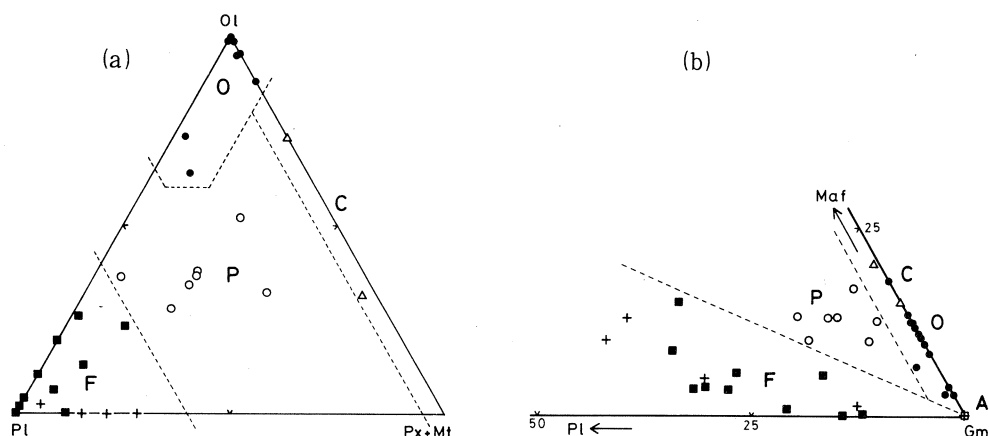
霊山火山岩類は東北地方第三紀火山岩類としては、比較的新鮮で変質作用をあまり受けていない。これまでの研究によれば、その多くが低アルカリソレイトないし高アルカリソレイト～高アルミナ玄武岩系に属する玄武岩ないし苦鉄質安山岩であり、他に少量のカルク・アルカリ系列に属する安山岩－石英安山岩－流紋岩を伴う^{1,4,6)}。

八島³⁾と八島・生出²⁾は霊山および高館地域の玄武岩質岩類は化学的に全般的に Al_2O_3 が高く、ややアルカリに乏しいことを指摘している。そしてカンラン石斑晶に富む玄武岩類は Al_2O_3 － Na_2O ＋ K_2O － SiO_2 図¹⁰⁾のソレイト岩系の、その他のものはいずれも高アルカリソレイト～高アルミナ玄武岩系の組成範囲に入ることを示している。

霊山火山岩類を構成する玄武岩類は岩相変化に富んでおり、斑晶としてはカンラン石、普通輝石、斜方輝石、斜長石等を含み、石基は普通輝石、ピジョン輝石、磁鉄鉱、黒雲母、斜長石、鱗珪石、ガラス等からなる。安山岩には無斑晶質のものと、斑状のものがあるが、無斑晶質のものが多い¹⁾。斑晶鉱物は普通輝石、斜方輝石、斜長石および鉄鉱からなる。霊山玄武岩類⁶⁾には、 MgO に富み、 FeO^*/MgO 比が1以下で、高いCr含有量を示すものがある。石坂・巽⁵⁾はこれらを未分化・始源的な島弧火山岩を代表するものであろうと考え、また、周藤ら⁶⁾は、そのうちの分化していないものについては上部マントルで生成された初生カンラン石ソレイトマグマそのものかあるいはそれに近い組成のものであると推定している。

天明山火山岩類のうち、下部は主に高アルミナ玄武岩系岩から成り、上部は高アルミナ玄武岩系岩およびカルクアルカリ岩系岩から成る⁷⁾。高館層中の火山岩類については生出⁹⁾により概括的に記載されている。

霊山および高館層中の玄武岩質岩を、阿部・青木⁸⁾は、記載岩石学的に2つのグループに大別した。すなわち、1つは約10%のカンラン石斑晶を含む型(カンラン石玄武岩)であり、もう1つは5～30%の斜長石を含む型(斜長石玄武岩)である。このカンラン石玄武岩と斜長石玄武岩の斑晶の種類と量には非常に大きな相違があるが、両者のカンラン石斑晶はともに不完全なピジョン輝石反応縁につつまれ、またピコタイト包有物をもっている。そして、両玄武岩の石基構成鉱物はほとんど同じである⁸⁾。今回このような記載岩石学的な特徴と、岩石化学との関係をさらに詳しく検討するために斑晶モード組成による岩型の区分を行った(第1図aとb)。この岩型区分には斑晶カンラン石－輝石＋鉄鉱－斜長石三角図と、斑晶苦鉄質鉱物－斜長石－石基三角図を使用する。これらのモード組成図を用いることにより、特に玄武岩質岩石をその斑晶鉱物組み合わせと量比により、次の5つの岩型に区分することができる；(○)カンラ



第1図 斑晶 カンラン石 - (輝石+鉄鉱) - 斜長石三角図(a)
 斑晶 苦鉄質鉱物 - 斜長石 - 石基三角図(b)

破線は次の各岩型の領域を示している。

O : カンラン石斑状玄武岩(●), C : カンラン石普通輝石斑状玄武岩(△), F : 斜長石斑状玄武岩(■), P : 斑状(斜長石カンラン石普通輝石斑状)玄武岩(○), A : 無斑晶質玄武岩(□), 安山岩(+).
 点示にあたっては今回得られたデータとともにこれまでにモード組成が公表されている試料^{1,4,6)}についてもプロットした。以下の図においても同様である。

ン石斑状玄武岩, (F) 斜長石斑状玄武岩, (C) カンラン石(単斜)輝石斑状玄武岩, (P) 斑状(輝石カンラン石斜長石斑状)玄武岩, (A) 無斑晶質玄武岩。各グループの領域は第1図に示した通りである。これらの図において各岩型に属する岩石は、図中で一様に分布するのではなく、かなり偏りが認められる。すなわち、カンラン石斑状玄武岩と斜長石斑状玄武岩の間にはかなり明瞭なモード組成のギャップがあり、ともに斑状玄武岩に移化するようにみえる。また、カンラン石玄武岩はほとんど連続的に無斑晶質玄武岩に移り変わる。安山岩質岩石の斑晶モード組成はほとんどが斜長石斑状玄武岩の領域に点示される。以下では、このような岩型区分にもとづいて岩石化学の検討を行う。

§ 4. 分析方法と分析結果

霊山, 天明山および高館火山岩類の代表的試料23個について、今回新たに湿式分析法による主成分元素の定量をおこなった。また、既に主成分組成が報告されている試料2個を含む13試料について光量子放射法¹¹⁾により、Ba, Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Zn, Zr と Y の13微量元素の定量を行った。放射化には東北大学核理研の電子ライナックを利用し、30 MeV 加速電子を用いた。主成分元素の分析結果を第1表に、微量元素組成をモード組成、

