

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第 20 卷 第 2 号

1987 年 12 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

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

投 稿 規 定

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

仙台市三神峯1-2-1 郵便番号 982

東北大学理学部原子核理学研究施設

「核理研研究報告」編集委員長

核理研研究報告 第20巻 第2号 目次

I 原子核物理

I-1 $^{209}\text{Bi}(e, p_0)$ 角分布 263

(教養部, 情教センター*, 大計センター**, 核理研***)

宮瀬 晴久, 坪田 博明, 川添 良幸*, 塚本 龍男**

松山日出人***, 生井 克正***, 野村 昌弘***

川原 英明***, 玉江 忠明***, 菅原 真澄***

I-2 The Analysing Power of the $^{12}\text{C}(\gamma, p)$ Reaction Measured
Using Tagged Polarized Photons. 266

(核理研, 教養部*, メルボルン大**)

横川 淳, 今野 収, 野村 和泉, 須田 利美

鈴木 敏司, 寺沢 辰夫, 鳥塚 賀治, 前田 和茂*

J. Eden**, D. Mclean**, M. N. Thompson**

I-3 (γ, π^+) 反応による ^{40}K 低励起状態の研究 274

(核理研, 教養部*)

加賀谷 聡, 庄田 勝房, 小林 毅範, 竹下 邦和

島田 太平, 坪田 博明*

II 物性物理

II-1 正方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ と $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{6.81}$ の結晶構造 287

(金研)

梶谷 剛, 草場 啓治, 菊地 昌枝, 松永 寿康

浜田 茂義, 桜井 哲朗, 平林 真

III 放射化学

III-1 Reexamination of Monitor Reactions for Photonuclear Reaction
Study 299

(金沢大, 東大核研*, 追手門学院**)

長田 和彦, 深沢 拓司, 小林 和人, 浜島 靖典

	坂本 浩, 柴田 誠一*, 藤原 一郎**	
Ⅲ-2	ウラン及び超ウラン元素の光核分裂反応収率	310
	(サイクロRIセンター, 東大核研*, 追手門学院**)	
	山寺 亮, 加瀬 健, 中村 尚司, 柴田 誠一*	
	藤原 一郎**	
Ⅲ-3	標準添加内標準法によるフライアッシュ試料の光量子放射化分析	321
	(核理研, 金研*)	
	榎本 和義, 八木 益男*	
Ⅲ-4	光量子放射化-LEPSによる人体臓器組織の微量元素分析	333
	(都神経科学総研, 教養部*)	
	佐藤 武雄, 森 一五, 加藤 豊明*	
Ⅲ-5	北上山地, 宮古花崗岩体の地球化学的研究	340
	(理学部地学, 教養部*)	
	西岡 芳晴, 吉田 武義, 蟹沢 聰史*, 青木謙一郎	
Ⅲ-6	九州, 由布・鶴見火山群噴出物の全岩化学組成	351
	(理学部地学)	
	太田 岳洋, 吉田 武義, 青木謙一郎	
Ⅲ-7	八甲田火山群ステージ1に活動したソレライトマグマの地球化学的研究	363
	(理学部地学)	
	佐々木寧仁, 吉田 武義, 青木謙一郎	
Ⅲ-8	Study of Impurity-diffusion of Gold in Copper Single Crystals in High-temperature Range Using Radio-isotope ¹⁹⁶ Au	375
	(工学部材料物性, マックスプランク研*)	
	藤川辰一郎, Alfred Seeger*	
IV 加速器・測定器		
IV-1	(e, e' n)同時計数実験測定装置(I)	385
	(核理研, 理学部物理*, 教養部**)	
	鈴木 伸介, 斎藤悌二郎, 高久 圭二, 藤平 力*	
	中川 武美*, 小林 幸則*, 阿部 健**	

IV-2 電子リニアック，パルスビーム・ストレッチャ制御系の現状と改造計画
について 393

(核理研)

武藤 正勝，柴崎 義信，大沼 忠弘

Research Report of Laboratory of Nuclear Science
Volume 20, Number 2, December 1987
Content

I Nuclear Physics

- I - 1 Angular Distributions of $^{209}\text{Bi} (e, p_0)$ Reaction 263
Haruhisa Miyase, Hiroaki Tsubota, Yoshiyuki Kawazoe,
Tatsuo Tsukamoto, Hideto Matsuyama, Katsumasa Namai,
Masahiro Nomura, Hideaki Kawahara, Tadaaki Tamae
and Masumi Sugawara
- I - 2 The Analysing Power of the $^{12}\text{C} (\gamma, p)$ Reaction Measured
Using Tagged Polarized Photons 266
Jun Yokokawa, Osamu Konno, Izumi Nomura, Toshimi Suda,
Toshiji Suzuki, Tatsuo Terasawa, Kazushige Maeda,
Jamie Eden, David McLean and Max N. Thompson
- I - 3 Study of the Low-lying States of $^{40}\text{K} (\gamma, \pi^+)$ Reaction 274
Akira Kagaya, Katsufusa Shoda, Takenori Kobayashi,
Kunikazu Takeshita, Taihei Simada and Hiroaki Tsubota

II Material Science

- II - 1 Crystal Structures of Tetragonal $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ and
 $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{6.81}$ 287
Tsuyoshi Kajitani, Keiji Kusaba, Masae Kikuchi,
Toshiyasu Matsunaga, Shigeyoshi Hamada,
Tetsuro Sakurai and Makoto Hirabayshi

III Radiochemistry

- III - 1 Reexamination of Monitor Reactions for Photonuclear
Reaction Study 299
Kazuhiko Osada, Takuji Fukasawa, Kazuto Kobayashi,

	Yasunori Hamajima, Koh Sakamoto, Seiichi Shibata and Ichiroh Fujiwara	
III - 2	Photofission Yields of Uranium and Transuranic Elements	310
	Akira Yamadera, Ken Kase, Shoji Nakamura, Seiichi Shibata and Ichiroh Fujiwara	
III - 3	Instrumental Photon Activation Analysys of Fly Ash Samples by the Internal Standard Method Coupled with the Standard Addition Method	321
	Kazuyoshi Masumoto and Masuo Yagi	
III - 4	Multielement Determination in Human Organ Tissues by Means of High-energy Photon Activation and Low-energy Photon Detection	333
	Takeo Sato, Kazui Mori and Toyoaki Kato	
III - 5	Geochemistry of the Rocks from Miyako Granitic Body in Kitakami Mountainland	340
	Yoshiharu Nishioka, Takeyoshi Yoshida, Satoshi Kanisawa and Ken-ichiro Aoki	
III - 6	Bulk Chemistry of the Rock from Yufu and Tsurimi Volcanoes, Kyushu	351
	Takehiro Ohta, Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki	
III - 7	Geochemistry of Tholeiitic Magma in Stage 1 of Hakkoda Volcano	363
	Yasuhito Sasaki, Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki	
III - 8	Study of Impurity-Diffusion of Gold in Copper Single Crystals in High-temperature Range Using Radioisotope ¹⁹⁶ Au	375
	Shin-ichiro Fujikawa and Alfred Seeger	
IV	Accelerator and Instrumentation	
IV - 1	Instruments for (e, e'n) Coincidence Experiments	385
	Shinsuke Suzuki, Teijiro Saito, Keiji Takahisa, Tsutomu Tohei, Takemi Nakagawa, Yukinori Kobayashi and Ken Abe	

IV-2 Present Status and Remodeling Plan for the Control System of
the Pulse Strecher 393

Masakatsu Mutoh, Yoshinobu Shibasaki and Tadahiro Oonuma

I. 原 子 核 物 理

$^{209}\text{Bi}(e, p_0)$ 角 分 布

教養部, 情教センター,* 大計センター,** 核理研 ***

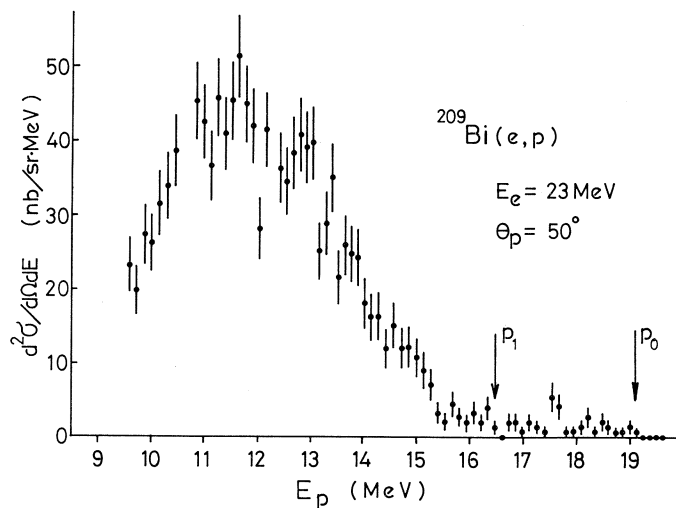
宮瀬晴久・坪田博明・川添良幸*・塚本龍男**

松山日出人***・生井克生***・野村昌弘***

川原英明***・玉江忠明***・菅原真澄***

前回までに, $^{63,65}\text{Cu}$, ^{89}Y 核に対して (e, p_0) 反応角分布の測定及びその結果について報告した。 ^{65}Cu については, $E_x = 13-17 \text{ MeV}$ にかけて E2 巨大共鳴が見られ¹⁾, ^{89}Y については $E_x = 27 \text{ MeV}$ にアイソベクター E2 巨大共鳴が見られた²⁾。今回は更に重い原子核 ^{209}Bi について (e, p_0) 反応角分布の測定を行ったのでその結果を報告する。 ^{209}Bi 核は ^{208}Pb 核に加えて $1 h_{9/2}$ 殻に陽子が一つ孤立した核と考えられ, これまで行った $^{63,65}\text{Cu}$, ^{89}Y 核 (p 殻に陽子が一つ孤立) との比較に興味を持たれる。

厚さ 8.0 mg/cm^2 , 純度 99.999% の ^{209}Bi を用い, 放出された陽子は広帯域分析電磁石 (BDM) により運動量分析され, $\theta_p = 30-140^\circ$ の範囲における角分布を測定した。第1図に例として, $E_e = 23 \text{ MeV}$, $\theta_p = 50^\circ$ での陽子のスペクトルを示した。残留核 ^{208}Pb の基底状



第1図 $E_e = 23 \text{ MeV}$, $\theta_p = 50^\circ$ における陽子のスペクトル。矢印は残留核の基底状態, 第1励起準位への陽子の最高エネルギー値を示す。

態へ遷移する陽子のエネルギーの最高値を p_0 で、第1励起準位へ遷移する陽子のエネルギーの最高値を p_1 で示した。したがって、この p_0 と p_1 との間に見られる陽子は全て ^{208}Pb の基底状態へ遷移する陽子と考えられる。残留核 ^{208}Pb の基底状態への遷移の断面積は小さく、しかも標的核 ^{209}Bi は非常に溶け易い性質を持っている（標的核 ^{209}Bi の形状によってかなり異なるが、我々の場合は約 $8\ \mu\text{A}$ のビーム強度で実験を行った）ので実験時間はかなりかかり、現在までに $E_e = 21\text{--}24\ \text{MeV}$ についてのデータしか得られていない。第2図に、各電子エネルギーに対し残留核 ^{208}Pb の基底状態へ遷移する際に放出された陽子の角分布の実験結果を示す。この結果を

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_p} = a_0 \left[1 + \sum_{l=1}^4 a_l p_l (\cos\theta_p) \right] \quad (1)$$

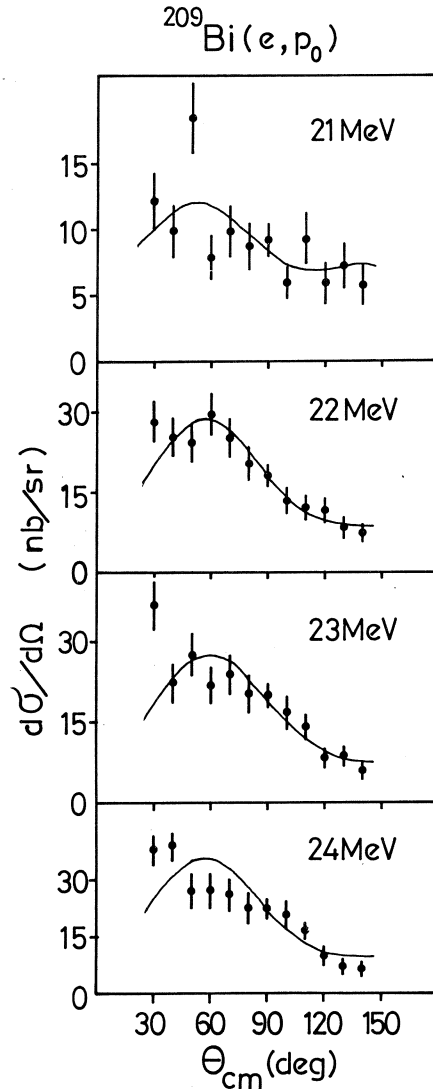
の Legendre 多項式に合わせた最適値の係数を第1表に示す。また第2図に示した実線は簡単な共鳴模型³⁾ によって得られた微分断面積

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega_p} = & |C_1|^2 \\ & + \sin^2\theta_{c.m.} |C_2 + C_3 \cos\theta_{c.m.}|^2 \end{aligned} \quad (2)$$

に合わせた最適値である。ここで $|C_2|^2$ 及び

$|C_3|^2$ はそれぞれ E1 及び E2 遷移の強度に関係し、 $|C_1|^2$ は多重極に無関係な蒸発模型で示されるような項である。

今回は、実験時間などの関係で電子線のエネルギーとして四つのデータに関するのみの報告であったが、更にデータの蓄積が必要である。現在これらデータを解析中である。



第2図 各入射電子エネルギーにおける $^{209}\text{Bi}(e, p_0)$ 反応角分布。実線は簡単な共鳴模型による解析結果。

第1表 $^{209}\text{Bi}(e, p_0)$ 反応角分布の Legendre 多項式の展開係数。

E_e (MeV)	a_0 (nb/sr)	a_1	a_2	a_3	a_4
21.0	8.07 ± 1.39	0.44 ± 0.32	0.04 ± 0.42	0.01 ± 0.55	-0.11 ± 0.54
22.0	17.36 ± 0.92	0.74 ± 0.10	-0.12 ± 0.15	-0.19 ± 0.18	-0.09 ± 0.17
23.0	18.31 ± 1.27	0.76 ± 0.13	0.13 ± 0.20	0.07 ± 0.24	0.39 ± 0.22
24.0	21.60 ± 1.11	0.86 ± 0.09	0.11 ± 0.15	0.12 ± 0.17	0.31 ± 0.17

参 考 文 献

- 1) H. Miyase *et al.* : Phys. Rev. Lett. **50** (1983) 821 ; H. Miyase *et al.* : Nucl. Phys. **A457** (1986) 109.
- 2) H. Miyase *et al.* : to be published in Phys. Rev. C **36** (1987).
- 3) H. Taneichi *et al.* : Nucl. Phys. **A350** (1980) 157.

The Analyzing Power of the $^{12}\text{C}(\gamma, p)$ Reaction Measured Using Tagged Polarized Photons

Jun Yokokawa, Osamu Konno, Izumi Nomura,
Toshimi Suda, Toshiji Suzuki, Tatsuo Terasawa,
Yoshiharu Torizuka, Kazushige Maeda[†], James Eden^{††},
David McLean^{††} and Maxwell Thompson^{††}

Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Sendai 982

[†]College of General Education, Tohoku University, Sendai 980

*^{††}School of Physics, The University of Melbourne, Parkville
3052, Australia.*

The cross sections for $^{12}\text{C}(\gamma, p)$ were measured with tagged polarized photons in the energy range from 41.2 to 93.0 MeV. The photon energy and angular dependence of the analyzing power have been extracted. The results are in better agreement with predictions of the one-nucleon knockout model and RPA theory, than that of the quasi-deuteron model, particularly at higher photon energies.

§ 1. Introduction

At photon energies above the giant resonance region but below the pion production threshold, measurements of photodisintegration cross sections are considered to be a good source of information about short range effects in nuclei. The reaction is sensitive to the high momentum components of the nucleon wave functions, essentially because of the large mismatch of momentum between the momentum of the incoming photon and the ejected nucleon. On the basis of a one-nucleon knockout mechanism, consistent momentum distributions were extracted from experimental data over a wide range of photon energies and proton angles.¹⁾ However, with such a simple one-nucleon knockout mechanism, it is difficult to explain the measured (γ, n_0) cross sections, which were found to be of the same order of magnitude as those of the (γ, p_0) reaction.

The quasi-deuteron model, where a photon is considered to be absorbed by a correlated proton-neutron pair, explains the relative magnitudes and the angular dependence of both the available (r, p_0) and (r, n_0) data.^{2,3)} This model was extensively discussed for (r, pn) reaction in the Δ resonance region by Homma *et al.*^{4,5)}, and was able to reproduce the data. In the lower photon energy region, quasi-deuteron correlations were observed by Wade *et al.*⁶⁾

Up to now, investigations of the photonuclear reaction process in this energy region have been performed by measurement of the magnitude of the cross section and comparing it with calculated values of various models. The magnitude of the model cross section is affected by some uncertainties. In the case of the one-nucleon knockout process, the uncertainty is largely in the estimate of the strong final state interaction which is incorporated in the optical potential. In the quasi-deuteron model, the uncertainty is reflected in the Levinger factor. However the analyzing power has fewer uncertainties, so that polarized photons provide a useful probe to investigate reaction mechanisms in nuclear photoabsorption.

In the photon energy ranges above the giant dipole resonance but below the pion production threshold, many studies of deuteron photodisintegration using polarized photons have been made both theoretically⁷⁾ and experimentally.⁸⁾ For heavier nuclei there are few calculations and no experiments. Boffi *et al.*^{9,10)} have calculated the analyzing power for polarized photoproton and photoneutron reactions in ^{12}C and ^{16}O based on the one-nucleon knockout model. Cavinato *et al.*¹¹⁾ performed a microscopic calculation to predict the analyzing power for ^{16}O within the random phase approximation theory (RPA). In this paper, we present a measurement of the analyzing power of the $^{12}\text{C}(r, p)$ reaction which can be compared with theoretical predictions.

§ 2. Experiment

Bremsstrahlung made by a beam of unpolarized electrons exhibit partial linear polarization at an angle away from the production axis.¹²⁾ It is shown by Ahrens¹³⁾ and Maximon *et al.*¹⁴⁾ that the polarization of an off-axis photon can

be enhanced by restricting the direction of the post-bremsstrahlung residual electrons. By this method, the Illinois group successfully enhanced the polarization of off-axis photons.¹⁵⁾ We have used the same technique to produce polarized photons.

The experiment was performed using the Tagged Photon facility at the Laboratory of Nuclear Science of Tohoku University.¹⁶⁾ Photons of energies from 41 to 93 MeV, with a flux of $2 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ were used. Photons were detected using scintillator telescopes consisting of two thin plastic ΔE detectors, and a 3 inch NaI total-E detector, placed in the horizontal plane at angles of 30, 45, 65 and 90 degrees. The ^{12}C target consisted of five 10 mm wide segments of plastic scintillator. (See Fig. 1) This allowed the off-axis position of the interacting

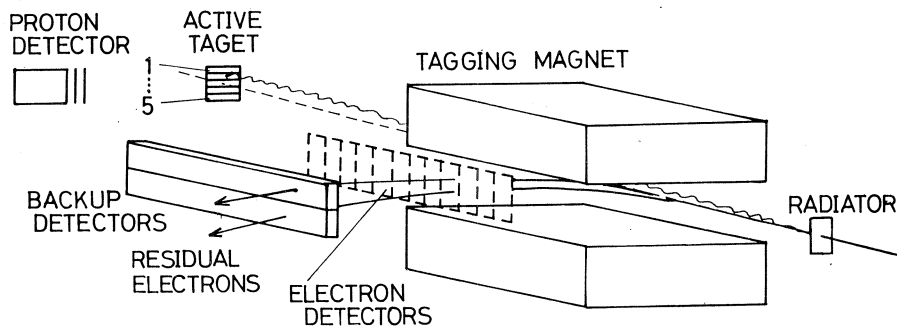


Fig.1. The experimental arrangement.

photon to be determined by identifying the segment in which the photoproton was produced. Two long backup detectors were placed behind the array of 32 electron tagging detectors to identify the direction of the post-bremsstrahlung residual electron, i.e. the residual electrons were classified as to whether they were above or below the central plane. For each active target element, except for the central one, interacting photons were classified as to whether the tagging electron was in the same or opposite vertical direction as the tagged photon.

§ 3. Analysis

The differential cross section for linearly polarized photons can be written in the form ;

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) \right)_0 (1 + P \Sigma(\theta) \cos 2\phi), \quad (1)$$

where θ is the angle between the emitted proton and the photon momentum, $(d\sigma/d\Omega(\theta))_0$ is the differential cross section for unpolarized photons and ϕ is the azimuthal angle between the polarization and the reaction plane. In this experiment, the proton detectors were set in the horizontal plane, so that ϕ is fixed as zero. The photon polarization and the analyzing power of the reaction are represented as P and $\Sigma(\theta)$, respectively. An asymmetry of the cross section for each target segment is defined as

$$A(\theta) = \frac{\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) \right)_s - \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) \right)_o}{\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) \right)_s + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) \right)_o} \quad (2)$$

where subscripts s or o indicate the direction (same or opposite) of the post-bremsstrahlung residual electron relative to the photon direction. Using eq. (1) with $\phi = 0$, the asymmetry becomes

$$A(\theta) = \frac{(P_s - P_o) \Sigma(\theta)}{2 + (P_s + P_o) \Sigma(\theta)} \quad (3)$$

where P_s or P_o are the polarization of photons in the same or opposite direction.

It is clear from eq. (2) that only the ratio of the cross sections, $(d\sigma/d\Omega)_s / (d\sigma/d\Omega)_o$, is required in order to determine the asymmetry $A(\theta)$. If the yield of photoprotons was measured directly, the possibility exists of asymmetries being introduced by such things as different detector efficiencies. This was overcome by measuring the number of photoprotons ($Y_{s,o}^p$) relative to the number of photoelectrons ($Y_{s,o}^e$) produced in the target, rather than relative to the number of incident photons. Both the protons and the electrons were detected in the proton detectors under the same conditions and were clearly identified by ΔE vs. E plots. By calculation we have estimated the asymmetry of these electronic cross sections for 100% polarized photons to be less than 3%. The term $A(\theta)$

in eq. (3) then becomes

$$A(\theta) = \frac{1 - (Y_o^p / Y_o^e) / (Y_s^p / Y_s^e)}{1 + (Y_o^p / Y_o^e) / (Y_s^p / Y_s^e)} \quad (4)$$

The degree of the photon polarization, P_s and P_o , are necessary to obtain the analyzing power of the reaction. Since there were no effective polarimeters developed in this photon energy region, we used the calculated values for P_s and P_o . For 60 MeV photons these values for the 2nd and 4-th segments are -19% and 20% respectively. The calculation takes into account the effects of finite size of the incident electron beam and the multiple scattering of electrons in the radiator. The systematic error in the polarization due to uncertainties in the experimental arrangement was estimated to be about 15%.

§ 4. Results and Discussion

Values of the analyzing power extracted according to eq. (3) are shown in Fig.2 and Fig.3, for missing energy regions $E_m < 21$ MeV (Fig.2, 3 a) and $E_m > 21$ MeV (Fig.2, 3 b). The missing energy is defined as $E_m = E_\gamma - E_p - E_r$ where E_γ , E_p and E_r are the energies of the incident photon, ejected proton and recoiling nucleus respectively. The lower missing energy region, $E_m < 21$ MeV, contains mainly the (γ, p_0) reaction channel, whereas the $E_m > 21$ MeV region contains single protons knocked out from the $1s_{1/2}$ shell and/or protons associated with reactions where more than one nucleon is emitted, such as (γ, pn) . The photon energy dependence of the analyzing power, $\mathcal{A}(\theta)$, for $30^\circ < \theta < 90^\circ$ is shown in Fig.2, and the angular dependence for photons between 41.2 and 72.2 MeV, is shown in Fig.3.

Three theoretical predictions based respectively on the quasideuteron model,^{17,18)} one nucleon knockout model¹⁰⁾ and RPA are plotted in Fig 2 and 3. The quasideuteron model predicts the same analyzing power as that of free deuteron photodisintegration,⁸⁾ since the photon polarization dependence of the model is reflected only in the free deuteron photodisintegration cross section in the formalism. The motion of the quasi-deuteron in a nucleus slightly modifies the analyzing power,

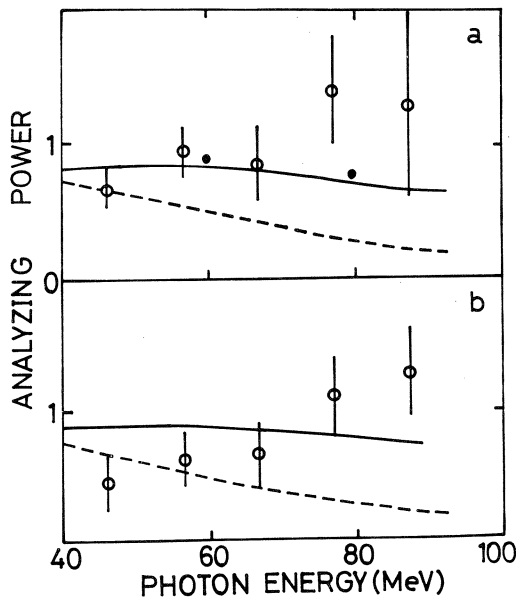


Fig.2. The energy dependence of the analyzing power of the $^{12}\text{C}(\gamma, p)$ reaction. (a) and (b) are for the lower and the higher missing energy region. The solid and dashed lines are the analyzing power predicted by RPA theory and quasi-deuteron model. The solid circles present the predictions of the one-nucleon knockout theory.

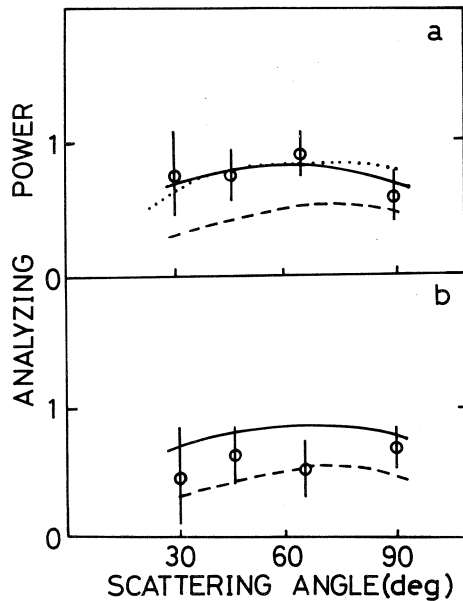


Fig.3. The angular dependence of the analyzing power of $^{12}\text{C}(\gamma, p)$ obtained in the photon energy region from 41.2 to 72.2 MeV. The calculated values are the results at 60 MeV. The dotted curves are the results of the one-nucleon knockout calculation. The others are as in Fig.2.

however for photon energies above 40 MeV this effect is estimated to be negligible. At higher photon energies the experimental values of the analyzing power disagree significantly with the quasi-deuteron model prediction. Bearing in mind the framework of the quasi-deuteron model, this may suggest that the wave function of the quasi-deuteron inside nuclei differs from that of a free deuteron.

The one-nucleon model calculation¹⁰⁾ has been performed only for the (γ, p_0) reaction channel with $E_\gamma = 60$ and 80 MeV. The predictions of the model show a much higher analyzing power than the prediction of the quasi-deuteron model, and better agreement with the observed values.

The RPA – SK 3 calculations,¹¹⁾ where the hole states of the residual nucleus are assumed to be in the $1p_{3/2}$ and $1s_{1/2}$ shells, are compared with the data for the lower and the higher missing energy regions respectively. These two calculations give similar values over the range of the measured photon energies, and show the same trend as the experimental data.

In conclusion, the analyzing power of the $^{12}\text{C}(\gamma, p)$ reaction was measured for photons between 41.2 and 93.0 MeV, and is compared with the existing theories. Significant discrepancies are found between the data and the quasideuteron model predictions at higher photon energies. The one nucleon knockout model and RPA – SK 3 calculations seem to give better agreement with the data.

Acknowledgment

We are very grateful to Professor A.M.Saruis (ENEA) for her calculation within RPA theory. This work was supported by Grant-in-Aid for Scientific Research No.5642005 and Grant-in-Aid for Overseas Scientific Survey No.62041009 from the Ministry of Education, Science and Culture.

Reference

- 1) D.J.S. Findlay and R.O. Owens : Phys. Rev. Lett. **13** (1976) 674.
- 2) H. Göringer and B. Schoch : Phys. Lett. **97B** (1980) 41.
- 3) M. R. Sené, I. Anthony, D. Branford, A. G. Flowers, A. C. Shotter, C. H. Zimmerman, J. C. McGeorge, R. O. Owens and P. J. Thorley : Nucl. Phys. **A442** (1985) 215.
- 4) S. Homma, M. Kanazawa, M. Koike, Y. Murata, H. Okuno, F. Soga, N. Yoshikawa and A. Sasaki : Phys. Rev. Lett. **52** (1984) 2026.
- 5) M. Kanazawa, S. Homma, M. Koike, Y. Murata, H. Okuno, F. Soga, N. Yoshikawa and A. Sasaki : Phys. Rev. C **35** (1987) 1828.
- 6) M. W. Wade, M. K. Brussel, L. J. Koester, Jr. and J. H. Smith : Phys. Rev. Lett. **53** (1984) 2540.
- 7) H. Arenhövel : Nucl. Phys. **A374** (1982) 521.

- 8) M. P. DePascale, G. Giordano, G. Matone, D. Babusci, R. Bernabei, O. M. Bilaniuk, L. Casano, S. d'Angelo, M. Mattioli, P. Picozza, D. Prosperi and C. Schaerf :
Phys. Rev. C **32** (1985) 1830.
- 9) S. Boffi, C. Giusti and F. D. Pacati : Phys. Lett. **98B** (1981) 11.
- 10) S. Boffi, C. Giusti and F. D. Pacati : *Perspectives in Nuclear Physics at Intermediate Energies*. (World Scientific, Trieste, 1983) p 182.
- 11) M. Cavinato, M. Marangoni and A. M. Saruis : Nucl. Phys. A **422** (1984) 273.
- 12) M. M. May : Phys. Rev. **84** (1951) 265.
- 13) J. Ahrens : MPI Internal Report, Mainz (1982)
- 14) L. C. Maximon, A. de Miniac, T. Aniel and E. Ganz : Phys. Rep. **147** (1987) 189.
- 15) R. M. Laszewski, P. Rullhusen, S. D. Hoblit and S. F. Lebrun : Nucl. Instrum. and Meth. **228** (1985) 334.
- 16) T. Terasawa, K. Mori, Y. Fujii, T. Suda, I. Nomura, O. Konno, T. Ichinohe, Y. Torizuka, K. Maeda, P. D. Harty, G. J. O'keefe, M. N. Thompson : Nucl. Instrum. and Meth. **A248** (1986) 429.
- 17) B. Schoch : Phys. Rev. Lett. **41** (1978) 80.
- 18) J. L. Matthews, W. Bertozzi, S. Kowalski, C. P. Sargent and W. Turchinets : Nucl. Phys. **A112** (1968) 654.

(γ, π^+) 反応による ^{40}K 低励起状態の研究

核理研, 教養部*

加賀谷聡・庄田勝房・小林毅範

竹下邦和・島田太平・坪田博明*

核理研(γ, π)グループでは, 今回 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応を用いて, ^{40}K の低励起状態に関する実験研究を行なった。実験は継続中であり, 現在までの解析結果を報告する。

§1. 序 論

低エネルギー($T_\pi \lesssim 50 \text{ MeV}$)における(γ, π^\pm)反応は, 一般に $\vec{\sigma} \cdot \vec{\epsilon} \tau_\pm$ の遷移演算子で良く記述され, 核子のスピン・アイソスピン反転遷移を選択的に励起する特徴をもつ。ここで, $\vec{\sigma}$ は核子のスピン, $\vec{\epsilon}$ は光子の偏極ベクトル, τ_\pm は核子のアイソスピン昇降演算子である。同様の特徴をもつ核反応として, Gamow-Teller(GT)型 β 崩壊, (μ^-, γ), (π^-, γ), 後方角電子散乱, (p, n), (n, p), (p, p')等が挙げられる。

GT型 β 崩壊, (μ^-, γ), (π^-, γ)は原子核への運動量移行(q)が一定であるのに対して, (γ, π^\pm)反応の場合には入射光子エネルギーあるいは π^\pm 中間子検出角度を変えることによって q は可変であり, この点において(γ, π^\pm)反応はこれらの反応による原子核研究の延長線上にあると言える。

また, (γ, π^\pm)反応と後方角電子散乱・hadron反応と比較してみると, (γ, π^\pm)反応は原子核のスピン電流と主に反応するのに対して(e, e')の場合には一般にスピン電流・携帯(convection)電流の両者と反応する点, hadron反応は高エネルギー($T \gtrsim 100 \text{ MeV}$)且つ $q \approx 0$ の条件下でスピン・アイソスピン反転遷移を選択的に励起する点が(γ, π^\pm)反応との相違点として挙げられ, これらの反応は互いに補助的であると言える。

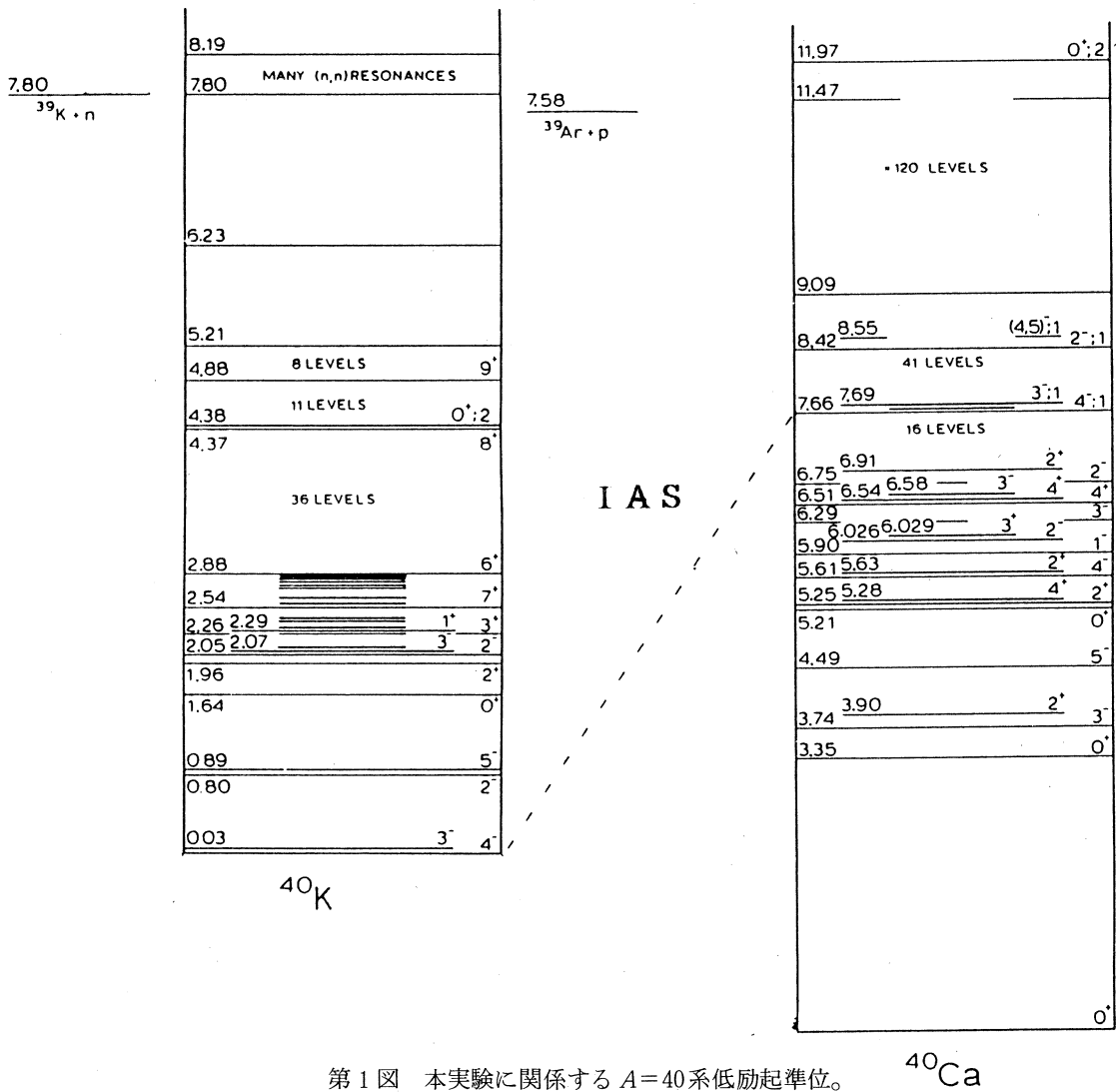
上記の特色を生かして(γ, π^\pm)反応による核分光学が行なわれてきたが, 対象となる原子核は主に1p殻核であり, 2s1d殻核より重い原子核となると核理研で ^{24}Mg , ^{28}Si について実験研究が行われているだけである。この理由として次の2つのことが挙げられる。

(i) 中重核になり原子番号 Z が増加するに従って, (e, π^\pm)実験の際, 標的で散乱される電子及び標的中で対生成される電子・陽電子の数が Z^2 に比例して増加する為, S/N比が悪くなり実験が困難になること。

(ii) 中重核になるに従って終状態の準位密度が高くなり、連続エネルギーの光子を用いた実験の場合には、終状態の準位の分離が難しくなること。

今回 $^{40}\text{Ca}(\pi, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応の実験を行なった目的の一つとして、中重核における (π, π^+) 反応による核分光学的可能性の追究が挙げられる。その為、 π^+ 中間子検出器系の backup counter を構成する 3 層の plastic scintillator 間の同時計数測定と Cerenkov counter の反同時計数測定とによって(i)の問題点を克服して実験を行なった。