第1表 霊山, 天明山および高館火山岩類の主成分化学組成

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Loc.	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ
Sample No.	241	228	242	230	231	232	233	234	236	243	244	237	245
Type	O	P	O	F	F	P	O	P	P	O	O	O	O
wt. %													
SiO ₂	47.69	47.97	48.53	48.63	48.67	48.98	49.30	49.34	49.71	49.76	50.42	50.51	50.69
TiO ₂	0.61	0.88	0.63	0.84	0.81	0.67	0.56	0.51	0.76	0.61	0.55	0.57	0.62
Al ₂ O ₃	15.22	19.39	15.58	18.02	20.52	14.85	16.11	18.36	16.67	14.53	14.48	16.10	14.58
Fe ₂ O ₃	2.68	3.94	3.87	3.70	3.39	2.70	2.30	4.30	2.98	3.22	3.45	1.82	1.90
FeO	6.52	4.27	5.79	4.66	5.31	6.44	6.78	4.83	6.22	6.14	5.62	7.13	7.16
MnO	0.15	0.15	0.18	0.15	0.23	0.21	0.18	0.17	0.18	0.17	0.17	0.13	0.16
MgO	12.43	7.36	10.64	8.66	5.07	10.52	10.26	7.94	9.35	11.26	11.16	9.91	10.80
CaO	9.50	9.27	9.53	9.38	10.22	10.40	9.89	10.30	9.73	9.27	9.20	9.96	9.87
Na ₂ O	2.11	3.07	2.37	3.26	2.81	2.06	2.32	2.14	2.53	2.30	2.45	2.24	2.14
K ₂ O	0.40	0.67	0.30	0.61	0.59	0.24	0.46	0.38	0.83	0.53	0.44	0.37	0.45
P ₂ O ₅	0.13	0.18	0.37	0.17	0.16	0.01	0.20	0.10	0.13	0.06	0.10	0.04	0.08
H ₂ O ⁺	1.60	1.48	1.12	1.13	1.17	1.58	0.54	0.88	0.70	1.42	1.36	0.76	0.71
H ₂ O ⁻	0.55	0.82	0.93	0.49	0.62	1.34	0.74	0.60	0.20	0.49	0.44	0.45	0.76
Total	99.59	99.45	99.84	99.70	99.57	100.00	99.64	99.85	99.99	99.76	99.84	99.99	99.92

No.	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25
Loc.	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	TEN	TEN	TEN	TEN	TEN	TAK	TAK	TAK
Sample No.	238	239	246	240	253	254	255	256	257	135	138	139
Type	F	P	F	O	O	F	P	P	And	F	F	F
wt. %												
SiO ₂	50.86	51.48	51.78	52.42	47.64	48.10	48.69	49.13	55.96	49.33	52.76	53.38
TiO ₂	0.76	0.38	0.93	0.56	0.65	0.74	0.63	0.66	0.48	0.50	0.75	0.88
Al ₂ O ₃	20.26	20.32	19.38	16.89	14.45	18.89	17.13	19.38	19.89	21.04	18.04	17.91
Fe ₂ O ₃	3.53	2.62	3.41	1.31	7.12	3.04	2.88	2.80	3.43	3.01	2.64	2.88
FeO	5.51	4.44	5.00	7.16	2.76	6.43	6.00	4.95	3.16	4.40	6.05	6.86
MnO	0.16	0.14	0.18	0.13	0.18	0.15	0.13	0.17	0.11	0.12	0.23	0.19
MgO	4.23	6.14	4.58	7.36	11.35	4.62	8.90	7.66	2.26	4.89	4.72	3.96
CaO	9.56	8.91	8.94	9.47	10.53	9.93	9.78	10.83	8.47	11.80	9.77	8.34
Na ₂ O	2.74	3.03	2.99	2.73	2.40	2.60	2.54	2.53	3.54	2.43	2.84	3.29
K ₂ O	0.67	0.68	0.71	0.55	0.30	0.31	0.46	0.31	0.66	0.28	0.53	0.95
P ₂ O ₅	0.16	0.12	0.17	0.09	0.08	0.09	0.10	0.10	0.23	0.12	0.23	0.30
H ₂ O ⁺	0.67	0.83	0.42	0.62	1.81	3.57	1.37	0.89	0.66	0.64	0.65	0.73
H ₂ O ⁻	0.55	0.61	1.09	0.24	0.66	1.18	0.80	0.44	0.69	1.30	0.52	0.25
Total	99.66	99.70	99.58	99.53	99.93	99.65	99.41	99.85	99.54	99.86	99.73	99.92

分析者：阿部智彦

RYZ：霊山火山岩類，TEN：天明山火山岩類，TAK：高館火山岩類

Type：本文参照（And：安山岩）

1. ピクライト玄武岩 福島県伊達郡梁川町鹿野新田（大野建材採石場）
2. 普通輝石カンラン石玄武岩 宮城県伊具郡丸森町峠西方500m道路沿崖
3. 普通輝石カンラン石玄武岩 福島県伊達郡梁川町薬師下東方500m崖
4. 普通輝石カンラン石玄武岩 福島県伊達郡梁川町石角坊東方700m（霜山採石場）
5. 普通輝石シン輝石玄武岩 宮城県角田市南山の内東方1.2km小田川沿崖
6. 普通輝石カンラン石玄武岩 宮城県伊具郡丸森町北山南西2km
7. 普通輝石カンラン石玄武岩 福島県伊達郡梁川町松坂峠北方400m崖
8. 普通輝石カンラン石玄武岩 宮城県伊具郡丸森町大館（採石場）
9. 普通輝石カンラン石玄武岩 福島県相馬市行合道北方1km離岩
10. 普通輝石ピクライト玄武岩 福島県伊達郡梁川町栗生南西900m
11. 普通輝石ピクライト玄武岩 福島県伊達郡梁川町栗生南西400m

- | | |
|--------------------|----------------------------------|
| 12. 普通輝石カンラン石玄武岩 | 宮城県角田市権現堂 |
| 13. カンラン石玄武岩 | 福島県伊達郡梁川町大石東北 700 m |
| 14. 普通輝石含有カンラン石玄武岩 | 福島県相馬市行合道北方 1 km 離岩 |
| 15. 普通輝石カンラン石玄武岩 | 宮城県伊具郡丸森町次郎太郎山 (採石場) |
| 16. 斜長石斑状玄武岩 | 福島県伊達郡梁川町立石 |
| 17. 普通輝石含有カンラン石玄武岩 | 福島県伊達郡梁川町松坂峠北方 500m 崖 |
| 18. 普通輝石カンラン石玄武岩 | 宮城県伊具郡丸森町大内 |
| 19. カンラン石含有玄武岩 | 宮城県伊具郡丸森町斉川鉱泉 |
| 20. 普通輝石カンラン石ドレライト | 福島県相馬市北沢北西 800 m 崖 |
| 21. 普通輝石カンラン石玄武岩 | 福島県相馬市北沢西方 1 km 崖 |
| 22. シン輝石安山岩 | 宮城県伊具郡丸森町大内字斉川 |
| 23. 普通輝石カンラン石玄武岩 | 宮城県仙台市坪沼 (片桐採石場) |
| 24. カンラン石玄武岩 | 宮城県名取市五社山の西 1.2 km ⁸⁾ |
| 25. シン輝石含有カンラン石安山岩 | 宮城県柴田郡村田町小泉 ⁸⁾ |

無水に再計算した主成分組成とともに第 2 表に示した。

§ 5. 霊山火山岩類の主成分組成と斑晶モード組成

今回得られた分析値ならびにこれまでに公表されている分析値のうち斑晶モード組成が示されており、先に述べた岩型分類が可能なものについて主成分組成と斑晶モード組成との間の関係を見るために 3 つの変化図を作成した (第 2, 3 a, 3 b 図)。第 2 図に示されているように全岩の MgO が減少するにつれて、一般に、斑晶カンラン石は減少し、一方、斜長石斑晶は増加している。それに対して単斜輝石は最初増加し、その後減少しているように見える。これは、しかし、各岩型毎に見るとかなり様子が異なる。まず、カンラン石斑状玄武岩では、カンラン石の単調な減少に対して、単斜輝石や斜長石はほとんど増加せず、無斑晶質玄武岩に移化する。それに対してカンラン石単斜輝石玄武岩、斑状玄武岩と斜長石斑状玄武岩はほぼ一連のモード組成変化を示し、カンラン石と単斜輝石斑晶とが MgO % の減少に伴い単調に減少し、一方、斜長石斑晶は増加する。このようなカンラン石斑状玄武岩とその他の玄武岩との間のトレンドの違いは第 3 図においても明瞭に認められる。カンラン石斑状玄武岩は SI の減少あるいは Al_2O_3 の増加とともに単調に斑晶モードを減じ、SI が 30、あるいは Al_2O_3 が 19% 前後で無斑晶質となる。その間、分別鉱物はほとんどカンラン石のみである。それに対してカンラン石単斜輝石玄武岩、斑状玄武岩、斜長石斑状玄武岩では苦鉄質斑晶のモードは減少するものの斑晶量そのものはほとんど変わらないか、あるいは増加する傾向がある。すなわち、カンラン石斑状玄武岩とその他の玄武岩とでは結晶分化系列が異なるといえる。第 3 図 (b) から判断して斜長石斑状玄武岩には Al_2O_3 含有量が高く、 Al_2O_3 の減少につれて、斑晶量 (主に斜長石) が低下するタイプと、安山岩類とほとんど同じ Al_2O_3 量を持ち、斑晶に富んだ安山岩に近いタイ