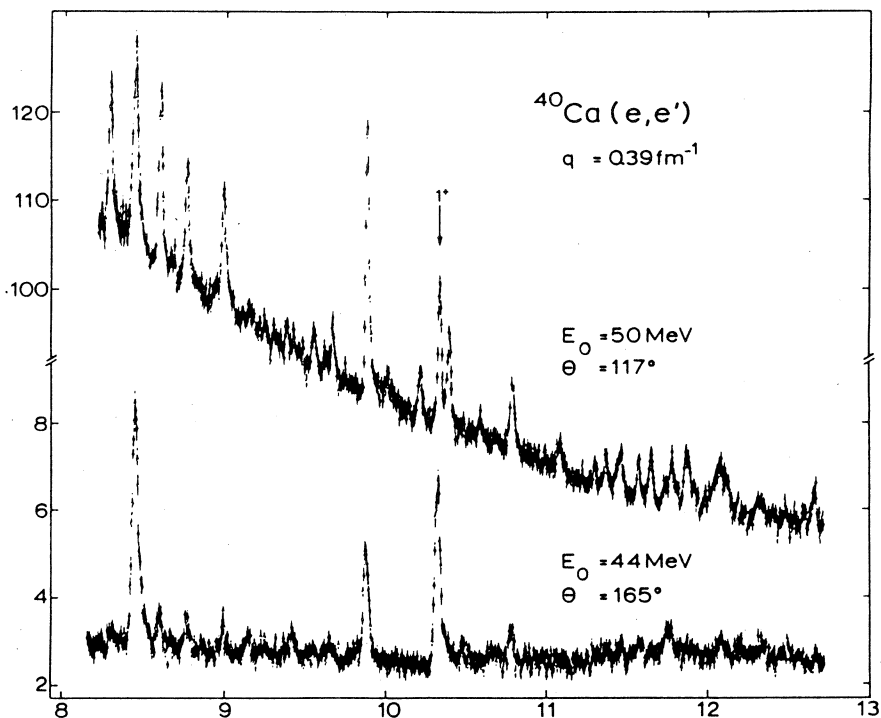
§ 2. $A = 40$ 系の構造



第 1 図 本実験に関係する $A=40$ 系低励起準位。

第1図に、 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応に関する $A=40$ 系の準位を示す¹⁾。本実験では ^{40}K の励起エネルギー(E_x) 8 MeV 以下のエネルギースペクトルの測定を行なった。この領域は、 ^{40}Ca では $E_x \approx 8 \sim 16$ MeV に対応し、 ^{40}K の場合には粒子放出チャネル以下の励起エネルギー領域である。他の核反応でこの領域に関して分かっていることを簡単にまとめておく。

(i) 第2図に示す様に、Gross等による ^{40}Ca 後方角非弾性電子散乱実験²⁾($q \approx 0.2 \sim 0.5 \text{ fm}^{-1}$)では $E_x = 8.3 \sim 12.7$ MeV について調べられ、 $E_x = 8.4$ MeV の 2^- 、 $E_x = 9.9, 10.3$ MeV に2本の 1^+ 、 $E_x = 10.8$ MeV に 1^- 準位が見つかっている。最も簡単な殻模型では ^{40}Ca の spin-orbit partner $j_{\geq} (= l \pm 1/2)$ は完全に粒子がつまっておりますりM1遷移は起こり得ないことから、 1^+ 準位の存在は ground state correlation を示唆している。尚、 $E_x = 10.8 \sim 12.7$ MeV (^{40}K , $E_x = 3.1 \sim 4.0$ MeV) に構造は見られない。



第2図 Gross等による ^{40}Ca 後方角非弾性電子散乱のエネルギースペクトル (文献2より転載)。

(ii) Oguro等による 180° 非弾性電子散乱実験³⁾($q \approx 0.7 \sim 2.1 \text{ fm}^{-1}$)では $E_x = 7 \sim 11$ MeV について調べられ、($1f_{7/2} 1d_{3/2}^{-1}$)粒子空孔バンドと考えられる $J^\pi = 4^-, 3^-$ ($E_x = 7.6$ MeV), $J^\pi = 2^-, 5^-$ ($E_x = 8.5$ MeV)準位に関して形状因子が測定されている。これから $1d_{3/2} \rightarrow 1f_{7/2}$

遷移を仮定した形状因子の計算値を実験値に最適化するのに必要な規格化因子が求められているが、その結果は Ejiri 等による (p, p') 実験⁴⁾ ($E_p=65$ MeV) から得られた同様の規格化因子と良く一致している。

(iii) $^{40}\text{Ca}(p, n)^{40}\text{Sc}$ 反応の実験は Taddeucci 等⁵⁾ ($E_p=60\sim 160$ MeV), Chittrakarn 等⁶⁾ ($E_p=134$ MeV) によって行われている。 ^{40}Sc と ^{40}K とは鏡映核の関係にある。後者の実験の方が、エネルギー分解能・運動量移行の範囲の広さの点において優っている。(p, n) の実験では ($1f_{7/2} 1d_{3/2}^{-1}$) 粒子空孔バンドの他に、 $E_x=2.7, 4.3$ MeV に 2 本の 1^+ , $E_x=2.3$ MeV に 4^- , $E_x=3.9$ MeV に ($1^-, 2^-$) doublet, $E_x\approx 6$ MeV に 6^- の stretched state が見つかっている。

これらのことを踏まえて、 $^{40}\text{Ca}(r, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応によって ^{40}K 低励起状態の実験研究を行なった。目的はスピン・アイソスピン反転遷移の強度分布と運動量移行依存性を調べることであり、(r, π^+) 反応の実験結果と他の核反応及び種々の核模型とを比較することによって、近年特に関心が集まっている磁氣的遷移の quenching の情報を得ることである。

§ 3. 実験と解析

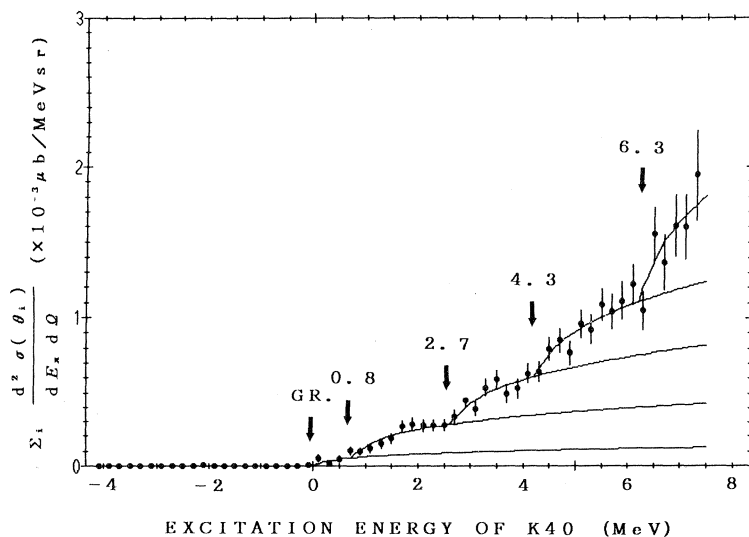
実験は東北大学核理研の 300 MeV 電子線型加速器を用いて行なった。第 2 実験室散乱槽内に設置した標的 ^{40}Ca (natural) に電子線を照射し、(e, π^+) 反応によって放出された π^+ 中間子を二重集束型磁気スペクトロメータによって運動量分析した後、多芯比例計数管 (MWPC) と backup counter からなる検出器系によって検出した。MWPC は荷電粒子の位置決定の、backup counter は粒子識別の役割をもつ。詳細は文献 7 を参照されたい。

実験条件は入射電子エネルギー (E_e) 185 MeV, そのエネルギー分解能は 0.2% とした。生成 π^+ 中間子の最大運動エネルギーは約 43 MeV である。 π^+ 中間子検出角度 (θ_π) は、 $50^\circ, 70^\circ, 90^\circ, 120^\circ, 150^\circ$ の 5 点で、これは $q=0.7\sim 1.5$ fm $^{-1}$ の範囲を覆っている。これに加えて、検出器系の検出効率の較正の為に LiH を用いて $^1\text{H}(e, \pi^+)n$ 反応の測定を、 $E_e=190$ MeV, $\theta_\pi=30^\circ$ の条件下で行なった。この条件は、検出 π^+ 中間子の最大運動エネルギーが、 $^{40}\text{Ca}(e, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応による π^+ 中間子の運動エネルギーとはほぼ等しくなる様に決定した。

(e, π^+) 反応による放出 π^+ 中間子のエネルギースペクトルから (r, 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。

$$\int \left[\frac{d^2\sigma(E_e, E_\pi)}{dE_\pi d\Omega_\pi} \right]^{(e, \pi^+)} dE_\pi = \sum_i \int \left[\frac{d\sigma(E_r, E_x^{(i)})}{d\Omega_\pi} \right]^{(r, \pi^+)} N_r(E_e, E_r) dE_r$$

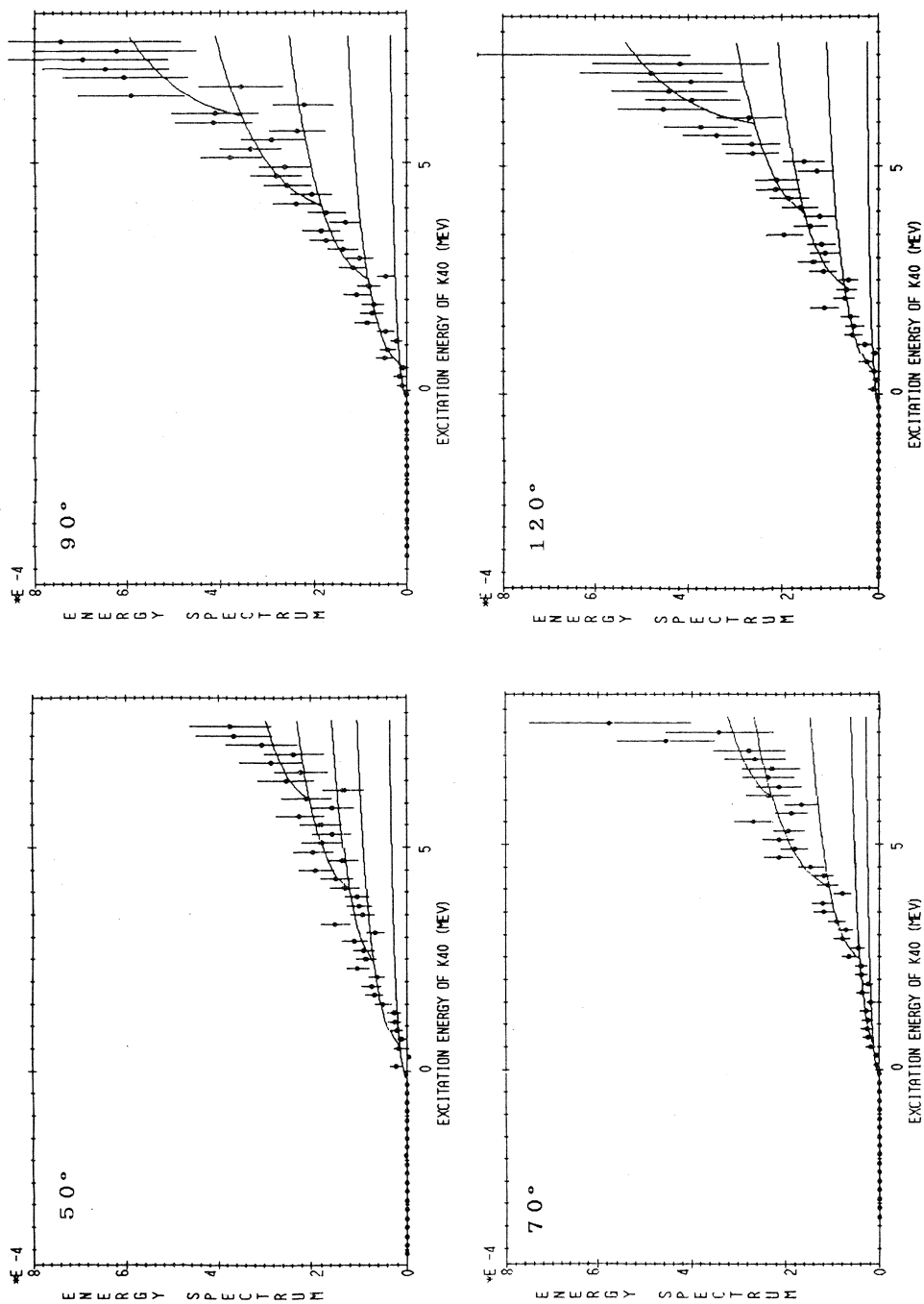
ここで $N_T(E_e, E_T)$ は光子エネルギースペクトル, $E_x^{(i)}$ は残留核状態 i の励起エネルギーである。光子スペクトルとしては, 仮想光子と標的原子核中での制動輻射による実光子とがあり, 前者は Tiator-Wright⁸⁾ によって導出されたもの, 後者は Schiff⁹⁾ によって導出されたものを用いて解析を行なった。



第3図 全測定角度の $^{40}\text{Ca}(e, \pi^+)^{40}\text{K}$ エネルギースペクトル ($E_e = 185$ MeV) を足し合わせたもの。図中の実線は, χ^2 -fitting による最適化曲線。

第3図に, 今回の実験で得られた $^{40}\text{Ca}(e, \pi^+)^{40}\text{K}$ エネルギースペクトルを $50^\circ \sim 150^\circ$ 総て足し合わせたスペクトルを示す。 $^{40}\text{Ca}(r, \pi^+)^{40}\text{K}$ 反応において残留核を特定の準位に残す強い π^+ 中間子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励起エネルギーの位置に顕著な折れ曲がりとして現われる。第3図のスペクトル中の曲線群は, (e, π^+) 反応によって強く励起されると考えられる準位の数と励起エネルギーとをパラメータとして χ^2 -fitting した際の最適化曲線群である。視察によりスペクトル中に5~6ヶ所の折れ曲がり認められるので, 準位数は最大6まで入力した。また励起エネルギーは, (e, e') , (p, p') , (p, n) 等の実験で強く励起されている準位の励起エネルギーとスペクトル中で顕著な折れ曲がりを示す位置の励起エネルギーとを初期値として最適値を求めた。その結果, 第3図に示す様に残留核 ^{40}K を $E_x = 0, 0.8, 2.7, 4.3, 6.3$ MeV に残す強い π^+ 放出チャンネルの存在が明らかになった。

励起エネルギーをこの様にして決定した後, 各角度のエネルギースペクトルを解析し, 残留

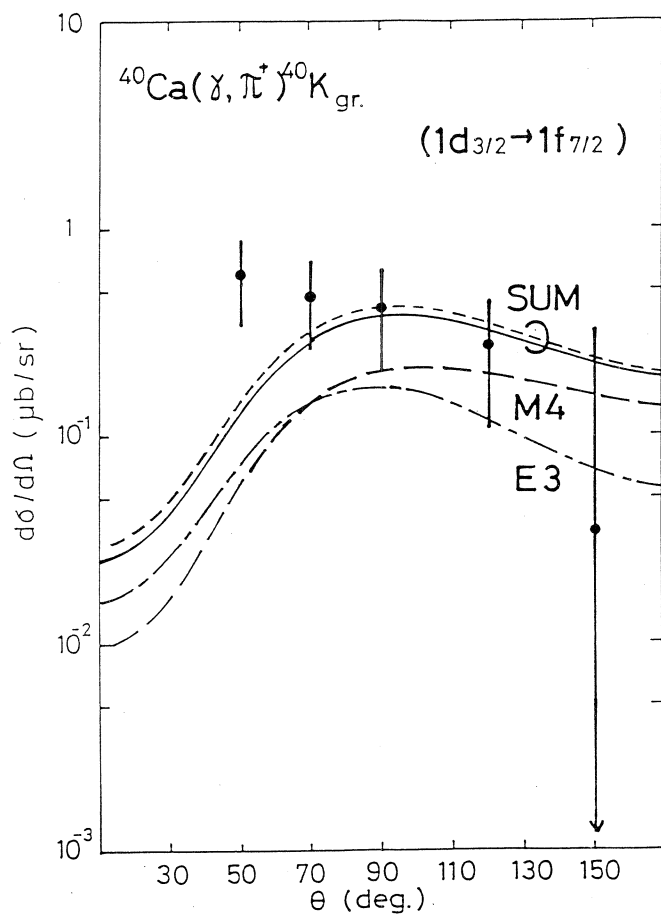


第4図 $^{40}\text{Ca}(e, \pi^+)^{40}\text{K}$ エネルギーギースペクトル。 $E_e = 185 \text{ MeV}$, $\theta_\pi = 50^\circ, 70^\circ, 90^\circ, 120^\circ$ 。 図中の実線は夫々、残留核 ^{40}K を $E_x = 0, 0.8, 2.7, 4.3, 6.3 \text{ MeV}$ に残す π^+ 中間子放出チャンネルの寄与。

核を夫々の準位に残す $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}_{\text{gr}}$ 反応微分断面積を求めた。この結果を第4図に示す。図中の実線は、上記の解析方法によって得られた (γ, π^+) 反応微分断面積に光子スペクトルを掛けて得られる π^+ 中間子エネルギースペクトルの計算値である。

§ 4. 結果と考察

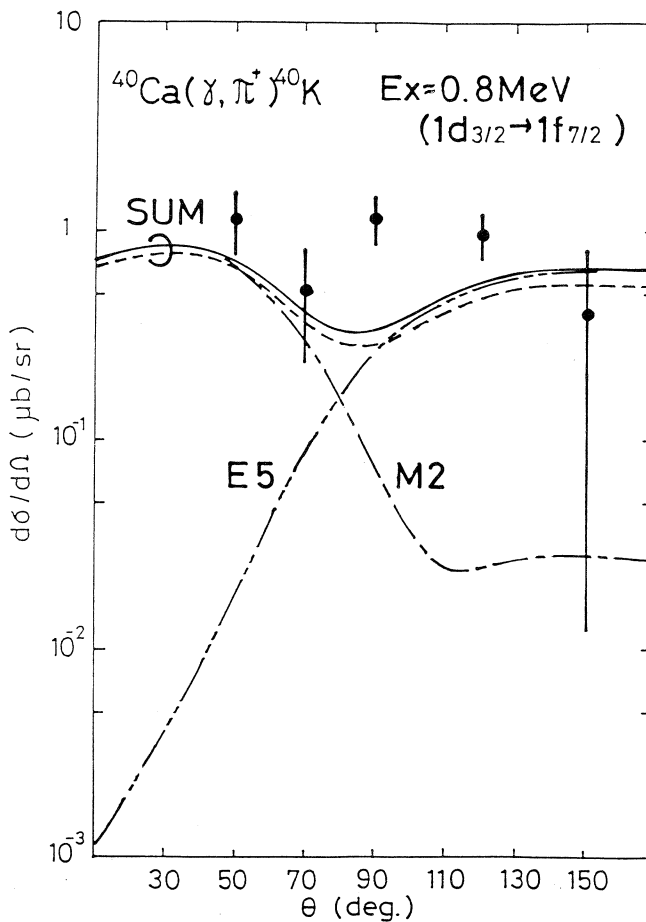
前節で述べた解析方法によって得られた $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}_{\text{gr}}$ 反応微分断面積の角度分布を



第5図 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}_{\text{gr}}$ 反応微分断面積の角分布。図中の曲線群は、 $1d_{3/2} \rightarrow 1f_{7/2}$ 遷移の DWIA 計算値である。実線[点線]の SUM は、非弾性陽子[電子]散乱^{4,3)} から得られた規格化因子を用いている。

$E_x(^{40}\text{K}) = 0, 0.8, 2.7\text{ MeV}$ の場合について第 5, 6, 8, 9 図に示す。図中の理論曲線は歪曲波衝撃近似 (DWIA) 計算値である¹⁰⁾。核波動関数の動径部分は調和振動子型であり, size parameter b は ^{40}Ca の電荷分布から決定された $b = 2.03\text{ fm}$ ¹¹⁾ を用いた。

第 5 図は, $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}_{\text{gr}}$ 反応の微分断面積である。他の核反応との比較により, これらは 4^- (基底状態), 3^- ($E_x = 0.03\text{ MeV}$) の寄与と考えられる。DWIA 計算は $1d_{3/2} \rightarrow 1f_{7/2}$ の一粒子遷移を仮定したもので, 実線 [点線] は非弾性陽子 [電子] 散乱から得られた規格化因子 $N(4^-) = 0.24$ [0.23], $N(3^-) = 0.12$ [0.15] を用いている。50° では実験値と計算値との不一致が見られるが, それより後方の角度では統計精度の範囲内で一致している。(e, e') (p, p')(γ, π^+) ではほぼ等しい規格化因子が必要なことから, 電子散乱におけるこれらの準位



第 6 図 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K} [E_x = 0.8\text{ MeV}]$ 反応微分断面積の角分布。図中の曲線群は, 第 5 図と同じ。

への励起はほぼ核子のスピンのみで引き起こされているものと考えられる。

第6図は、 $^{40}\text{Ca}(\pi, \pi^+)^{40}\text{K}^*$ [$E_x \approx 0.8 \text{ MeV}$] 反応の微分断面積である。これらは、 2^- ($E_x = 0.80 \text{ MeV}$), 5^- ($E_x = 0.89 \text{ MeV}$) の寄与と考えられる。DWIA 計算は基底状態の場合と同様の粒子空孔配位を仮定し、

規格化因子 $N(2^-) = 0.14$ [0.13],

$N(5^-) = 0.42$ [0.35] を用いている。

M2 遷移が支配的な前方では実験値と計算値は大体一致しているが

E5 遷移が主要となる 90° より後方では角分布の形が合わない。実験値は

E5 遷移の角分布が計算値よりも q の小さい所で立ち上がり、 q の大きい所では計算値よりも立ち下がりが急であることを示している。同様の傾向は (p, p') の微分断面積の角分布⁴⁾にも現われている。これを第7

図に示す。この図において、 $25^\circ \sim 50^\circ$ が本実験で覆っている運動量移行領域である。E5 遷移の角分布は q の大きい所では DWBA 計算値(実線)

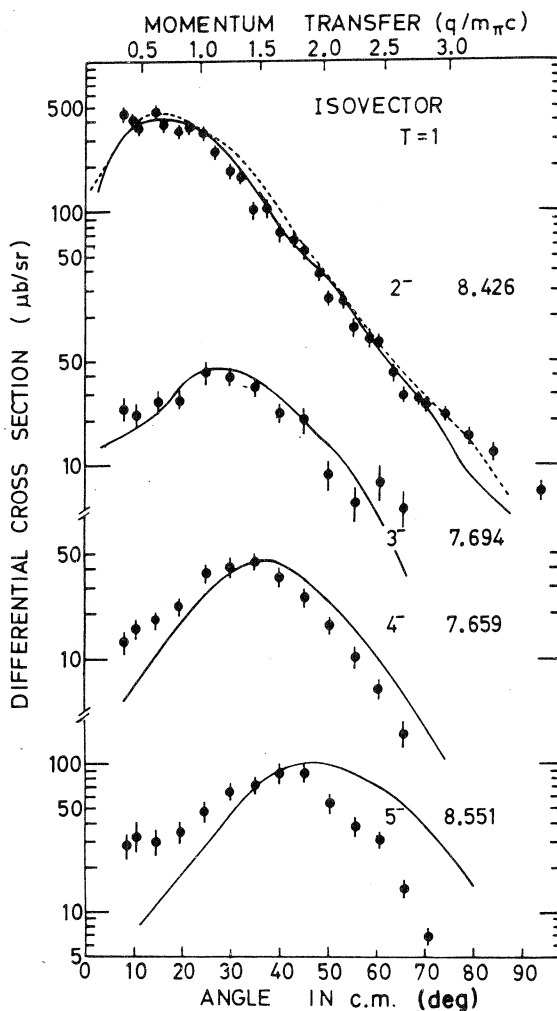
よりも小さくなっている。この理由として、理論計算に ^{40}Ca の ground state correlation が取り込まれていないこと、励起状態に $(1f_{7/2} 1d_{3/2}^{-1})$

以外の粒子空孔配位が考慮されていないことなどが考えられる。

上述の $J^\pi = 2^-, 3^-, 4^-, 5^-$ 準位

に関して、何故かなり小さな規格化因子が必要なのかを考えてみる。今までの解析では $(1f_{7/2} 1d_{3/2}^{-1})$ の一粒子一空孔配位のみを考えていたが、より現実的に $(2p 1f)(2s 1d)^{-1}$

配位を考えると状況はどの様になるか。この様な $1\hbar\omega$ 一粒子一空孔配位の核波動関数は、例

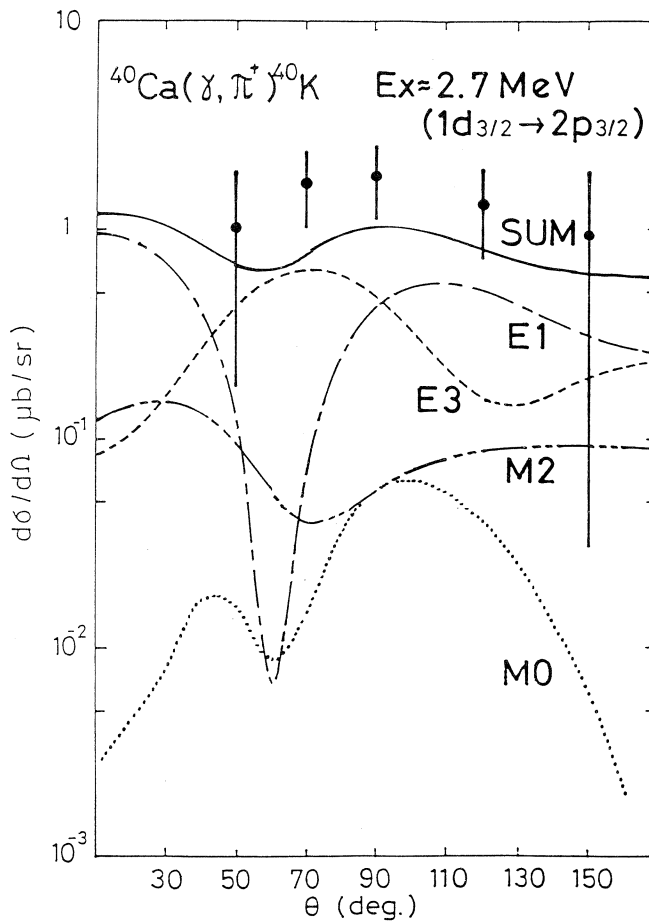


第7図 Ejiri 等の ^{40}Ca 非弾性陽子散乱 ($E_p = 65 \text{ MeV}$) によって得られた $T=1$ 準位の微分断面積の角分布(文献4より転載)。

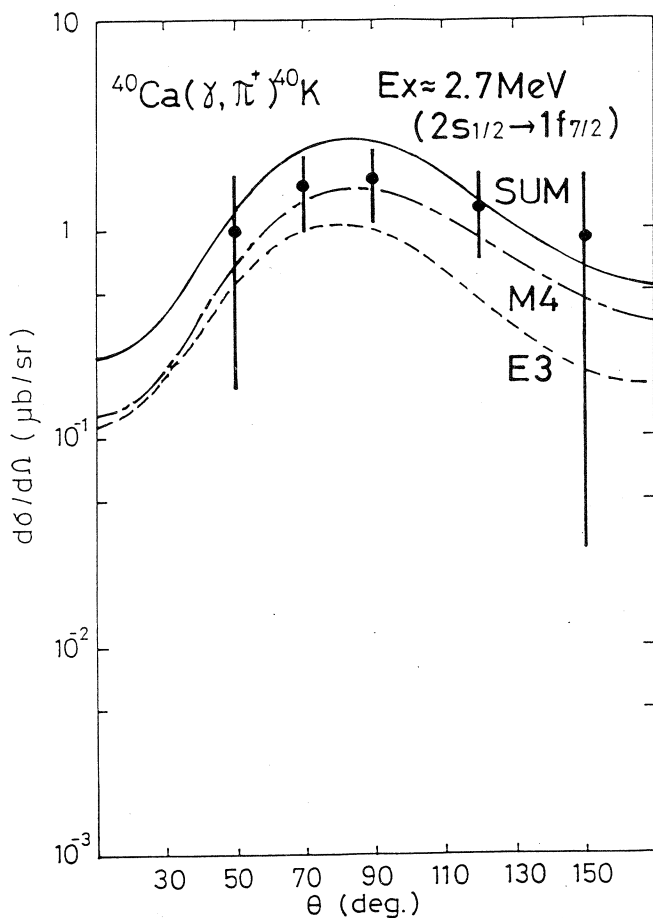
に関して、何故かなり小さな規格化因子が必要なのかを考えてみる。今までの解析では $(1f_{7/2} 1d_{3/2}^{-1})$ の一粒子一空孔配位のみを考えていたが、より現実的に $(2p 1f)(2s 1d)^{-1}$ 配位を考えると状況はどの様になるか。この様な $1\hbar\omega$ 一粒子一空孔配位の核波動関数は、例

例えば Serber - Yukawa 型の残留相互作用を仮定して Donnelly - Walker (DW)¹¹⁾ によって計算されている。この波動関数を用いて (r, π^+) 反応微分断面積を DWIA 計算すると、 $2^- \sim 4^-$ に関しては ($1f_{7/2} 1d_{3/2}^-$) 配位の計算値と比べて角分布の形はほぼ同じままで大きさが約 2/3 になる。 5^- に関しては殆んど変わらない。従って DW の波動関数を用いた場合、非弾性陽子 [電子] 散乱実験値への規格化因子は $0.12 \sim 0.42$ [$0.13 \sim 0.35$] から $0.20 \sim 0.43$ [$0.22 \sim 0.36$] へと大きくなる。この因子が始状態の ground state correlation, 終状態の多粒子多空孔成分によって説明されるべき量ということになる。

最後に、第 8, 9 図に示した $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}^*$ [$E_x \approx 2.7 \text{ MeV}$] の角分布について考察す



第 8 図 $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}^*$ [$E_x = 2.7 \text{ MeV}$] 反応微分断面積の角分布。図中の曲線群は、 $1d_{3/2} \rightarrow 2p_{3/2}$ 遷移の DWIA 計算値である (規格化因子は 1)。



第9図 実験値は第8図と同じ。図中の曲線群は $2s_{1/2} \rightarrow 1f_{7/2}$ 遷移の DWIA 計算値である。

る。この励起エネルギー領域には第2節で述べた核反応によって 1^+ 準位の存在が分かっているが、 (γ, π^+) の角分布は M1 遷移に特徴的な前方ピークの形をしておらず、他の遷移が支配的であると思われる。そこでこの励起状態の性質を知る為に、まず始めに $(^3\text{He}, d)$ 、 (d, p) 等の stripping 反応の実験結果^{12,13)} を参考にした。これらによると $E_x(^{40}\text{K}) \approx 2.1, 2.7 \text{ MeV}$ に $(2p_{3/2} 1d_{3/2}^{-1})$ 配位の $J^\pi = 0^-, 1^-, 2^-, 3^-$ 準位の存在が分かっている。 $1d_{3/2} \rightarrow 2p_{3/2}$ の一粒子遷移を仮定した DWIA 計算値を第8図に示す(規格化因子は1としてある)。この結果は角分布の形を再現するが、絶対値を再現しない。他の遷移も混ざっている可能性がある。これとは別に、一粒子励起エネルギーがほぼ等しいと考えられる配位として $(1f_{7/2} 2s_{1/2}^{-1})$ 配位がある。この場合の DWIA 計算値を第9図に示す(規格化因子は1としてある)。計算

値は 1 より小さい規格化因子の必要性を示し, $E_x \approx 2.7 \text{ MeV}$ の状態は 3^- , 4^- と考えることができる。両者の角分布は似ており, 角分布の形からどちらが主要であるかは判断できない。

$^{40}\text{Ca}(p, n)^{40}\text{Sc}$ 反応では $E_x(^{40}\text{Sc}) = 2.3 \text{ MeV}$ に 4^- が見つかっており, 本実験で見られる $E_x(^{40}\text{K}) \approx 2.7 \text{ MeV}$ の状態はこれに対応しているかも知れない。

以上が現在までの解析結果である。今後, 実験を継続してこれらの角分布の統計精度を上げると共に, $E_x(^{40}\text{K}) \approx 4.3, 6.3 \text{ MeV}$ 付近に見られるスピン・アイソスピン反転遷移の性質を明らかにする予定である。

参 考 文 献

- 1) P. M. Endt and C. V. D. Leun : Nucl. Phys. **A310** (1978) 1.
- 2) W. Gross *et al.* : Phys. Lett. **84B** (1979) 296.
- 3) S. Oguro *et al.* : Phys. Rev. C **30** (1984) 1159.
- 4) H. Ejiri *et al.* : Phys. Rev. C **24** (1981) 2001.
- 5) T. N. Taddeucci *et al.* : Phys. Rev. C **28** (1983) 2511.
- 6) T. Chittrakarn *et al.* : Phys. Rev. C **34** (1986) 80.
- 7) 竹下邦和, 他 : 核理研研究報告 **20** (1987) 233.
- 8) L. Tiator and L. E. Wright : Nucl. Phys. **A379** (1982) 407.
- 9) L. I. Schiff : Phys. Rev. **83** (1951) 252.
- 10) DWIA cal. code by H. Ohtsubo : private communication
- 11) T. W. Donnelly and G. E. Walker : Ann. Phys. **60** (1970) 209.
- 12) J. R. Erskine : Phys. Rev. **149** (1966) 854.
- 13) H. A. Enge *et al.* : Phys. Rev. **115** (1959) 949.

II. 物 性 物 理

正方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ と $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{6.81}$ の結晶構造

金研

梶谷 剛・草場啓治・菊地昌枝・松永寿康
浜田茂義・桜井哲朗・平林 真

正方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ の構成元素のひとつである Cu を Co と置換し、その結晶構造を粉末 X 線回折及び粉末中性子線回折によって決定した。解析の結果、Co 原子は Cu_1 サイト、 $1a$ (000) に選択的に配置することがわかった。正方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ と $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{6.81}$ の格子定数はそれぞれ $a = 3.8644(2) \text{ \AA}$ 、 $c = 11.7881(9) \text{ \AA}$ および $a = 3.8752(2) \text{ \AA}$ 、 $c = 11.6851(9) \text{ \AA}$ である。

§ 1. 序 論

斜方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ が 90 K 近傍で超伝導転移温度を持つことが Wu ら¹⁾ によって始めて報告されて以来、斜方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ の結晶構造に重大な関心が寄せられた。この結晶構造を初めてほぼ正しく解析したのは論文の受理日付で見る限りカナダの LePage ら²⁾ (1987年3月13日受理) である。LePage らは $40 \times 30 \times 15 \mu\text{m}^3$ という微単結晶を焼結ペレットから取り出し、4軸型 X 線回折装置を用いて X 線回折実験を行った。LePage らは $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ が斜方晶の空間群 Pmmm に属することを確認したが、簡単のために正方晶の空間群 $P4/mmm$ を仮定して結晶構造解析を行った。

ATT の Siegrist ら³⁾ は同様の X 線回折実験を行い斜方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.9}$ について空間群 Pmmm を仮定して結晶構造解析を行った。その報告書は1987年3月16日に受理されている。報告された結晶学パラメーターは後に中性子回折によって決定されたものと良く一致している。中性子回折による構造決定の最初の報告は1987年3月27日に受理された ANL の Beno ら⁴⁾ によるものである。Beno らの得た結晶学パラメーターは現在正しいものと考えられている。

正方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ は斜方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ を大気中で 650°C 以上に加熱することによって安定化する⁵⁾。正方晶の相が斜方晶の相の高温相であることはカーネギー研究所の Hasen ら⁶⁾ によって予想された。Hasen らは斜方晶の単結晶試料 ($50 \times 40 \times 20 \mu\text{m}^3$) を用いて X 線回折実験を行い、超伝導相の結晶構造の種々の特徴をとらえることに成功し1987年

3月10日に報告書を提出したが、Hasenらは超伝導酸化物結晶の[100]と[010]方向の回折ピークが異常に広がっていることから、この結晶は高温では空間群 $P4/mmm$ か $P\bar{4}m2$ に属する正方晶で、室温では斜方晶であることを見出した。

正方晶 $YBa_2Cu_3O_{7-r}$ の結晶構造を初めて実際に解析したのはIzumiら⁷⁾(1987年4月6日受理)である。IzumiらはTOF型高分解能粉末中性子回折装置を用いて結晶構造解析を行った。Izumiらは斜方晶と正方晶の混晶試料をSiegristら³⁾の提案した結晶モデルに従って解析し、正方晶は斜方晶に比較して酸素欠損量が大きいことや、その酸素欠損の起きるのはBaとBaに挟まれたc面内であることを見出した。

正方晶の結晶構造は、その後Katanoら⁸⁾とKajitaniら⁹⁾によって単相試料を用いて調べられたが酸素欠損量に多少の差があるものの基本的にはIzumiら⁷⁾の提案した構造は正しいものと考えられる。

正方晶 $YBa_2Cu_3O_{7-r}$ ($r=0.5\sim 1.0$)は超伝導状態になりうるとする説、例えば文献5、と低温では半導体的な電気抵抗変化を示し、ついには絶縁体となる説、例えば文献8、があるが現在は絶縁体説が有力なようである。

Y系の高温超伝導酸化物の超伝導発現機構を解明する目的から、構成元素の部分的な置換を施した試料についての組織的な研究が進行している¹⁰⁻¹³⁾。

Y系酸化物のCuを他の元素と置換する実験はCu-O結合が電気伝導を担っていることから特に重要である。Shindoら¹⁴⁾が報告する所によれば、Y系酸化物の5%以上のCuをCoと置換すると室温における結晶構造が斜方晶から正方晶へと変化し、約1/3のCuをCoと置換するまで単相を保つことができる。CuをCoと置換することによって超伝導転移温度は低下し、約20%以上のCuがCoと置換すると超伝導現象が消滅する。Maenoら¹¹⁾はCuを3d電子を持つNiやFeのような第3周期の元素と置換することによって室温における安定相が斜方晶から正方晶へと変化することから、それらの元素と置換するCuはBaとBaの間のc面内で酸素と一次的に結合しているCu₁サイト, 1a(000), であると予想している。

本研究は正方晶の $YBa_2Cu_3O_{7-r}$ のCuを部分的にCoと置換した場合、CoがどのCuのサイトを占めるかを決めようとするものである。粉末試料を用いて室温においてX線回折と中性子回折を用い、Rietveld法によって結晶学パラメーターを決定した結果について報告する。

§2. 実験方法

$BaCO_3$, Y_2O_3 , CuO および CoO を混合してペレットし、大気中にて930°Cにて焼成し室

温に炉冷し、ペレットを粉碎して再度ペレット化して焼成し、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{7-\gamma}$ 試料を得た。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ 試料は二度目の焼成後 930°C から液体窒素中に焼き入れることによって得た。

粉末試料は焼結ペレットを粉碎して作成した。X線回折実験には2軸型回折装置を用い $\text{Cu-K}\alpha$ 線を入射X線とした。中性子回折実験は核理研に設置された粉末中性子回折装置 MARK 20¹⁵⁾ によって室温において実施した。

X線回折図形の解析には泉¹⁶⁾ によって作られたプログラム RIETAN を用い、TOF型中性子回折図形の解析には Von Dreele ら¹⁷⁾ によって作られた TOFLS を用いた。

§ 3. 実験結果

X線回折の結果得た回折強度分布(点)とプロファイル解析の結果得た理論曲線を第1図に示す。図の上半分は正方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ の回折図形であり、下半分は正方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{7-\gamma}$ の回折図形である。CuをCoと置換することによって単位格子の1/3のc軸長の基本格子がほぼ立方格子となるために $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{7-\gamma}$ のX線回折図形は $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ の回折図形よりも単純になっている。

第2図と第3図はそれぞれ $2\theta=60^\circ$ と $2\theta=150^\circ$ の測定系によって測定された中性子回折図形である。第1図と同様に点は測定値であり曲線は理論曲線を示す。測定値と理論曲線の一致は充分満足のゆくものである。

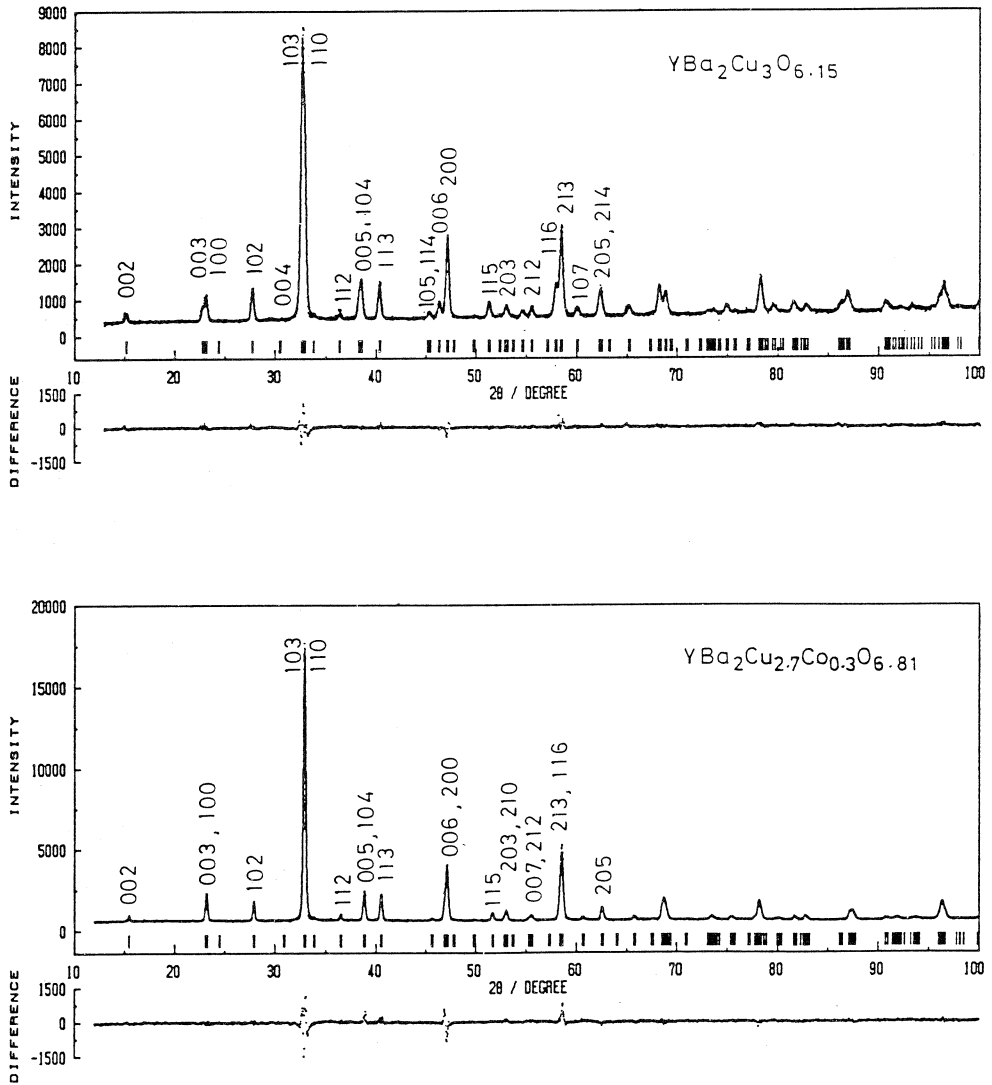
$2\theta=60^\circ$ の回折図形においてCuのCoによる置換によって006+200ピークと113ピークが伸び、逆に114+105ピークと111ピークが減少することがわかる。第3図に示した $2\theta=150^\circ$ の回折図形においても同様の変化を見ることができが回折図形の変化の大部分は格子定数の変化によるものである。

X線回折によって格子定数を決定し、 $2\theta=60^\circ$ における中性子回折からBa, YおよびOの席占有率を求め、 $2\theta=150^\circ$ における中性子回折によって各原子の座標と温度因子を求めた。

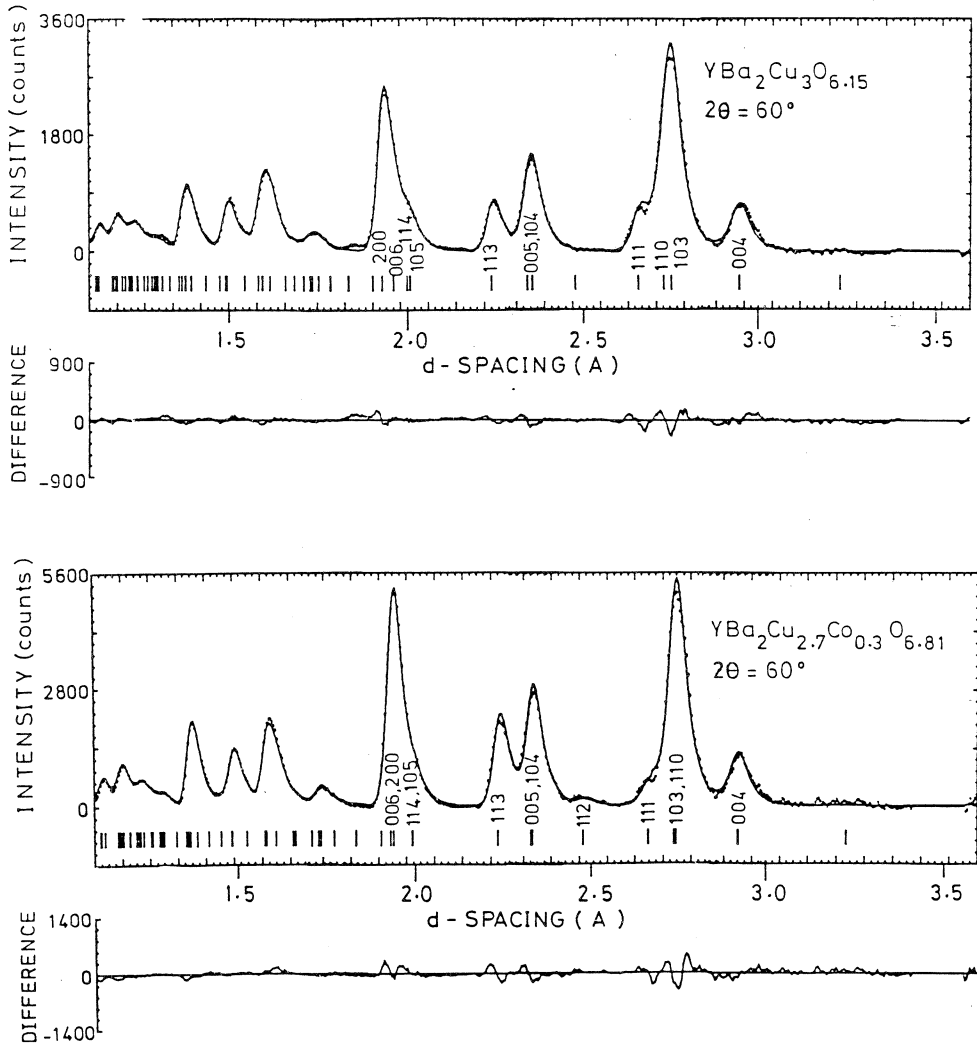
求めた結晶学パラメーターを基礎に、さらにX線回折図形と中性子回折図形のプロファイルフィットを図った。このようなプロセスを数回繰返して決定した結晶学パラメーターを第1表と第2表に示す。第1表は $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ のものであり、第2表は $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{7-\gamma}$ の結晶学パラメーターである。

決定された結晶学パラメーターから試料の化学組成を計算すると、それぞれ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15(7)}$ および $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{6.81(2)}$ という化学組成式を得ることができる。

第1表に示した正方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ のパラメーターと著者ら⁹⁾が以前に定常炉を用いて決定した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.05}$ のパラメーターを比較すると、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.05}$ においては約15%のBaがYと混合していたのに対して、本研究に用いた試料ではBaとYの席占有率は測定誤差、 ± 0.02 、の範囲内で1.0としてよい。また、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ 結晶中の $4i(0\ 1/2\ 0.3787(4))$ にある O_3 原子は殆んど欠損していない。

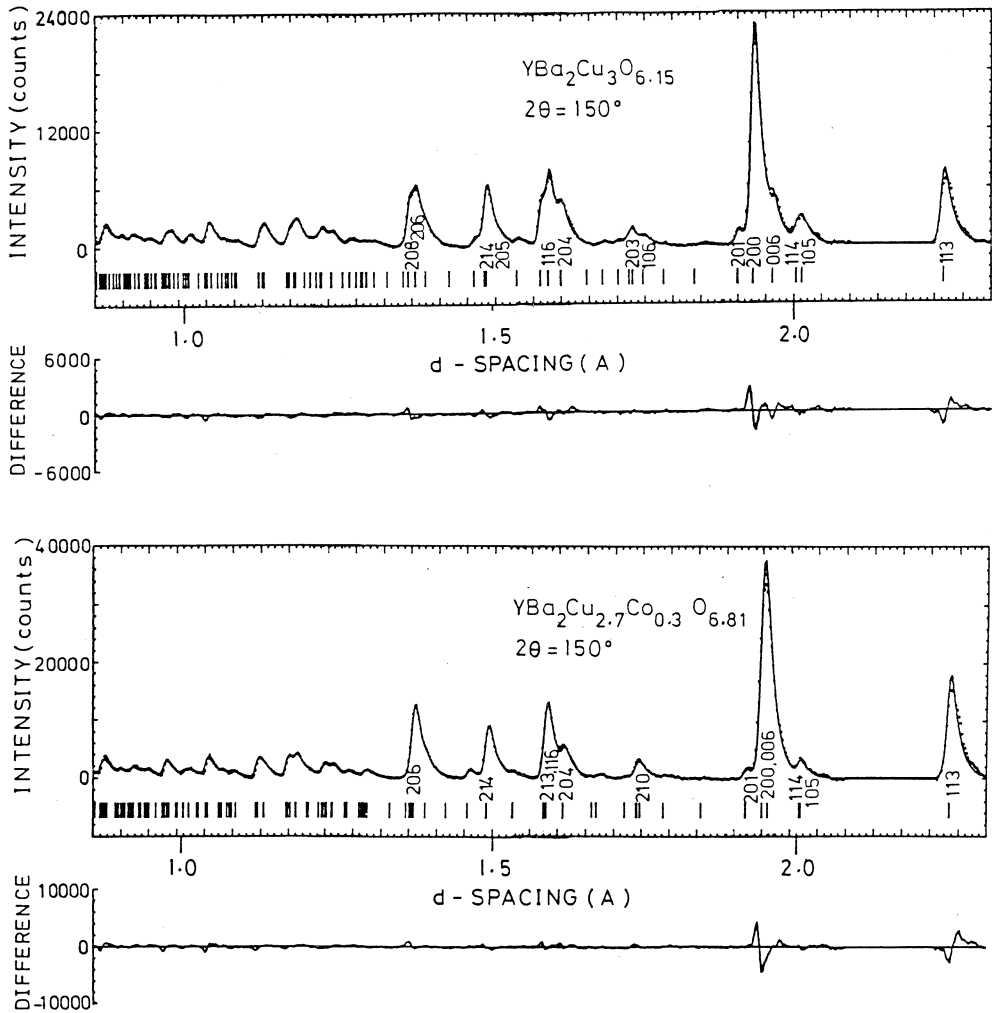


第1図 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ と $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{7-\gamma}$ のX線回折図形。
点は測定値，線は計算値を示す。



第2図 $2\theta = 60^\circ$ において測定した $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ と $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{7-\gamma}$ の中性子回折図形。113 と 006 + 200 のピークは Cu の Co 置換によって高くなるが 114 + 105 および 111 ピークは逆に低くなっている。

第2表に示した $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{6.81}$ 結晶のパラメーターから、Co は Cu_1 サイトにのみ存在することがわかる。すなわち、Maeno ら¹¹⁾ の予想した通り、Co は $\text{Cu}_1-\text{O}_1-\text{Cu}_1-\text{O}_1$ の一次元鎖を壊していることが示された。さらに、一次元鎖を形成している Cu を順次 Co と置換しても超伝導転移温度が急に低下することが無いことから、超伝導酸化物の電気伝導は一次元鎖の連がり方と直接の関係がないことがわかる。



第3図 $2\theta = 150^\circ$ において測定した中性子回折図形。回折ピークの形状がCuのCoによる置換によって変化している。

第1及び第2表の下部に示した残差, R_B , R_p および R_{wp} はそれぞれブラグ強度, I_{hkl} , に対する残差, 回折図形全体に対する残差, および統計的重みを付けた回折図形に対する残差を示す。表に示したように, 残差は十分に低いレベルにある。

第1表 正方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ の結晶学のパラメーター。空間群 $P4/mmm$ を仮定した。格子定数は $a = 3.8644(2)\text{\AA}$, $c = 11.7881(9)\text{\AA}$ である。

Atom	Site	x	y	z	$B(\text{\AA}^2)$	Occupancy
Ba ₁	2h	1/2	1/2	0.1928 (6)	0.90 (20)	0.98 (2)
Ba ₂	1d	1/2	1/2	1/2	0.90 (20)	0.03 (2)
Y ₁	2h	1/2	1/2	0.1928 (6)	0.26 (21)	0.02 (2)
Y ₂	1d	1/2	1/2	1/2	0.26 (21)	0.97 (2)
Cu ₁	1a	0	0	0	0.35 (12)	1.0
Cu ₂	2g	0	0	0.3618 (5)	0.35 (12)	1.0
O ₁	2f	0	1/2	0	0.66 (11)	0.12 (2)
O ₂	2g	0	0	0.1546 (7)	0.66 (11)	1.0
O ₃	4i	0	1/2	0.3787 (4)	0.66 (11)	0.99 (1)

Residuals (%)	R _B	R _P	R _{WP}
X-ray	6.6	5.0	6.6
Neutron $2\theta = 60^\circ$	3.5	7.7	10.4
Neutron $2\theta = 150^\circ$	5.9	9.6	11.8

第2表 正方晶 $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{6.81}$ の結晶学パラメーター。空間群 $P4/mmm$ を仮定した。格子定数は $a = 3.8752(2)\text{\AA}$, $c = 11.6851(9)\text{\AA}$ である。

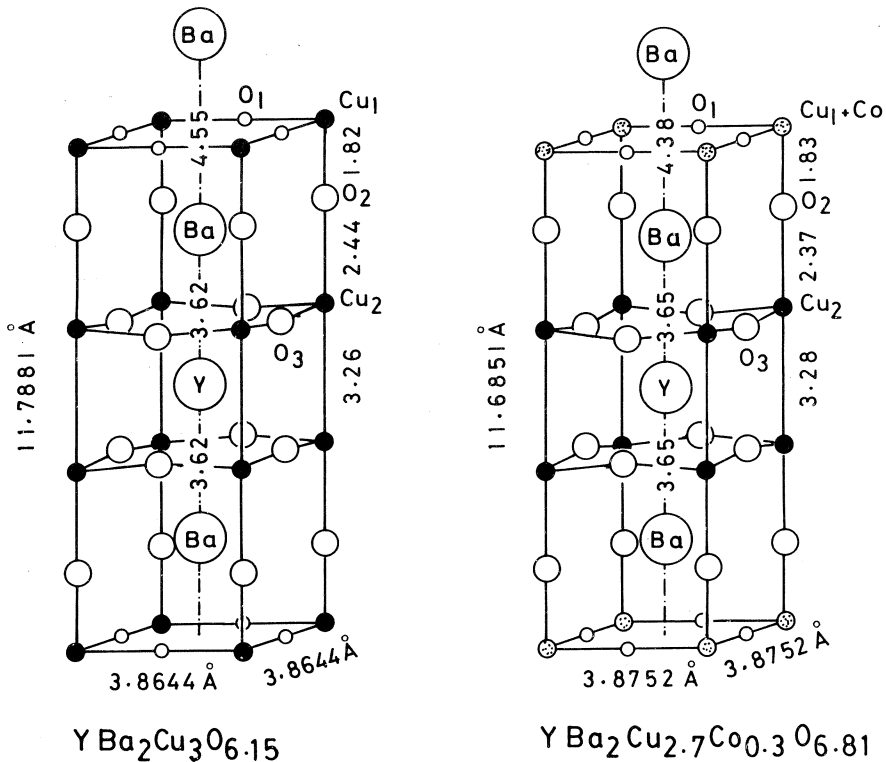
Atom	Site	x	y	z	$B(\text{\AA}^2)$	Occupancy
Ba	2h	1/2	1/2	0.1875 (7)	0.47 (21)	1.0
Y	1d	1/2	1/2	1/2	0.56 (23)	1.0
Cu ₁	1a	0	0	0	0.42 (20)	0.70 (2)
Co	1a	0	0	0	0.42 (20)	0.30 (2)
Cu ₂	2g	0	0	0.3595 (7)	0.42 (20)	1.00 (2)
O ₁	2f	0	1/2	0	0.93 (14)	0.41 (1)
O ₂	2g	0	0	0.1564 (8)	0.93 (14)	1.0
O ₃	4i	0	1/2	0.3779 (5)	0.93 (14)	1.0

Residuals (%)	R _B	R _P	R _{WP}
X-ray	6.3	4.8	6.6
Neutron $2\theta = 60^\circ$	9.4	7.1	10.0
Neutron $2\theta = 150^\circ$	5.6	10.2	13.0

§ 4. 考 察

本研究によって得た $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ と 90 K 近傍に超伝導転移温度をもつ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.74}$ の結晶学パラメーターを比較してみると次のような点に気付く。

- 1) 酸素欠損量の多い $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ の c 軸長は $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.74}$ の c 軸長よりも約 1% 長い。
- 2) Ba-Ba 距離は $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ において斜方晶よりも約 5% 長い。すなわち, Ba 層同士に挟まれた Cu_1 - O_1 層における酸素の欠損は c 軸長を伸ばす働きをするばかりでなく, Ba-Ba 距離を強く離間させる。
- 3) Cu_2 - O_2 距離も $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ の方が約 5% 長い。
- 4) Cu_2 - Cu_2 および Ba-Y 距離は正方晶中の方が約 4% も短く, これは Ba-Ba 距離の異常な伸長によるものと考えられる。



第 4 図 決定された結晶学パラメーターを基に描いた $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ と $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{6.81}$ の単位格子。

また、このような特徴は $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{6.81}$ と $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ の結晶学パラメーターを比較した場合にも成り立っている。

第4図は本研究によって決定した結晶学パラメーターを基に描いた $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ と $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{6.81}$ の単位格子を示す。図中の数字は格子定数と原子間距離を示す。

本研究によって見い出された Ba-Ba 距離の変化と呼応した $\text{Cu}_2\text{-O}_2$ 距離の変化は超伝導を起こすと見られる $\text{Cu}_2\text{-O}_3$ 2次元ネットワークに O_2 原子が結合していることから直接的な静電的な影響をもたらすと考えられ、超伝導現象を理解する上で重要である。

この点について、最近 Kwok ら¹⁸⁾ は $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\gamma}$ を酸素ガス中で 400°C から 900°C の間に保ち、液体窒素中に焼き入れした試料を用いて中性子回折を行い、本研究で得た知見とほぼ同じ結論を得ている。なお本研究の成果は文献19として公表した。(最近、本論文中に示した酸化物の酸素量は化学分析の結果より単位胞当たり約 0.1 低過ぎることが明らかになった。)

装置定数

核理研の新しい粉末中性子回折装置 MARK 20 は昨年度から稼動を始めたが、本研究により各種定数が定まったので記しておくことにする。

粉末中性子回折図形の解析に Von Dreele ら¹⁶⁾ によって作られた Rietveld 法のプログラム TOFLS を用いる場合に必要のパラメーターを第3表に示す。各パラメーターの物理的な意味については著者らの報告²⁰⁾ を参照されたい。

第3表 中性子回折装置 MARK 20 の装置定数。

2θ	DIFC	DIFA	z	α_0	α_1	β_0	β_1	σ_0	σ_1
60°									
右側	1738.0	-3.956	-1.434	-0.098	0.361	0.0188	0.0227	18.521	1.622
左側	1755.3	-	-	-	-	-	-	-	-
(未決定)									
150°									
右側	3229.2	-5.951	-0.029	-0.154	0.527	0.0225	0.0002	12.971	-0.684
左側	3231.2	-5.813	3.993	-0.154	0.527	0.0225	0.0002	12.971	-0.684

本研究に当り、中性子回折装置 MARK 20 の設計、建設に甚大な御努力を傾注され、実験の技術上の援助も賜った本学理学部山田和芳博士に感謝します。

参 考 文 献

- 1) M. K. Wu, J. R. Ashbun, C. J. Torug, P. H. Hor., R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang and C. W. Chu : *Phys. Rev. Lett.* **58** (1987) 908.
- 2) Y. LePage, W. R. McKinnon, J. M. Tarascon, L. H. Greene, G. W. Hull and D. M. Huang : *Phys. Rev.* **B35** (1987) 7245.
- 3) T. Siegrist, S. Sunshine, D. W. Murphy, R. J. Cava and S. M. Zahurak : *Phys. Rev.* **B35** (1987) 7137.
- 4) M. A. Beno, L. Soderholm, D. W. Capone II, D. G. Hinks, J. D. Jorgensen, J. D. Grace Ivan K. Schuller, C. V. Segre and K. Zhang : *Appl. Phys. Lett.* **51** (1987) 57.
- 5) M. Kikuchi, Y. Syono, A. Tokiwa, K. Oh-ishi, H. Arai, K. Hiraga, N. Kobayashi, T. Sasaoka and Y. Muto : *Jpn. J. Appl. Phys.* **26** (1987) L 1066.
- 6) R. M. Hasen, L. W. Finger, R. J. Angel, C. T. Prewitt, N. L. Ross, H. K. Mao, C. G. Hadidiacos, P. H. Hor, R. L. Meng, and C. W. Chu : *Phys. Rev.* **B35** (1987) 7238.
- 7) F. Izumi, H. Asano, T. Ishigaki, E. Takayama-Muromachi, Y. Uchida, N. Watanabe and T. Nishiyama : *Jpn. J. Appl. Phys.* **26** (1987) L 649.
- 8) S. Katano, S. Funahashi, T. Hatano, A. Matsushita, K. Nakamura, T. Matsumoto and K. Ogawa : *Jpn. J. Appl. Phys.* **26** (1987) L 1049.
- 9) T. Kajitani, K. Oh-ishi, M. Kikuchi, Y. Syono and M. Hirabayashi : *Jpn. J. Appl. Phys.* **26** (1987) L 1144.
- 10) M. Onoda, S. Shamoto, M. Sato, S. Hosoya : *Jpn. J. Appl. Phys.* **26** (1987) L 876.
- 11) Y. Maeno, T. Nojima, Y. Aoki, M. Kato, K. Hoshino, A. Minami and T. Fujita : *Jpn. J. Appl. Phys.* **26** (1987) L 774.
- 12) G. Xiao, F. H. Streitz, A. Gavrinn, Y. W. Du and C. L. Chien : *Phys. Rev.* **B35** (1987) 8782.
- 13) Y. Maeno, T. Tomita, M. Kyogoku, S. Awaji, Y. Aoki, K. Hoshino, A. Minami and T. Fujita : *Nature* **328** (1987) 512.
- 14) D. Shindo, K. Hiraga, M. Hirabayashi, A. Tokiwa, M. Kikuchi, Y. Syono, O.

- Nakatsu, N. Kobayashi, Y. Muto and E. Aoyagi : Jpn. J. Appl. Phys. **26**
(1987) L 1667.
- 15) 貝沼亮介, 山田和芳, 松本実, 堀春彦, 本間敏夫 : 核理研研究報告 **19** (1987) 57.
- 16) F. Izumi : J. Cryst. Soc. Japan **27** (1985) 23. [in Japanese]
- 17) R. B. Von Dreele, J. D. Jorgensen and G. G. Windsor : J. Appl. Cryst. **15**
(1982) 581.
- 18) W. K. Kwok, G. W. Crabtree, A. Umezawa, B. W. Veal, J. D. Jorgensen, S. K.
Malik, L. J. Nowicki, A. P. Paulikas and L. Nunez : (Preprint).
- 19) T. Kajitani, K. Kusaba, M. Kikuchi, Y. Syono, and M. Hirabayashi : Jpn. J.
Appl. Phys. **26** (1987) L 1727.
- 20) 梶谷剛, 川瀬智博, 山田和芳, 平林真 : 核理研研究報告 **18** (1985) 271.

Ⅲ. 放 射 化 学

Reexamination of Monitor Reactions for Photonuclear Reaction Study

K. Osada, T. Fukasawa, K. Kobayashi Y. Hamajima, K. Sakamoto
S. S. Shibata[†] and I. Fujiwara^{††}

*Department of Chemistry, Faculty of Science, Kanazawa
University, Kanazawa, Ishikawa 920, Japan*

[†]*Institute for Nuclear Study, University of Tokyo, Tanashi,
Tokyo 188, Japan*

^{††}*School of Economics, Ottemon Gakuin University, Ibaragi,
Osaka 567, Japan*

Three monitor reactions for photonuclear reaction study, $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$, $^{27}\text{Al}(\gamma, 2pn)^{24}\text{Na}$, and $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$, were reexamined for bremsstrahlung end-point energies of 30 to 1000 MeV. Yield data of ^{11}C were in agreement with the reported results. The ^{24}Na yields were confirmed to be consistent with the Johnsonson *et al.*'s, but the ^{196}Au yields based on the ^{24}Na were not in agreement with the reported ones.

§ 1. Introduction

The monitor reactions for photonuclear reaction study have been extensively studied in 1960's and 1970's¹⁻¹⁵⁾. The principles of the monitor reactions, *e.g.* selection of the reactions and techniques of the absolute cross section measurements, have been practically well-established, as have been for proton beams as already reviewed by Cumming¹⁶⁾. The yields (cross sections per equivalent quantum) of the reactions have been primarily determined by comparison between the radioactivities and the irradiation dose monitored by a Wilson-type quantameter¹⁷⁾, that have been called primary monitor reactions, or some of the yields have been determined by normalizing the radioactivities to those of a primary monitor reaction in the same irradiation, called secondary monitor reactions. However, some of the reported

results not only of the primary monitor reactions but also of the secondary ones are inconsistent with each other.

The purpose of the present paper is to reexamine experimentally three monitor reactions, $^{11}\text{C}(\gamma, n)^{12}\text{C}$, $^{27}\text{Al}(\gamma, 2pn)^{24}\text{Na}$, and $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$ in the energy range from 30 to 1000 MeV, and to compare the present results with some of the previous ones.

§ 2. Experimental

Targets were metallic plates and foils of C, Al, and Au (99.99% pure metals). For the primary monitor reaction study, the yield of ^{24}Na from ^{27}Al was measured at bremsstrahlung endpoint energy (E_0) of 850 MeV from the electron synchrotron of the Institute for Nuclear Study (INS), University of Tokyo. Dose measurement was carried out with a calibrated quantameter.

For the secondary monitor reaction study, the yields of ^{11}C and ^{196}Au were measured by normalizing the radioactivities to those of ^{24}Na reported by Johnsson *et al.*⁸⁾ at $E_0 = 100$ to 1000 MeV. At $E_0 = 30$ to 65 MeV, the ^{11}C yields were also measured by the same manner but normalized either to the extrapolated or interpolated values of the 1.19 times the yields of ^{196}Au by Lindgren and Jonsson¹⁰⁾. (see results and discussion in detail.) Irradiations were performed at the Laboratory of Nuclear Science (LNS), Tohoku University at $E_0 \leq 195$ MeV, and at INS at $E_0 \geq 300$ MeV. Though the beam size of photon was certainly smaller than the target size, the targets of the same size were always stacked and irradiated. Target thickness, irradiation time and E_0 were shown in Table 1.

The irradiated targets were directly subjected to γ -ray measurements with pure Ge and Ge(Li) detectors. The detector efficiency was determined with a calibrated ^{152}Eu source of the same size as the counting samples. The relevant nuclear data were taken from refs. 18 and 19 as shown in Table 2. The other details of the irradiation conditions, the counting techniques and the data analysis were previously reported^{20, 21)}.

Table 1 Conditions for irradiations.

		LNS (Electron LINAC)	INS (Electron Synchrotron)
Target	C	43	43
thickness (mg / cm ²)	Al	6.63	267
	Au	102	250
Irradiation time (min)		5	10
E_0 (MeV)		30, 40, 45, 55, 64, 65 104, 149, 175, 195	300 to 1000 (100 MeV step)

E_0 : bremsstrahlung end-point energy

Table 2 Relevant nuclear data.

Nuclide	Half-life	γ - ray energy (keV)	Branching ratio (%)
¹¹ C	20.38 m	511	199.54
²⁴ Na	15.02 h	1368.5	100
¹⁹⁶ Au	6.18 d	333, 356	22.9, 86.9

§ 3. Results

The yield of ²⁴Na normalized to a quantameter was in agreement with the Johnsson *et al.*'s⁸⁾ results within the experimental uncertainty. Therefore, the data of Johnsson *et al.*⁸⁾ were subjected to the normalization of the yields of ¹¹C and ¹⁹⁶Au at $E_0 > 100$ MeV. Since the cross sections were too low to detect the radioactivities of ²⁴Na at low energies, the extrapolated yields of ¹⁹⁶Au (see sec. 4.3) were chosen for the secondary monitor for ¹¹C at $E_0 \leq 65$ MeV. The yields of ¹¹C and ¹⁹⁶Au are listed in Table 3. Combined errors derived from counting statistics, decay analysis, counting efficiencies and primary monitor reactions were less than 5% but not shown in Table 3. It was assumed that the beam intensity was constant within the irradiation runs.

Table 3 Measured yields per equivalent quantum of ^{11}C and ^{196}Au .

Energy (MeV)	^{11}C (mb / eq. q.)	^{196}Au (mb / eq. q.)
30	0.61	
40	2.15	
45	1.15	
50	2.21	
64	3.54	
65	3.03	
104	2.79	251
149	2.61	
175	3.00	
195		276
300	3.67	270
400	3.66	285
500	3.93	282
600	4.16	282
700	3.98	290
800	3.99	287
900	4.05	287
1000	4.15	299

Combined errors were estimated to be less than 5%. (See text.)

§ 4. Discussion

We refer the reported results for an energy region of $E_0 = 30$ to 1000 MeV. The literature data were not always listed in tables. In such cases, those were read from the original figures.

4.1 ^{24}Na

The present result (●) at $E_0 = 850$ MeV was in agreement with the Johnsson *et al.*⁸⁾ (○). The results by Andersson *et al.* (1972, ⊗)¹⁾, Antuf'ev *et al.* (1968, △)²⁾, Blomqvist *et al.* (1976, ⊗)⁴⁾, Jarund *et al.* (1973, ▽)⁷⁾, Johnsson *et al.* (1975, ○)⁸⁾, Kumbartzki *et al.* (1971, ⊗)⁹⁾, Masaike (1964, ◇)¹¹⁾, Masumoto *et al.* (1978, 0)¹²⁾, and di Napoli *et al.* (1971, □)¹⁵⁾ are compiled in Fig. 1. The solid line in the figure drawn through the data points reported by Johnsson *et al.*⁸⁾ (○) shows the cross section for the secondary monitor reaction referred in the present experiments. At $E_0 > 100$ MeV, all of the results shown in Fig. 2 are

of the primary type ; from the normalization to the quantameters. However, the results spread widely. It is also noted that the ^{24}Na results from the previous investigators are not in agreement with each other, though these investigators reported their ^{11}C results which are consistent with each other as shown in Fig. 1. We find no reason why the spread is wide in the reported results of ^{24}Na , but not so in those of ^{11}C . The present work confirms the statement by Johnsson *et al.*⁸ that the yields based on the quantameter measurement were consistent with those on the secondary monitor of ^{11}C by Hylten⁶ .

At $E_0 \leq 65$ MeV, we also plotted the yield data reported by Masumoto *et al.*¹² (○) as $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{24}\text{Na}$ reaction. They noted the possible contribution of the (n, α) reaction in detail. However, it was assumed in the present work that the contribution of this reaction appeared to be negligible.

4. 2 ^{11}C

In Fig. 2 the present results (●) are compared with the reported results by Andersson *et al.* (1972, ⌘)¹¹ , Antuf'ev *et al.* (1968, ▲)² , Barber *et al.* (1955, △)³ , de Carvalho *et al.* (1969, I)⁵ , Hylten (1970, solid line)⁶ , Masaike (1964, ◇)¹¹ , Masumoto *et al.* (1978, ○)¹² , and di Napoli *et al.* (1968, □)¹³ . At $E_0 > 100$ MeV, the present results are about 7 % larger, but those by Antuf'ev *et al.*² (▲) and by Barber *et al.*³ (△) are lower than the Hylten's⁶ (solid line) which are in good agreement with the Masaike's¹¹ (◇). The results by di Napoli *et al.*¹³ (□) are considerably higher than the rest. It may be concluded that all of the results except for those by di Napoli *et al.* are consistent with in about 20% .

At $E_0 \leq 65$ MeV, the present results scatter highly because of unstable beam-intensities during the run, but seem to be in agreement with those by Masumoto *et al.*¹² (○) which shows as inconsistent value with those by Barber's³ (△) at $E_0 = 70$ MeV. However, the ^{11}C data at $E_0 < 100$ MeV remain for a further reexamination. Also care must be taken in yield measurements of short-lived nuclides such as ^{11}C for beam stability.

4.3 ^{196}Au

The present results (\bullet) are compared with those of Andersson *et al.* (1972, \otimes)¹⁾, de Carvalho *et al.* (1969, I)⁵⁾, Lindgren and Jonsson (1971, solid line)¹⁰⁾, and di Napoli *et al.* (1969, \square)¹⁴⁾ in Fig. 3. The yields observed by Lindgren and Jonsson¹⁰⁾ (solid line) were normalized to the secondary monitor reaction on ^{11}C by Hylten⁶⁾, those by di Napoli *et al.*¹⁴⁾ (\square) were to a quantameter and the present results were to the yields of the secondary monitor reaction of ^{24}Na from Johnsson *et al.*⁸⁾ We corrected the data by Lindgren and Jonsson¹⁰⁾ for a revised branching ratio of 356 and 333 KeV γ -ray from ^{196}Au ^{18,19)}. The present results are consistently larger by a factor of 1.19 ± 0.02 than those of Lindgren and Jonsson¹⁰⁾. These investigators utilized the ^{11}C data by Hylten⁶⁾ as the secondary monitor. The yield data of the two secondary monitor reactions subjected to the normalizations, *i.e.* ^{11}C from Hylten⁶⁾ and ^{24}Na from Johnsson *et al.*⁸⁾, are concluded to be consistent with each other (see discussion on ^{24}Na). The discrepancy of the present results from those of Lindgren and Jonsson¹⁰⁾ is not clarified.

At $E_0 \leq 65$ MeV, we also tried to obtain the yield data but our target was too thin to measure the ^{24}Na activity and too far to extrapolate the yield data from Johnsson *et al.*⁸⁾ Therefore, in the ^{11}C determination at $E_0 = 30$ to 65 MeV are used the shape of the yield curve obtained by Lindgren and Jonsson¹⁰⁾ and normalized it to the present results at $E_0 > 100$ MeV (1.19 times the Lindgren and Jonsson's, broken line in Fig. 3). It is noted that the data reported by Andersson *et al.*¹⁾ (\otimes), de Carvalho *et al.*⁵⁾ (I), and di Napoli *et al.*¹⁴⁾ (\square) differ from the present ones.

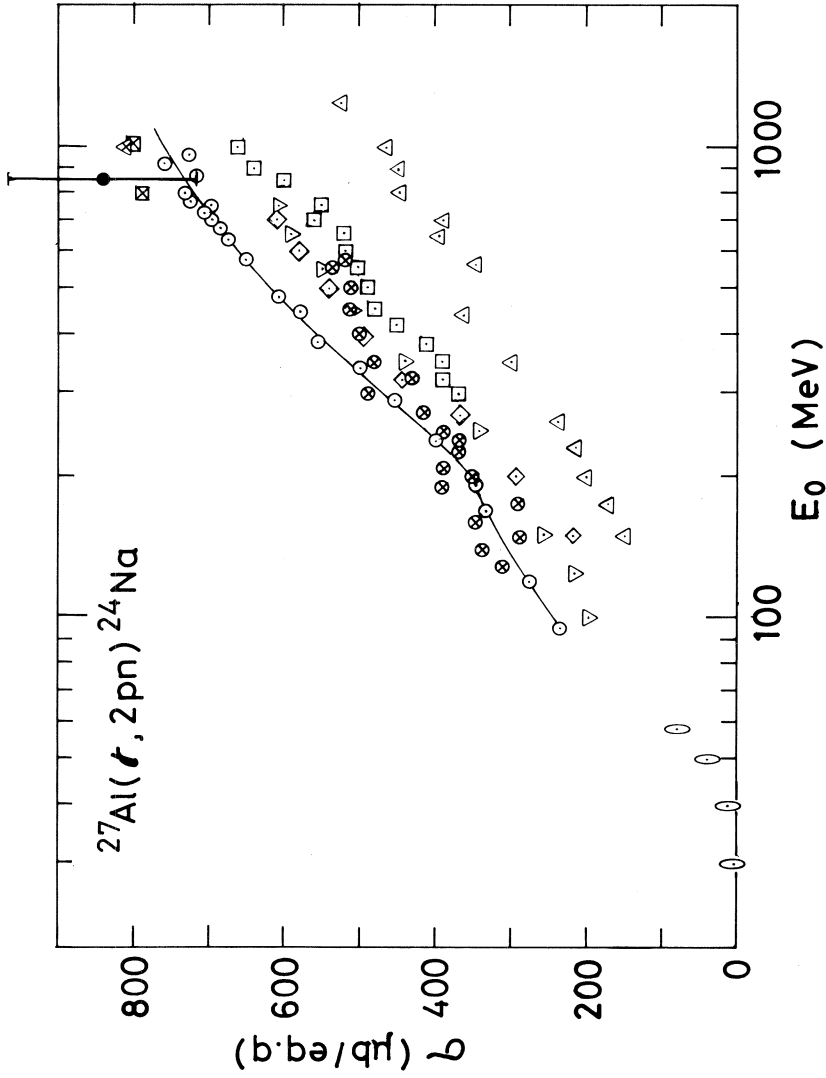


Fig. 1 Comparison of the present ^{24}Na yield (\bullet) at $E_0 = 850$ MeV from $^{27}\text{Al}(t, 2pn)$ with those by Andersson *et al.* (1972, Δ)¹¹, Antuf'ev *et al.* (1968, Δ)²¹, Blomqvist *et al.* (1976, \otimes)⁴, Jarund *et al.* (1973, ∇)⁷, Johansson *et al.* (1975, \circ)⁸, Kumbartzki *et al.* (1971, \boxtimes)⁹, Msaïke (1964, \diamond)¹¹, Masumoto *et al.* (1978, \circ)¹², and di Napoli *et al.* (1971, \square)¹³. The present result (\bullet) was in agreement with the Johansson *et al.*'s 8 (\circ). The solid line drawn through the data points reported by Johansson *et al.*⁸ (\circ) shows the cross section for the secondary monitor reaction referred in the present experiments.