第2表 霊山、天明山および高館火山岩類のモード組成ならびに微量元素組成

No.	1	3	7	13	2	20	4	5	23	19	16	24	25
Loc.	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	RYZ	TEN	RYZ	RYZ	TAK	TEN	RYZ	TAK	TAK
Sample No.	241	242	233	245	228	255	230	231	135	254	246	138	139
Type	0	0	0	0	P	P	F	F	F	F	F	F	F
vol. %													
Ol	11.8	9.1	5.8	8.3	7.4	6.1	9.5	-	2.0	0.8	-	0.2	0.3
Cpx	-	1.2	0.8	-	5.7	3.8	5.4	2.9	1.8	-	-	-	-
Pl	-	-	2.5	0.1	13.1	6.3	25.8	26.0	28.5	20.5	14.4	11.9	12.2
Opx	-	-	-	-	-	-	-	0.2	-	-	-	-	0.6
Ore	-	-	-	-	0.1	-	0.3	0.3	-	-	-	-	-
Groundmass	88.2	89.7	90.9	91.6	73.7	83.8	59.0	70.6	67.7	78.7	85.6	87.9	86.9
wt. %													
SiO ₂	48.94	49.63	50.12	51.49	49.38	50.07	49.58	49.78	50.38	50.68	52.80	53.53	53.95
TiO ₂	0.63	0.64	0.57	0.63	0.91	0.65	0.86	0.83	0.51	0.78	0.95	0.76	0.89
Al ₂ O ₃	15.62	15.93	16.38	14.81	19.96	17.62	18.37	20.99	21.49	19.91	19.76	18.30	18.10
Fe ₂ O ₃	2.75	3.96	2.34	1.93	4.06	2.96	3.77	3.47	3.07	3.20	3.48	2.68	2.91
FeO	6.69	5.92	6.89	7.27	4.40	6.17	4.75	5.43	4.49	6.78	5.10	6.14	6.93
MnO	0.15	0.18	0.18	0.16	0.15	0.13	0.15	0.24	0.12	0.16	0.18	0.23	0.19
MgO	12.76	10.88	10.43	10.97	7.58	9.15	8.83	5.19	4.99	4.87	4.67	4.79	4.00
CaO	9.75	9.75	10.05	10.03	9.54	10.06	9.56	10.45	12.05	10.46	9.12	9.91	8.43
Na ₂ O	2.17	2.42	2.36	2.17	3.16	2.61	3.32	2.87	2.48	2.74	3.05	2.88	3.33
K ₂ O	0.41	0.31	0.47	0.46	0.69	0.47	0.62	0.60	0.29	0.33	0.72	0.54	0.96
P ₂ O ₅	0.13	0.38	0.20	0.08	0.19	0.10	0.17	0.16	0.12	0.09	0.17	0.23	0.30
Total	100.00	100.00	99.99	100.00	100.02	99.99	99.98	100.01	99.99	100.00	100.00	99.99	99.99
Alkali	2.58	2.73	2.83	2.63	3.85	3.08	3.94	3.47	2.77	3.07	3.77	3.42	4.29
K ₂ O/Na ₂ O	0.19	0.13	0.20	0.21	0.22	0.18	0.19	0.21	0.12	0.12	0.24	0.19	0.29
FeO*	9.17	9.48	9.00	9.01	8.05	8.83	8.14	8.55	7.25	9.66	8.23	8.55	9.55
FeO*/MgO	0.72	0.87	0.86	0.82	1.06	0.97	0.92	1.65	1.45	1.98	1.76	1.78	2.39
MgO/FeO*	1.39	1.15	1.16	1.22	0.94	1.04	1.08	0.61	0.69	0.50	0.57	0.56	0.42
SI	52.06	47.12	46.86	48.52	38.91	43.45	42.23	30.16	33.24	27.67	28.01	28.58	22.42
ppm													
Sc	27.1	19.3	26.9	25.2	31.4	28.3	25.6	36.0	25.7	23.9	27.4	28.2	31.3
Cr	889	570	609	840	198	439	211	86.3	116	72.5	55.2	64.9	44.9
Co	51.1	47.3	49.1	54.1	34.5	44.1	33.8	32.2	33.1	33.3	28.5	33.2	32.3
Ni	317	209	256	296	126	209	128	25.8	41.2	40.1	37.7	38.6	29.7
Zn	92	42	80	49	75	48	85	55	64	99	101	74	123
Rb	2.2	0.9	2.3	6.8	5.2	7.0	7.0	3.2	1.1	3.2	11.9	6.5	14.3
Cs	-	-	-	-	-	-	-	0.01	0.08	-	-	-	0.34
Sr	121	163	145	144	412	239	423	303	391	207	303	328	390
Ba	176	295	215	329	-	300	205	221	88	147	299	187	155
Ce	7.1	9.3	7.8	9.0	17.6	7.9	17.5	10.0	7.0	15.0	19.7	10.9	23.2
Y	15.2	15.8	17.6	16.6	21.1	16.6	18.6	17.3	11.7	22.6	22.3	20.6	26.5
Nb	2.9	3.0	3.9	4.0	6.2	1.5	5.7	1.3	2.5	6.5	7.5	2.4	3.6
Zr	40.0	45.8	44.6	47.5	69.9	40.5	69.1	34.1	25.8	71.0	88.4	44.7	75.5

Ol : カンラン石, Cpx : 普通輝石, Pl : 斜長石, Opx : 斜方輝石,

Ore : スピネルおよび鉄鉱。

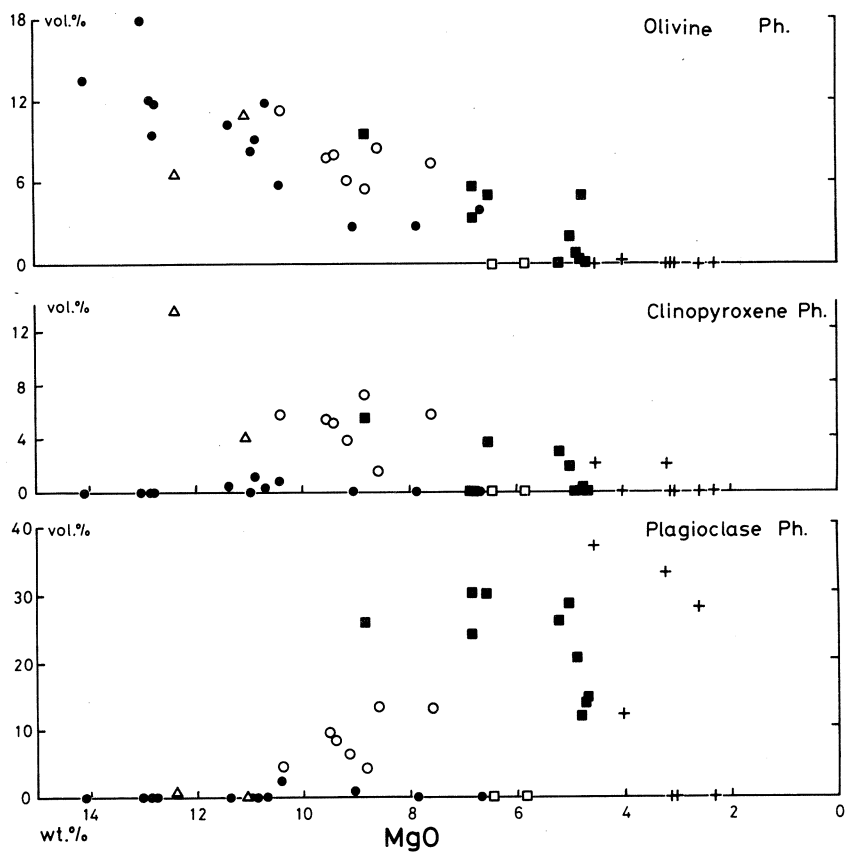
FeO* : FeO + 0.9 × Fe₂O₃, SI = 100 × MgO / (MgO + FeO* + Na₂O + K₂O)。