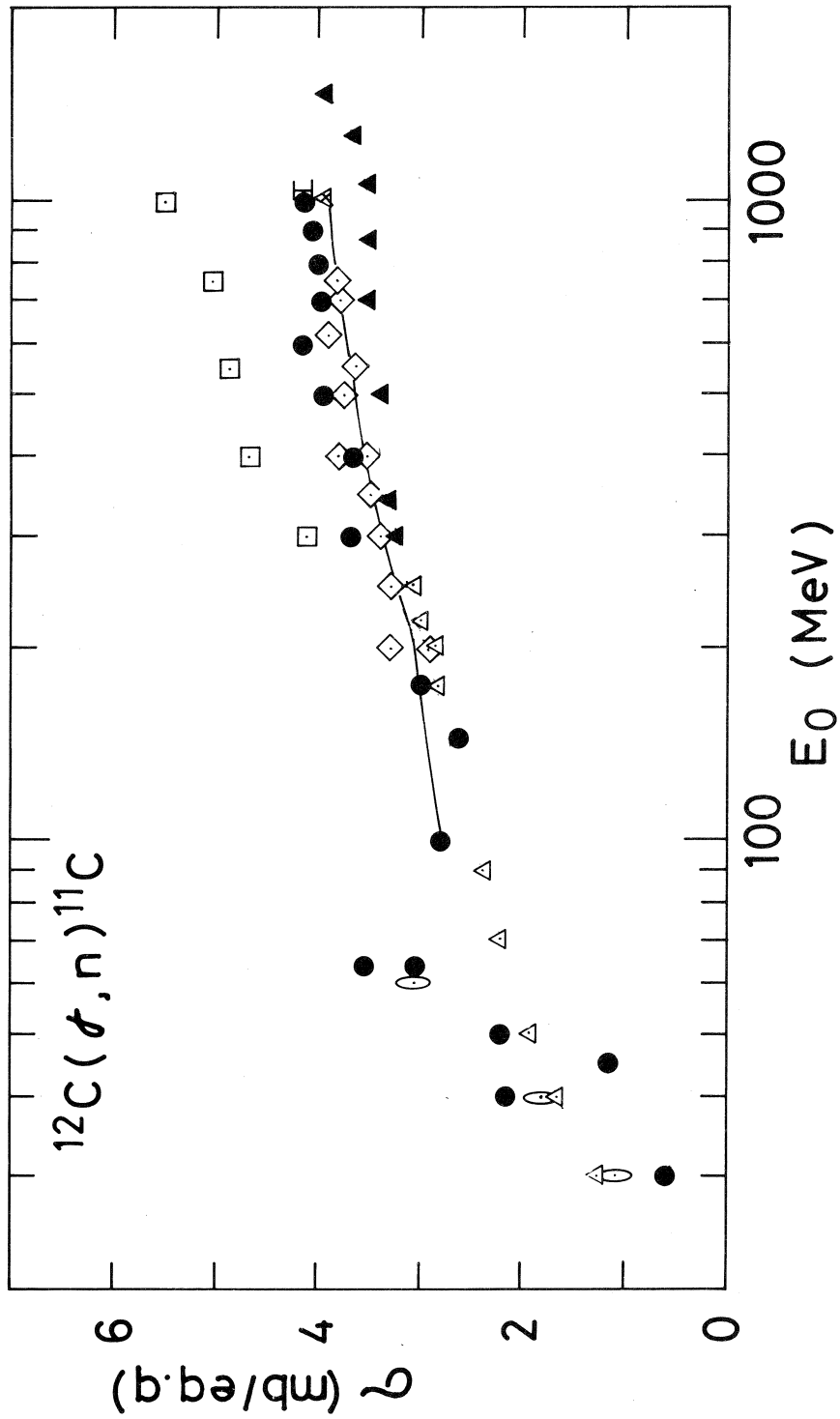


Fig. 2 Comparison of the ^{11}C yields from $^{12}\text{C}(\sigma, n)$ between the present results (●) and those by Andersson *et al.* (1972, Δ)¹⁾, Antuf'ev *et al.* (1968, \blacktriangle)²⁾, Barber *et al.* (1955, \triangle)³⁾, de Carvalho *et al.* (1969, I)⁵⁾, Hylten (1970, solid line)⁶⁾, Masaike (1964, \diamond)¹¹⁾, Masumoto *et al.* (1978, 0)¹²⁾, and di Napoli *et al.* (1968, \square)¹³⁾.

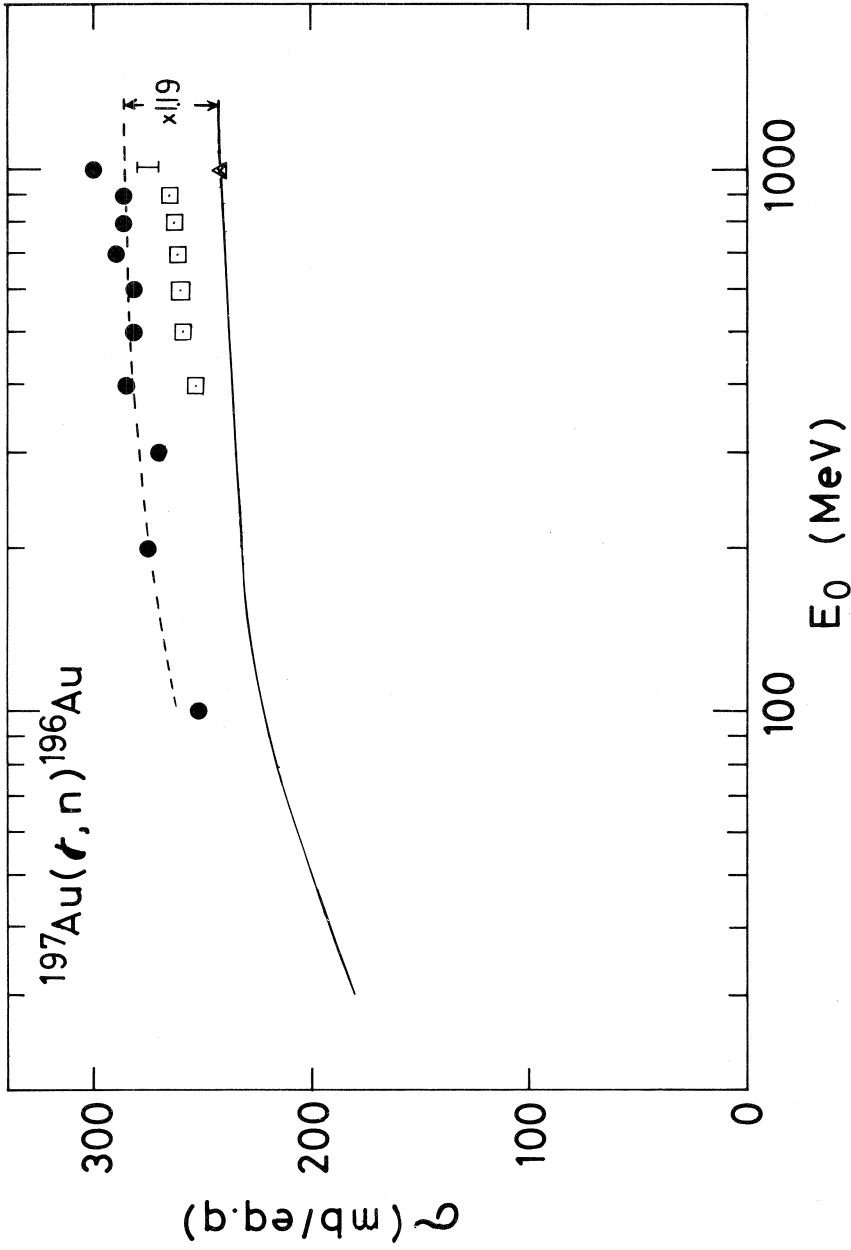


Fig. 3 Comparison of the present ^{196}Au yields (●) from $^{197}\text{Au}(\tau, n)$ with those by Andersson *et al.* (1972, ▲)¹¹, de Carvalho *et al.* (1969, I)⁵, Lindgren and Jonsson (1971, solid line)¹⁰, and di Napoli *et al.* (1969, □)¹⁴. The yield curve by Lindgren and Jonsson¹⁰ was utilized by multiplying 1.19 (broken line, see text in detail) for the secondary monitor in the present measurements of ^{11}C at $E_0 = 30$ to 65 MeV.

§ 5. Conclusion

It is concluded that

1. the ^{24}Na yields from $^{27}\text{Al}(\tau, 2\text{pn})$ by Johnsson *et al.*⁸⁾ are reliable,
2. the ^{196}Au yields from $^{197}\text{Au}(\tau, \text{n})$ must be 1.19 times the Lindgren and Jonsson's¹⁰⁾, and
3. the ^{11}C yields from $^{12}\text{C}(\tau, \text{n})$ are close to the reported ones, except for those by di Napoli *et al.*¹³⁾ at $E_0 > 100$ MeV, but remain for a further study at $E_0 < 100$ MeV.

Acknowledgment

The authors are indebted to Drs. M.Yagi and K.Masumoto of LNS, to Drs. M.Imamura, K.Yoshida, T.Miyachi and M.Mutou of INS for their invaluable cooperations in the accelerator operations and in the radioactivity measurements.

References

- 1) G. Andersson, I. Blomqvist, B. Forkman, G. G. Jonsson, A. Jarund, I. Kroon, K. Lindgren, B. Schrøder, and Tesch : Nucl. Phys. **A197** (1972) 44.
- 2) Yu. P. Antuf'ev, I. I. Miroshnichenko, V. I. Noga, and P. V. Sorokin : Sov. J. Nucl. Phys. **6** (1968) 312.
- 3) W. C. Barber, W. D. George, and D. D. Reagan : Phys. Rev. **98** (1955) 73.
- 4) I. Blomqvist, P. Janecek, G. G. Jonsson, R. Petersson, H. Dinter, and K. Tesch : Z. Phys. A **278** (1976) 83.
- 5) H. G. de Carvalho, V. di Napoli, D. Margadonna, F. Salvetti, and K. Tesch : Nucl. Phys. **A126** (1969) 505.
- 6) G. Hylten : Nucl. Phys. **A158** (1970) 225.
- 7) A. Jarund, B. Friberg, and B. Forkman : Z. Phys. **262** (1973) 15.
- 8) B. Johnsson, A. Jarund, and B. Forkman : Z. Phys. A **273** (1975) 97.
- 9) G. J. Kumbartzki, Ung Kim, and Ch. K. Kwan : Nucl. Phys. **A160** (1971) 237.
- 10) K. Lindgren, and G. G. Jonsson : Nucl. Phys. **A166** (1971) 643.

- 11) A. Masaïke : J. Phys. Soc. Jpn. **19** (1964) 427.
- 12) K. Masumoto, T. Kato, and N. Suzuki : Nucl. Instr. Meth. **157** (1978) 567.
- 13) V. di Napoli, F. Dobici, O. Forina, and F. Salvetti, and H. G. de Carvalho :
Nuovo Cim. **LV** (1968) 95.
- 14) V. di Napoli, D. Margadonna, F. Salvetti, H. G. de Carvalho, and J. B. Martins :
Nucl. Instr. Meth. **93** (1971) 77.
- 15) V. di Napoli, D. Margadonna, F. Salvetti, H. G. de Carvalho, and J. B. Martins :
Lett. Nuovo Cim. **I** (1969) 121.
- 16) J. B. Cumming : Ann. Rev. Nucl. Sci. **13** (1963) 261.
- 17) R. R. Wilson : Nucl. Instr. **1** (1957) 101.
- 18) U. Reus and W. Westmeier : Atomic Data and Nucl. Data Tabs. **29** (1983) 1.
- 19) C. M. Lederer and V. S. Shirley, " *Table of Isotopes, 7th ed.* ", (John Wiley
and Sons, Inc., New York, 1978).
- 20) I. Fujiwara, S. Shibata, M. Imamura, M. Soto, K. Kubota, M. Yoshida, T. Fukasawa,
T. Hashimoto, Y. Hamajima, K. Sakamoto, Res. Rep. Lab. Nucl. Sci.,
Tohoku Univ. **18** (1985) 304.
- 21) S. Shibata, M. Imamura, T. Miyachi, M. Mutou, K. Sakamoto, Y. Hamajima,
M. Soto, Y. Kubota, and M. Yoshida, I. Fujiwara : Phys. Rev. C **35** (1987) 254.

ウラン及び超ウラン元素の光核分裂反応収率

サイクロ R I センター，東大核研*，追手門学院**

山寺 亮 ・加瀬 健 ・中村尚司

柴田誠一* ・藤原一郎**

§ 1. はじめに

使用済み核燃料の中には， α 線を放出し，毒性も強い長半減期の放射性核種が多種類含まれている。30年程度の冷却時間の後になお残る放射能は，アクチニド（U，Np，Pu，Am，Cm など）と，核分裂生成物（ ^{90}Sr ， ^{137}Cs ， ^{129}I ， ^{99}Tc など）であるが，現在考えているような廃棄物の地層処分では，これらの長寿命放射性核種が多量にかつ長期間蓄積されることになる。

より積極的な処理法として，消滅処理が考えられる。これは，核反応を利用して長寿命の放射性核種を短寿命あるいは安定な核種に変換する方法のことである。

消滅処理には，従来，原子炉や加速器から発生する中性子線や，加速器による陽子線を利用したものが研究されている¹⁻⁸⁾。本研究は，光子線を利用した消滅処理であるが，光子線を利用すると次のような利点がある。

- ・ $(r, x p y n)$ 反応を利用するため，生成核種は必ず元の核種より質量数が低くなる。さらに生成核種の多くは β^+ 崩壊をして，原子番号の一つ小さな元素になる。アクチニドを処理した場合にも，反応はより原子番号の小さい安定元素を生じる方向に進むが，陽子線や中性子線による処理ではより原子番号の大きな元素を生成し，照射後の化学処理を大変複雑にする。
- ・ 制動放射線は，陽子線や中性子線より大強度のビームが得られる。
- ・ 陽子線照射に比べ，熱エネルギーロスが少なく，ビームの利用効率が高い。
- ・ 反応は，巨大共鳴領域を利用するので，20～30 MeV の電子ライナックでよい，建設費は陽子加速器に比べ安価で，経済性に勝れている。

本研究の目的は，以上のように利点の多い，「光子線による消滅処理」の有効性を明らかにするもので，そのために必要な基礎データを求めるものである。

今回はその第一報として， ^{238}U と ^{237}Np の光核分裂反応により生成された核分裂生成物の質量分布を求めたので報告する。

§ 2. 実 験

2.1 照射試料

ターゲットは劣化ウラン (^{238}U を 99.959% に濃縮した直径 12.7 mm, 厚さ 0.025 mm の金属ウラン) 及びネプツニウム (直径 19 mm の Ni 板の上に, 99.3% に濃縮した ^{237}Np を直径 12.7 mm, 厚さ $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ で一様に蒸着したもので, 放射能は $43.2 \mu\text{Ci}$) を使用した。何れも Reactor Experiments 社製のものである。ターゲットの前後には, 核分裂生成物を捕獲するキャッチャーフォイル (アルミニウムフォイルまたはポリエチレンフィルム) と光子束をモニターする Au フォイルが置かれている。キャッチャーフォイルとモニターフォイルの直径は, ターゲットと同じである。

2.2 照射及び測定

照射は第 1 実験室に導いたエネルギー 30 MeV 及び 60 MeV の電子ビーム ($10 \sim 100 \mu\text{A}$) を, 厚さ 1 mm の白金コンバータで制動放射線に変換して行なった。コンバータを通過した電子はスweepマグネットを用いて除去したので, ターゲットには到達していない。照射時間はウランの場合には 20~30 分であったが, ネプツニウムの場合には試料の量が少ないことを考慮して 1~2 時間とした。

照射後ターゲットスタックからキャッチャーフォイルとモニターフォイルを取り出して放射能測定した。放射能測定は, オーテック社製 Ge (Li) 検出器 (FWHM 1.9 keV, 相対効率 30%) を NAIG 社製 E シリーズ MCA に, 及びオーテック社製 Ge (Li) 検出器 (FWHM 1.9 keV, 相対効率 14%) を NAIG 社製 NLAB-MCA システムに接続して行なった。データの解析は, NAIG 社の γ 線核種分析用プログラム (NLAB-MCA 2 及び NLAB-GAMMA) を用いて行なった。

§ 3. データ処理, 解析の方法

3.1 飽和放射能の算出

放射能は, γ 線スペクトルのピーク面積から次式によって求めた。

$$A_s = \frac{\lambda \cdot C}{r \cdot \epsilon \cdot (1 - \exp(-\lambda t_0)) \cdot (\exp(-\lambda t_1) - \exp(-\lambda t_2))} \quad (1)$$

A_s : 飽和放射能 λ : 崩壊定数 C : ピーク面積

r : 分枝率 ϵ : ピーク効率 t_0 : 照射時間

t_1 : 照射終了から測定開始までの時間

t_2 : 照射終了から測定終了までの時間

また $^{88}\text{Kr} - ^{88}\text{Rb}$ や $^{140}\text{Ba} - ^{140}\text{La}$ などの親子関係にある核種は次式によって補正した。親核種の生成率を P_a , 娘核種の生成率を P_b とすると, それぞれの生成率は

$$P_a = \frac{\lambda N_a^0}{1 - \exp(-\lambda_a t_0)}$$

$$P_b = \frac{\lambda_b N_b^0}{1 - \exp(-\lambda_b t_0)} + \frac{P_a r_b \cdot (\exp(-\lambda_b t_0) - \exp(-\lambda_a r_a t_0))}{(\lambda_a r_a - \lambda_b) \cdot (1 - \exp(-\lambda_b t_0))} - P_a$$

ここで N_a^0 と N_b^0 は, それぞれ親と娘の $t=0$ における原子数で, N_b^0 は次式から求めた。

$$N_b^0 = N_b \exp(-\lambda_b t_1) + \frac{\lambda_a r_a}{\lambda_a r_a - \lambda_b} N_a^0 (\exp(\lambda_b - \lambda_a r_a) t_1 - 1)$$

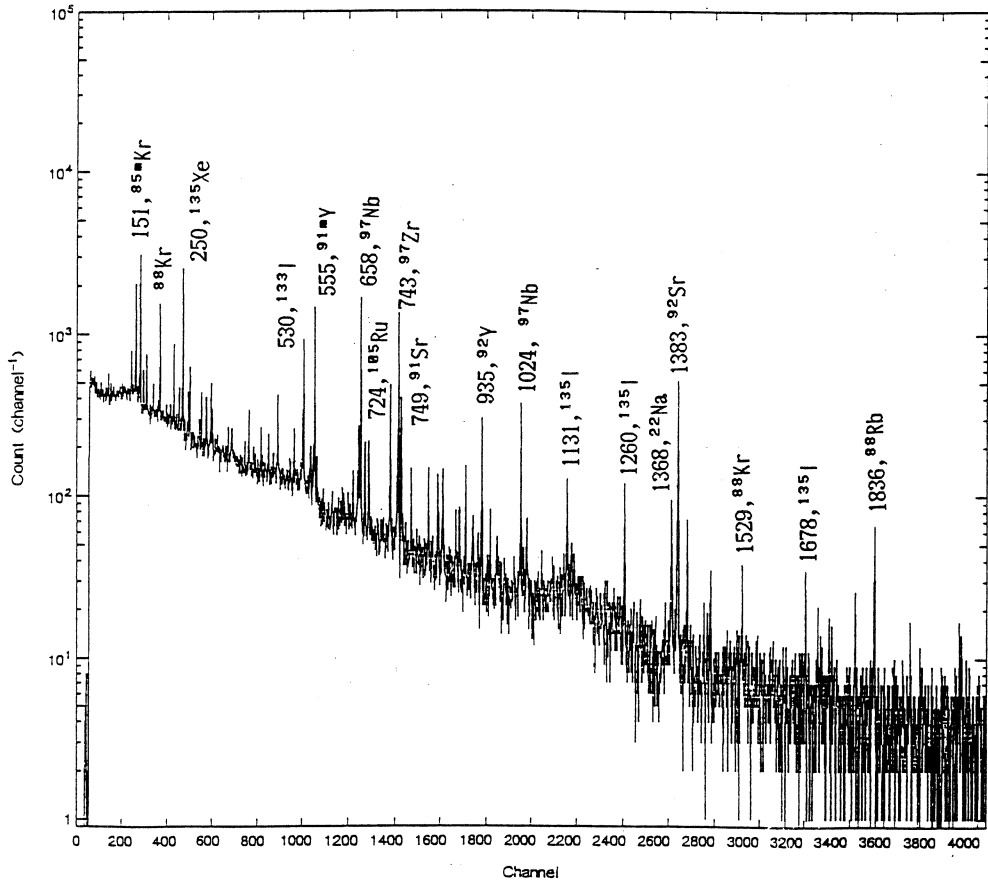
3.2 入射光子線束の決定

制動放射線のスペクトルは Schiff の式⁹⁾に従っていると近似しその強度(光子線束)は, 既に反応断面積のわかっている $^{197}\text{Au}(r, n)$ ^{196}Au 反応の ^{196}Au の生成量²⁶⁾ から求めた。なお, ^{197}Au の (r, n) 反応, および ^{237}Np と ^{238}U の (r, n) , (r, f) 反応のしきいエネルギーは約 8 MeV であることから, 8 MeV 以上の光子線束が重要となる。よってここではエネルギー 0 MeV 以上の全光子線束と, 8 MeV 以上の光子線束の 2 つを求めた。

§ 4. 実験の結果と考察

4.1 生成核種の質量分布

第 1 図は ^{238}U ターゲットを 30 MeV の制動放射線で照射した時の, 冷却時間 5.87 hr 後の r 線スペクトルである。主要なピークについて図中に核種を示したが, 2 MeV までに 70 本の r 線が測定された。第 1 表に, 式(1)を用いて算出した光核反応生成核種の生成率を示す。非破壊測定では, 最大で 41 核種を同定した。とくに沃素は, 131, 132, 133, 134, 135 の 5 核種が検出されている。ウランはキャッチャーfoilと ^{238}U ターゲット自身の放射能を測定し, ターゲットからは ^{137}Cs など長寿命の核分裂核種と ^{238}U から (r, n) 反応で生成する ^{237}U を検出することができた。ネプツニウムはキャッチャーfoilに捕獲された核分裂核種の量がウランの場合よりかなり少ないこと, さらにネプツニウムターゲット自身はバックグのニッケル板から (r, n) , $(r, 2n)$ 反応で生成する $^{57,56}\text{Ni}$ の強い放射能のため, ^{237}Np からの微量の核分裂核種は完全に隠されてしまい測定にかからなかった, 等によって, 同定された核種も少なくなっている。



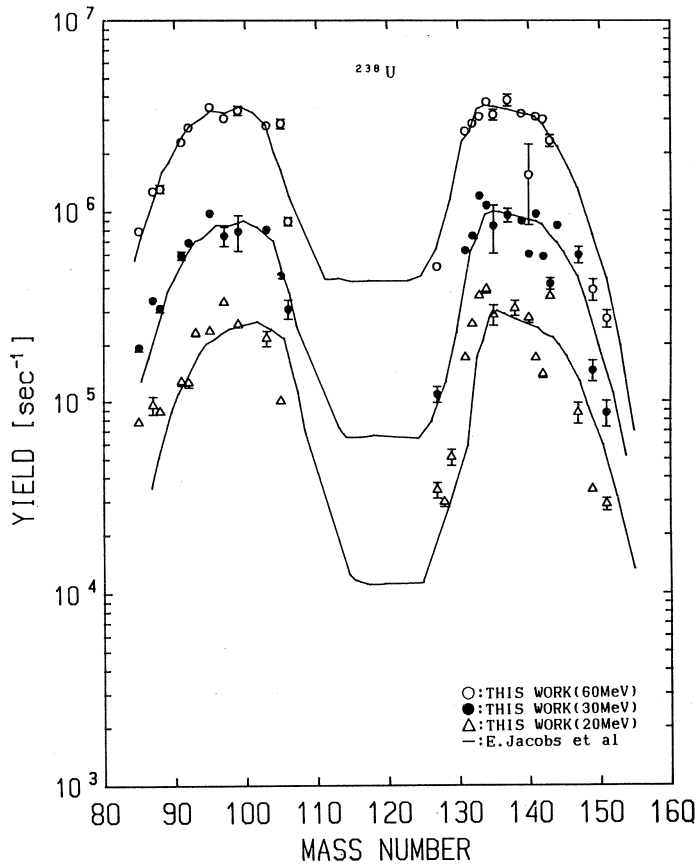
第1図 アルミニウム・キャッチャーフォイルの γ 線スペクトル。
 ^{238}U を最大エネルギー30 MeVの制動放射線照射。
 照射後5.87時間冷却の後、Ge(Li)検出器で測定。

60 MeV 照射の場合にはキャッチャーフォイルにアルミニウムが不適であることがわかった。 $^{27}\text{Al}(\gamma, 2\text{pn})^{24}\text{Na}$ 反応のしきいエネルギーは31.4 MeVであり、30 MeV 照射の時は妨害とはならないが、60 MeV 照射では核分裂反応と同程度の収率になって、核分裂核種の測定に著しい妨害となったためである。そこでアルミニウムの代わりにポリエチレンフィルムを用いた。しかしこの場合でも (γ, n) 反応で半減期20.4 mの ^{11}C を生成するので、半減期が1 hr以下の核種の定量はあきらめざるを得なかった。このような理由で、60 MeV 照射の時は30 MeV 照射に比べて定量できた核種が少なくなっている。

ウラン照射の際 (γ, n) 反応で生成する ^{237}U は半減期6.75 dで壊変して ^{237}Np になる。一方、ネプツニウム照射の際 (γ, n) 反応で生成する ^{236}Np は、半減期22.5 hでEC壊変(～

第1表 ^{238}U と ^{237}Np の光核反応生成核種の生成率。

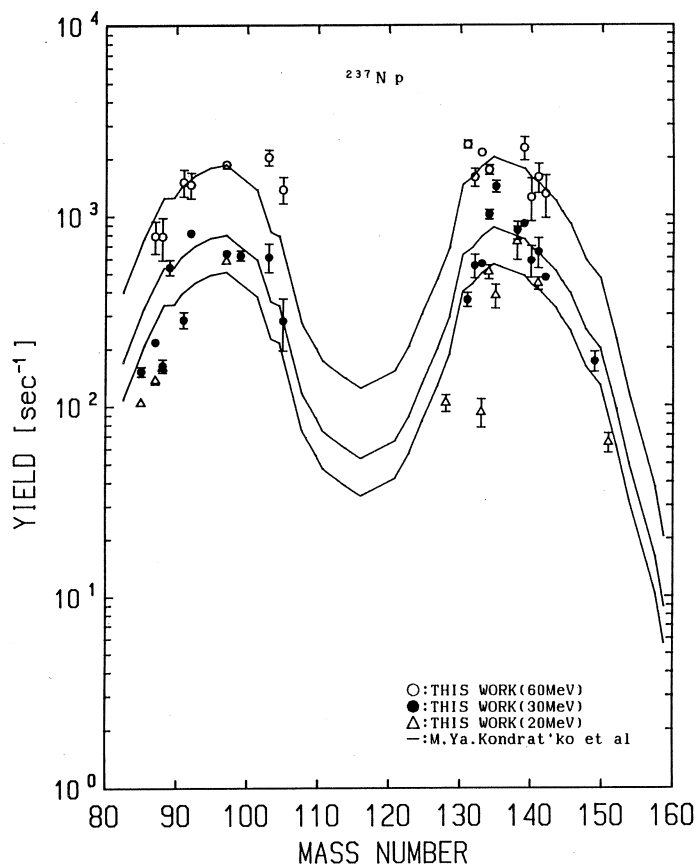
核種	生成率 (s^{-1})			
	$^{238}\text{U} - 30 \text{ MeV}$	$^{238}\text{U} - 60 \text{ MeV}$	$^{237}\text{Np} - 30 \text{ MeV}$	$^{237}\text{Np} - 60 \text{ MeV}$
$^{85\text{m}}\text{Kr}$	$1.45 \times 10^5 \pm 3.62 \times 10^3$	$1.94 \times 10^5 \pm 8.73 \times 10^3$	$4.57 \times 10^2 \pm 2.74 \times 10^1$	
^{87}Kr	$1.86 \times 10^5 \pm 1.50 \times 10^4$	$3.43 \times 10^5 \pm 1.45 \times 10^4$	$5.35 \times 10^2 \pm 2.28 \times 10^1$	$7.90 \times 10^2 \pm 1.50 \times 10^2$
^{88}Kr	$2.74 \times 10^5 \pm 8.75 \times 10^4$	$3.14 \times 10^5 \pm 1.43 \times 10^4$		$7.86 \times 10^2 \pm 1.97 \times 10^2$
^{88}Rb			$7.22 \times 10^2 \pm 1.66 \times 10^2$	
^{91}Sr	$4.66 \times 10^5 \pm 1.22 \times 10^4$	$5.92 \times 10^5 \pm 2.88 \times 10^4$	$1.08 \times 10^3 \pm 4.58 \times 10^1$	$1.51 \times 10^3 \pm 2.42 \times 10^2$
^{92}Sr	$4.66 \times 10^5 \pm 3.83 \times 10^4$	$6.91 \times 10^5 \pm 1.56 \times 10^4$		$1.47 \times 10^3 \pm 2.24 \times 10^2$
^{92}Y			$1.78 \times 10^3 \pm 1.45 \times 10^2$	
^{93}Y	$6.17 \times 10^5 \pm 8.02 \times 10^3$			
^{95}Zr	$5.88 \times 10^5 \pm 9.29 \times 10^3$	$9.80 \times 10^5 \pm 1.14 \times 10^4$		
^{95}Nb	$1.07 \times 10^5 \pm 1.78 \times 10^3$		$1.40 \times 10^3 \pm 8.76 \times 10^1$	
^{97}Zr	$7.72 \times 10^5 \pm 9.68 \times 10^3$	$7.50 \times 10^5 \pm 8.61 \times 10^4$	$2.32 \times 10^2 \pm 1.99 \times 10^1$	$1.87 \times 10^3 \pm 8.80 \times 10^1$
^{97}Nb			$1.44 \times 10^3 \pm 1.64 \times 10^1$	
^{99}Mo	$7.05 \times 10^5 \pm 8.31 \times 10^3$	$7.91 \times 10^5 \pm 1.67 \times 10^4$		
^{103}Ru	$5.04 \times 10^5 \pm 4.83 \times 10^3$	$8.08 \times 10^5 \pm 5.56 \times 10^3$	$8.22 \times 10^2 \pm 5.88 \times 10^1$	
^{105}Ru	$3.25 \times 10^5 \pm 6.37 \times 10^3$	$4.63 \times 10^5 \pm 1.95 \times 10^4$		$2.04 \times 10^3 \pm 1.91 \times 10^2$
^{105}Rh	$7.97 \times 10^4 \pm 6.88 \times 10^3$		$3.14 \times 10^1 \pm 4.18 \times 10^0$	$1.38 \times 10^3 \pm 2.18 \times 10^2$
^{106}Ru		$3.19 \times 10^5 \pm 3.52 \times 10^4$		
^{127}Sb		$1.09 \times 10^5 \pm 1.05 \times 10^4$	$2.86 \times 10^2 \pm 2.94 \times 10^1$	
^{128}Sn	$7.95 \times 10^4 \pm 7.84 \times 10^3$		$6.16 \times 10^2 \pm 7.46 \times 10^1$	
^{129}Te	$7.07 \times 10^5 \pm 3.88 \times 10^4$		$5.23 \times 10^2 \pm 4.94 \times 10^1$	
$^{131\text{m}}\text{Te}$	$2.58 \times 10^4 \pm 2.31 \times 10^3$		$1.43 \times 10^3 \pm 4.94 \times 10^1$	
^{131}I	$2.88 \times 10^5 \pm 9.50 \times 10^3$	$6.29 \times 10^5 \pm 1.89 \times 10^4$	$1.31 \times 10^3 \pm 2.99 \times 10^1$	$2.38 \times 10^3 \pm 1.15 \times 10^2$
^{132}Te	$3.12 \times 10^5 \pm 6.94 \times 10^3$	$7.47 \times 10^5 \pm 1.26 \times 10^4$	$3.14 \times 10^2 \pm 2.39 \times 10^1$	$1.60 \times 10^3 \pm 1.70 \times 10^2$
^{132}I	$5.75 \times 10^4 \pm 2.80 \times 10^3$		$4.48 \times 10^2 \pm 3.95 \times 10^1$	
$^{133\text{m}}\text{Te}$		$3.57 \times 10^5 \pm 3.84 \times 10^4$	$2.12 \times 10^3 \pm 9.70 \times 10^1$	
^{133}I	$6.31 \times 10^5 \pm 5.75 \times 10^3$	$8.44 \times 10^5 \pm 1.29 \times 10^4$	$1.02 \times 10^3 \pm 1.20 \times 10^2$	$2.16 \times 10^3 \pm 8.10 \times 10^1$
^{134}Te		$1.08 \times 10^6 \pm 4.07 \times 10^4$	$3.38 \times 10^2 \pm 2.25 \times 10^1$	
^{134}I	$1.06 \times 10^8 \pm 5.21 \times 10^4$		$1.36 \times 10^3 \pm 1.23 \times 10^2$	$1.75 \times 10^3 \pm 1.01 \times 10^2$
^{135}I	$5.73 \times 10^5 \pm 5.17 \times 10^4$	$8.42 \times 10^5 \pm 2.36 \times 10^5$		
^{135}Xe			$1.82 \times 10^3 \pm 1.51 \times 10^2$	
^{137}Cs		$9.58 \times 10^5 \pm 8.06 \times 10^4$		
^{139}Ba		$8.97 \times 10^5 \pm 3.84 \times 10^4$		
^{140}Ba	$1.16 \times 10^5 \pm 3.38 \times 10^4$	$6.01 \times 10^5 \pm 1.67 \times 10^4$	$1.98 \times 10^3 \pm 1.71 \times 10^2$	$1.26 \times 10^3 \pm 3.14 \times 10^2$
^{140}La	$1.62 \times 10^4 \pm 2.70 \times 10^3$		$2.05 \times 10^2 \pm 2.58 \times 10^1$	
^{141}Ce	$1.45 \times 10^5 \pm 1.79 \times 10^3$	$9.73 \times 10^5 \pm 6.26 \times 10^3$	$1.49 \times 10^3 \pm 5.94 \times 10^1$	$1.60 \times 10^3 \pm 2.80 \times 10^2$
^{142}La	$1.22 \times 10^5 \pm 5.66 \times 10^3$	$5.83 \times 10^5 \pm 2.04 \times 10^4$	$7.19 \times 10^2 \pm 5.50 \times 10^1$	$1.31 \times 10^3 \pm 3.28 \times 10^2$
^{143}Ce	$1.31 \times 10^5 \pm 1.08 \times 10^4$	$4.19 \times 10^5 \pm 2.99 \times 10^4$	$1.26 \times 10^3 \pm 3.08 \times 10^1$	
^{144}Ce		$8.48 \times 10^5 \pm 3.39 \times 10^4$		
^{147}Nd		$5.95 \times 10^5 \pm 6.10 \times 10^4$		
^{149}Nd	$2.73 \times 10^4 \pm 2.22 \times 10^3$	$1.46 \times 10^5 \pm 1.82 \times 10^4$	$4.98 \times 10^2 \pm 2.94 \times 10^1$	
^{151}Pm	$6.89 \times 10^4 \pm 3.58 \times 10^3$	$8.70 \times 10^4 \pm 1.35 \times 10^4$	$2.54 \times 10^2 \pm 4.98 \times 10^1$	
^{237}U	$1.94 \times 10^6 \pm 1.05 \times 10^4$	$2.71 \times 10^7 \pm 1.50 \times 10^5$		



第2図 ^{238}U の光核分裂反応生成物の質量分布。
 ○：60 MeV 制動放射線による核理研での実験値，
 ●：30 MeV 制動放射線による核理研での実験値，
 △：20 MeV 制動放射線による東大原子力工学研究施設での実験値，
 —：E. Jacobs らのデータ¹¹⁾

50%)して ^{236}U が生成する。これがさらに(r, n)反応すると核燃料の ^{235}U が生産されることになる。

第2および第3図はそれぞれ ^{238}U および ^{237}Np の光核分裂生成物の質量分布を示したものである。図中、△印は東京大学工学部附属原子力工学研究施設の電子ライナックの20 MeV 制動放射線で実験したデータである。また実線は文献に与えられている核分裂生成物の収率^{11, 12)}を我々の実験値に規格化したものである。我々のデータは若干ばらついているが分布曲線の形は文献の傾向によく一致している。制動放射線のエネルギーを上げてもピーク的位置に変化は見られない、谷は浅くなると言われているが、我々の実験ではまだこの辺のデータを得ていな



第3図 ^{237}Np の光核分裂反応生成物の質量分布。
 ○: 60 MeV 制動放射線による核理研での実験値,
 ●: 30 MeV 制動放射線による核理研での実験値,
 △: 20 MeV 制動放射線による東大原子力工学研究施設での実験値,
 —: M. Ya. Kondrat'ko *et al.* らのデータ。¹²⁾

い。今後、この谷の付近のデータを集積していく必要がある。これまでに発表されている実験値は全て相対反応収率であり、今回我々は初めて絶対反応収率を得ることができた。

4.2 光核分裂による核変換量

第2および第3図で得られて反応収率分布を積分することによって、光核分裂反応による核変換量 Δm が実験的に求められる。一方この変換量は

$$\Delta m = m \int_{E_{\text{th}}}^{E_0} \sigma_{(r,n)}(E) \Phi(E) dE = m \int_{E_{\text{th}}}^{E_0} \sigma_{(r,f)}(E) \Phi(E) dE$$

m : ターゲット中の ^{238}U , ^{237}Np の量

E_0 : 電子エネルギー

E_{th} : 光核反応のしきいエネルギー

$\Phi(E)$: 制動放射線束

$\sigma_{(r,n)}$: (r, n) 反応の断面積

$\sigma_{(r,f)}$: (r, f) 反応の断面積

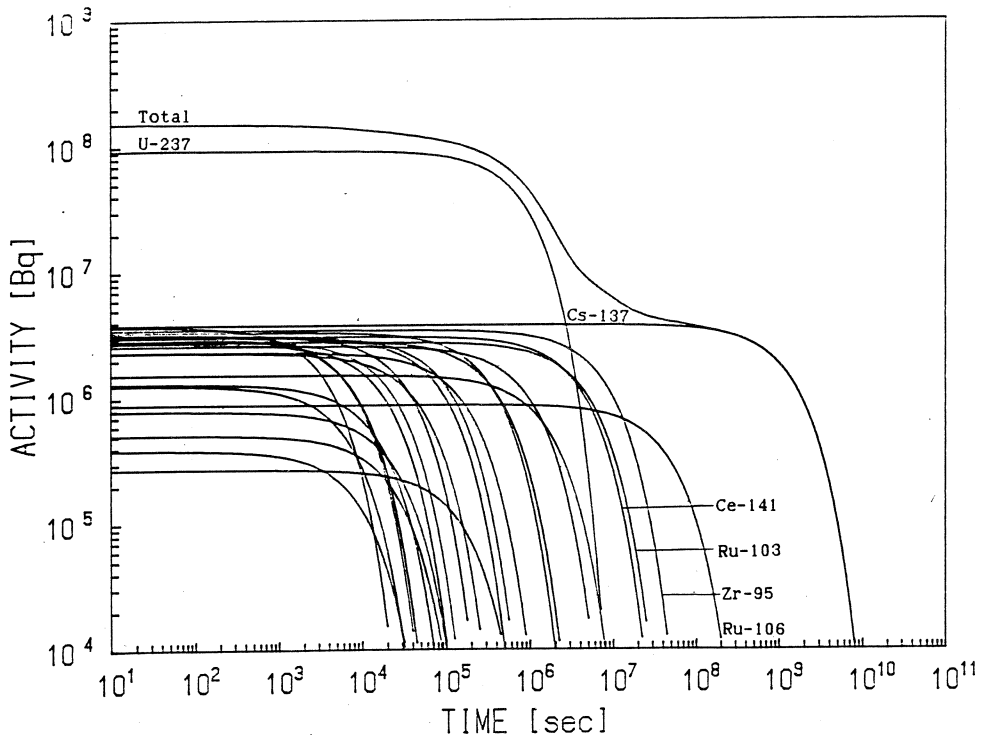
によって与えられるので, § 3.2 で求めた $\Phi(E)$ の値と (r, n) , (r, f) の文献値¹⁰⁾ を用いて計算より求められる。

第 2 表 ^{238}U と ^{237}Np の核変換量の実験値と計算値の比較。

タ ー ゲ ット	電 子 エ ネ ル ギ ー E_0 (MeV)	タ ー ゲ ット 質 量 m (g) $\times 10^{-5}$	核 反 応	核変換量 Δm ($\text{g}\cdot\text{s}^{-1}$)		光 子 束 $\Phi\cdot S$ ($>8\text{MeV}$)* $\times 10^{-11}$	$\Delta m/(m\Phi S)$ (r^{-1}) $\times 10^{-26}$
				実 験 値 $\times 10^{-18}$	計 算 値 $\times 10^{-18}$		
^{238}U	30	7330	(r, f)	5830	5260	13.8	5.76
			(r, n)	10600	7470		10.5
		7090	(r, f)	5950	5500	15.1	5.56
			(r, n)	10700	7870		10.0
^{238}U	60	7330	(r, f)	22100	20100	72.0	4.19
			(r, n)	36900	25500		6.99
^{237}Np	30	3.01	(r, f)	5.04	4.05	14.5	11.5
^{237}Np	60	3.01	(r, f)	11.7	12.2	77.9	4.99

* $S = (1.27/2)^2 \pi = 1.27$ (cm^2) : ターゲットの面積

第 2 表に ^{238}U および ^{237}Np の光子線照射による核変換量 Δm の実験値と計算値を示す。核変換量 Δm は (r, f) の場合は実験値と計算値が良く一致をしているが, (r, n) の場合には計算値が実験値より約 30% 小さい値となっている。この原因は反応断面積の評価にある。このエネルギー付近では ^{238}U および ^{237}Np の (r, n) 反応断面積のデータはまだないので, ここでは A. Veyssiere¹⁰⁾ らのデータを外挿して求めた, その見積もりが若干低めになったようである。 ^{238}U の場合, 30 MeV 照射では (r, f) による核変換量は (r, n) 反応によるその約 1/2 であるが, 60 MeV になるとその比は 2/3 と大きくなっている。 ^{238}U ターゲットの場合には (r, n) 反応で生成する長寿命の ^{237}Np の量をなるべく抑えたいが, Δm でみれば限り照射エネルギーは高いほうがよいと言える。8 MeV 以上の光子 1 個当たりの核変換量の比を見ると (r, f) 反応では ^{238}U も ^{237}Np も照射エネルギーが高いほうが低い値を示している。しかし, この領域では電子はエネルギーが高くなるほど制動放射線の発生効率が高くな

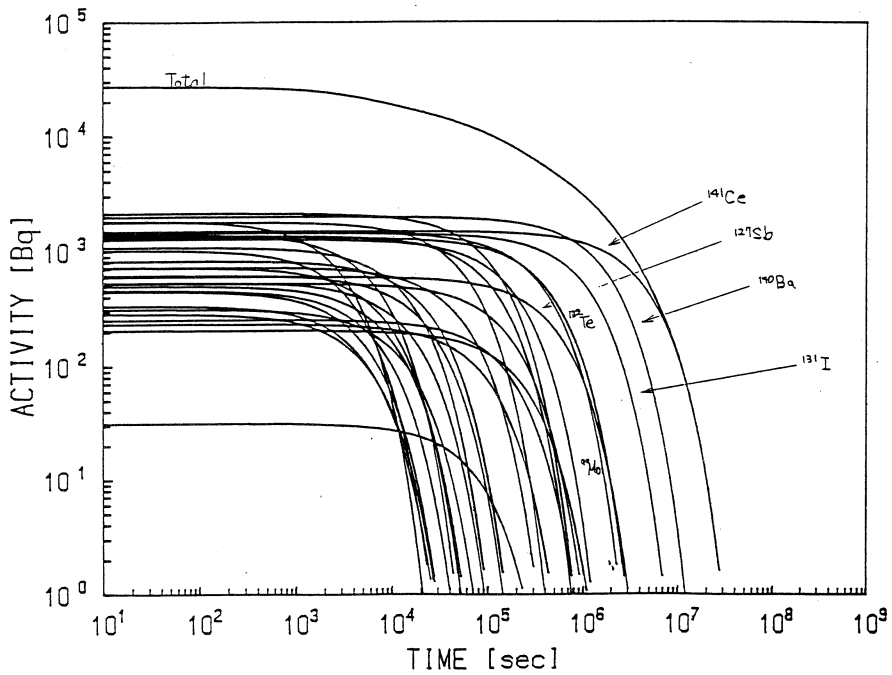


第4図 ^{238}U ターゲット中に生成した放射能の減衰曲線
(60 MeV 制動放射線)。

るので、単位電流値当たりの核変換量で評価すれば照射エネルギーが高いほうが大きくなる。事実、 ^{238}U ターゲットの単位電流当たりの変換量は、60 MeV は 30 MeV に比べ約 7 倍になっていた、また ^{237}Np ターゲットではこの比は約 4 倍になっていた。

4.3 消滅処理後の放射能の減衰

第4および第5図はそれぞれ ^{238}U および ^{237}Np の照射後の放射能強度を示す。今回の解析で確認された生成核種で最も半減期の長い核種は ^{238}U ターゲットでは ^{137}Cs であった。従って、減衰曲線も約 10^9 秒後(30年)には ^{137}Cs の半減期に従っている。このほか、測定にはかからなかったが、無視できない核種として ^{90}Sr があり、これの生成量と半減期は ^{137}Cs に近い。従って、Total (全生成放射能)の減衰曲線は若干上に移動することになる。 ^{237}Np ターゲットでは ^{137}Cs が測定にかかっていないが、 ^{238}U ターゲットと同様に生成していることは明らかである。従って、Total の減衰曲線は ^{238}U ターゲットとほとんど同じになるものと推定される。



第5図 ^{237}Np ターゲット中に生成した放射能の減衰曲線
(30 MeV 制動放射線)。

本研究にあたり、ご協力いただいた、核理研の八木益男先生（現在は金研）、榎本和義先生
およびマシングループの方々に厚く御礼を申し上げます。

参 考 文 献

- 1) J. J. Duderstadt *et al.* : Nucl. Technol. **42** (1984) 324.
- 2) T. A. Parish *et al.* : Nucl. Technol. **47** (1980) 324.
- 3) M. J. Bell : ORNL-4628 (1973).
- 4) H. C. Claiborne : ORNL-TM-3964 (1972).
- 5) J. W. Wachter : ORNL/TM-6983 (1980).
- 6) W. C. Woikenbauer *et al.* : BNWL-1772 (1973).
- 7) R. R. Rose : EPRI-ER-451 (1976).

- 8) E. M. Krenciglowa and A. A. Harms : Nucl. Instr. Meth. **185** (1981) 393.
- 9) H. W. Koch and J. W. Motz : Rev. Mod. Phys. **31** (4), (1959) 420.
- 10) A. Veyssiere, H. Beil, R. Bergere, P. Carlos, A. Lepretre and K. Kernbath :
Nucl. Phys. **A199** (1973) 45.
- 11) E. Jacobs, H. Thierens, D. De Frenne, A. De Clercq, P. D'hondt, P. De Gelder
and A. J. Deruytter : Phys. Rev. C **19** (1979) 422.
- 12) M. Ya. Kondat'ko, A. V. Mosesov, K. A. Petrzhak and O. A. Teodorovich :
Atomnaya Energiya, **53** (1982) 164 ; Sov. J. At. Energy (1983) 629.

標準添加内標準法によるフライアッシュ 試料の光量子放射化分析

核理研, 金研*

梶本 和義・八木 益男*

Trace elements in coal fly ash samples have been determined by instrumental photon activation analysis using the internal standard method coupled with the standard addition method. Major elements in fly ash samples, such as Na, Mg, Ca, Ti, Mn and Fe, were used as internal standards, and then nineteen trace elements, such as Sc, Cr, Co, Ni, Zn, As, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Sb, Cs, Ba, Ce, Tl, Pb and U were determined simultaneously. After adding a known quantity of above each element into the fly ash samples, each sample was digested into nitric acid using a acid decomposition vessel. Then, an equal volume of tetraethylsilicate were added into each sample solution and mixed to make a silica gel. As a result, it was ascertained that the standard addition sample was mixed very homogeneously without any losses or contaminations of elements to be determined and concentrations of trace elements were determined accurately and precisely.

§ 1. 序

我々によって開発された標準添加内標準法¹⁾は、試料そのものに定量目的元素を加えたものを比較試料として利用するため、照射や測定時におけるマトリックス効果が相殺できるという特徴と、試料および比較試料に照射された線量は試料内に共存する元素を内標準に利用してモニターするため、定量に関わる主要な系統誤差の要因が除かれるという特徴を合せ持っており、正確な定量が実現できる。また、この方法はあらゆる放射化分析に適用でき、多元素同時定量が可能であるという大きな特徴も有しており、標準化のための定量方法として理想的ともいえるものである。すでに、数多くの環境標準試料の光量子および荷電粒子放射化分析に活用してきた²⁻¹¹⁾。

しかし、この方法では試料の前処理が不可欠であり、その際どのようにして均一に定量目的

元素を添加するかが重要であり、添加方法が定量結果の再現性を左右することになる。前回フライアッシュ試料を分析した際⁹⁾には、試料に定量目的元素の標準溶液を一定量添加後、希硝酸とテトラエチルシリケートを当量加えて攪拌しながらシリカゲルとして固化するという簡便法により標準添加試料を調製した。しかし、試料内に含まれている鉄がマグネチック・スターラーによる攪拌の際に不均化してしまい、鉄を内標準元素に利用することができなかった。添加した元素や内標準元素が均一に混合するためには、試料を一旦溶解するのが理想的である。しかし、前処理操作を複雑にすると、汚染や損失の可能性も増え、本法の特徴を十分に発揮できないことにもなる。そのためなるべく簡便な方法として、土壌試料の分析の際に実施した加圧酸分解法 (acid pressure digestion method)^{8, 11)} を標準添加後の操作に加えることにより再現性の良い定量結果が得られるかどうかについて検討することにした。また、同時に添加元素の損失や汚染の有無についても本法を利用して確かめることにした。さらに、従来実施してきた 30 MeV 照射だけでなく 20 MeV 照射での定量可能性についても検討を加えることにした。

§ 2. 実 験

2.1 試料および試薬

試料は NBS 配布の SRM 1633a coal fly ash および BCR 配布の No. 38 fly ash を選んだ。これらは、いずれも電気オープン中で 105°C で 4 時間乾燥させた。乾燥減量はそれぞれ 0.1 および 0.2% であった。

また、標準添加を行うための各定量目的元素の標準溶液は、市販の原子吸光分析用標準原液 (1000 µg/g) もしくは、高純度金属または酸化物を酸に溶解し一定濃度に調製したものを用いた。その他の試薬、酸類はすべて精密分析用のものをを用いた。

2.2 照射試料調製

あらかじめ乾燥した試料 1 g を正確に秤りとり、テフロンルツボに移し、定量目的元素の標準溶液を適当な濃度比となるように混合したものを試料に一定量添加した。次に、ルツボをステンレス製加圧分解容器 (ユニシール) 中に入れ、濃硝酸 10 ml を加えたうえで、電気オープン中に 150°C で 5 時間放置して酸分解した。一旦、硝酸を蒸発させたのち、4 M 硝酸 2 ml およびテトラエチルシリケート 2 ml を加えてよく攪拌した。ゲル化後、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、400°C の電気炉中で 2 時間乾燥した。生成した粉末試料から約 250 mg をとって高純度アルミニウム箔に包装し、直径 10 mm のペレット状に成型

した。また、未処理の試料も同様に成型した

2.3 照射および測定

照射は加速エネルギー 30 MeV, 平均電流 120 μ A の電子線を厚さ 2 mm の白金板で制動輻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、水冷式照射ホルダー内の白金板後方 10~15 cm の位置に固定し、それぞれ 3 時間照射した。照射後、試料は新たなアルミニウム箔に再包装し、自動測定用のホルダーに取付けた。

放射能測定はオーテック社製 Ge(Li) 検出器 (FWHM 1.9 keV, 効率 14% もしくは FWHM 1.9 keV, 効率 30%) を日本原子力事業 E シリーズまたはキャンベラ社製シリーズ 35 プラス マルチチャンネル・アナライザーに接続し、マイクロ・ロボットを利用した自動測定装置¹²⁾ を用いて行なった。照射後、約 1~5 時間, 3~10 日, 3~4 週間の 3 つの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射される r 線が SN 比良く検出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 定量目的元素と内標準元素

As, Ba, Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Mo, Pb, Rb, Sb, Sr, Tl, U, Y, Zn および Zr の 18 元素を定量することにした。また、20 MeV および 30 MeV 照射による Sc の定量の可能性についても検討することにした。これらの定量に利用した核種とその核データは第 1 表(a)に示した。

試料に照射された線量を正確にモニターするため、内標準元素には試料に均一に含まれ、 r 線測定に適した核種を生成するものを選ぶ必要がある。その際、単一の r 線だけを利用すると系統誤差が含まれていても分からないことも考えられる。そこで、クロスチェックのため必ず複数の内標準を利用することにした。内標準元素には試料中の主要成分である Na, Mg, Ca, Ti, Mn および Fe の 6 元素を利用した。第 1 表(b)にそれらの核データを示したが、これらの内標準元素から生成する核種には半減期が数時間から年のオーダーのものまでを含んでおり、いずれの測定期間においても、複数のガンマ線を内標準ピークとして利用することができた。ところで、表に示したように内標準に利用する ^{54}Mn は Mn および Fe から生成することがわかっている。NBS フライアッシュのように Fe が 9.4% 高い濃度で含まれている場合には、生成した ^{54}Mn の約 80% が Fe からのものである。また、BCR フライアッシュでは Fe が 3.38% 含まれており、 ^{54}Mn の約 40% が Fe から生成したものである¹³⁾。

定量は以下のようにした。まず、照射後3時間では ^{87m}Sr の388keVガンマ線を利用してSrの定量を行った。同時にScも定量可能であった。また、3~10日ではNi, Zn, Zr, Nb, Mo, Sb, Cs, Ba, Pb およびUの10元素の定量を行った。さらに、約1カ月後ではCr,

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

(a) Elements to be determined.

Element	Reaction	Half-life	Principal γ -ray/keV
As	$^{75}\text{As}(\gamma, n)^{74}\text{As}$	17.78 d	595.9
Ba	$^{136}\text{Ba}(\gamma, n)^{135m}\text{Ba}$	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	$^{93}\text{Nb}(\gamma, n)^{92m}\text{Nb}$	10.15 d	934.5
Ni	$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	36.0 h	1377.6
Mo	$^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$	2.75 d	140.5
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
Sc	$^{45}\text{Sc}(\gamma, n)^{44}\text{Sc}$	3.93 h	1157.0
Sr	$^{88}\text{Sr}(\gamma, n)^{87m}\text{Sr}$	2.80 h	388.4
Tl	$^{203}\text{Tl}(\gamma, n)^{202}\text{Tl}$	12.23 d	439.6
U	$^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$	6.75 d	208.0
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

(b) Elements used as internal standard.

Element	Reaction	Half-life	Principal γ -ray/keV
Na	$^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$	2.602y	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	$^{48}\text{Ca}(\gamma, n)^{47}\text{Ca}$	4.536d	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	$^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$	312 d	834.8)
Fe	$^{57}\text{Fe}(\gamma, p)^{56}\text{Mn}$	2.579h	846.8

Co, As, Rb, Y, Ce および Tl の 7 元素の定量を行った。

3.3 標準添加試料の均一性の評価

標準添加内標準法の定量式は以下のように与えられる。すなわち、定量目的元素を未知量 x g 含む試料に目的元素 y g 添加したものと未処理の試料を放射化し、定量目的元素と内標準元素から生成する放射能の比を添加試料 (R^*) と未処理の試料 (R) についてそれぞれ測定すれば、 $x = y / [(R^*/R) - 1]$ により未知量 x g を求めることができる。式から明らかなように、生成放射能比の比 (R^*/R) を求めると、放射化や測定に伴う各種の補正係数 (照射線束、測定のジオメトリなど) が相殺されることになる。そこで、(R^*/R) を複数の試料でしかも複数の内標準を使って求めると、その値のばらつきから試料や添加試料内での定量元素や内標準元素の均一性を知ることができる。たとえば、添加試料の均一性を確かめるときには以下のようにすればよいことになる。まず、未処理試料および添加試料をそれぞれ分割して照射する。ここで、未処理試料の生成放射能比 R は一定とみなし、定量式にはその平均値を代入することにする。つぎに、添加試料それぞれの生成放射能比 R^* を定量式に代入し、未知量 x g を求め、そのばらつきを調べれば添加試料の均一性が求められる。

ここでは、一例として NBS の coal fly ash 中の Sb の定量結果を第 2 表に示した。ここで、(a) は酸分解を行わなかった場合、(b) は酸分解を行った場合にそれぞれの内標準 r 線を使って得られた定量結果を示している。表の (a) からわかるように酸分解を行わなかった試料では ^{54}Mn を内標準にしたときのみ定量結果のばらつきが大きくなっている。前節で述べたように、本試料の場合は内標準に利用した ^{54}Mn はその約 80% が $^{56}\text{Fe} (r, pn) ^{54}\text{Mn}$ 反応で生成したものであることがわかっている。そのため、定量値のばらつきは内標準元素である Mn というよりもむしろ Fe が不均化したことを意味している。しかし、表の (b) から明らかなように加圧酸分解を行った試料では、4 個の試料間のばらつきは ^{54}Mn を内標準にした場合でも他の内標準でのばらつきと同程度になっており、有意差は認められなかった。本実験では酸分解に濃硝酸のみを使用しているため、試料が完全に分解されているわけではなく、若干の炭素やシリカは溶解されていない。それにもかかわらず、加圧酸分解法という簡便な操作を加えることによって標準添加試料の均一性を向上できるということが示された。

通常、試料と比較試料の均一性は同じ試料を繰り返し分析して確かめるという方法がとられている¹⁴⁾。しかし、本法では定量元素と内標準元素の生成放射能比のばらつきを相互に比較することで、試料と比較試料のどちらが不均一であるか、しかも定量元素や内標準元素のうちどの元素の均一性が悪いのかをただちに知ることができることがわかった。

第2表 Results of determination of antimony using two kind of standard addition samples prepared by a simple addition method and a acid pressure digestion method.

a) a simple addition method

Internal standard Nuclide	γ -ray/keV	Concentration/ $\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$				Average	Std. dev.
		No.1	No.2	No.3	No.4		
^{43}K	372.9	6.62	6.93	6.35	6.51	6.60	0.24
^{43}K	617.8	6.34	6.55	5.98	6.20	6.27	0.24
^{47}Ca	1297.0	6.61	6.55	6.06	5.79	6.25	0.40
^{48}Sc	983.5	6.25	6.26	5.74	5.93	6.04	0.26
^{48}Sc	1037.5	6.27	6.17	5.75	5.80	5.99	0.26
^{48}Sc	1312.1	6.21	6.48	5.68	6.01	6.10	0.34
^{24}Na	1368.6	6.60	6.71	5.85	5.93	6.27	0.45
^{54}Mn	834.8	6.15	5.49	3.62	4.18	4.86	1.16
Average		6.38	6.39	5.63	5.79	6.05	0.40
Std. dev.		0.20	0.44	0.84	0.69		

b) a acid pressure digestion method

Internal standard Nuclide	γ -ray/keV	Concentration/ $\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$				Average	Std. dev.
		No.1	No.2	No.3	No.4		
^{43}K	372.9	6.07	6.61	6.19	6.48	6.34	0.25
^{43}K	617.8	6.16	6.17	5.75	6.64	6.18	0.36
^{47}Ca	1297.0	5.91	5.91	5.58	5.79	5.80	0.16
^{48}Sc	983.5	6.20	6.36	6.02	6.30	6.22	0.15
^{48}Sc	1037.5	6.08	6.29	6.12	6.54	6.26	0.21
^{48}Sc	1312.1	6.02	6.29	6.11	6.26	6.17	0.13
^{24}Na	1368.6	5.86	6.20	6.08	6.21	6.09	0.16
^{54}Mn	834.8	5.62	5.81	5.56	6.18	5.79	0.28
Average		5.99	6.20	5.93	6.30	6.10	0.18
Std. dev.		0.19	0.25	0.26	0.27		

3.4 標準添加試料での元素の損失と汚染の評価

本法のように試料に化学処理を行う場合には、元素の損失や汚染のチェックは不可欠である。従来、このようなチェックにはトレーサー法が利用されてきた。しかし、トレーサー法ではトレーサーが試料中の元素と化学的に同一挙動をすることが前提となっており、試料中の元素そのものを観測できるわけではない。そこで、本法を元素の損失や汚染のチェックにも利用

第3表 Results of loss and contamination test for Cr and As in the standard addition sample prepared by a acid pressure digestion method.

a) Cr (^{51}Cr , 320.1 keV)

Internal standard Nuclide	r -ray/keV	(R^*/R)				Average	Std. dev.
		No. 1	No. 2	No. 3	No. 4		
^{46}Sc	889.3	1.01	0.98	0.96	1.01	0.99	0.02
^{46}Sc	1120.5	0.99	0.97	0.97	1.03	0.99	0.03
^{22}Na	1274.6	1.00	0.98	0.95	1.02	0.99	0.03
^{47}Ca	1297.0	1.01	1.01	0.97	1.03	1.00	0.03
^{54}Mn	834.8	1.04	1.00	0.99	1.05	1.02	0.03
Average		1.01	0.99	0.97	1.03	1.00	0.03
Std. dev.		0.02	0.02	0.01	0.01		

a) As (^{74}As , 595.9 keV)

Internal standard Nuclide	r -ray/keV	(R^*/R)				Average	Std. dev.
		No. 1	No. 2	No. 3	No. 4		
^{46}Sc	889.3	1.04	1.01	1.00	0.99	1.01	0.02
^{46}Sc	1120.5	1.02	1.00	1.00	1.00	1.01	0.01
^{22}Na	1274.6	1.03	1.01	0.98	1.00	1.00	0.02
^{47}Ca	1297.0	1.04	1.04	1.00	1.00	1.02	0.02
^{54}Mn	834.8	1.07	1.03	1.02	1.02	1.03	0.02
Average		1.04	1.02	1.00	1.00	1.01	0.02
Std. dev.		0.02	0.02	0.01	0.01		

できるかどうかについて調べた。このようなチェックには、標準添加試料の調製と全く同じ操作で特定の定量目的元素のみを加えない試料を調製すればよい。もし、その元素に汚染や損失が生じなかったばあいには、この試料で求められる内標準元素と定量目的元素の生成放射能の比 R^* は未処理の試料で得られる R と同じでなければならず、 $(R^*/R) = 1$ となるはずである。NBS のフライアッシュで Cr と As について調べた結果を第3表の(a)と(b)にそれぞれ示した。内標準には Ti からの ^{46}Sc 、Na からの ^{22}Na 、Ca からの ^{47}Ca および Fe と Mn からの ^{54}Mn を利用した。表から明らかなように、生成放射能比の比は Cr, As いずれの場合もほぼ1となっており、本実験の操作中での汚染や損失はなかったと判断された。

3.5 30 MeV 照射での NBS フライアッシュの定量結果

30 MeV 照射による NBS フライアッシュの定量結果を第4表に示した。比較のため、表には

第4表 Analytical results of 30 MeV photon activation in NBS SRM-1633a coal fly ash ($\mu\text{g/g}$).

Element	No.1	No.2	No.3	No.4	Average	Certified	Literature ⁺	(n)	Korotev [#]
As	150	142	135	134	140 \pm 7	145 \pm 15	144 \pm 2	(2)	145 \pm 3
Ba	1410	1450	1360	1520	1440 \pm 70	(1500)*	1400 \pm 200	(14)	1320 \pm 40
Ce	164	171	170	176	170 \pm 5	(180)*	175 \pm 8	(7)	168.3 \pm 1.6
Co	43.4	44.8	45.5	44.9	44.6 \pm 0.9	(46)*	43 \pm 4	(8)	44.1 \pm 1.0
Cr	209	198	194	188	197 \pm 9	196 \pm 6	193 \pm 5	(9)	193 \pm 5
Cs	11.3	11.2	10.9	11.3	11.2 \pm 0.2	(11)*	10.0 \pm 0.4	(7)	10.4 \pm 0.2
Mo	29.1	28.9	31.6	30.9	30.1 \pm 1.4	(29)*	31 \pm 4	(3)	
Nb	30.5	30.3	29.9	30.9	30.4 \pm 0.4				
Ni	128	126	131	126	128 \pm 2	127 \pm 4	124 \pm 12	(4)	130 \pm 27
Pb	66.5	59.5	65.7	66.9	64.6 \pm 3.5	72.4 \pm 0.4	65	(1)	
Rb	131	129	127	131	130 \pm 2	131 \pm 2	140 \pm 12	(8)	134 \pm 3
Sb	6.0	6.2	5.9	6.3	6.1 \pm 0.2	(7)*	7.1 \pm 0.6	(6)	6.15 \pm 0.15
Sr	835	819	820	795	817 \pm 17	830 \pm 30			835 \pm 40
Tl	6.4	6.1	5.8	5.2	5.9 \pm 0.5	5.7 \pm 0.2	4.4	(1)	
U	9.2	8.9	9.9	8.9	9.3 \pm 0.5	10.2 \pm 0.1	10.4 \pm 0.2	(4)	10.3 \pm 0.3
Y	79.0	82.9	81.4	82.2	81.4 \pm 1.7				
Zn	231	243	248	254	244 \pm 10	220 \pm 10	235 \pm 16	(7)	240 \pm 30
Zr	228	228	229	231	229 \pm 1		370 \pm 50	(4)	

* : Information value, + : Compiled data (Gladney, 1986),
: R.L.Korotev. J. Radioanal. Nucl. Chem. **110** (1987) 179.

NBS の保証値と参考値, Gladney らによってまとめられた文献値¹³⁾ および最近報告された Korotev の分析値¹⁴⁾ も同時に示した。Nb や Y は他の報告がないため比較ができないが, 前回の分析値や次に示す 20 MeV での分析結果とは良い一致を示した。U は他の分析結果に比べて低い値を示したため, 添加に用いた標準溶液の濃度の再較正を実施する予定である。Zr は Korotev の値とは一致しているが, 他の文献値は高い値を示している。Pb は ²⁰³Pb の 279 keV γ 線を利用して定量するが, 多量に共存する Ba から ^{133m}Ba が生成し 276 keV γ 線を出すため, またその他の核種によるコンプトン・バックグラウンドのために SN 比が低下した。そのため, 若干再現性が悪く, 保証値との一致が悪かった。その他の元素については精度, 正確さともに非常に良かった。

3.6 20 MeV 照射による NBS フライアッシュの光量子放射化分析

これまで, 核理研電子ライナックを利用した光量子放射化分析では, 感度と妨害を検討のうえ 30 MeV 照射が行われてきた¹³⁾。しかし, 最近 20 MeV 加速の場合でも, 平均電流で約 70 μA 程度の出力が得られることがわかった。もし, 20 MeV 照射による放射化分析ができれば,

第5表 Analytical results of 20 MeV photon activation in NBS SRM-1633a coal fly ash ($\mu\text{g/g}$).

Element	No.1	No.2	Average	30 MeV	Certified	Literature ⁺	(n)	Korotev [#]
Ce	161	167	164±3	170±5	(180)*	175±8	(7)	168.3±1.6
Co	44.3	43.0	43.7±0.7	44.6±0.9	(46)*	43±4	(8)	44.1±1.0
Mo	29.7	27.5	28.6±1.1	30.1±1.4	(29)*	31±4	(3)	
Nb	29.9	29.3	29.6±0.3	30.4±0.4				
Pb	72.3	68.0	70.2±2.2	64.6±3.5	72.4±0.4	65	(1)	
Sb	6.3	5.8	6.1±0.3	6.1±0.2	(7)*	7.1±0.6	(6)	6.15±0.15
Sc	38.6	39.3	39.0±0.4		(40)*	38±3		38.6±1.1
Tl	6.3	5.4	5.9±0.5	5.9±0.5	5.7±0.2	4.4	(1)	
U	9.0	9.0	9.0±0.0	9.3±0.5	10.2±0.1	10.4±0.2	(4)	10.3±0.3
Y	78.7	82.0	80.4±1.7	81.4±1.7				
Zn	190	222	206±23	244±10	220±10	235±16	(7)	
Zr	243	239	241±2	229±1		370±50	(4)	

* : Information value, + : Compiled data (Gladney, 1986),
: R.L.Korotev. J. Radioanal. Nucl. Chem. **110** (1987) 179.

これまで補正が必要であった妨害核反応を考慮する必要がなくなるとともに、環境試料などで主要成分である Mg, Ca および Ti などからの (r, p) 反応による核種生成が抑えられるために、重金属元素から生成する核種からの r 線ピークの SN 比が向上すると予想される。そこで、20 MeV 照射による放射化分析の可能性について検討することにした。

まず、20 MeV での照射直後には Sc が SN 比良く定量できた。30 MeV のときに照射後 3 ~ 10 日で定量した元素のほとんどは翌日に定量することができた。とくに、Zr, Nb, Mo, Sb, Pb および U などで SN 比が向上した。しかし、Zn の定量に利用する ^{67}Cu は (r, p) 反応で生成するため 30 MeV のときに比べ SN 比は悪くなった。また、照射後約 1 カ月で定量した Co, Tl, Rb, Y および Ce などの元素は 5 日目に定量できた。このように、主要成分である Mg, Ca, Ti, Mn および Fe からの放射能が相対的に弱くなったため、かなり早い時点で定量を完了させることができた。さらに、Sc は妨害核反応の補正なしに、Nb は r 線の重なり妨害補正なしに定量することができた。このほか、今回定量しなかった Ni, Cr, Sr, Cs および Ba でも SN 比が向上することが確かめられた。Zn は $^{66}\text{Zn}(r, n)^{65}\text{Zn}$ 反応を利用したほうが良いことが示唆された。As の定量の際の Ca からの ^{43}K の 594 keV r 線の重なり妨害は 5 日目には問題にならない程度であった。Cr の妨害の補正も不要であった。しかし、生成放射能は 30 MeV の場合に比べてかなり低く、測定に時間がかかり多数の試料の分析には適さないことがわかった。

定量結果を第5表に示した。2個の試料の分析を行っただけであるが、その平均値は30MeVでの定量結果や他の文献値などとも良く一致しており、十分な精度、正確さが期待できることがわかった。

ところで、Scは30MeV照射では55.3 $\mu\text{g/g}$ と20MeVの場合の29.0 μg にくらべて高い値を示した。これは、30MeVの場合、共存するTiから $^{46}\text{Ti}(\gamma, \text{pn})^{44}\text{Sc}$ 反応によってScの定量に利用する核種と同一の核種が生成したために正の誤差を与えたものと考えられた。フライアッシュ中にはTiが0.80%含まれており、それがScの16.3 μg に相当したことになるから、妨害の目安になる重量比は 2×10^{-3} と求めることができた。これまで、妨害の程度はそれぞれ元素の高純度化合物などを同一条件で測定して求められてきたが、Tiなどでは他にも種々の核種が生成するため、 ^{44}Sc の生成量を正確に求めることができなかった。しかし、妨害元素の濃度があらかじめ求めてある試料に本法を適用すれば、容易にその妨害量を測定することができることが示された。

第6表 Analytical results of 30 MeV photon activation in BCR No.38 fly ash ($\mu\text{g/g}$).

Element	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	Average	Certified
As	48.4	48.3	45.6	47.3	47.4 \pm 1.3	48.0 \pm 2.3
Ba	559	535	506	501	525 \pm 27	
Ce	129	128	124	126	127 \pm 2	
Co	54.0	54.4	52.5	54.1	53.7 \pm 0.8	53.8 \pm 1.9
Cr	185	189	175	190	185 \pm 7	(178)*
Cs	13.6	13.3	12.9	13.1	13.2 \pm 0.3	
Mo	12.3	12.3	12.9	13.1	13.2 \pm 0.3	
Nb	21.1	22.1	20.0	20.0	20.8 \pm 1.0	
Ni	182	185	180	180	182 \pm 2	(194)*
Pb	264	267	263	260	263 \pm 3	262 \pm 11
Rb	188	190	182	188	187 \pm 3	
Sb	8.2	8.8	8.3	7.8	8.3 \pm 0.4	
Sc	25.8	30.3	24.5	25.7	26.6 \pm 2.6	
Sr	204	204	202	198	202 \pm 3	
Tl	2.0	2.1	2.1	1.9	2.0 \pm 0.1	
U	6.5	6.4	6.1	6.2	6.3 \pm 0.2	
Y	39.1	38.4	36.9	38.2	38.1 \pm 0.9	
Zn	588	572	573	575	577 \pm 8	581 \pm 29
Zr	155	155	151	152	153 \pm 2	

* : Information value.

3.7 30 MeV 照射による BCR フライアッシュの光量子放射化分析

つぎに、BCR のフライアッシュの 30 MeV での定量結果を第 6 表に示す。表に示したように、この試料は重金属の分析用に調製されたもので一部の元素しか分析値が得られていない。それら濃度の表示された元素については本実験結果と良く一致している。本試料は NBS のものに比べて、Zn や Pb については濃度が高く、As, Ba, Mo, Tl, U および Zn では低くなっている。ここで、比較法による Ti の分析値 0.53% および前節で求めた Ti の妨害係数 2×10^{-3} から、Ti は Sc に換算して $10.6 \mu\text{g/g}$ の妨害となると見積ることができた。表中の Sc の分析値はこの妨害補正を行った値である。

3.8 まとめ

以上、本研究ではフライアッシュ試料の標準添加内標準法による定量について種々検討した。まず、標準添加後、ユニシールによる加圧酸分解を行うと、非常に均一な標準添加試料が調製できることがわかった。その際、試料処理中の As や Cr の汚染や損失の有無についても調べたところ、それらの事実はないことがわかった。また、20 MeV 照射による放射化分析の可能性について検討したところ、環境試料中の重金属の定量に非常に適していることがわかった。

本研究の各所で述べたように、標準添加内標準法は単に正確な定量を行えるだけでなく、試料の均一性、分布状態、化学処理による汚染や損失の有無、妨害核反応の程度など、定量の正確さを向上させるうえで不可欠の諸問題についても同時に有効な示唆を与えることのできる興味ある定量法と行うことができよう。

参 考 文 献

- 1) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **83** (1984) 319.
- 2) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **91** (1985) 379.
- 3) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. **100** (1986) 287.
- 4) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **109** (1987) 237.
- 5) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. **109** (1987) 449.
- 6) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **111** (1987) 359.
- 7) M. Yagi, G. Izawa, T. Omori, K. Masumoto and K. Yoshihara : J. Radioanal. Nucl. Chem. **115** (1987) 213.

- 8) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. **116** (1987) 375.
- 9) 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **19** (1986) 88.
- 10) 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **20** (1987) 61.
- 11) 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **20** (1987) 71.
- 12) M. Yagi, K. Masumoto and M. Muto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **98** (1986) 31.
- 13) K. Masumoto, T. Kato and N. Suzuki : Nucl. Instrum. Method **157** (1978) 567.
- 14) R. L. Korotev : J. Radioanal. Nucl. Chem. **110** (1987) 179.
- 15) E. S. Gladney, C. E. Burns, D. R. Perrin, I. Roelandts and T. E. Gills : NBS Spec. Publ. 260-88 (1984).
- 16) R. L. Korotev : J. Radioanal. Nucl. Chem. **110** (1987) 159.