試料番号は第1表に同じ。

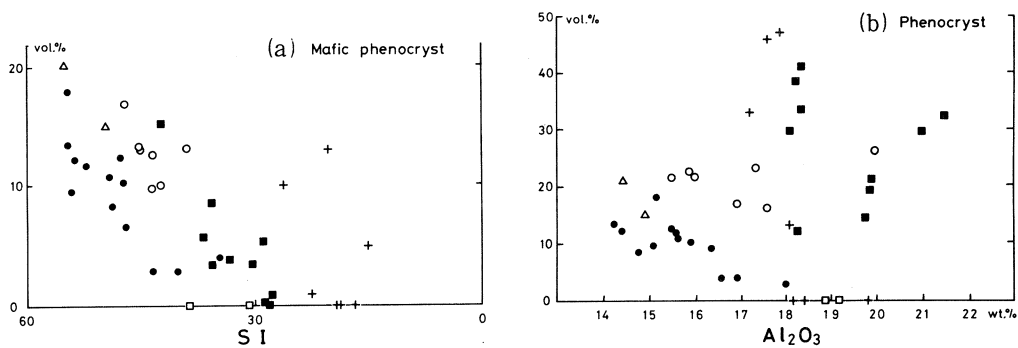
ここに示した主成分組成は H₂O ± を除去し, 100% に再計算したものである。

ブとがある。後者は斑状玄武岩からの分化物と考える事ができるが, 前者では独自に斜長石斑晶のみの分別を行った可能性がある。このような各岩型毎の斑晶モード組成変化上の特徴は, これらの岩石の成因を考える際に重要な制約条件となるはずである。

第4図(a)に SiO₂ - (Na₂O + K₂O) 関係を示す。図中の破線は高アルミナ玄武岩系と低アルカリソレライト岩系の境界線¹²⁾である。カンラン石単斜輝石斑状玄武岩(C)と, カンラ



第2図 MgO - 斑晶モード組成変化図。
MgOは無水の値を使用し、モード組成は体積%を用いた。
記号は第1図に示したものと同一である。

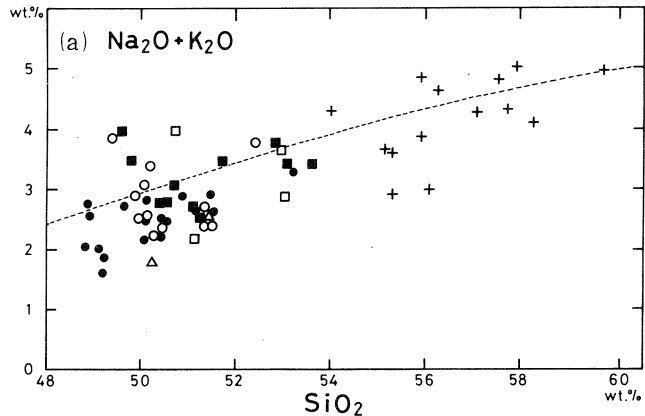


第3図 SI - 苦鉄質斑晶モード組成図(a)と Al_2O_3 -全斑晶モード組成図(b)
SIならびに Al_2O_3 は無水の値を使用し、モード組成は体積%を用いた。
記号は第1図に示したものと同一である。

ン石斑状玄武岩 (O) のほとんどは図中で低アルカリソレイト岩系の領域にプロットされる。それに対して、斑状玄武岩 (P), 斜長石斑状玄武岩 (F), 無斑晶質玄武岩 (A) および安山岩質岩は両岩系の境界線をまたいで分布している。斑状玄武岩の分布域の最も低アルカリ側端部にカンラン石単斜輝石斑状玄武岩 (C) が位置している。

第4図 (b) の SiO_2 - Al_2O_3 図で、カンラン石斑状玄武岩 (O) と、斜長石斑状玄武岩 (F) の分布域は、ほとんど重ならず、両者は図中に引いた $\text{Al}_2\text{O}_3 = 18.00\%$ の破線一本で区分できる。それに対して斑状玄武岩はこれらの分布域にまたがって散在している。また、 $\text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O} - \text{Al}_2\text{O}_3$ 関係を示した第5図において、カンラン石斑状玄武岩 (O) は低アルカリ低アルミナ側に、斜長石斑状玄武岩 (F) は高アルカリ高アルミナ側に点示される。それに対して斑状玄武岩 (P) は前2者の分布域全域に分布する。無斑晶質玄武岩ならびにかなりの安山岩質岩は破線の Al_2O_3 の多い側に点示される。

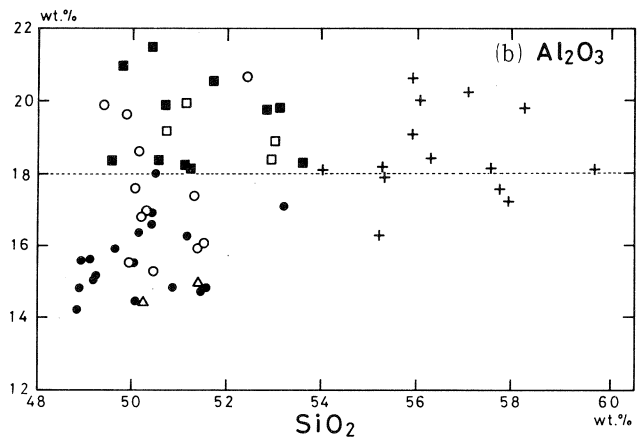
斑晶モード組成によって分類した各岩型の間には、これらの変化図上での分布域の違いとともに、組成変化トレンドの違いが認められる。すなわち、カンラン石斑状玄武岩は SiO_2 も



第4図

(a) SiO_2 - $\text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$ 図。

図中の破線は高アルミナ玄武岩系とソレイト岩系の境界線¹²⁾である。カンラン石斑状玄武岩 (O) の大部分は図中でソレイト岩系の領域に点示される。



(b) SiO_2 - Al_2O_3 図

カンラン石斑状玄武岩 (O) と、斜長石斑状玄武岩 (F) の分布域は、この図上でほとんど重ならず、両者は図中に引いた $\text{Al}_2\text{O}_3 = 18.00\%$ の破線一本で区分できる。 SiO_2 , $\text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$ ならびに Al_2O_3 は無水の値を使用した。

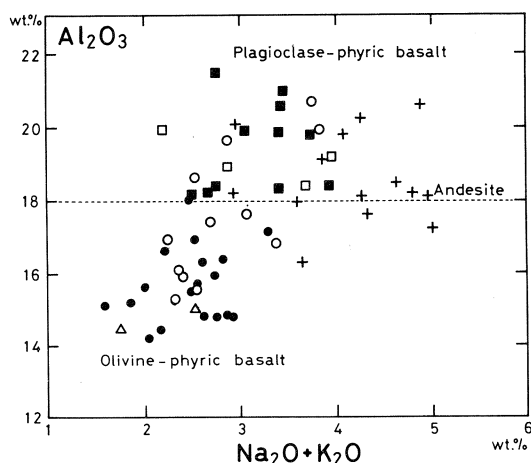
記号は第1図に示したものと同一である。

アルカリ, Al_2O_3 も増加するトレンドを示し, 一方, 特に Al_2O_3 に富む斜長石斑状玄武岩は SiO_2 の増加に伴い, Al_2O_3 が減少するトレンドを示している。これらのトレンドはそれぞれ, 前者は斑晶カンラン石が, 後者は斑晶斜長石が結晶分化したと考えることによって説明できる。それに対してカンラン石単斜輝石斑状玄武岩および斑状玄武岩が作るトレンドは SiO_2 がほとんど変化せず, Al_2O_3 , アルカリが増加するものであり, これらの岩型の斑晶モード組成の変化にもみられるカンラン石と単斜輝石の減少, すなわち結晶分別がこのトレンドを形成したと推定される。カンラン石斑状玄武岩ならびに斜長石斑状玄武岩のトレンドはカンラン石+単斜輝石の分別によると推定されるトレンドと, それぞれ斜交するが, 両者がこのトレンドから派生したと考える事は可能であろう。

これまでの研究^{1, 4, 6)}によれば, カンラン石単斜輝石斑状玄武岩 (C), 斑状玄武岩 (P), カンラン石斑状玄武岩 (O) と斜長石斑状玄武岩 (F) のいずれも霊山火山岩類の活動の中期に活動しており, 無斑晶質玄武岩 (A) ならびによりアルカリに乏しい安山岩は主に前期に, そして, よりアルカリと Al_2O_3 に富んだ安山岩類は後期に主に活動している。

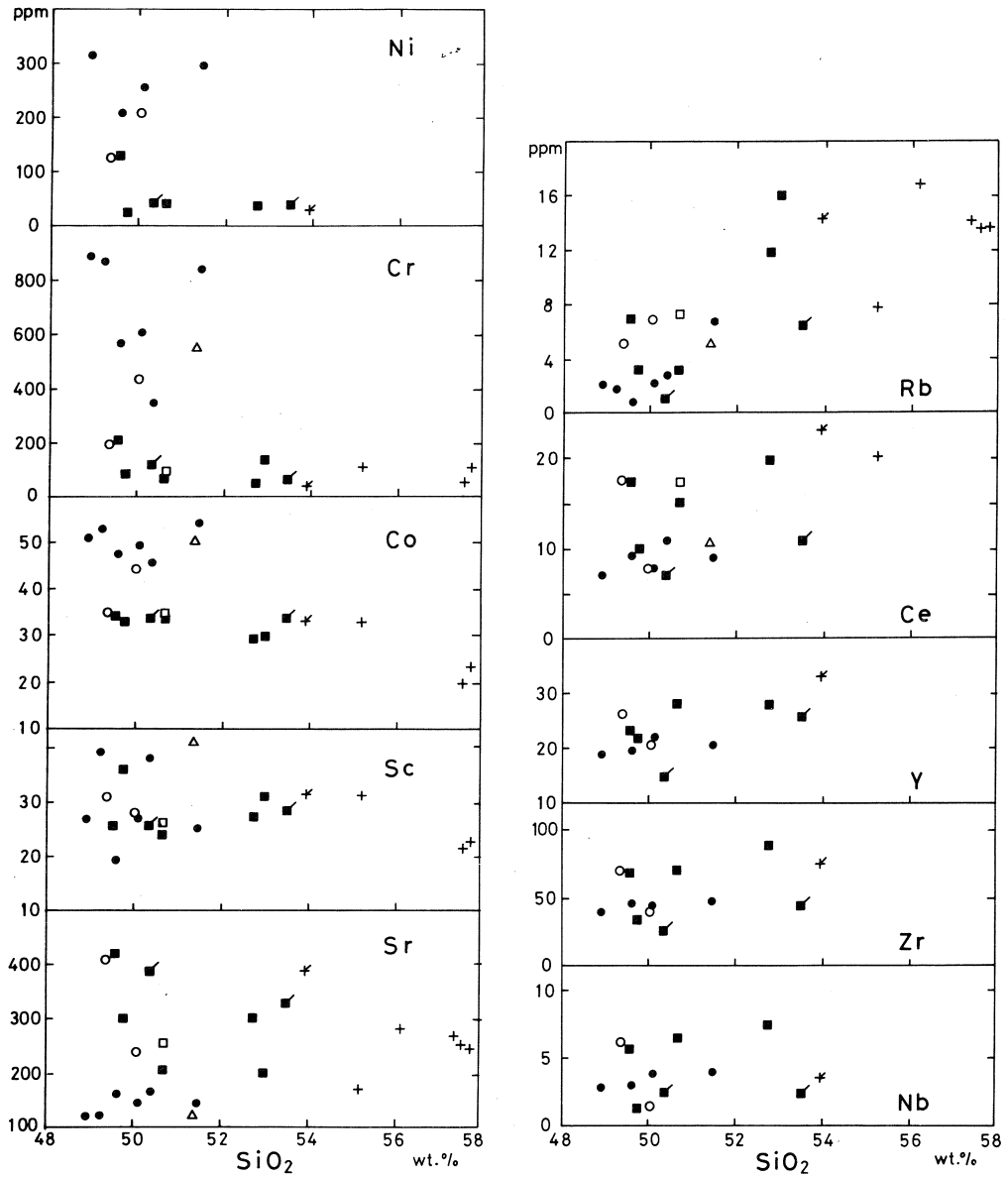
§ 6. 霊山火山岩類の微量元素組成

第6図に SiO_2 - 微量元素組成変化図を示す。微量元素のうち, Ni と Cr はカンラン石斑状玄武岩から斜長石斑状玄武岩へと急激に減少している。Co の含有量はカンラン石斑状玄武岩と斜長石斑状玄武岩とでは明瞭に差があり, 前者で高い。斜長石斑状玄武岩における Ni, Cr と Co 含有量はかなり一定しており, その結晶分化に苦鉄質鉱物があまり関与していないと考えられることと矛盾しない。Sc はかなり変化幅が大きい値そのものは玄武岩から玄武岩質



第5図 $Na_2O+K_2O-Al_2O_3$ 図。

本図において, カンラン石斑状玄武岩 (O) は低アルカリ低アルミナ側 (低アルカリソレイト岩系の領域) に, 斜長石斑状玄武岩 (F) は高アルカリ高アルミナ側 (低アルカリソレイト~高アルミナあるいは高アルカリ玄武岩系の領域) に点示される。それに対して斑状玄武岩 (P) は前2者の分布域全域に見られる。 Na_2O+K_2O ならびに Al_2O_3 は無水の値を使用した。記号は第1図に示したものと同一である。



第6図 SiO₂ - 微量元素組成変化図。

記号のうち斜線を付けたものは高館火山岩類を示している。それ以外の記号は第1図に示したものと同一である。

これらの岩石の微量元素組成は岩型により異なるとともに産地による差異も明瞭に認められる。

安山岩へとほぼ一定のようである。Sr濃度の変化幅は非常に大きく、その挙動には岩型による差が認められる。すなわち、カンラン石玄武岩ではSiO₂の増加に伴いSrは低い値から

ずかに増加している。それに対して斜長石斑状玄武岩では高い値から減少する傾向が認められる。

SiO₂ の増加に伴い増加するインコンパティブル元素においては、その濃度は岩型により異なるとともに産地による差異も認められるようである。今回分析した高館玄武岩は霊山玄武岩類に比較して Rb, Ce, Y, Zr と Nb において低い傾向が認められる。霊山および天明山の玄武岩類について言えば、これらのインコンパティブル元素の濃度が、カンラン石斑状玄武岩ではその他の玄武岩に比較してより低い値を示す傾向が認められる。