光量子放射化—LEPSによる人体臓器組織の微量元素分析

都神経科学総研, 教養部*

佐藤武雄・森 一五・加藤豊明*

§ 1 緒 言

機器的光量子放射化分析 (IPAA) における放射線計測に Low Energy Photon Spectroscopy (LEPS) を適用する方法に関しては, その特徴, 感度や競合核反応と妨害の程度などの基礎検討, ならびに生物質試料に常時存在する微量元素の分析への応用について既に報告した。^{1, 2)}

生物体は硬組織を除けば 70~80% が水で, 残りの大部分は炭素, 水素, 窒素および酸素から成る有機物である。放射化分析に供試する場合は組織を凍結乾燥することが多いが, 乾燥組織の重量でこれら 4 元素の合計は 90% 以上となるものが多い。LEPS で数 10 keV の軟 X 線を測定する場合, これらのマトリックス元素に起因する X 線強度の吸収減少が著しくなり分析結果に対する誤差の要因になる。したがって, 生物試料と比較に用いた試料のマトリックス元素組成の違いによって生じる遮蔽効果の差異を評価し, 補正を施す必要がある。

本研究ではまず, 数種の核種を用いて LEPS のエネルギー領域における光子エネルギーと吸収による強度減少との関係を調べ, 遮蔽効果の差異を補正する基礎資料を得た。次に, 本法をヒトの肝臓と腎臓組織および数種の生物体標準物質の微量元素分析に適用し, Ni, Zn, Br, Rb, Zr, Mo, Cd および Pb の存在度を求め, 本法の適用範囲を明らかにした。

§ 2 実 験

試料の調製および制動輻射による照射は, 既報^{1, 2)} とほぼ同様である。すなわち, 乾燥粉末試料を加圧成型して直径 10 mm のペレットとして供試した。東北大学 LINAC で加速した 30 MeV 電子ビームを厚さ 2 mm の白金コンバーターで制動輻射 γ 線に変換し, 線束内に設置した水冷式試料ホルダーの中で試料を 2~3 時間照射した。線束強度は試料の照射位置で約 7×10^5 Rmin⁻¹ である。ヒトの肝臓および腎臓組織は滋賀医科大学法医学教室から提供をうけた正常なヒトの臓器検体を使用した。他に, NBS の SRMs, Orchard Leaves および Bovine Liver を用いた。比較試料は IAEA の SRM H-8 Horse Kidney および合成試料の 2 種類を用いた。合成比較試料は定量目的元素の酸化物の一定量をセルロース粉末と均一に混和し, その 240 mg (各元素について 100~200 $\mu\text{g g}^{-1}$) を同様に直径 10 mm のペレットに成型して用いた。線

束強度の差異は既報^{1,2)}と同様に金箔をモニターとして補正した。

LEPSに用いたHpGe 検出器, γ 線検出に用いたGe(Li) 検出器および波高分析装置も既報^{1,2)}と同じである

なお, 吸収減少の検討に用いた軟X線放射体は⁶⁵Zn, ⁷⁵Se, ¹⁰³Ruおよび¹³⁹Ceであるが, これらは酸化物または単体の一定量を原子炉熱中性子で放射化して製造して使用した。放射化は武蔵工業大学原子力研究所の原子炉で行なった。

§ 3 結果および考察

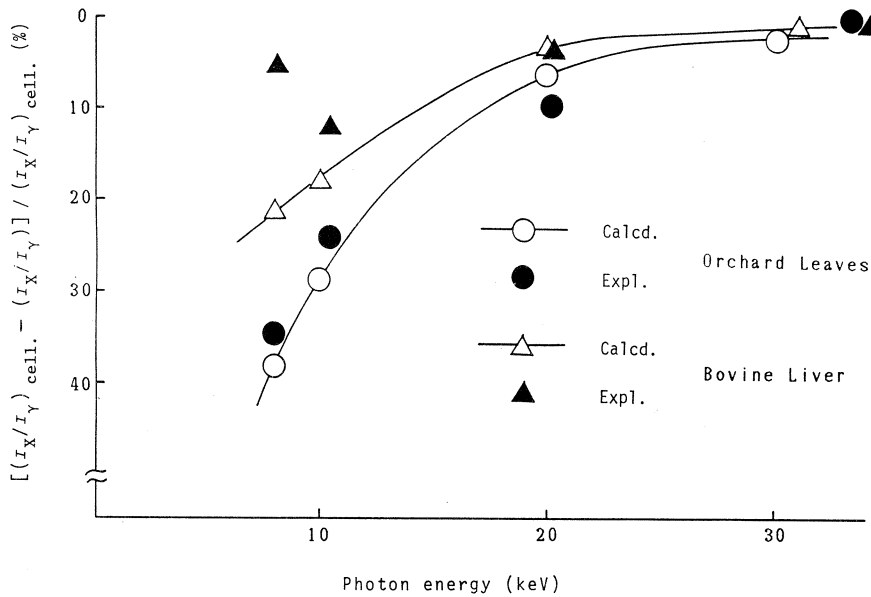
⁶⁵Zn, ⁷⁵Se, ¹⁰³Ruおよび¹³⁹Ceを用いてマトリックスの遮蔽効果を調べた結果は次のとおりである。4種の核種を個別に純セルロース(C₆H₁₀O₅)粉末, Orchard Leaves あるいはBovine Liverに添加混合して計12種の試料を作製した。それぞれ, 230mgをペレットに加工成型して線源とした。個々の試料のX線および γ 線スペクトルを測定し, X線強度 I_X と γ 線強度 I_γ を所定の計測条件におけるピーク面積計数率として求め, I_X/I_γ 値を算出した。用いたX線と γ 線を第1表に示した。

第1表 Nuclides used for self-shielding measurements.

Nuclide	X-ray (keV)	γ -ray(keV)
⁶⁵ Zn	Cu-K α_1 , K α_2 8.05+ 8.03	1115
⁷⁵ Se	As-K α_1 , K α_2 10.54+10.51	269
¹⁰³ Ru	Rh-K α_1 , K α_2 20.22+20.07	497
¹³⁹ Ce	La-K α_1 33.44	166

セルロースをマトリックスとした場合の I_X/I_γ 値を基準とし, Orchard LeavesとBovine Liverの場合を比較すると, 両者で I_X/I_γ 値が小さく軟X線に対する遮蔽効果

が大きいことを示した。 I_X/I_γ 値のセルロースに対する減少割合, $R = [(I_X/I_\gamma)_{\text{cell.}} - (I_X/I_\gamma)] / (I_X/I_\gamma)_{\text{cell.}}$ を算出し, 光子エネルギーとの関係をプロットして第1図の結果を得た。次に, 各マトリックスの元素組成と成分元素の各エネルギーに対する質量減衰係数とから, 計算によって I_X/I_γ 値を求めて比較した。質量減衰係数はHubbell³⁾のデータを用いた。元素存在度はNBSの保証値にGladney⁴⁾の編集値を補足し, 主成分, 副成分元素の他に10ppm以上の存在度既知の諸元素も対象として積算した。計算にあたっては, 測定系を簡略化して検出器を点とみなし, 線源は線線源と考えた。したがって, 計算は試料の厚さ方向のみの積分を行なったことになる。結果は, 例えば, 10.0 keVのX線はセルロースマトリックス(wt.%, C:44.44%, H:6.22%, O:49.34%)によって40%の強度減少を示すと求められた(C:11.6



第1図 Self-shielding effects of matrices relative to cellulose.

%, H: 0.2%, O: 28.4%)。第1図のように, 光子エネルギーが約20keV以下でマトリックスの遮蔽効果の差が顕著に現われている。10.54 keVの実験値 $R_{\text{Expl.}}$ はBovine Liverが12.3%, Orchard Leavesが24.4%であり, 計算の結果 $R_{\text{Calcd.}}$ は10.0 keVでBovine Liverが15.3%, Orchard Leavesが29%に達している。したがって, 生物質試料のLEPSで, 約20 keV以下のLEPを用いる場合には, 分析試料と主要成分元素組成が類似した比較試料を用いるか, または, 組成の差異による吸収の補正を施すことが不可欠となる。なお, Bovine Liverマトリックスの8.05 keVの $R_{\text{Expl.}}$ が $R_{\text{Calcd.}}$ よりもかなり高く求められたが, 本計算に採用した以外の因子も遮蔽効果に寄与していると考えられ, 10 keV以下の軟X線の利用は更に詳細な検討を要する。

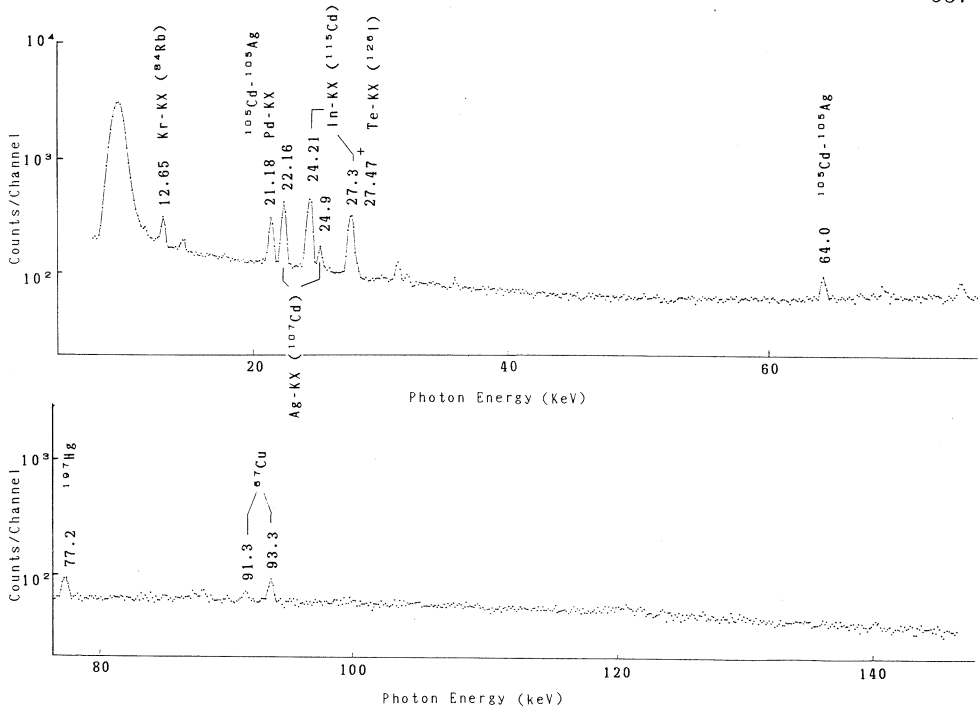
次に, 生物試料の分析結果について記す。ヒトの肝臓および腎臓組織の分析では比較試料に合成試料とHorse Kidneyの双方を用い, Ni, Zr, Mo, I およびPbは合成試料より, Zn, Br, Rb, Cd およびHgはHorse Kidneyを比較試料としてそれぞれ定量を試みた。LEPSに利用した核データを第2表に掲げた。Ni, Zn, BrおよびMoではLEPS領域で同時に測定できる r 線も定量に利用できるが, 近傍元素間の特性X線の重なりが生じる場合にはこれらの低エネルギー r 線が有効に利用できる。第2表で, HpGe/Ge(Li)比とはLEPS領域の光子(E_{LEP} , keV)と r 線(E_r , keV)のピークの面積比で本測定条件での値である。Zn, Br, Rb,

第2表 Pertinent nuclear data.

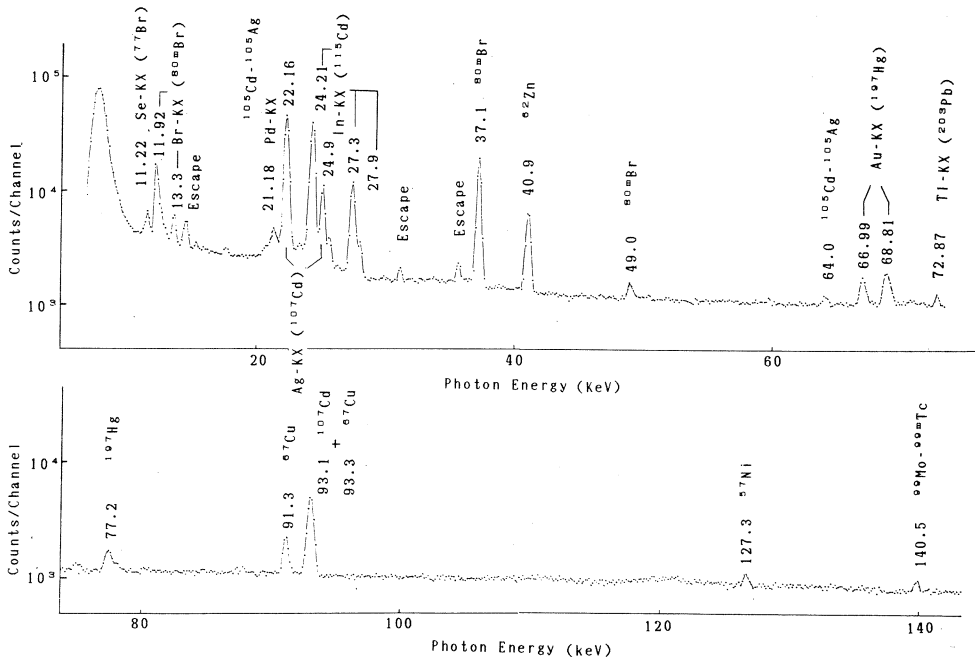
Element	Nuclear process	Half-life	LEP used for quantitation (keV)	Relative detectability		
				HpGe/Ge(Li)	E_{LEP}/E_r	E_r (keV)
Ni	$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	36.0 h	r	127.3	0.69	127.3/1378
Zn	$^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$	61.9 h	r	91.3	—	—
	$^{64}\text{Zn}(\gamma, 2n)^{62}\text{Zn}$	9.1 h	r	40.9	3.4	40.9/596.7
Br	$^{81}\text{Br}(\gamma, n)^{80m}\text{Br}$	4.42 h	r	37.1	9.4	37.1/618
	$^{79}\text{Br}(\gamma, 2n)^{77}\text{Br}$	57.0 h	Se- $K_{\alpha 1}$	11.22	0.94	11.22/239
Rb	$^{85}\text{Rb}(\gamma, n)^{84}\text{Rb}$	32.9 d	Kr- $K_{\alpha 1}$	12.65	1.2	12.65/881.6
Zr	$^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$	78.4 h	Y- $K_{\alpha 1}$	14.96	1.0	14.96/909.2
Mo	$^{100}\text{Mo}(\gamma, n; \beta^-)^{99m}\text{Tc}$	6.02 h	r	140.51	—	—
Cd	$^{108}\text{Cd}(\gamma, n)^{107}\text{Cd}$	6.50 h	Ag- $K_{\alpha 1}$	22.16	—	—
Pb	$^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$	52.0 h	Tl- $K_{\alpha 1}$	72.9	0.65	72.9/279.2
I	$^{127}\text{I}(\gamma, n)^{126}\text{I}$	13.0 d	Te- $K_{\alpha 1}$	27.47	3.1	27.47/667
Hg	$^{198}\text{Hg}(\gamma, n)^{197}\text{Hg}$	64.1 h	Au- $K_{\alpha 1}$	68.81	—	—

I などでは LEPS の適用によって IPAA の感度が向上する。

LEP スペクトルのうち、ヒト腎臓組織を放射化後、6.3 時間冷却して測定したものを第 2 図に、10.2 日冷却したものを第 3 図に示した。これらのスペクトルに検出されるピークから第 2 表に示した LEP を選んで各元素を定量した。亜鉛の定量には ^{67}Cu の 93.3 keV r 線を用いる方が 91.3 keV r 線よりも鋭敏に検出できるが、 ^{107}Cd からの 93.1 keV r 線ピークと重なるので、この場合には冷却によって ^{107}Cd を減衰させる必要がある。第 3 図のスペクトルからは ^{84}Rb の K_{α} X 線や ^{126}I からの Te- K_{α} X 線が定量に利用できるが、Te- K_{α} X 線には ^{115}Cd からの In- K_{β} X 線の寄与があるので、この補正を要する。本法でヒト肝臓および腎臓の各 2 検体を分析した結果を第 3 表に掲げた。() 内の値は同じ試料を原子炉熱中性子放射化分析 (INAA) して得た値であるが、両者はいずれも良い一致を示している。分析結果の正確さを検定する目的で Orchard Leaves を分析した結果を第 3 表に添記したが、NBS 保証値との一致度は極めて良い。また、Horse Kidney を合成比較試料を用いて分析したところ、Mo: 2.32 ppm, Pb: 1.58 ppm が得られたが、Mo の値は IAEA 値の 2.21 ppm と良く一致した。亜鉛の定量値は ^{62}Zn と ^{67}Cu のピークを、Br には ^{77}Br と ^{80m}Br のピークの双方から求めた値を示した。 ^{62}Zn の 40.9 keV r 線、 ^{80m}Br の 37.1 keV r 線を用いる方が、より鋭敏な検出ができる。第 3 表のように、本法は INAA による機器的非破壊分析が困難な Ni, Zr, Mo および Pb の定量に有効に適用できる。



第2图 Low-energy photon spectrum taken with a HpGe detector after a 2-h irradiation of human kidney (D. T. 6.3 h, C. T. 13.5 h).



第3图 Low-energy photon spectrum taken with a HpGe detector after a 2-h irradiation of human kidney (D. T. 10.2d, C. T. 22.2h).

第3表 Abundances of several elements in human liver and kidney tissues determined by IPAA with LEPS.

Tissue	Abundance (ppm)*									
	Ni	Zn		Br		Rb	Zr	Mo	Cd	Pb
		⁶² Zn	⁶⁷ Cu	⁷⁷ Br	^{80m} Br					
Liver (1)	N D	169 (149)	181	7.6 (8.2)	8.7	33.2 (31.8)	0.07	1.5	3.6 (3.7)	0.83
(2)	0.33	181 (177)	199	12.8 (12.5)	11.8	14.3 (14.6)	0.14	2.8	14.7 (15.9)	1.3
Kidney (1)	0.16	297 (290)	280	39.3 (42.2)	42.2	26.6 (26.1)	N D	1.5	322 (354)	0.49
(2)	0.97	268 (281)	292	37.4 (32.8)	32.2	10.9 (10.2)	N D	2.0	488 (472)	2.3
Orchard Leaves										
This work	1.3	28.0	24.9		9.9	11.4	1.6	0.37	N D	45.0
NBS**	1.3		25		10***	12	1.7†	0.3	0.11	45

* Values in parentheses are those obtained by INAA, N D: Not determined,
 ** Recommended values,
 *** Reference value,
 † Ref. 6).

Iyengar ら⁵⁾は、成人の臓器組織や体液中の諸元素存在度に関する広範な編集を行なったが、肝臓では乾燥重量当たり Mo 3.42~5.2ppm, Ni 0.032~4.6ppm, Pb 5.2~12.1ppm (平均 6.8ppm), 腎臓では乾燥重量当たり Mo 1.8~3.1ppm, Ni 0.6~1.8ppm, Pb 3.62~18ppm などとなっている。本結果は、Mo および Ni については編集値の平均値付近に相当するが、Pb は範囲よりやや低い。Zr は湿重量当たり肝臓で 0.03~6.3ppm, 腎臓で 0.015~2.7ppm が採用されており、変動の範囲が広い。乾燥重量当たりの値は採用されておらず、本結果との直接の比較はできないが、既報^{2,6)}でも指摘したように Zr の生物学的役割を検討する基礎データとして、存在度に関してはより正確を期する必要がある。なお、I および Hg については放射化の過程で試料および比較試料からの飛散損失を考慮する必要が示されたので定量値を記載していない。これらに関しては検討を継続したいと考える。

本研究にあたり、御協力を賜った東北大学理学部原子核理学研究施設の RI およびマシングループの皆様ならびに東北大学教養部・鈴木勲子助手に厚く御礼申し上げる。

参 考 文 献

- 1) 佐藤武雄, 加藤豊明: 核理研研究報告 **18**(1985)98.
- 2) 佐藤武雄, 加藤豊明: 核理研研究報告 **18**(1985)328.
- 3) J. H. Hubbell : Int. J. Appl. Radiat. Isot. **33**(1982) 1269
- 4) E. S. Gladney : Anal. Chim. Acta **118**(1980) 385.
- 5) G. V. Iyengar, W. E. Kollmer and H. J. M. Bowen : *The Elemental Composition of Human Tissues and Body Fluids* (Verlag Chemie, Weinheim, West Germany, 1978).
- 6) T. Sato : J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters **86**(1984) 141.

北上山地，宮古花崗岩体の地球化学的研究

理学部地学，教養部*

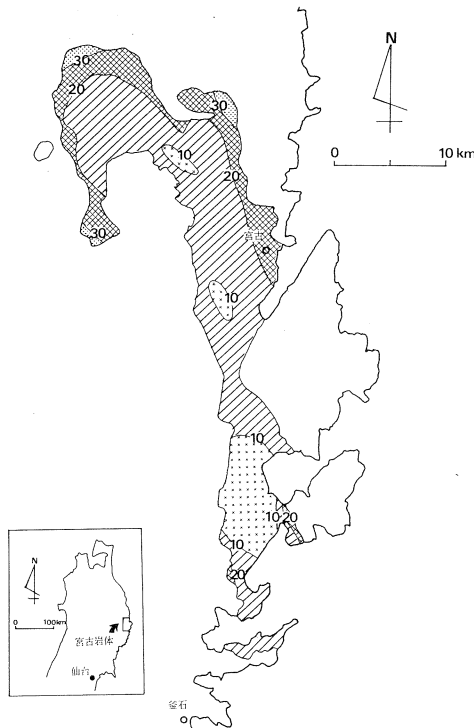
西岡芳晴・吉田武義・蟹沢聰史*・青木謙一郎

§ 1. はじめに

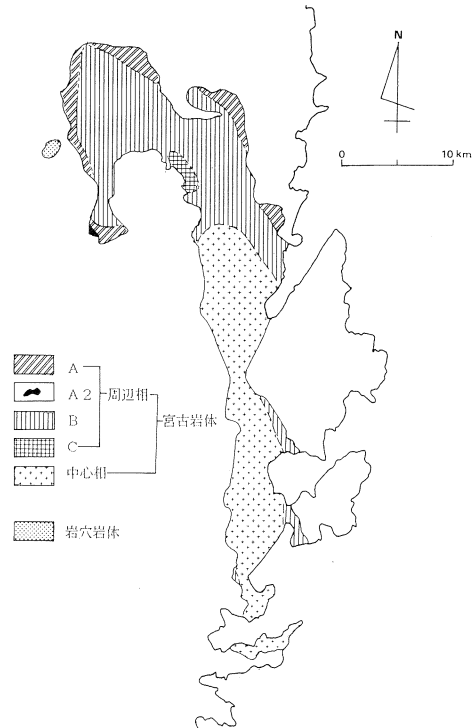
宮古岩体は，北上山地では遠野岩体に次ぐ広い露出面積をもつ岩体であり，片田¹⁾の分帯ではⅡ帯に属する。岩相変化に乏しい岩体であるが，片田・金谷²⁾は， K_2O およびRb, Sr, Th, Uなどのインコンパティブル元素の岩体内における分布から，異帯構造をもつことを指摘した。

Ishihara *et al.*³⁾は，宮古岩体は磁鉄鉱系列に属するが，岩体の西縁のごく一部に，壁岩の同化によってチタン鉄鉱系列の岩石を生じていることを指摘した。

本論では，宮古岩体北部の岩石について，壁岩のホルンフェルスを含む試料14個についての全岩化学組成と，光量子放射化分析などによる微量化学組成の性質を述べる。そして，主として



第1図 宮古岩体の色指数分布図。
岩体の南部の測定値は石原・鈴木⁴⁾によった。



第2図 宮古岩体の分帯。

岩体の累帯構造について明らかになった点を述べる。

§ 2. 宮古岩体の記載岩石学的特徴

宮古岩体は大部分がトーナル岩～花崗閃緑岩からなり、岩相変化に乏しい岩体である。しかし、色指数分布図上では中心が大きく南に偏った累帯構造を示す(第1図)。岩相上は大きく二つのグループ(中心相, 周辺相)に分けることができるが、中心が大きく南に偏るため、周辺相はほとんど岩体北部に分布し、南部には、岩体の縁にそってわずかに分布するにすぎない(第2図)。

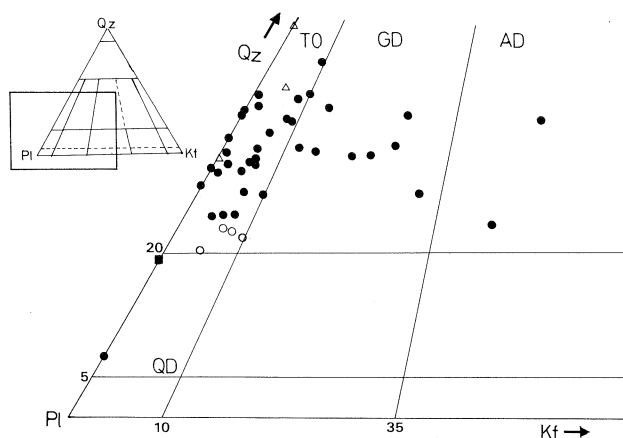
周辺相はトーナル岩, 花崗閃緑岩, アダメロ岩からなり、色指数により三つに細分できる。これを、優黒質なものから順にA, B, Cタイプとする。岩体の縁に近いほど、より優黒質なタイプが分布する。A, Bタイプは、中粒等粒状で、有色鉱物として黒雲母と角閃石をほぼ等量含み、ごくまれに単斜輝石, 斜方輝石を含む。Cタイプはやや斑状で、斑晶は石英, 斜長石などである。角閃石をほとんど含まず、石基にカリ長石を多く含む点がA, Bタイプと異なっている。Aタイプのごく一部で泥質岩のゼノリスを多く含む部分がある。これは、Ishihara *et al.*³⁾がチタン鉄鉱系列に属するものとして記載したものであり、本論ではA 2タイプとする。

中心相はトーナル岩, 花崗閃緑岩からなる。周辺相に比べて粗粒で、黒雲母が少なく、肉眼で容易に区別がつく。構成鉱物の種類は、ほとんど周辺相と変わらないが、輝石は含まない。

岩穴岩体は宮古岩体のすぐ西方に露出する小規模岩体で、トーナル岩からなり、構成鉱物は宮古岩体の周辺相と同じである。

以上のほか、宮古岩体の北部周辺には、岩脈状に黒雲母角閃石石英閃緑石が分布する。

また、今回分析したホルンフェルスはA 2タイプ中のゼノリスで、透輝石や石英を脈状に伴う塩基性凝灰岩～泥質岩である。



第3図 宮古岩体の石英-カリ長石-斜長石図。

- : 宮古岩体周辺相, ○ : 宮古岩体中心相,
- : 石英閃緑岩岩脈, ▲ : 岩穴岩体。

§ 3. 分析方法

宮古岩体北部(21個), 岩穴岩体(2個), 石英閃緑岩岩脈(3個)およびホルンフェルス

第1表 宮古岩体の主成分

Code No	MG 1	MG 3	MG 6	MG 8	MG 12	MG 9	MG 13	MG 17
Type	A 2	A 1	D	B	B	A 1	D	A 1
wt. %								
SiO ₂	52.47	58.35	61.43	61.59	62.41	62.72	63.85	64.14
TiO ₂	0.91	0.69	0.69	0.47	0.54	0.54	0.59	0.47
Al ₂ O ₃	18.71	16.70	18.26	16.11	16.49	16.85	17.54	16.31
Fe ₂ O ₃	1.70	1.60	2.59	2.63	1.43	1.57	2.43	1.66
FeO	6.09	6.49	2.37	3.59	4.53	4.06	1.64	3.70
MnO	0.21	0.16	0.09	0.14	0.13	0.11	0.07	0.12
MgO	4.53	3.65	1.92	2.72	2.54	2.50	1.59	2.14
CaO	9.17	6.76	6.14	5.67	5.30	5.66	5.14	5.05
Na ₂ O	3.23	2.83	4.44	2.90	2.95	3.03	4.53	3.01
K ₂ O	0.90	1.38	1.25	3.02	2.39	1.83	1.79	2.18
H ₂ O ₊	1.67	1.18	0.60	0.80	1.05	0.94	0.08	1.00
H ₂ O ₋	0.11	0.12	0.01	0.25	0.14	0.08	0.57	0.14
P ₂ O ₅	0.30	0.10	0.21	0.11	0.10	0.11	0.18	0.09
Total	100.00	100.01	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.01
ppm								
Ba#	192	495	414	365	710	533	561	600
Ce	37.0	24.8	46.3	32.1	54.0	34.8	44.0	36.5
Co	22.4	21.7	11.3	14.1	14.1	14.6	9.3	11.7
Cr	44.8	49.7	34.1	36.1	24.8	22.8	20.2	36.5
Cs	3.91	1.98	1.33	3.54	3.27	3.31	1.80	1.30
F##	479	515	612	409	590	511	724	549
Nb	6.3	4.6	6.3	6.3	7.2	3.5	7.0	2.5
Ni	17.7	6.3	7.3	10.6	4.8	2.3	3.8	5.4
Rb	25.5	38.8	23.2	59.2	62.2	54.4	35.3	62.9
Sc	14.0	22.3	8.6	12.5	14.5	14.4	9.4	12.9
Sr	835	262	910	358	369	368	907	322
Y	10.1	22.1	10.3	16.7	19.7	18.0	7.1	19.7
Zn	78	51	57	40	50	55	56	32
Zr	38.7	79.8	85.9	91.3	97.9	103	94.5	106

:Flameless atomic absorption method ## :Specific ion electrode method

A, A1, B, C :宮古岩体 IG :岩穴岩体 QD :石英閃緑岩岩脈 WR :壁岩

1. 86072202	黒雲母角閃石石英閃緑岩	刈谷	7. 86060701	黒雲母角閃石トー
2. 86073001	角閃石黒雲母トーナル岩	甲地	8. 86061603	黒雲母角閃石トー
3. 86080401B	黒雲母角閃石トーナル岩	大又沢	9. 86111015	角閃石黒雲母トー
4. 86041301	角閃石黒雲母トーナル岩	七滝	10. 86081002	角閃石黒雲母アダ
5. 86081907	角閃石黒雲母花崗閃緑岩	掘熊	11. 86061101	角閃石トーナル岩
6. 86060601	角閃石黒雲母トーナル岩	小田代	12. 86080613	黒雲母角閃石石英

(2個)について、主として蛍光X線分析法により、主成分元素の分析を行なった。主成分元素のうち、 Na_2O 、 K_2O については炎光光度法、 FeO は過マンガン酸カリ滴定法、 H_2O ±におよび微量成分の分析結果。

Code	MG18	MG21	TG2	QD2	WR1	WR2	K12	K13
No.	9	10	11	12	13	14	15	16
Type	B	C	IG	QD	WR	WR		
wt. %								
SiO_2	64.42	70.39	65.66	53.20	56.89	60.06	65.32	67.44
TiO_2	0.54	0.30	0.40	0.89	0.79	0.87	0.66	0.42
Al_2O_3	16.09	14.99	16.21	15.29	16.63	17.83	16.86	17.07
Fe_2O_3	0.39	1.53	0.67	1.93	0.64	2.14	2.02	1.39
FeO	4.38	1.15	4.38	6.28	6.42	4.96	1.95	1.20
MnO	0.10	0.07	0.15	0.17	0.25	0.12	0.07	0.05
MgO	2.45	1.10	1.91	7.23	3.62	3.08	1.64	0.90
CaO	4.96	2.69	4.42	8.55	7.12	3.10	4.41	3.89
Na_2O	3.30	3.28	2.53	2.68	3.29	3.11	4.05	4.91
K_2O	2.23	3.92	2.01	1.05	2.87	3.12	2.14	1.76
H_2O_+	0.97	0.50	1.52	2.57	1.19	1.34	0.65	0.68
H_2O_-	0.06	0.00	0.08	0.05	0.14	0.12	0.09	0.09
P_2O_5	0.11	0.08	0.07	0.12	0.15	0.14	0.21	0.17
Total	100.00	100.00	100.01	100.01	100.00	99.99	100.07	99.97
ppm								
Ba#	484	525	512	194	540	426	470	369
Ce	50.7	38.4	24.4	31.4	52.4	66.2	36.8	31.7
Co	13.0	6.2	9.8	27.5	17.2	16.6	10.6	5.7
Cr	31.6	23.8	18.9	222	67.7	80.9	2	2
Cs	6.02	4.84	5.19	1.71	8.19	7.74	1.88	1.58
F##	736	445	536	569	1,064	997	422	487
Nb	7.3	11.3	4.6	6.6	10.7	11.7	6.9	5.0
Ni	8.3	3.4	3.8	57.7	37.4	40.3	10	4
Rb	93.5	132	75.3	38.4	124	128	51.7	38.2
Sc	8.4	7.0	11.5	29.8	14.0	15.9	8.2	6.5
Sr	484	360	316	396	230	157	759	907
Y	9.8	9.6	16.2	18.3	25.5	26.4	8.6	6.2
Zn	47	33	53	47	69	56	61	51
Zr	96.4	84.2	85.6	72.4	113	177	102	116

ナル岩 岩 船 13. 86072205E ホルンフェルス 北山
ナル岩 水 掘 14. 86103001 ホルンフェルス 北山
ナル岩 亀ヶ沢 15-16 宮古岩体南部(蟹沢ほか⁸⁾より)
メロ岩 馬場 15. 72080406 黒雲母角閃石花崗閃緑岩
岩 穴 16. 72083005 黒雲母角閃石花崗閃緑岩
閃緑岩 北山

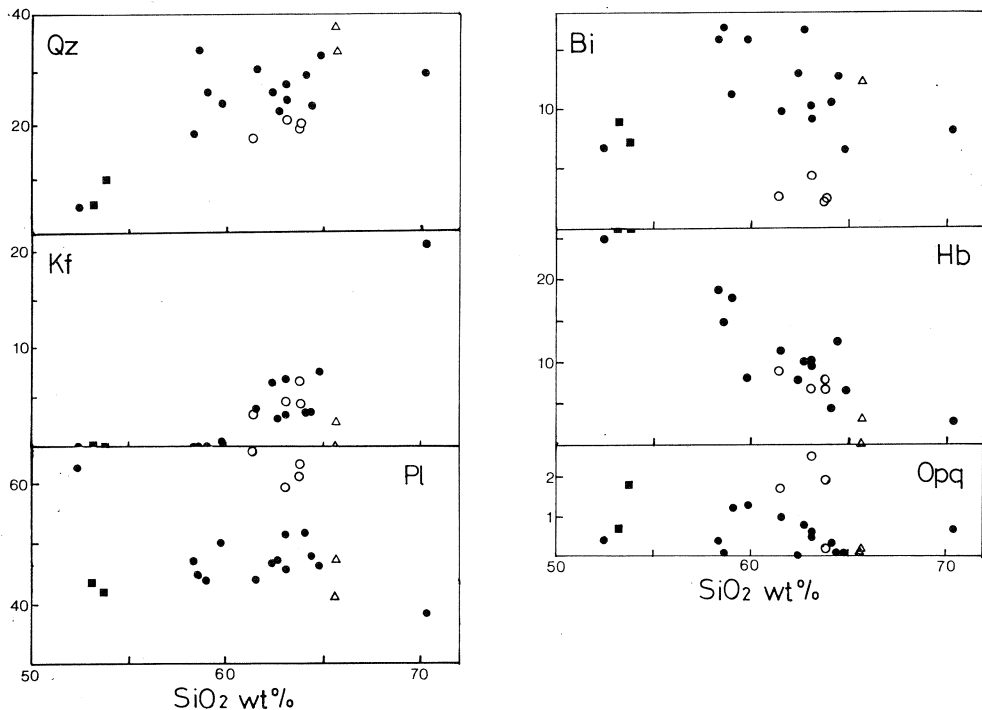
については重量法によって定量し、合計が100%になるように補正した。

さらにこのうち、代表的なもの14個を選び、光量子放射化分析⁵⁾によって、Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sr, Zn, Zr およびYの12微量元素を定量した。試料の放射化には東北大学理学部付属核理学研究施設の電子ライナックを利用し、30MeVの加速電子を用いた。さらに、Fをイオン電極法⁶⁾により、Baをフレイムレス原子吸光法⁷⁾によって定量した。微量成分の分析結果は、主成分とともに第1表に示した。また第1表の岩体南部についての分析値(2個)は、蟹沢ほか⁸⁾から引用した。

§ 4. 宮古岩体北部のモード組成変化

岩相変化を検討するためにSiO₂-モード組成変化図を作成した(第4図)。この図から中心相と周辺相の差がはっきりする。

まず周辺相については、カリ長石の量がSiO₂=60%をこえると急に増加すること、斜長石のモード組成が45~50%で変化しないことが特徴としてあげられる。また、角閃石は単調に減



第4図 宮古岩体のSiO₂-モード組成変化数。
記号は第3図と同じ。

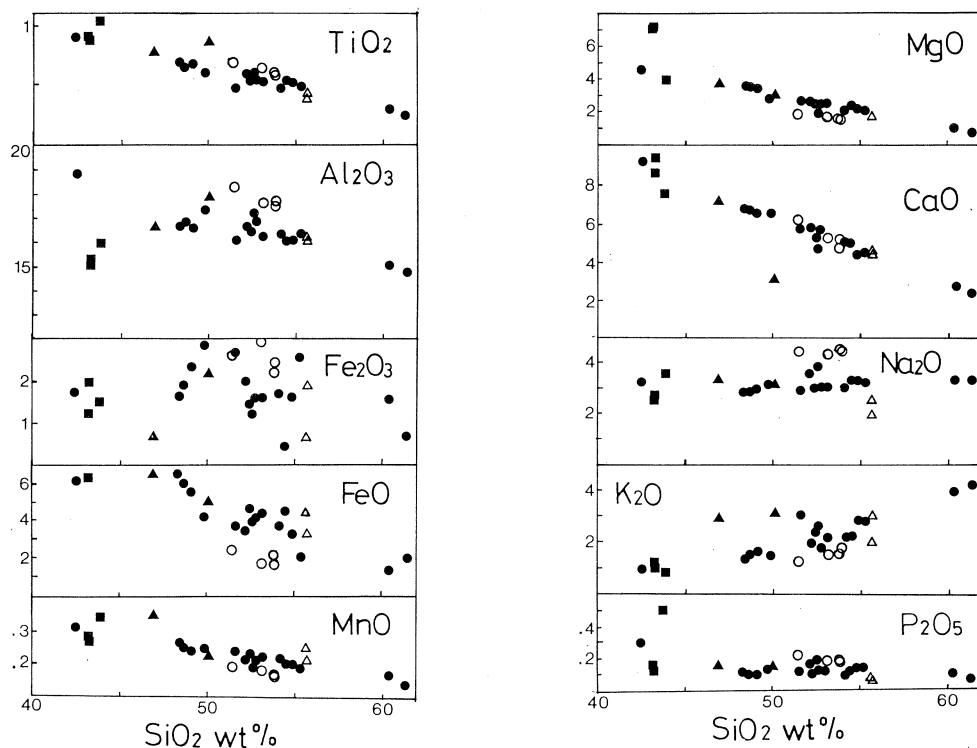
少している。石英と黒雲母は SiO_2 との相関は不明瞭である。これに対し中心相は、黒雲母が著しく少ないほか、斜長石が著しく多く、石英が少ない。不透明鉱物、スフェンの多いのが特徴である。

§ 5. 宮古岩体の主化学組成

主成分元素の分析結果と SiO_2 の関係を第5図に示す。これらの図でも周辺相と中心相との差がみられ、モード組成の差に対応している。

周辺相は、 Fe_2O_3 を除けばほぼ直線的な変化を示す。 Fe_2O_3 はばらつきが激しいためはつきりしない。これに対し中心相はやや異なる位置にプロットされる。すなわち、 Al_2O_3 、 Na_2O が著しく高く、 K_2O が低い。また、 TiO_2 、 P_2O_5 はやや高く、 FeO 、 MnO 、 MgO はやや低い。これらは中心相がモードにおいて斜長石に富み、黒雲母に乏しいことに対応している。岩穴岩体は、大部分の主成分について周辺相と同じ傾向を示すが、 Na_2O 、 P_2O_5 が低い。