§ 7. 東北本州弧, 新第三紀火山岩類の地球化学的特徴

現在の東北本州は典型的な島弧海溝系とされており、第四紀の火山岩類の地球化学的性質については比較的よくわかっている。島弧火山岩類の地球化学的性格の時代的な変遷は島弧の進化過程を考える際の最も重要なデータのの一つである。その意味で霊山火山岩類の地球化学的性格を第四紀島弧火山岩類と比較することは重要である。

第3表に東北本州弧, 新生代火山岩類組成の始源マントル値による規格化¹³⁾値を示す。表中, 高館高アルミナ玄武岩以外の火山岩組成は, これまでに報告されている分析値を用いて, 最小自乗法により SiO₂ = 50.00 % における組成を計算して得た結果である。始源マントル組成については Wood¹⁴⁾, Sun¹⁵⁾ と Nakamura¹⁶⁾ を参照した。このような規格化値において, 東北本州弧第四紀玄武岩では, 化学的性格が類似する前後の元素と比較した際に Ba, K, Sr に正の異常がみられ, 一方, Nb に負の異常がみられる¹³⁾。霊山カンラン石斑状玄武岩(OB)ならびに斜長石斑状玄武岩(PLB)でも, Ba, K の正異常がみられ, 後者にはさらに Sr の正異常も認められる。従って, 霊山玄武岩類の微量元素組成に見られる基本的な特徴は深海性ソレイトよりも島弧型の玄武岩に類似するものである。しかしながら, 東北本州弧玄武岩質岩に顕著に認められる特徴である Sr の正異常や Nb の負異常が, 霊山玄武岩類のうち, 特にカンラン石斑状玄武岩には見られず, おそらく両者の時代的あるいは, 生成環境のテクトニックな違いが, 地球化学的特徴にも反映しているものと推定される。

第7図は霊山, 天明山および高館火山岩類の深海性ソレイト (tholeiitic MORB) 規格化パターンである。規格化にあたって使用した深海性ソレイトの微量元素組成は Pearce¹⁷⁾ による値である。深海性ソレイト規格化パターンからも, これらの玄武岩類が島弧型の地球化学的特徴をもっていることがよく分かる。霊山斜長石斑状玄武岩はカンラン石斑状玄武岩に比較して Sr, K, Rb と Ce が高い。これらと天明山玄武岩類, あるいは高館火山岩類の規格化

第3表 東北本州弧, 新生代火山岩類組成の始源 マントル値による規格化

	Primitive mantle value	八幡平	高館HAB	霊山OB	霊山PLB	目黒	八幡平	高館HAB	霊山OB	霊山PLB	目黒
		↑	HAB	↑	HAB	HAB	↑	HAB	↑	HAB	HAB
SiO ₂		50.00	50.38	50.00	50.00	50.00	Mantle-normalized values				
Cs	0.019	0.08	0.08	-	-	1.32	4.21	-	-	-	69.47
Rb	0.69	2.0	1.1	3.0	6.7	41.6	2.90	0.55	4.35	9.71	60.29
Ba	6.81	327	88	251	222	897	48.02	4.40	36.86	32.60	131.72
Th	0.088	0.43	-	0.36	0.67	-	4.89	-	4.09	7.61	-
U	0.027	0.14	-	-	-	-	5.19	-	-	-	-
Nb	0.75	1.7	2.5	3.42	4.85	1.76	2.27	0.71	4.56	6.47	2.35
K	240	1826	2408	3072	5064	10294	7.61	10.03	12.80	21.10	42.89
La	0.708	3.65	-	2.99	6.41	22.5	5.16	-	4.22	9.05	31.78
Ce	1.848	6.03	7.0	8.47	17.7	27.8	3.26	0.70	4.58	9.58	15.04
Sr	23.7	281	391	136	322	534	11.86	3.26	5.74	13.59	22.53
P	92	436	524	655	436	960	4.74	5.70	7.12	4.74	10.43
Sm	0.447	1.91	-	1.64	2.58	4.75	4.27	-	3.67	5.77	10.63
Zr	11	35.1	25.8	44.4	62.1	60.4	3.19	0.29	4.04	5.65	5.49
Hf	0.35	0.84	-	-	-	-	2.40	-	-	-	-
Eu	0.16	0.82	-	0.62	0.89	1.12	5.13	-	3.88	5.56	7.00
Ti	1300	5216	3058	3417	4856	6175	4.01	2.35	2.63	3.74	4.75
Tb	0.107	0.35	-	0.43	0.55	-	3.27	-	4.02	5.14	-
Y	4.69	16.1	11.7	16.3	19.5	20.2	3.43	0.39	3.48	4.16	4.31
Yb	0.477	1.54	-	1.73	2.03	2.63	3.23	-	3.63	4.26	5.51
Lu	0.074	0.25	-	0.24	0.29	0.40	3.38	-	3.24	3.92	5.41
Sc	7.9	30.3	25.7	29.6	30.1	26.9	3.84	0.63	3.75	3.81	3.41
Co	110	36.6	33.1	50.7	33.3	33.8	0.33	0.30	0.46	0.30	0.31
Cr	3000	72.8	116	698	119	276	0.02	0.46	0.23	0.04	0.09
Ni	2000	47.1	41.2	269	87	137	0.02	0.46	0.13	0.04	0.07

T : 低アルカリソレイト岩系,

HAB : 高アルカリソレイト/高アルミナ玄武岩系。

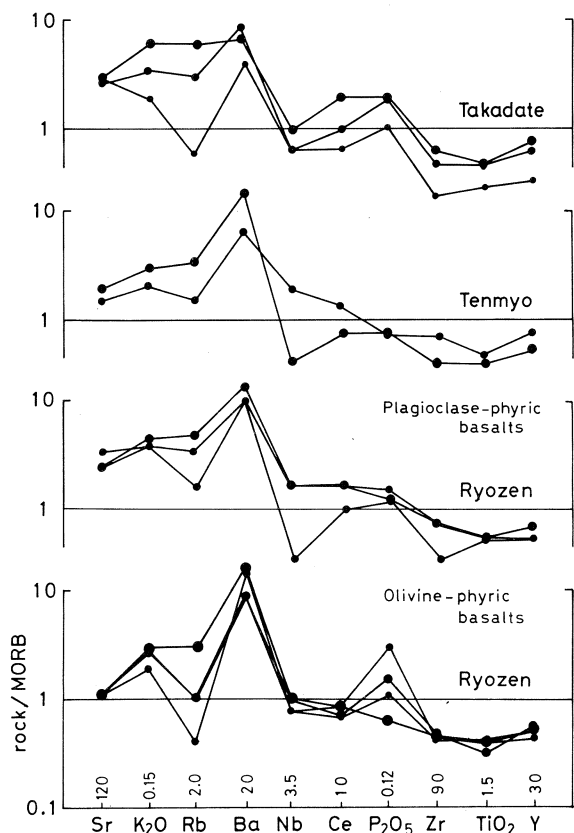
表中、高館高アルミナ玄武岩以外の火山岩組成は、これまでに報告されている分析値を用いて、最小自乗法により $\text{SiO}_2 = 50.00\%$ における組成を計算して得た結果である¹³⁾。

始源マントル組成については Wood¹⁴⁾, Sun¹⁵⁾ と Nakamura ら¹⁶⁾ を参照した。

パターンとは基本的には似通っている。詳しい比較検討は今後の問題であるが、霊山斜長石斑状玄武岩や天明山玄武岩の一部に、霊山カンラン石斑状玄武岩には見られない Nb の負異常を示す岩石が見られることは重要であろう。

§8. さ い ご に

新第三紀、霊山火山岩類ならびに天明山、高館火山岩類のうち、主に玄武岩類について新たに23岩石試料の全岩分析を行い、さらに、このうち13個について光量子放射化法による微量元素組成の分析を行った。これらの新第三紀玄武岩類は斑晶のモード組成に基づいて、5つのグループに分類することができる。組成変化図上でカンラン石斑状玄武岩と斜長石斑状玄武岩はかなり明瞭な分布域の違いを示し、前者は低アルカリソレイト岩系の領域に、後者は低アル



第7図 霊山, 天明山および高館火山岩類の深海性ソレイト (tholeiitic MORB) 規格化パターン。規格化にあたって使用した深海性ソレイトの微量元素組成は Pearce⁷⁾ による値である。

カリソレイトから高アルミナ玄武岩系の領域に点示される。

これに対してカンラン石, 単斜輝石と斜長石の斑晶を同程度もつ斑状玄武岩は, 前2者の分布域全域に点示される傾向がある。これらはそれぞれ特有の岩石学的, 地球化学的特徴を有しており, その全岩組成変化の成因について主にモード組成変化図を用いて考察した。

火山岩の時代的な組成変化傾向を検討するためにこれらの火山岩類を, 始源マントル組成ならびに深海性ソレイトの組成で規格化し, その元素パターンについて論じた。これらの元素パターンは東北本州弧第四紀火山を構成する玄武岩類とは少し異なるが, 基本的には島弧型を示している。著しい Ba や K, Sr の正異常と, Zr や TiO_2 の負異常の存在にもかかわらず, 多くの玄武岩質岩で Nb の負異常がはっきりしない点, これらの岩石の微量元素組成に見られる特徴のうち, 最も重要なものの一つであろう。

本研究にあたって、東北大学理学部核理研の八木益男助教授、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 RI センターの藤田稔教授、山寺亮博士ならびに職員の方々には、種々の御便宜を図って頂いた。また、宮城教育大学、舟山裕士教授、地質調査所仙台出張所の谷正巳前所長、谷口政碩主任研究官および名取博夫所長には本論をまとめるにあたって大変御世話になった。なお、本研究の一部に、文部省科学研究費(No.59420015)を使用した。これらの方々ならびに関係当局に深謝する。

参 考 文 献

- 1) 八島隆一：福島大学芸学部理科報告 **11** (1962) 31.
- 2) 八島隆一，生出慶司：地団研専報 **12** (1966) 103.
- 3) 八島隆一：岩鉱 **50** (1963) 135.
- 4) 周藤賢治，八島隆一：岩鉱 **69** (1974) 373.
- 5) 石坂恭一，巽 好幸：岩鉱 **75** (1980) 10.
- 6) 周藤賢治，八島隆一，滝本俊明：岩鉱 **80** (1985) 55.
- 7) 阿部智彦，舟山裕士，青木謙一郎：昭和53年度三鉱学会講演要旨 (1978) p.106.
- 8) 阿部智彦，青木謙一郎：岩鉱 **62** (1969) 177.
- 9) 生出慶司：岩鉱 **45** (1961) 149.
- 10) H. Kuno : Jour. Petrol. **1** (1960) 121.
- 11) T. Yoshida, H. Fujimaki and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ., Ser. III **15** (1981) 101.
- 12) H. Kuno : Jour. Petrol. **6** (1965) 302.
- 13) T. Yoshida and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ., Ser. III, **16** (1985) 1.
- 14) D. A. Wood, J. Tarney and B.L. Weaver : Tectonophysics **75** (1981) 91.
- 15) S. S. Sun : Geochim. Cosmochim. Acta. **46** (1982) 179.
- 16) E. Nakamura, I. H. Campbell and S. S. Sun : Nature (in press).
- 17) J. A. Pearce : " *Continental basalts and mantle xenoliths* " (1983) p. 230.

Ⅳ. 加速器・データ処理装置稼動状況

昭和59年度マシン報告

核理研マシングループ

一戸 隆・栗原 亮・高橋重伸

柴崎義信・武藤正勝・小山田正幸

浦澤茂一

概 況

後期にガンパルサの故障が多発し、一部マシンタイムを繰り越すことになった。

実施状況

第2実験室を使用するグループが更に増え、特にⅡ系は実験のための測定器類の組み替えが頻繁に行なわれている。このため運転停止日が増加した。結果は第1表に示す。

保守状況

- 故障によるマシン停止は真空リーク、ガンパルサが上位を占めている。
 - ・真空リークはビームを見失うことによるものが多い。対策としてビームスクリーンの新設、調整時の繰り返しを下げる等を検討中である。
 - ・ガンパルサの故障はそのほとんどが寿命的劣化によるもので、部分更新を行う予定である。
- 定期的工事
 - ・A部(WG+ACC.T)のVSWR改善 8月に測定し、1月に修理、調整を行った。
 - ・クライストロン・パルサとガンパルサの de Qing が完成した。
 - ・ビーム・ロス・モニタの新設を行った。

第1表 マシンタイム実施状況。

課 題	前 期		後 期		昭和59年度		備 考
	割当	実施	割当	実施	割当	実施	
es (堀田)	0	1*	0	0	0	1*	
es (鳥塚)	8	8	3	3	11	11	
es (斎藤)	3	3	5	5	8	8	
es (藤平)	2	2	5	2	7	4	3 シフト繰越
es (川添)	6	6	2	2	8	8	
rπ (庄田)	7	7	5	5	12	12	
rπ (庄田)	5	5	6	6	11	11	
rπ (成)	0	0	8	8	8	8	
Tag(p)(鳥塚)	12	12	—	—	12	12	
Tag(n)(寺沢)	8	8	—	—	8	8	
ee'p	6	6	8	6	14	12	2 シフト繰越
rp (菅原)	10	10	3	3	13	13	
rp (玉江)	2	2	4	4	6	6	
rp (宮瀬)	0	0	4	4	4	4	
rp (上野)	0	0	4	4	4	4	
rp (坪田)	—	—	2	2	2	2	
rp(Thompson)	6	6	10	10	16	16	
ND	20	20	17	14	37	34	3 シフト繰越
RI, 物性	22	22+1*	21	19	43	41+1*	2 シフト繰越
MWPC	1	1	—	—	1	1	
Tag	4	4	—	—	4	4	
Al ダクト	2	1	1	0	3	1	2 シフト繰越
SSTR	4	4	6	6	10	10	
IS	—	—	4	4	4	4	
ef	—	4**	4	0	4	4	
計	128	127+2*+4**	122	107	250	238+2*	12シフト繰越

* 前年度繰越分
** 前期先取実施分

データ処理装置稼働状況

核理研計測グループ

小山田正幸・窪田健雄・佐藤正幸

武藤正勝

§1. データ処理装置

昨年データ処理方式を端末利用の対話形式（OKITAC-50V/65）に変更しマルチユーザー方式で運用してきたが大きなトラブルも無く順調に稼働している。

データ集積装置（O-4500）の電源、LPのトラブルに対しては、電源の更新、端末兼用のパソコンを入れて対処し、4月より稼働を初めている。この結果紙テープ出力はフロッピーディスクに変わり施設内外でのデータ処理が効率的に成った。

第1表に用途別利用実績表を示す。50V/65の利用時間はパソコンを端末として利用した時間である。パソコンはこのほかにもプログラム開発に利用しているので実際の稼働時間は、表中の時間よりも多く既に不足を感じる状態になっている。