壁岩のホルンフェルスは、周辺相と比較すると TiO_2 、 FeO 、 K_2O が高い。



第5図 宮古岩体の SiO_2 -主成分組成変化図。

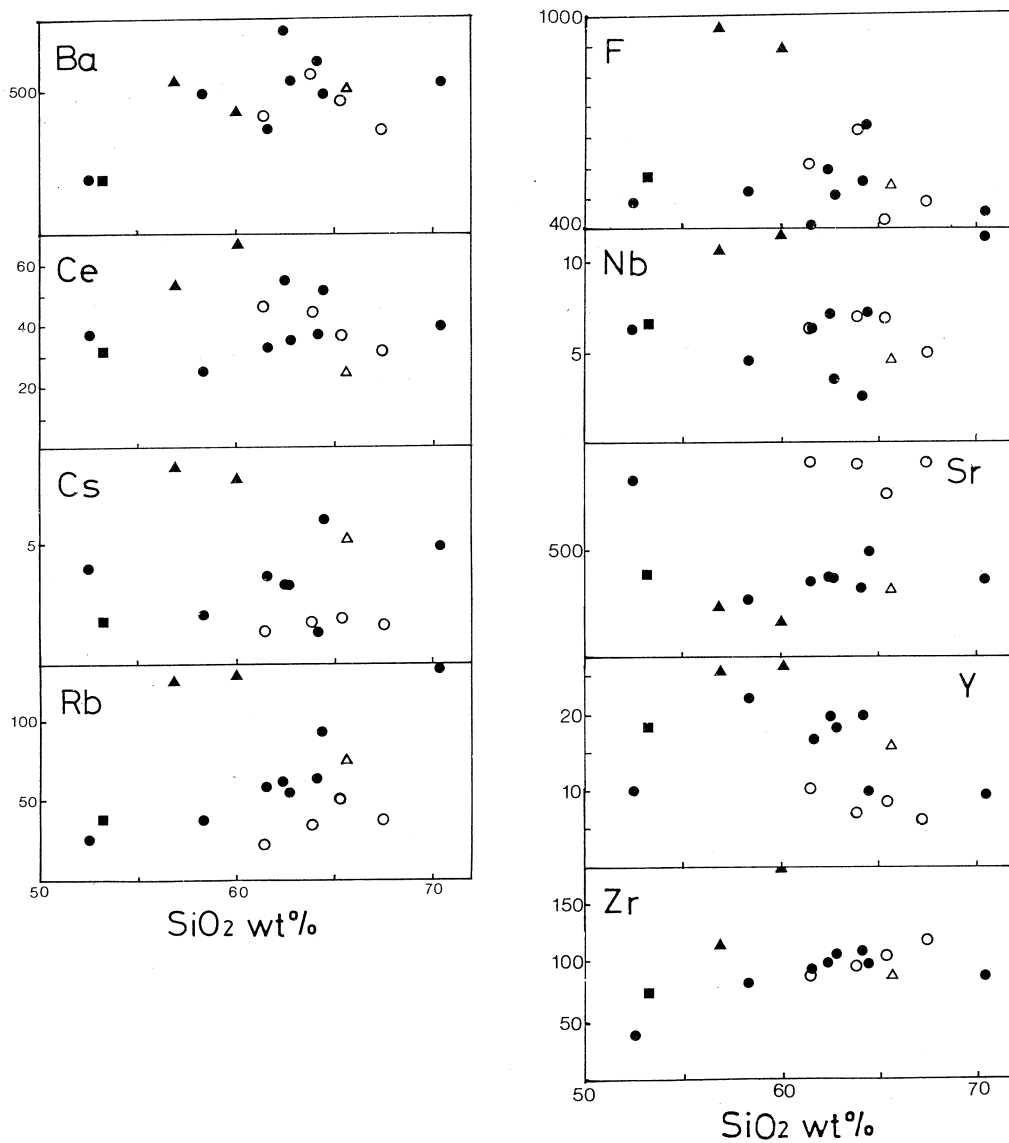
●：宮古岩体周辺相，○：宮古岩体中心相，■：石英閃緑岩岩脈，
△：岩穴岩体，▲：壁岩。

§ 6. 宮古岩体の微量化学組成

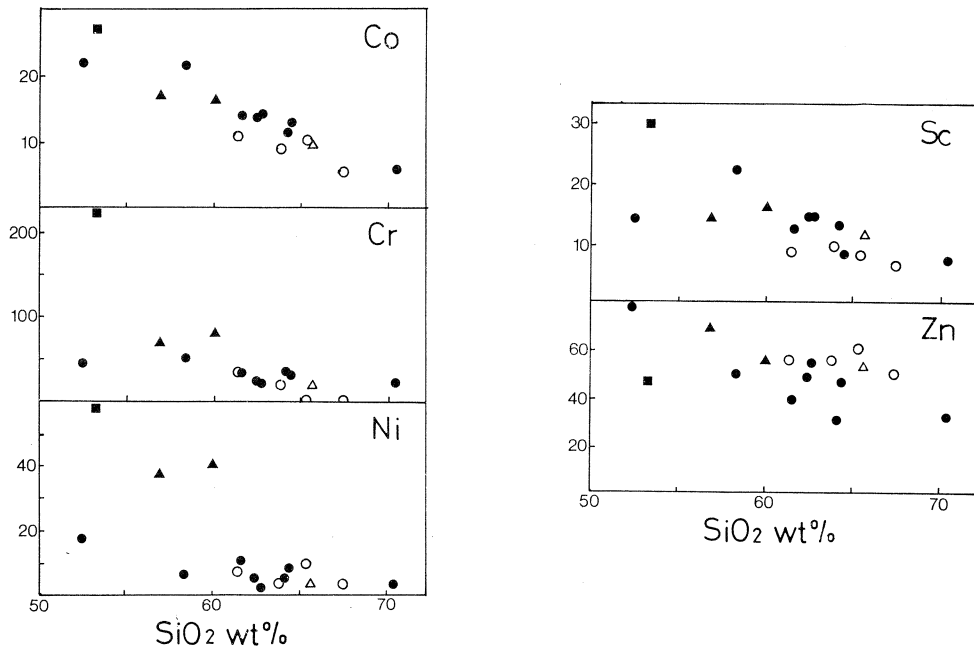
6.1 SiO₂に対する組成変化

微量元素の組成変化とSiO₂の関係は第6図 a, bのようになる。

まず, インコンパティブル元素の挙動についてみる。周辺相では, RbはSiO₂の増加に伴い顕著に増加する。ほかの元素は明瞭な傾向を示さずばらつく。しかし, もっとも塩基性のA 2タ



第6図 a 宮古岩体のSiO₂-微量元素組成変化図(その1)。
記号は第5図と同じ。



第6図b 宮古岩体のSiO₂-微量元素組成変化図(その2)。
記号は第5図と同じ。

イプではBa, Y, Zrが低く、もっとも酸性のCタイプではNbが高くなっている。YはSiO₂の増加に伴い減少傾向を示すが、A2タイプでは低い。これに対し中心相は、Cs, Rb, Yで周辺相よりやや低い傾向を示す。また壁岩は、Baを除くインコンパティブル元素で周辺相よりも高くなっている。SrはA2タイプで高いが後は横ばいとなる。これに対し中心相はSrが著しく高い。

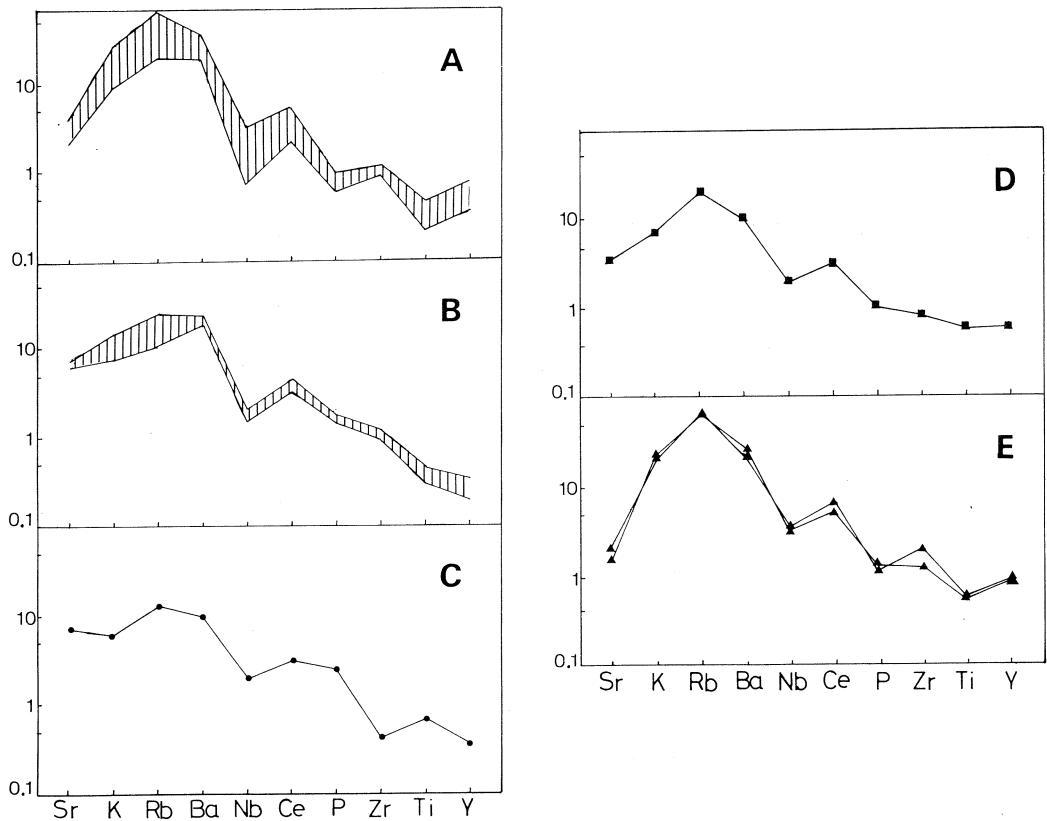
つぎに、コンパティブル元素について述べる。周辺相では、岩穴岩体も含めて、Co, Cr, Ni, Sc, ZnはSiO₂の増加に伴い減少する。中心相ではZnがやや高い。壁岩は、Cr, Ni, Srがやや低い傾向を示す。

なお、周辺相と中心相の間でRbやSrの含有量が著しく異なることは、片田・金谷²⁾の指摘と一致する。

6.2 MORB規格化パターン

微量元素についてMORBで規格化したパターンをPearce⁹⁾の方法で図示すると第7図のようになる。

A2タイプを除く周辺相のパターンは、SiO₂の含有量により上下するもののほぼ同様のパ



第7図 微量元素のMORB規格化パターン。

A : 周辺相 (A 2タイプを除く), B : 中心相,
C : A 2タイプ, D : 石英閃緑岩岩脈, E : 壁岩,

ターンとなる。岩穴岩体もこれに一致する。すなわち, Sr, K, Rbまでは右上がり、Baでやや下がり、Nbで極端な負の異常を示す。以後, P, Tiでやや低いという凹凸を描きつつ全体として右下がりとなる。

A 2タイプはこれと異なるパターンを示す。すなわち, Srが高く, K, Rb, Baが低い。Nbの負の異常は一致するが, 周辺相に見られた凹凸は現れず, P, Tiが高く, Yが少ない。中心相も, 周辺相とは異なるパターンを描く。Srは周辺相よりも高い。K, Rbは中心相の中でばらつきがあるが, その比 ($K/Rb = 344 \sim 447$) は, 周辺相 ($247 \sim 319$, ただしNo. 4を除く) よりも高い。Nbの負の異常は同様であるが, Ce以後は単調に減少する。特に, TiとYの間が右下がりとなっている点が特徴的である。

石英閃緑岩の岩脈のパターンは, 中心相にやや似ているが, K/Rb が大きく, Ba, Yが高いことなどが異なり, 宮古岩体と直接対応をつけるのは難しい。

壁岩のホルンフェルスは、周辺相に似ている。すなわち、Sr, K, Rb と右上がりて上昇し、Nbで負の異常を示し、以後ジグザグ（P, Ti がやや低い）となる。ただし、Srを除いて、一般に花崗岩類よりも高い含有量を示す。

つぎに、これらの宮古岩体のパターンを、北上山地の遠野岩体、折壁岩体と比較する。両岩体は、それぞれV帯、VI帯に属し¹⁾、ともに累帯深成岩体である²⁾。岩相区分と分析値は、遠野岩体は蟹沢ほか¹⁰⁾、折壁岩体は氏家ほか¹¹⁾によった。

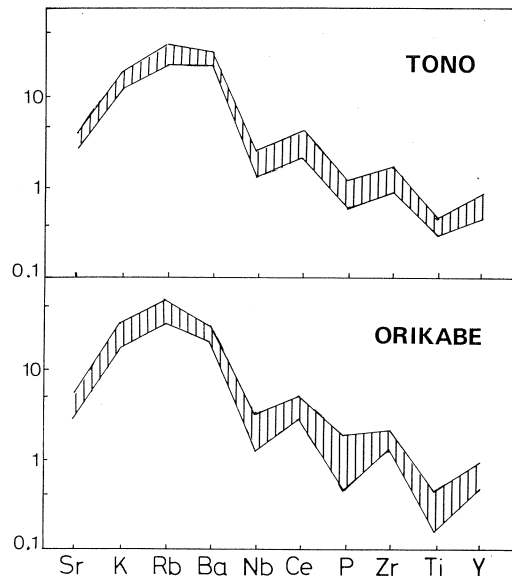
宮古岩体の周辺相に見られた特徴は、遠野岩体、折壁岩体のいずれのパターンにも普通に見られる。遠野岩体では“主岩相”のパターンがこれにあたり、折壁岩体では“室根型”“笹森型”および“折壁型”のうちで比較的SiO₂の多い岩石のパターン（0-2~0-4）が相当する。（第8図）。SiO₂含有量の違いを考慮すれば、遠野岩体の“中心相”や“荒川型”も類似のパターンを描くといえる。ただし、遠野岩体の“主岩相”や折壁岩体は、宮古岩体周辺相よりも、Zrの含有量が多い。

これに対し、宮古岩体の中心相のパターンは遠野岩体、折壁岩体のいずれとも異なる。特にTiとYの間で右下がりとなるパターンは一例もない。

§ 7. ま と め

宮古岩体の中心相と周辺相の相違点について以下にまとめる。

1. モーど組成をSiO₂含有量の等しいもので比較すると、中心は周辺相よりも、斜長石、磁鉄鉱、スフェンに富み、黒雲母、石英に乏しい。
2. 主成分元素をSiO₂含有量の等しいもので比較すると、中心相は周辺相よりもAl₂O₃, Na₂O, TiO₂に富み、K₂O, FeO, MnO, MgOに乏しい。
3. 微量元素をSiO₂含有量の等しいもので比較すると、中心相は周辺相よりもSr, Znに富み、Cs, Rb, Yに乏しい。



第8図 遠野岩体、折壁岩体のMORB規格化パターン。

宮古岩体の周辺相と類似のパターンをもつ岩型を示した。

遠野岩体¹⁰⁾: 主岩相、
折壁岩体¹¹⁾: 室根型、笹森型、折壁型のうちSiO₂の多い岩石。
(0-2~0-4)

4. MORB規格化パターンでは、周辺相は遠野岩体の主岩相や折壁岩体の折壁型の一部と類似するが、中心相は独特のパターンを描く。

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助教授、榎本和義博士ならびにライナックマシングループの皆様、東北大学サイクロトロンRIセンターの中村尚司教授、山寺亮博士ならびに宮田孝元氏をはじめとする職員の方々には試料の放射化ならびに測定にあたって御世話になった。東北大学理学部岩石鉱物鉱床学教室の大沼晃助教授、藤巻宏和博士および東北大学教養部の石川賢一博士には諸般にわたって御助力頂いた。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金(59340054, 62540611)を使用した。以上の方々ならびに文部省当局に深謝する。

参 考 文 献

- 1) 片田正人：地調報告 **251** (1974) 121.
- 2) 片田正人, 金谷弘：岩鉱 **75** (1980) 173.
- 3) S. Ishihara, Y. Matsuhisa, A. Sasaki and S. Terashima: J. Geol. Soc. Jpn. **91** (195) 679.
- 4) 石原舜三, 鈴木淑夫：地調報告 **251** (1974) 23.
- 5) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki : J. Jpn. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. **81** (1986) 406.
- 6) 蟹沢聰史：岩鉱 **73** (1978) 26.
- 7) 石川賢一, 蟹沢聰史：岩鉱 **81** (1986) 492.
- 8) 蟹沢聰史, 吉田武義, 石川賢一, 青木謙一郎：核理研研究報告 **17** (1984) 197.
- 9) J. A. Pearce : *Continental Basalts and Mantle Xenoliths.* eds. C. J. Hawkesworth and M. J. Norry (Shiva, 1983) p. 230.
- 10) 蟹沢聰史, 吉田武義, 石川賢一, 青木謙一郎：核理研研究報告 **19** (1986) 251.
- 11) 氏家真澄, 吉田武義, 蟹沢聰史, 青木謙一郎：核理研研究報告 **19** (1986) 265.

九州，由布・鶴見火山群噴出物の全岩化学組成

理学部地学

太田岳洋・吉田武義・青木謙一郎

§ 1. はじめに

九州地方には、ほぼ東西に西南本州から続く大山火山帯、および南北方向に霧島火山帯に属する第四紀火山が分布している。両火山帯の間で、それらの噴出物の特徴が大きく異なることが知られている¹⁾。

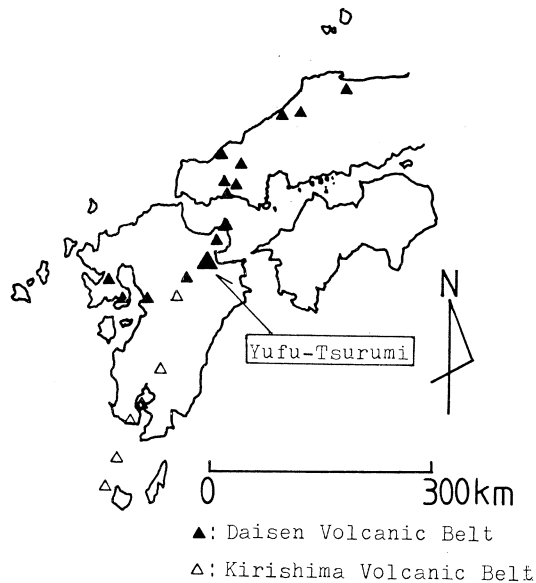
由布・鶴見火山群は、九州北東部に位置し、大山火山帯に属している¹⁾(第1図)。そして、西南日本弧の火山フロント上に存在する²⁾。また、由布・鶴見火山群は、東西系の活断層により形成される地溝帯内に位置するといわれている^{5, 6)}。

今回、由布・鶴見火山群噴出物について光量子放射化法その他の方法による全岩化学組成を得たので、本報告ではその地球化学的特徴について述べ、若干の考察を行う。

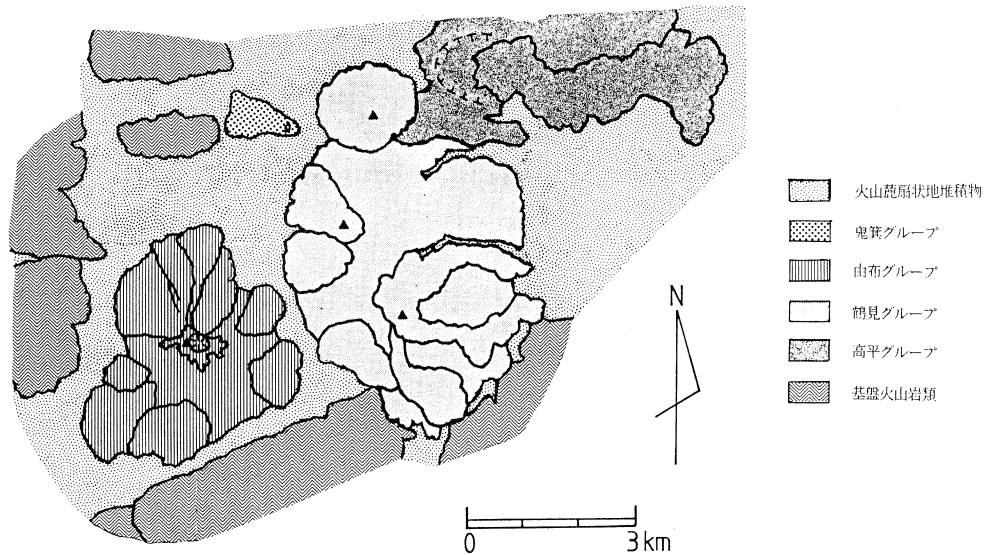
§ 2. 地質概説

由布・鶴見火山群は、高平山、伽藍岳、鶴見岳、鬼箕山、由布岳、などの山体からなる。本火山群の地質についての報告としては小林⁷⁾等がある。本火山群の基盤は、後期鮮新世から更新世の火山岩類であり、北部の籬戸山火山岩類については、2.4 MaのK-Ar年代値がもとめられている⁸⁾。

本火山群の地質概略図を第2図に示す。本火山群の噴出物は、その分布範囲と岩石学的特徴などにより、高平(TK)グループ、鶴見(TR)グループ、由布(YU)グループ、および鬼箕(ON)グループの4グループに分けることができる。これら各グループの形成順序は、高平グ



第1図 由布・鶴見火山群の位置。



第2図 由布・鶴見火山群の地質概略図。

ループの活動の後に鶴見グループが形成され、由布グループ、鬼箕グループはそれぞれ独立して、ほぼ鶴見グループと同時期に活動したと思われる。

高平グループは溶岩流や火砕岩よりなる。鶴見グループの噴出物は、前期、中期、後期に分けられ、前期噴出物は火砕岩および溶岩流、中期噴出物は円頂丘状溶岩、後期噴出物は溶岩流よりそれぞれ構成される。由布グループは火砕岩、溶岩流および円頂丘状溶岩よりなる。鬼箕グループはスコリア丘および溶岩流よりなる。

§ 3. 岩石記載

由布・鶴見火山群噴出物は、多くは角閃石安山岩～デイサイトであり、その他少量のかんらん石両輝石安山岩とかんらん石普通輝石玄武岩質安山岩が認められる。これら全ての岩石について、石基輝石は普通輝石+斜方輝石である。

角閃石安山岩およびデイサイトは、鬼箕グループ以外の全てのグループの噴出物の大部分を占めており、複雑な斑晶鉱物組合せが多く、かんらん石と石英の斑晶が共存する非平衡斑晶鉱物組合せが一般的である。更に、basaltic inclusion、塵状包有物の認められる斜長石斑晶が普遍的に含まれている。

かんらん石両輝石安山岩は、鶴見グループ後期噴出物にのみ認められる。かんらん石普通輝石玄武岩質安山岩は、鬼箕グループ噴出物にのみ認められ、かんらん石斑晶は自形を呈する。

また、角閃石安山岩～デイサイト中には、角閃石および斜長石が卓越した捕獲岩片が多数含まれており、これらは等粒状に近い組織を有する。

以下、本報告では、角閃石安山岩～デイサイトを角閃石安山岩類、かんらん石両輝石安山岩を輝石安山岩、かんらん石普通輝石玄武岩質安山岩をかんらん石普通輝石安山岩として議論を進める。

§ 4. 試料の分析方法

由布・鶴見火山群噴出物から、15個の代表的な試料を選び全岩化学分析を行った。主成分組成については蛍光X線法により分析を行った。主成分元素のうち、 Na_2O と K_2O については、炎光光度法、 FeO は過マンガン酸カリ滴定法、 H_2O ±については重量法を用いた。また、微量元素については光量子放射化分析法⁹⁾によって、Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Zn, Zr およびYの12微量元素の定量を行い、フレイムレス原子吸光法¹⁰⁾によりBaの分析を行った。分析結果を第1表に示す。

第1表 由布・鶴見火山群噴出物の化学組成。

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Sp. No.	103005	060308	080607	102809	102107	060401	081501	081002	102306	052405
Group	TK	TR	TR	TR	TR	TR	TR	TR	TR	YU
SiO_2 wt%	63.47	57.28	59.39	59.70	59.89	59.96	61.03	62.44	63.86	57.75
TiO_2	0.72	0.83	0.80	0.73	0.78	0.73	0.82	0.68	0.63	0.88
Al_2O_3	17.52	18.52	17.46	16.68	17.26	17.91	17.10	17.23	16.35	17.53
Fe_2O_3	3.85	3.88	4.24	2.68	3.16	3.66	3.62	3.23	2.55	4.66
FeO	2.01	3.52	2.48	3.75	3.34	2.51	2.87	2.60	2.45	2.71
MnO	0.10	0.14	0.14	0.15	0.15	0.14	0.14	0.14	0.13	0.13
MgO	2.32	3.74	3.38	4.41	3.30	3.19	3.11	2.63	2.45	3.80
CaO	4.82	7.18	6.78	6.89	6.79	6.21	6.13	5.58	5.11	7.56
Na_2O	3.28	3.57	3.37	3.82	3.38	3.76	3.36	3.59	4.04	3.35
K_2O	1.78	1.19	1.80	1.07	1.81	1.80	1.68	1.74	2.30	1.51
P_2O_5	0.12	0.15	0.16	0.12	0.15	0.13	0.14	0.15	0.13	0.12
Total	99.99	100.00	100.00	100.00	100.01	100.00	100.00	100.01	100.00	100.00
Ba ppm	453	330	465	248	390	395	373	392	408	359
Ce	35.3	26.4	30.6	23.3	29.6	30.3	27.0	32.8	34.6	26.5
Co	12.6	16.9	16.9	18.3	15.7	14.1	13.6	12.5	10.0	16.6
Cr	17.8	12.7	10.8	154.7	6.2	13.7	10.7	5.5	5.0	13.3
Cs	0.89	0.70	1.70	0.57	2.22	2.21	2.11	1.80	3.46	1.91
Nb	9.8	8.4	8.7	5.6	7.9	7.7	8.9	10.4	9.5	6.1
Ni	4.0	4.3	2.9	39.9	1.9	8.1	6.4	3.4	3.2	9.8
Rb	52.8	22.3	50.0	26.3	44.2	44.4	40.2	52.1	58.9	35.6
Sc	15.8	21.4	23.3	11.1	15.1	21.6	22.3	11.7	16.1	26.7
Sr	385.2	418.2	521.0	399.7	493.9	434.5	421.7	461.4	425.6	585.7
Y	51.1	18.1	20.6	23.9	17.9	16.8	17.1	18.2	16.9	16.3
Zn	60	64	92	92	76	63	84	81	52	70
Zr	120.9	102.5	118.1	108.8	107.0	105.1	109.5	119.9	124.0	94.2

第1表(つづき)。

No.	11	12	13	14	15	
Sp. No.	072205	072006	052503	060502	080415	1. かんらん石石英普通輝石含有斜方輝石角閃石 デイサイト; 鶴見霊園入口
Group	YU	YU	YU	ON	INC	2. かんらん石石英含有普通輝石斜方輝石角閃石 安山岩; 鶴見岳東斜面林道
SiO ₂ wt%	59.04	61.44	62.48	54.33	52.43	3. 斜方輝石含有普通輝石角閃石安山岩; 猪ノ瀬 戸林道
TiO ₂	0.82	0.71	0.66	1.76	1.01	4. かんらん石斜方輝石普通輝石安山岩; 旗ノ台
Al ₂ O ₃	17.55	17.05	16.52	16.26	18.92	5. かんらん石石英斜方輝石含有普通輝石角閃石 安山岩; 滝谷
Fe ₂ O ₃	2.79	3.03	2.97	2.77	4.70	6. 黒雲母石英かんらん石含有斜方輝石普通輝石 角閃石安山岩; 大平山
FeO	3.73	2.83	2.78	6.12	3.82	7. 石英かんらん石含有斜方輝石普通輝石角閃石 安山岩; 伽藍岳
MnO	0.13	0.13	0.13	0.15	0.17	8. 石英普通輝石斜方輝石含有角閃石安山岩; 春 木川
MgO	3.69	3.04	2.95	5.79	4.94	9. 黒雲母かんらん石石英斜方輝石含有普通輝石 角閃石安山岩; 境川
CaO	7.07	6.20	5.80	7.22	9.48	10. 石英かんらん石斜方輝石含有普通輝石角閃石 安山岩; 由布岳山頂
Na ₂ O	3.53	3.61	3.61	3.66	3.06	11. 黒雲母石英かんらん石斜方輝石含有普通輝石 角閃石安山岩; 由布岳北側の沢
K ₂ O	1.52	1.82	1.99	1.54	1.27	12. 黒雲母石英斜方輝石含有普通輝石角閃石安山 岩; 由布岳北西の沢
P ₂ O ₅	0.13	0.13	0.12	0.41	0.19	13. 石英かんらん石含有斜方輝石普通輝石角閃石 安山岩; いもりヶ城
Total	100.00	99.99	100.01	100.01	99.99	14. 斜方輝石石英含有角閃石かんらん石普通輝石 玄武岩質安山岩; 鬼箕山
Ba ppm	356	396	361	398	236	15. 捕獲岩; 滝谷
Ce	26.6	31.2	32.1	60.9	24.5	
Co	16.3	14.4	12.3	27.0	22.9	
Cr	14.7	9.1	13.3	182.5	7.2	
Cs	1.99	2.58	3.04	1.05	0.92	
Nb	6.5	8.0	8.8	23.1	6.5	
Ni	5.1	6.7	5.0	58.0	4.3	
Rb	36.9	47.5	53.5	37.3	28.4	
Sc	22.0	22.1	13.8	20.4	37.4	
Sr	471.9	477.2	439.5	619.2	587.0	
Y	16.1	15.9	16.1	19.6	21.7	
Zn	67	52	72	116	75	
Zr	96.7	116.9	115.8	149.5	77.2	

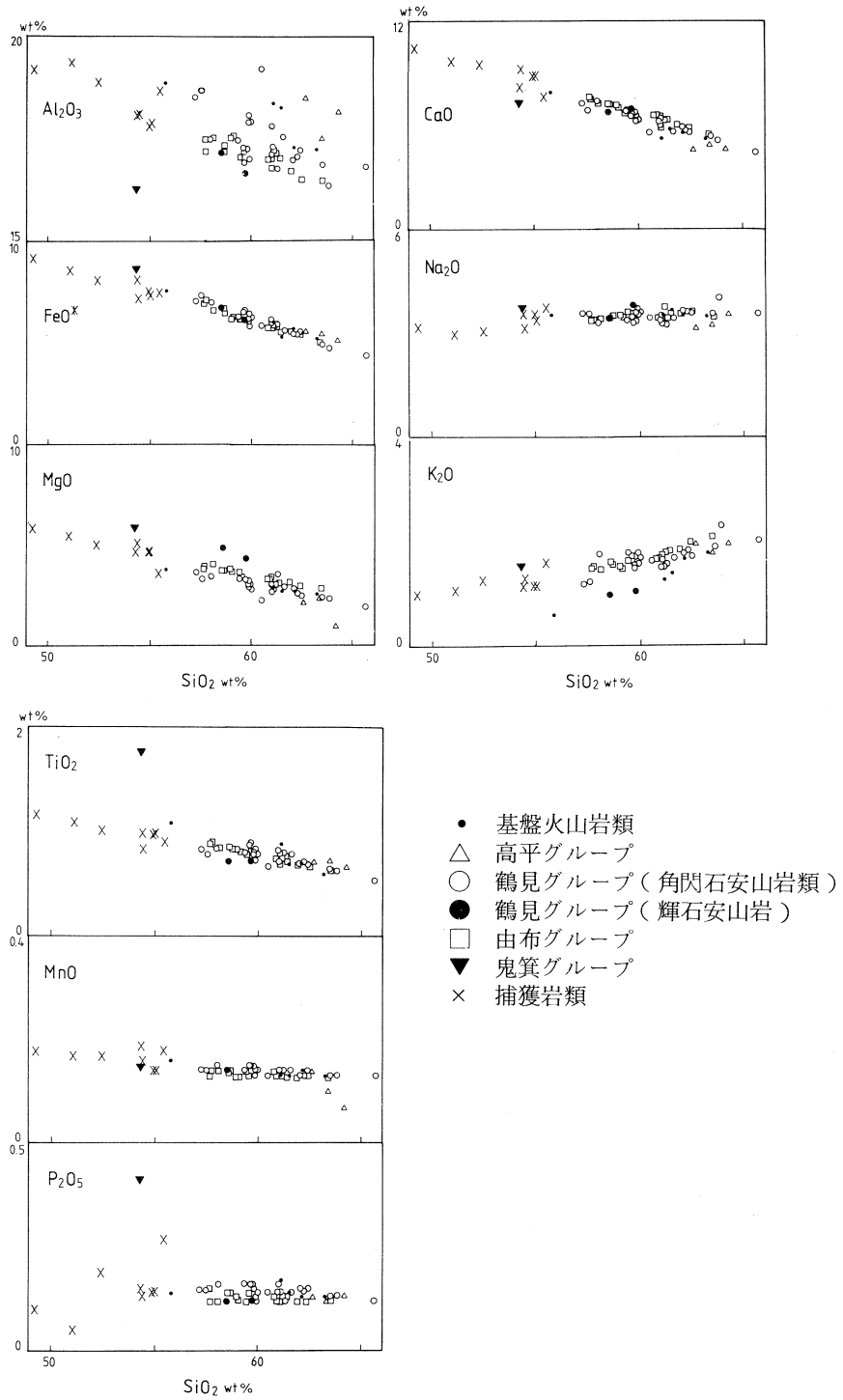
§ 5. 由布・鶴見火山群噴出物の全岩化学組成の特徴

5.1 主成分元素組成について

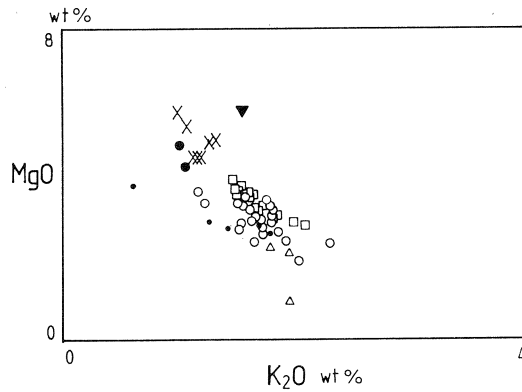
本火山群噴出物組成の全体的な特徴を示すために第3図にハーカー図を示した。由布・鶴見火山群噴出物のうち角閃石安山岩類は、ほぼ全ての元素で非常にきれいな直線性を示し、大きな組成のギャップも認められない。角閃石安山岩類は各グループ毎に若干組成が異なり、特にMgOが高平、鶴見そして由布グループへとより高くなる傾向がみられる。それに対してAl₂O₃は、この順に低くなっている。また、由布・鶴見火山群噴出物中に産する捕獲岩類の化学組成は、母岩である角閃石安山岩類の示す組成変化トレンドの苦鉄質延長線上にほぼのっている。

輝石安山岩は、多くの元素では、角閃石安山岩類とほぼ同じ組成変化トレンドを描いているが、MgOとK₂Oで違いが認められる。すなわち、輝石安山岩は角閃石安山岩類に比較してK₂Oが少なく、MgOに富んでいる。但し、K₂O - MgO図上では両者は同一トレンド上にプロットされ、これらを区別することはできない(第4図)。

かんらん石普通輝石安山岩は、上記のいずれのタイプとも大きく異なった化学組成をもつ。



第 3 図 由布・鶴見火山群噴出物の主成分組成変化図。



第4図 K₂O—MgO図。記号は第3図参照。

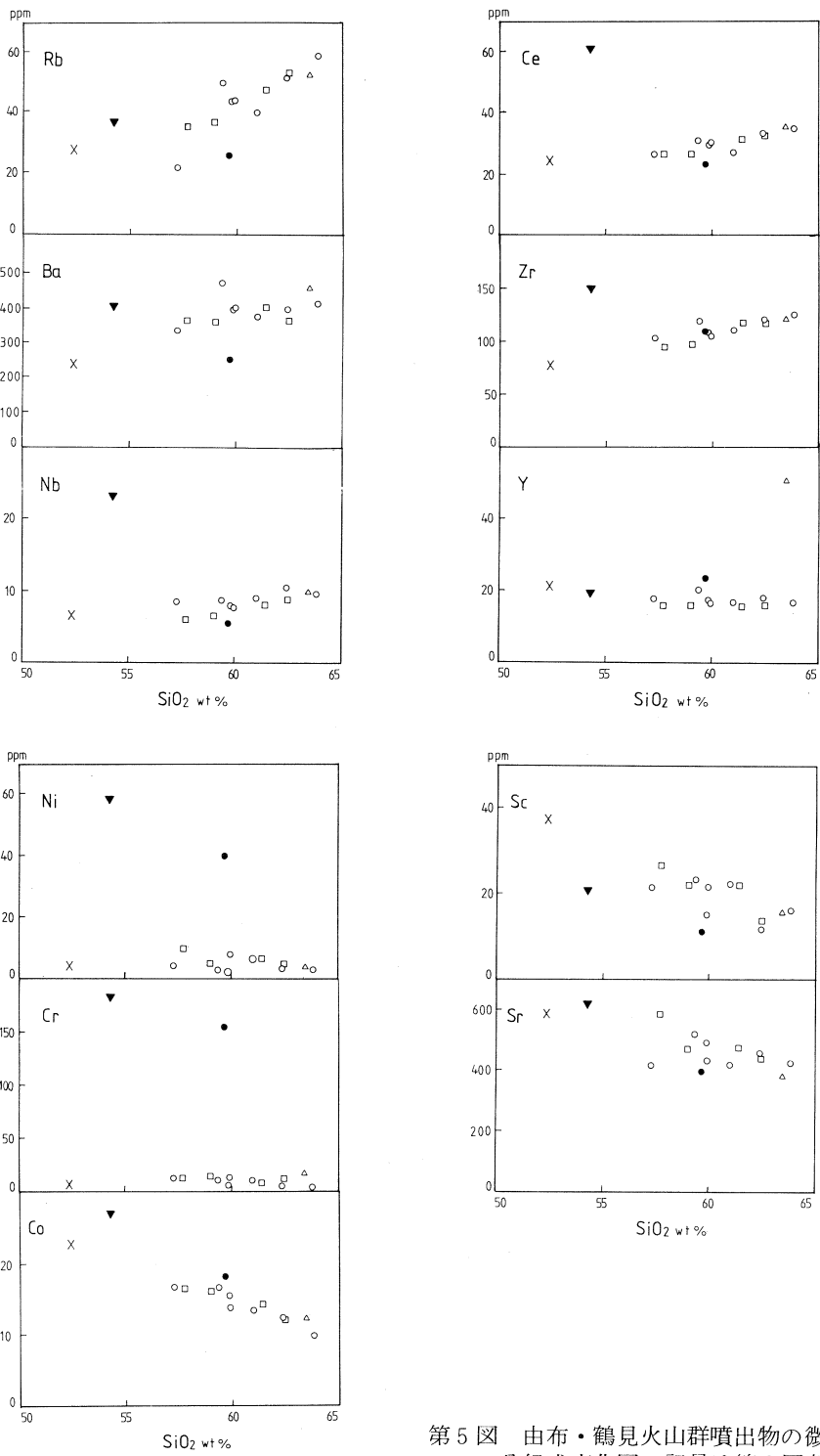
すなわち、それに比べてAl₂O₃がかなり低く、一方、MgOに富んでいる。さらにNa₂OとK₂Oが若干多く、TiO₂とP₂O₅に極端に富んでいる。