今年度はプロッター用の端末増設と大計用ターミナル（1200 bps）の端末兼用化を行う予定である。

第1表 昭和59年度・用途別利用実績表。

（単位：時間）

機種 用途 月	OKITAC-4500				OKITAC-50/60				OKITAC-50V/65			
	データ 集積	データ 処理	保守 故障	合計	データ 集積	データ 処理	保守 故障	合計	会話数	利用 時間	CPU 時間	保守 故障
4	0	0	2	2	196	9	2	207	0	0	0	0
5	49	0	4	53	183	137	2	322	161	96	14	0
6	48	92	13	153	259	108	3	370	555	478	18	0
7	49	214	3	266	255	113	0	368	478	669	59	0
8	0	0	4	4	0	147	0	147	437	764	108	0
9	43	0	8	51	108	50	2	160	466	867	143	0
10	48	9	2	59	162	87	0	249	359	415	42	0
11	48	0	2	50	126	9	0	135	449	710	133	0
12	49	0	2	51	109	8	2	119	295	524	96	0
1	38	1	1	40	0	35	0	35	206	244	24	4
2	10	15	1	26	260	46	0	306	250	267	33	35
3	36	87	4	127	252	162	22	436	308	407	39	7
合計	418	418	46	882	1910	911	33	2854	3964	5441	709	46
月平均	35	35	4	74	159	76	3	238	330	453	59	4

V. 論 文 リ ス ト

論文リスト

核理研共同利用の成果を核理研研究報告以外の学術雑誌に掲載された論文（1984年1月～12月）の題目を集録しました。

1. 原子核物理

1. $^{24}\text{Mg}(e, \alpha)$ Reaction in the Giant Resonance Region.
M. Hirooka, T. Tanaka, T. Hino, A. Tanaka, T. Tamae,
M. Sugawara and H. Miyase : Nucl. Phys. **A 431** (1984) 269.
2. (r, p) reaction of ^{54}Fe .
H. Tsubota, H. Miyase and T. Tamae :
Phys. Rev. C **30** (1984) 1168.
3. (r, π^+) Spectroscopy on Light Nuclei in the Threshold Region.
K. Shoda : *Proc. Int. Symp. Nuclear Spectroscopy and Nuclear Interactions, Osaka, 1984*, ed. H. Ejiri and T. Fukuda.
(World Scientific, 1984) p. 485.
4. Photoproton and Photoneutron Studies in the Intermediate Energy Region Using Tagged Photons.
T. Terasawa, K. Mori, Y. Fujii, T. Suda, O. Konno, Y. Torizuka,
K. Maeda, P. Harty, and M. N. Thompson : *ibid.* p. 525.
5. The Tohoku Proposal for a CW Electron Facility.
M. Sugawara : *Proc. 1983 INS Int. Symp. High Energy photo-Nuclear Reactions and Related Topics, Tokyo*, ed. S. Homma and F. Sakata,
(INS, Univ. of Tokyo, Tokyo, 1984).
6. Measurement of Photoproton from ^{27}Al and ^{12}C Nuclei at Intermediate Energies.
T. Terasawa, K. Mori, Y. Fujii, T. Suda, Y. Torizuka,
K. Maeda, P. Harty, and M. N. Thompson : *ibid.* p. 320.
7. Strong Spin-Flip Transitions in the $^{12,13}\text{C}(e, \pi^+)$ Reactions.
M. Torikoshi, O. Sasaki, S. Tohyama, T. Kobayashi, K. Shoda,
H. Tsubota, K. Min, E. J. Winhold, M. Yamazaki and B. N. Sung :

ibid. p. 320.

8. Pulse Stretcher of Tohoku University.

T. Tamae: *Proc. INS Kikuchi Winter-School on Accelerators for Nuclear Physics. Fujiyoshida 1984*, Genshikaku Kenkyu **28** (1984) 355.

2. 物性物理

1. Neutron Diffraction Study on the $\beta_1 - \beta_2$ Transition in Ta₂D.

H. Kaneko, T. Kajitani, M. Hirabayashi, N. Niimura, A. J. Schultz and P. Leung : *J. Less-Common Metals* **103** (1984) 45.

2. Site Occupation and Local Mode of Hydrogen in ZrO_{0.4} Studied by Time-of-Flight Neutron Scattering.

S. Mukawa, T. Kajitani and M. Hirabayashi : *J. Less-Common Metals* **103** (1984) 19.

3. 放射化学

1. A New Internal Standard Method for Activation Analysis and its Applications.

M. Yagi and K. Masumoto : *J. Radioanal. Nucl. Chem. (A)* **83** (1984) 319.

2. A New Internal Reference Method for Activation Analysis and its Applications.

M. Yagi and K. Masumoto : *J. Radioanal. Nucl. Chem. (A)* **83** (1984) 369.

3. Substoichiometric Determination of Manganese in a Synergistic Extraction System and its Application to the Analysis of Biological Materials.

N. Suzuki, S. Nakamura and H. Imura : *J. Radioanal. Nucl. Chem. (A)* **81** (1984) 37.

4. Synergistic Extraction of Manganese (II) with Thenoyltrifluoroacetone and Neutral Unidentate and Bidentate Ligands.

S. Nakamura, H. Imura and N. Suzuki : *J. Radioanal. Nucl. Chem. (A)* **82** (1984) 33.

5. 反跳インプランテーションによるテクネチウムなどの新物質の合成とその生成機構.

吉原賢二, 関根 勉: *日化* **1984**, 1873.

6. Sr Isotope Study of the Tephrite Series from Nyamuragira Volcano, Zaire.
K. Aoki and H. Kurasawa : *Geochem. J.* **18** (1984) 95.
7. 紀伊半島中部, 太峯地域の中新世IタイプおよびSタイプ花崗岩質の岩石学.
村田 守 : *岩鉱* **79** (1984) 351.
8. Preparation of High Purity Chromium.
M. Isshiki, K. Arakawa, K. Igaki, A. Mizohata and T. Tsujimoto :
J. Less-Common Metals **96** (1984) 157.
9. Extraction of Uranium (VI) by Emulsion Liquid Membrane Containing 5, 8-Diethyl-7-hydroxy-6-dodecanone Oxime.
K. Akiba, T. Takahashi and T. Kanno : *Bull. Chem. Soc. Japan*
57 (1984) 2618.
10. 乳化型液体膜へのウランの抽出と脱乳化による回収.
秋葉健一, 高橋敏彦, 菅野卓治 : *東北大学選研彙* **40** (1984) 1.
11. リン酸ジ(2-エチルヘキシル)-1-オクタノール含浸型液体膜によるウランの輸送.
秋葉健一, 高橋敏彦, 菅野卓治 : *東北大学選研彙* **40** (1984) 11.
12. ゼオライトによる高レベル放射性廃棄液からのCs, Sr の除去ならびに沈澱物の固化.
許 俊男, 三村 均, 天満元昭, 菅野卓治 : *東北大学選研彙* **40** (1984) 38.
13. 水溶液中におけるゼオライトへのセシウムならびにストロンチウムの分配に及ぼすフッ酸の影響.
三村 均, 沼野耕三, 菅野卓治 : *東北大学選研彙* **40** (1984) 173.
14. Ion Exchange Properties of Zeolites and Application to Processing of High-Level Liquid Waste.
T. Kanno and H. Mimura : *Proc. Int. Symp. Inorganic Ion-exchangers and Absorbent for Chemical Processing in the Nuclear Fuel Cycle, Vienna, 1984* (IAEA TC-518/20, Vienna, 1984).

4. 加速器・測定器

1. アルミニウム合金の誘導放射能およびそれに及ぼす微量成分の影響.
今野 収, 藤川辰一郎, 榎本和義, 八木益男 : *軽金属* **34** (1984) 22.

編 集 委 員

齋 藤 悌二郎 (委員長) 寺 沢 辰 生
山 田 和 芳 榭 本 和 義

核 理 研 研 究 報 告 第 18 卷 第 1 号

1985年6月発行

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

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

RESEARCH REPORT OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

Volume 18 Number 1 June 1985

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