5.2 微量元素組成について

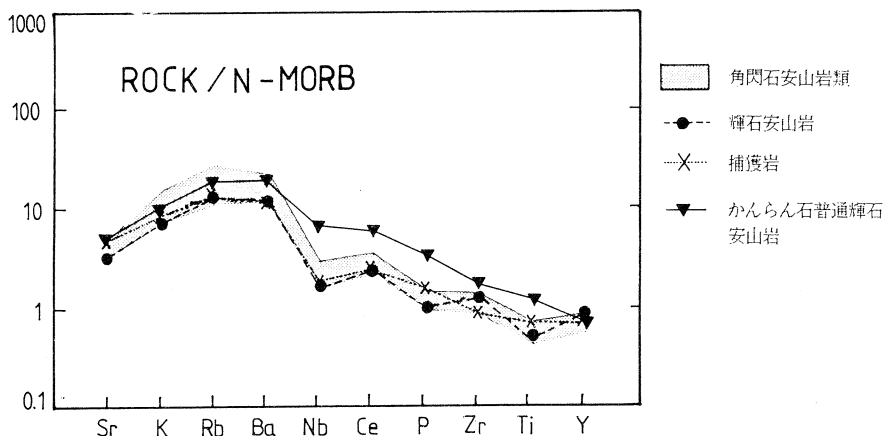
主成分元素と同様に、SiO₂を横軸にとった組成変化図を第5図に示す。Ba, Rb, Csについては、全ての噴出物についてSiO₂の増加に伴いほぼ単調に増加する。Ce, Nb, Zrについては、かんらん石普通輝石安山岩を除くと、SiO₂の増加に従って単調に増加し、かんらん石普通輝石安山岩については他のタイプに比較して明らかに高い含有量をもつ。Co, Sc, SrはおおむねSiO₂の増加に伴って減少する。また、Cr, Niについては、かんらん石普通輝石安山岩と輝石安山岩が角閃石安山岩類に比べて非常に含有量が高い。Yは、いずれの岩石でもほぼ一定の値をとるが、高平グループに属する噴出物のみが高い含有量を示している。

5.3 中央海嶺玄武岩(MORB)組成による規格化パターン

由布・鶴見火山群噴出物の地球化学的性格を更に検討するためにMORB組成による規格化パターンを作成した(第6図)¹¹⁾。これによると角閃石安山岩類に属する岩石はいずれもかなり狭い組成範囲にあり、HFS元素に対してLIL元素が濃集し、Nbに負の組成異常が認められる島弧のカルクアルカリ岩に特徴的な規格化パターン¹²⁾を示している。輝石安山岩の規格化パターンは角閃石安山岩類のそれと重なる。すなわち、微量元素の規格化パターンも濃集度もほとんど同じである。また、捕獲岩類の規格化パターンも角閃石安山岩類や、輝石安山岩の示すパターンと同様である。それに対して、かんらん石普通輝石安山岩は他のグループに比べてLIL元素では同様の濃集度を示すが、HFS元素に関しては明らかに高い濃集度をもつため、Nbの負異常をあまり示さないアルカリ玄武岩に近いMORB規格化パターン^{13), 14)}を示している。



第5図 由布・鶴見火山群噴出物の微量元素組成変化図。記号は第3図参照。



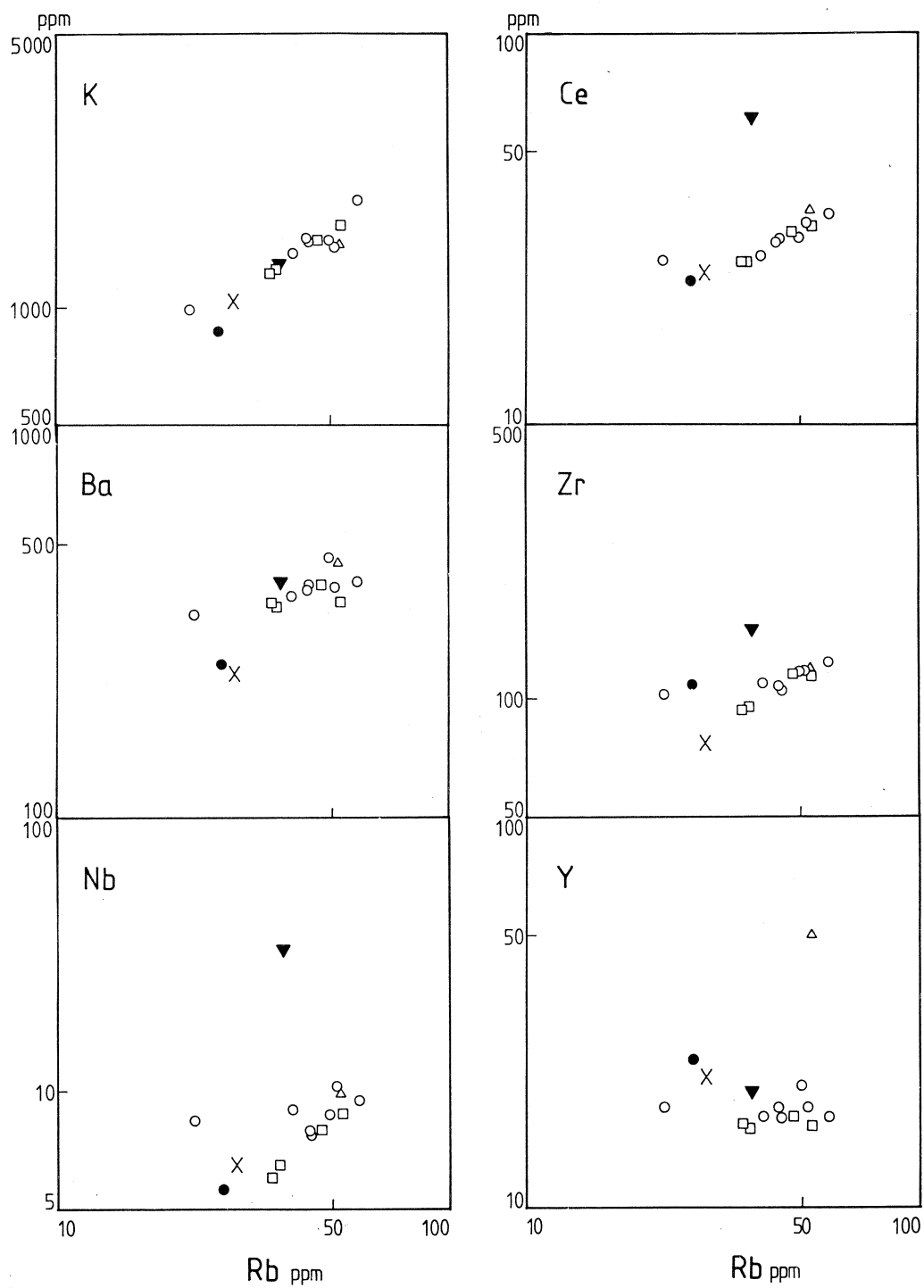
第6図 N-type MORB組成による規格化パターン図。

§ 6. 角閃石安山岩類と輝石安山岩の同源性ならびにこれらと捕獲岩類との同源性について

由布・鶴見火山群噴出物相互の同源性を検討するために、最も液相に濃集する元素の一つであるRbを横軸にとり、縦軸に他の液相濃集元素をとった両対数グラフを作成した(第7図)。この図によるとK, Ba, Ce, CsおよびNbについては角閃石安山岩類, 輝石安山岩類, そして捕獲岩類が、すべてほぼ同一の直線上にプロットされることがわかる。したがって、これら各岩石グループを形成した初生マグマが、互いに密接な成因的関連を有していたことが推定される。また、これらの組成をMORB規格化パターンで比較した場合もすべて同じ様なパターンと濃集度を示す。これらのことは由布・鶴見火山群噴出物のうち、角閃石安山岩類と輝石安山岩とは同一の初生マグマに由来している可能性が考えられること、ならびに捕獲岩類についてもこれらの安山岩類と同源ものである可能性が強いことを示唆している。

§ 7. かんらん石普通輝石安山岩の特異性

既に述べたように、かんらん石普通輝石安山岩は他の由布・鶴見火山群噴出物とは、かなり異なった化学組成をもつ。特に第3図, 第5図に示したようにCe, Nb, Zr, Ti, そしてPなどの濃度が他の岩石グループに比べて高い。MORB規格化パターンにおいても他のグループとは明瞭に異なるパターンを示しており、それらと同源とは考えにくい。おそらく、かんらん石普通輝石安山岩は他の噴出物とは異なる初生マグマに起因する噴出物であると推定される。



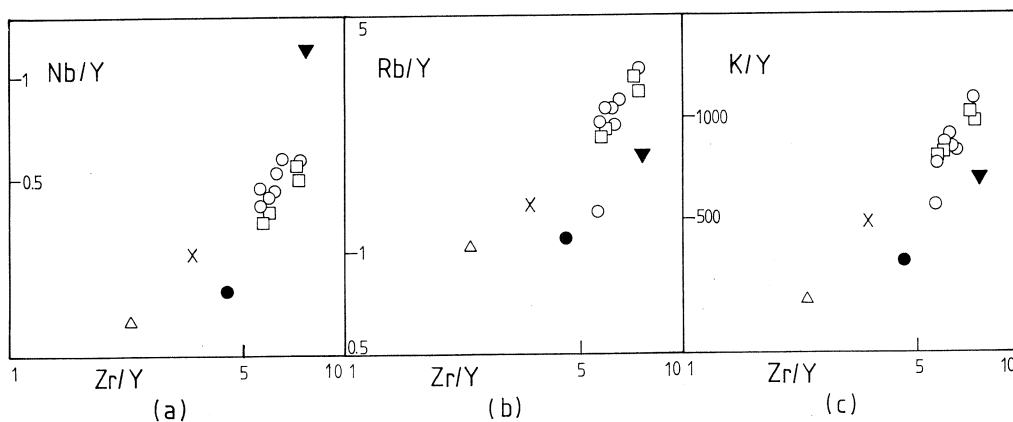
第7図 Rb-インコンパティブル元素図。記号は第3図参照。

本岩の示すMORB規格化パターンはアルカリ岩，しかも東北本州弧のような典型的な島弧の背弧側に産するアルカリ岩¹²⁾ではなくインタープレートに産するアルカリ火山岩¹⁴⁾のそれに近いという特徴を示している。由布・鶴見火山群は九州北東部における火山フロントに位置する火山である。このような火山フロント上の火山においてNb負異常を示す通常のカルクアルカリ岩と，Nb負異常をあまり示さないインタープレートに産するアルカリ玄武岩に近い性格を持った岩石とが共存することは興味深い。この位置においてこのような特殊な岩石が産する要因としては，1. この位置が2つの火山帯の交差する付近にあたる，2. この位置が第四紀にはいつてからずっと引っ張り応力場に位置していた，などを挙げることができる。特に後者の要因は地下深部におけるインタープレートアルカリ岩に近いマグマの発生に重要な役割を果たした可能性がある。また，おそらく，西南日本弧が本来，東北本州弧に比較してより複雑な地殻-マントル構造を有することも重要な要因のひとつであろう。

§ 8. 由布・鶴見火山群噴出物の分化機構

由布・鶴見火山群噴出物の分化作用を検討するためにNb/Y-Zr/Y，Rb/Y-Zr/Y，K/Y-Zr/Yの両対数グラフを作成した(第8図)。これらの図上で角閃石安山岩類はほぼ45°の右上がりの直線上にプロットされる。このような変化傾向は，結晶分別作用ないしマグマの混合により生じた可能性が考えられる。又，これらの岩石に非平衡斑晶組合せが認められるのは，マグマの混合による生成を指示している。

また，捕獲岩類は角閃石安山岩類の組成変化トレンドの延長上にプロットされており，この



第8図 (a) Nb/Y-Zr/Y図； (b) Rb/Y-Zr/Y図；
(c) K/Y-Zr/Y図。 記号は第3図参照。

ことは、捕獲岩類を形成したマグマが角閃石安山岩類を形成したマグマと同源である可能性を示唆している。捕獲岩類がより苦鉄質なマグマから直接固結したものか、あるいは角閃石安山岩類を形成したマグマからの集積相であるのかの判断には今後の検討が必要である。

一方、輝石安山岩は角閃石安山岩類とは異なる領域にプロットされている。すなわち、Nb/Y, Rb/Y, K/Y がともに低い。仮に角閃石安山岩類と輝石安山岩とが同じ初生マグマから由来したとすると、角閃石安山岩類を形成したマグマでは輝石安山岩を形成したマグマに対してK, Rb, Nbが濃集したことになる。このような両者の組成差の原因としては、角閃石安山岩類と輝石安山岩の間に地殻内での結晶分化作用の内容、従って、結晶分化時の物理化学的条件が異なっていたことが予想される。

§ 9. まとめ

九州北東部に位置する、由布・鶴見火山群噴出物は大きく角閃石安山岩類、輝石安山岩、かんらん石普通輝石安山岩に分類できる。角閃石安山岩類と輝石安山岩とは典型的な島弧に産するカルクアルカリ岩の地球化学的性格を有する。それに対してかんらん石普通輝石安山岩は明瞭に異なる組成を有し、よりインタープレートに産するアルカリ岩に近い組成をもち、Nbの負異常をあまり示さない。これらの火山岩中には捕獲岩類が認められるが、その組成は角閃石安山岩類の組成変化トレンドの延長上に位置し、これらの捕獲岩類が角閃石安山岩類を形成したマグマと同源のマグマに由来する可能性を示している。由布・鶴見火山群は九州北東部での火山フロントに位置する火山であるが、そこでの性格の明瞭に異なる2種のマグマの共存は、本火山が火山帯の交差する付近に存在し、しかも九州を横切る地溝帯内に位置することと関係していると推定される。いずれにしても今回の結果は西南日本弧を構成するマントル組成の不均質性を示唆しているものと思われる。

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センターの中村尚司教授、山寺亮博士、ならびに宮田孝元氏をはじめとする職員の方々には試料の放射化ならびに測定にあたってお世話になった。Baの分析にあたっては東北大学教養部の蟹沢聰史教授、石川賢一博士に御指導頂いた。同理学部岩石鉱物鉱床学教室の大沼晃助教授、藤巻宏和博士には諸般にわたって御指導頂いた。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金(62103003)を使用した。以上の方々ならびに当局に深謝する。

参 考 文 献

- 1) 柴田秀賢：日本岩石誌Ⅲ（朝倉書店，1968）
- 2) 杉村 新：火山 第2集 10（1965）37.
- 3) 活断層研究会：日本の活断層（東大出版会，1980）
- 4) 加藤碩一：地質調査所月報 31（1980）153.
- 5) 松本徃夫：地質学論集 16（1979）127.
- 6) 松本徃夫：地質学論集 24（1984）199.
- 7) 小林哲夫：地質学論集 24（1984）93.
- 8) 鎌田浩毅，村岡洋文：地質学雑誌 90（1984）125.
- 9) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki : J. Jpn. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. 81（1986）406.
- 10) 石川賢一，蟹沢聰史：岩鉱 81（1986）492.
- 11) J. A. Pearce : *Continental basalts and mantle xenoliths*, eds. C. J. Hawkesworth and M. J. Norry（Shiva, 1983）p. 230.
- 12) T. Yoshida and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III 16（1984）1.
- 13) S. S. Sun : *Geochim. Cosmochim. Acta* 46（1982）179.
- 14) J. A. Pearce : *Andesites*, eds. R. S. Thorpe（John Wiley & sons, 1982）p. 525.

八甲田火山群，ステージ1に活動した ソレイトマグマの地球化学的研究

理学部地学

佐々木寧仁・吉田武義・青木謙一郎

§ 1. はじめに

東北日本弧において中期～後期更新世に構造地質学的に重大な転換がなされたことは、これまでに何人かの研究者によって報告されている¹⁾。いくつかの火山ではこの時期をばさんで火山岩組成に大きな変化すること(例えば噴出物の K_2O 量の増加)²⁾⁻⁴⁾、また火山の活動様式に変化が認められること⁵⁾が知られている。

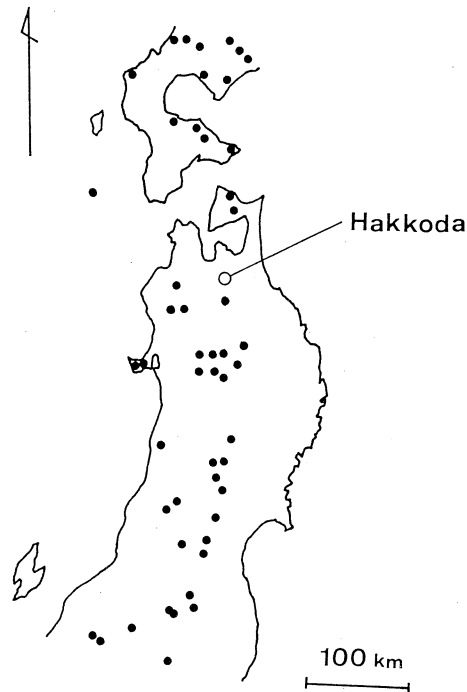
八甲田火山群においてもステージ1に活動した大小川沢溶岩類が、火山層序単位上、また地球化学的特徴から、他のソレイト系列岩と異なる性格を示すことは既に報告されている⁶⁾。本論文では光量子放射化分析法、蛍光X線分析法により得られた主要成分および微量成分組成を示し、このステージ1に活動したソレイトマグマの分化過程について検討する。

§ 2. 地質概説

八甲田火山群は、東北日本弧の脊梁火山列⁷⁾に属する第四紀火山である(第1図)。本火山群の火山活動は次のように三分される(第1表)。

ステージ1では、成層火山群を形成し、その山体崩壊が生じた後、溶岩円頂丘、溶岩流、少量の中間型火砕流を噴出し、南八甲田火山群が形成された(3.9～0.5 Ma; K-Ar年代⁸⁾)。噴出物は玄武岩質のものが卓越している。

ステージ2には、外輪山溶岩が噴出した後、大規模火砕流の八甲田火砕流が噴出し(1.0～0.8 Ma; K-Ar年代⁸⁾)、クレーターレイク型の八甲田カルデラが形成され



第1図 八甲田火山群位置図。

第1表 八甲田火山群形成略史。

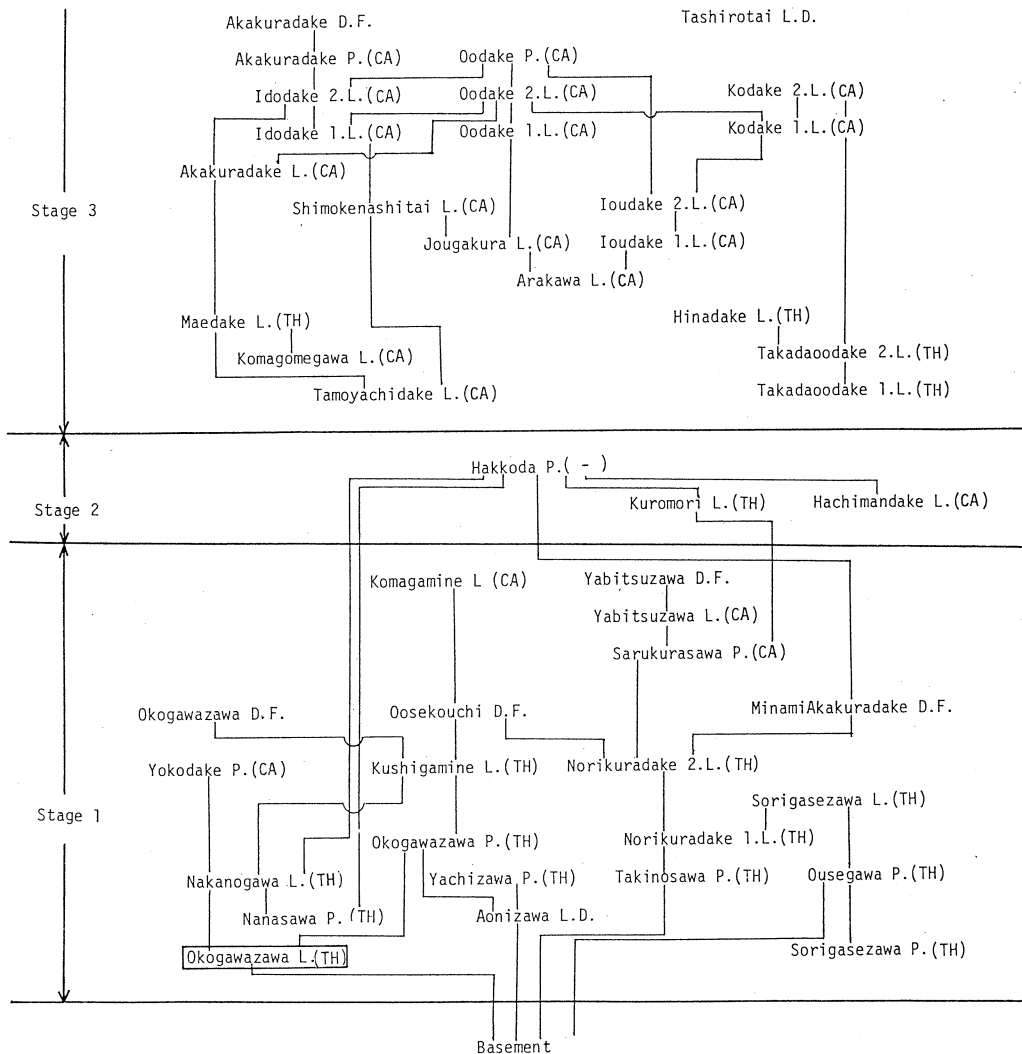
ス テ ー ジ		活 動 様 式	岩 石	
ステージ3	北八甲田火山群	大岳グループ	溶岩流, 溶岩円頂丘が主体 安山岩~石英安山岩 (CA)	
		高田大岳グループ	溶岩流, 降下スコリア 玄武岩~安山岩 (CA ≪ TH)	
ステージ2	八甲田火砕流の噴出に伴うカルデラ形成		大規模火砕流 石英安山岩質 溶結凝灰岩	
	カルデラ外輪山溶岩		溶岩流, 溶岩円頂丘 玄武岩~安山岩 (CA ≪ TH)	
ステージ1	南八甲田火山群	崩壊地形内部での活動	溶岩流, 溶岩円頂丘, 火砕流 安山岩~石英安山岩 (CA)	
		成層火山群の形成期	溶岩流が主体	玄武岩~安山岩 (CA ≪ TH)
			火砕流が主体	玄武岩~安山岩 (TH)

CA: カルクアルカリ系列岩,
TH: ソレイト系列岩。

た。

ステージ3には八甲田カルデラの中央火口丘群にあたる安山岩質溶岩主体の北八甲田火山群が形成された(1.0~0.3 Ma; K-Ar年代⁸⁾)。

八甲田火山群の噴出物層序図を第2図に示す。本論文で議論するステージ1のソレイト系列岩は、南八甲田火山群の山体崩壊を生じる以前に限られ認められる。岩質は玄武岩から珪長質安山岩に及び、分化が進んだ岩石ほどその噴出量は少ない。また、大小川沢溶岩類は、ステージ1の最も初期の噴出物であり、基盤岩の青荷凝灰岩(1.7~0.9 Ma; K-Ar年代⁹⁾)、金ヶ沢層(新第三系)を不整合に被覆している。大小川沢溶岩類の岩質は玄武岩から安山岩まで変化している。



第2図 八甲田火山群噴出物層序図。

L.D.: 湖成層, P: 火砕岩類, L: 溶岩類, D.F.: 岩屑流,
 TH: ソレイト系列岩, CA: カルカルカリ系列, -: 八甲
 田火砕流, 大小川沢溶岩類はわくで囲んで示している。

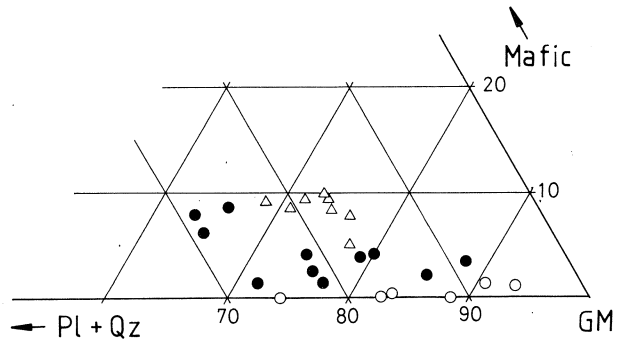
§ 3. ステージ1, ソレイト系列岩の岩石記載

ステージ1のソレイト系列岩は, 一般的に10~35%程度の斑晶量を持つ。斑晶鉱物として, 斜長石, カンラン石, 普通輝石, ピジョン輝石, シソ輝石, 磁鉄鉱が見られる。石基鉱物として, 斜長石, 普通輝石, ピジョン輝石, 磁鉄鉱, 燐灰石, 珪酸鉱物が見られる。玄武岩にはほとんどの場合磁鉄鉱が含まれず, マフィック斑晶組合せは, カンラン石と普通輝石, カンラン

石とシソ輝石、カンラン石と両輝石の組合せが大部分である。安山岩ではカンラン石斑晶は稀になり、普通輝石、シソ輝石、磁鉄鉱を主体にマフィック斑晶組合せを構成する。

このうち、大小川沢溶岩類は分化が進んだ岩石ほど斑晶量に乏しくなる傾向があり、玄武岩では斑晶鉱物として斜長石、稀に磁鉄鉱や輝石が1%以下含まれることがあるが、カンラン石は認められない。安山岩では斑晶鉱物として斜長石、磁鉄鉱、普通輝石、シソ輝石が見られるが、そのマフィック斑晶量は約1%程度である。

第3図にステージ1噴出物についてのマフィック斑晶鉱物(Mafic)－珪長質斑晶鉱物(Pl+Qz:斜長石+石英)－石基(GM)三角図を示す。ソレライト系列岩はカルクアルカリ系列岩よりもマフィック斑晶鉱物量に乏しく、なかでも大小川沢溶岩類は珪長質斑晶鉱物－石基辺上付近に点示され、特に顕著にマフィック斑晶鉱物量に乏しい傾向が認められる。



第3図 ステージ1噴出物についてのマフィック斑晶鉱物(Mafic)－珪長質斑晶鉱物(Pl+Qz:斜長石+石英)－石基(GM)三角図。
△:カルクアルカリ系列岩,
○:ソレライト系列岩(大小川沢溶岩類),
●:ソレライト系列岩(大小川沢溶岩類を除く)

§ 4. 全岩化学組成

4.1 分析方法・分析結果

八甲田火山群ステージ1噴出物の68個の試料について主要成分組成の分析を行った。主要成分元素のうち Na_2O と K_2O は炎光光度法、 FeO は過マンガン酸カリ滴定法、 H_2O ±については重量法を用いて、その他の主要成分組成は蛍光X線法により分析した。このうちステージ1の代表的な13個の試料について光量子放射化分析法¹⁰⁾により、Rb, Cs, Sr, Ce, Y, Zr, Nb, Ni, Cr, Co, Sc, Zn, Zrの13元素を測定した。更にこれらの試料についてはBaを原子吸光法により測定した。光量子放射化分析には東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックを利用し、30MeV加速電子を用いて定量を行った。ステージ1の微量成分元素の分析結果を斑晶モード組成および主要成分組成とともに第2表に示した。

4.2 主要成分組成

ステージ1噴出物の主要成分組成変化図を第4図に示す。ステージ1には、ソレライトおよびカルクアルカリ両系列の岩石が共存している。本論では“low-K andesite”¹¹⁾及びその延

第2表 八甲田火山群ステージ1噴出物についての斑晶モード、主要成分組成および微量成分元素組成表。

No R.S.	1 TH	2 TH*	3 TH	4 TH	5 TH*	6 CA	7 TH	8 TH*	9 CA	10 TH	11 TH*	12 CA	13 TH	14 CA
vol%														
Ol	2.6	—	0.1	0.5	—	0.6	—	—	0.5	—	—	—	—	—
Hy	—	—	2.3	4.2	0.5	5.3	3.0	0.3	4.5	1.0	1.0	3.3	1.2	1.3
Au	—	—	—	3.2	—	3.8	2.4	1.1	2.5	2.0	0.3	4.9	0.6	3.1
Ox	—	—	—	0.4	0.1	0.2	0.8	0.2	0.8	0.3	0.2	1.8	0.2	0.8
Pl	15.8	25.6	21.7	28.2	15.8	17.4	28.9	5.2	21.0	8.8	8.1	17.7	12.4	16.0
Qz	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1.5
Gm	81.6	74.4	75.9	63.5	83.6	72.8	64.9	93.2	70.8	87.9	90.5	72.4	85.6	17.5
wt%														
SiO ₂	49.40	50.83	51.65	52.62	53.93	57.02	57.33	57.53	58.07	58.79	58.83	59.53	59.95	63.24
TiO ₂	0.94	1.19	1.07	0.90	1.15	0.68	0.82	1.02	0.81	0.98	1.00	0.90	0.99	0.72
Al ₂ O ₃	17.64	18.40	17.76	17.12	17.14	15.51	17.73	15.56	16.00	16.33	15.69	15.70	16.11	14.61
Fe ₂ O ₃	2.38	4.25	4.29	3.95	6.77	3.09	0.65	6.12	3.81	4.99	7.19	2.86	4.36	3.80
FeO	8.92	6.29	6.94	6.67	4.96	5.47	7.13	4.06	4.72	4.61	2.33	5.09	4.54	2.96
MnO	0.19	0.20	0.19	0.19	0.19	0.14	0.10	0.18	0.16	0.19	0.18	0.17	0.16	0.12
MgO	6.44	3.55	4.05	5.16	3.01	5.11	2.78	2.78	4.23	2.38	2.27	2.79	2.20	2.38
CaO	10.19	9.93	9.67	9.55	6.72	7.55	7.70	6.61	7.40	6.31	5.76	6.98	6.04	5.28
Na ₂ O	2.16	2.75	2.65	2.49	2.67	2.65	2.85	3.17	2.84	3.36	3.18	2.35	3.44	3.08
K ₂ O	0.13	0.28	0.22	0.30	0.28	0.96	0.25	0.73	0.97	0.39	0.80	1.29	0.43	1.56
H ₂ O+	1.21	1.66	1.14	0.80	1.90	1.33	1.55	1.47	0.70	1.13	1.37	0.66	1.18	0.80
H ₂ O-	0.31	0.56	0.26	0.16	1.20	0.44	1.02	0.66	0.21	0.41	1.28	1.55	0.47	1.37
P ₂ O ₅	0.08	0.11	0.10	0.08	0.09	0.05	0.09	0.10	0.09	0.12	0.12	0.13	0.12	0.08
Total	99.99	100.00	99.99	99.99	100.01	100.00	100.00	99.99	100.01	99.99	100.00	100.00	99.99	100.00
ppm														
Ba	98	124	102	136	257	273	118	195	222	200	229	341	201	365
Ce	4.7	9.6	6.9	5.6	20.9	12.3	8.7	21.0	13.1	11.9	16.2	19.1	11.4	20.7
Co	51.3	29.0	26.0	30.5	28.2	26.0	22.1	27.6	32.0	15.1	15.0	18.8	14.7	16.1
Cr	61.4	10.9	18.8	46.5	5.4	119	19.2	10.4	52.5	3.4	4.1	22.9	5.3	28.0
Cs	—	—	0.31	0.04	0.91	1.12	—	0.65	1.30	0.05	0.25	1.98	0.03	1.22
Nb	1.6	2.2	1.7	2.2	2.5	2.7	1.9	2.0	3.1	2.3	3.2	5.2	2.8	4.6
Ni	37.2	11.0	11.4	15.9	6.3	21.7	11.7	5.9	18.3	3.4	2.7	6.3	2.3	14.0
Rb	3.7	2.2	2.4	5.9	6.6	26.3	4.4	6.2	24.0	6.8	18.0	53.1	6.5	39.6
Sc	25.3	32.0	26.4	27.7	38.9	27.5	19.2	32.6	25.1	27.9	28.1	23.3	27.9	17.7
Sr	261	267	233	250	241	192	213	235	235	277	235	217	255	186
Y	15.8	26.0	24.6	18.8	89.6	25.9	23.5	55.9	25.6	38.3	40.5	33.0	40.8	42.9
Zn	—	39	—	—	124	—	—	109	—	113	97	—	100	—
Zr	34.6	52.2	50.1	35.0	61.7	68.0	48.5	58.1	88.7	68.3	91.5	92.4	70.3	133

CA : カルクアルカリ系列岩

TH* : ソレイト系列岩(大小川沢溶岩類)

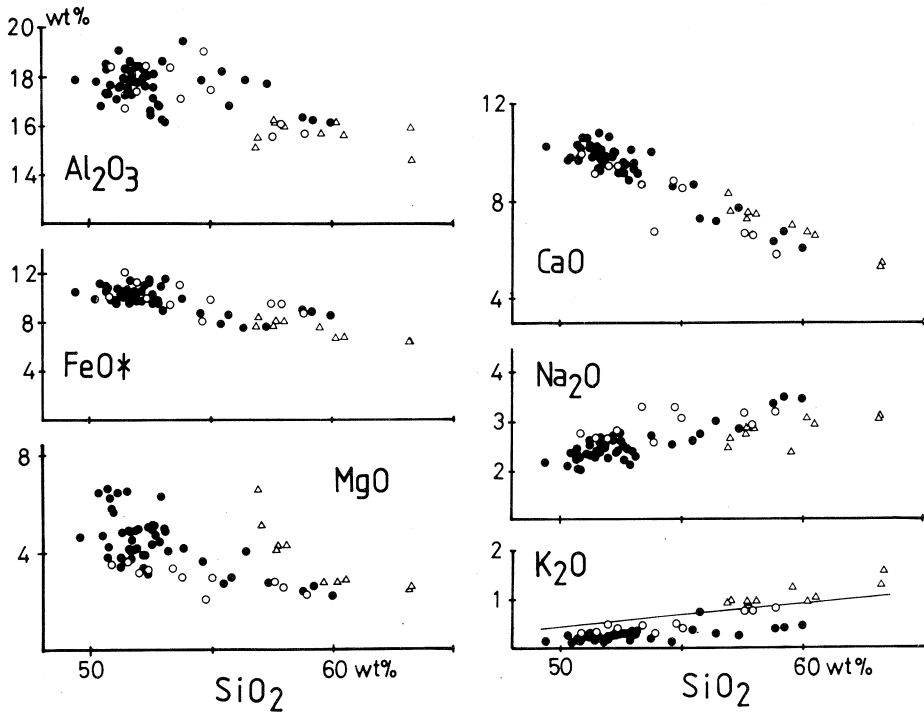
TH : ソレイト系列岩(大小川沢溶岩類を除く)

ただし, No 1 はステージ2のコンラン石玄武岩である。

長上の玄武岩をソレイト系列, また“medium-K andesite”¹¹⁾及びその延長上のデイサイトをカルクアルカリ系列に対応するものとする(第4図; K₂O-SiO₂図)。

ソレイト系列岩は, SiO₂量49~60%の組成範囲に入る。このうち大小川沢溶岩類は, SiO₂量51~59%の組成範囲を示す。

大小川沢溶岩類はその他のソレイト系列岩と比較すると玄武岩~玄武岩質安山岩組成においてMgO量に乏しく, Na₂O量に富み, 玄武岩~安山岩組成においてK₂O量に富む傾向が認められる。特にK₂O量は第4図(K₂O-SiO₂図)でlow-K andesiteとmedium-K andesiteの境界付近に点示される。また, FeO*/MgO-SiO₂図(第5図)では, 玄武岩~安山岩組成において大小川沢溶岩類はよりFeO*/MgO比に富んでいる。K₂O量とFeO*/MgO量比の間には負の相関関係があるのが一般的である¹¹⁾ので, 同一の火山内の噴出物のなかで, このような地球化学的特徴を示す大小川沢溶岩類は特異な例である。

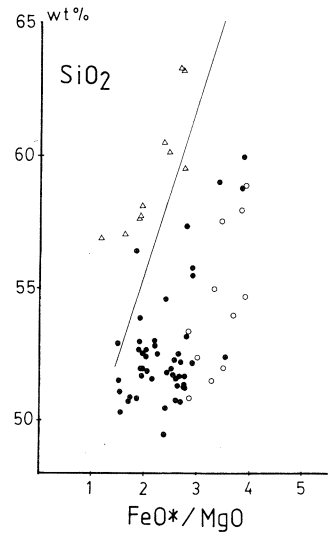


第4図 八甲田火山群ステージ1噴出物の主要成分組成変化図。
記号は第3図と図じ。
K₂O-SiO₂図の実線はmedium-K andesiteとlow-K andesiteの境界を示す。

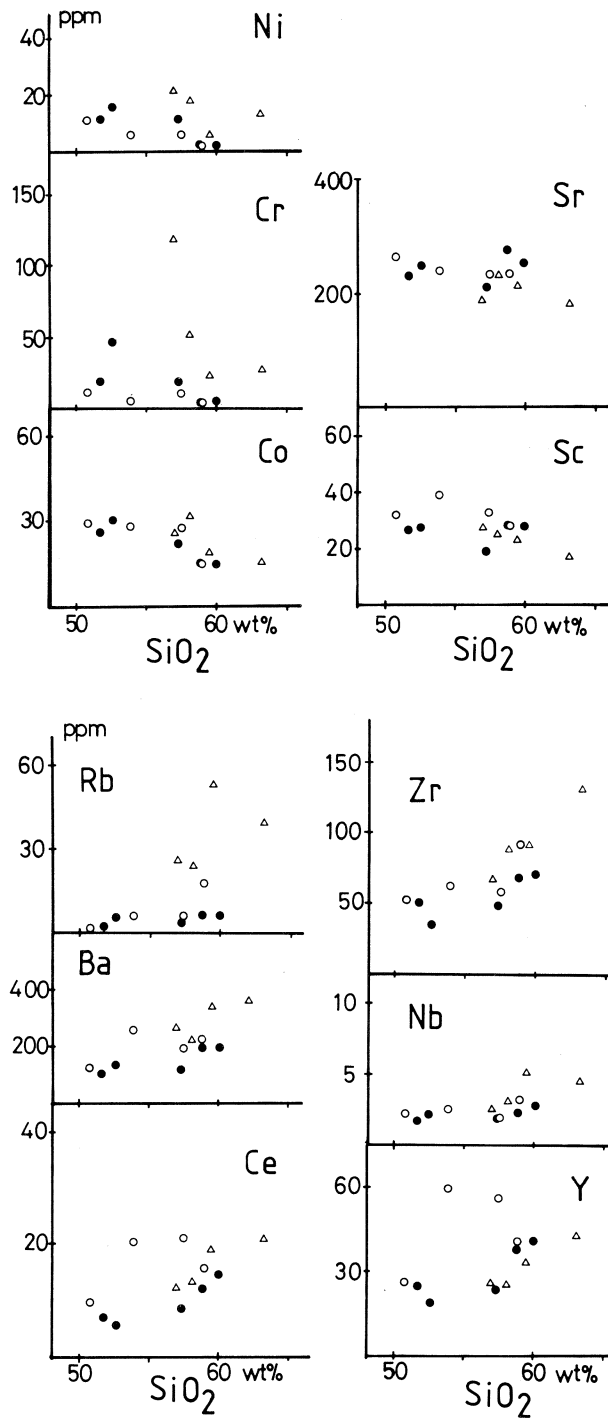
4.3 微量成分元素

ステージ1噴出物の微量成分元素組成変化図を第6図に示す。

大小川沢溶岩類の岩石を他のソレライト系列岩と安山岩組成の同一SiO₂量のもとで比較すると、インコンパティブル元素のBa, Rb, Zr, Nb, Y, Ceに富み、コンパティブル元素のNi, Crに乏しい傾向がある。Sr量は、両者の間に差はないが、SiO₂量が増加してもほとんど変化しない。Sc量は、大小川沢溶岩類の岩石は玄武岩質安山岩組成で増加した後減少するのに対し、その他のソレライト系列岩は分化が進んでもほぼ一定の量を示す。



第5図 FeO*/MgO-SiO₂図
記号は第3図と同じ。



第6図 八甲田火山群ステージ1噴出物の微量成分元素組成変化図。

記号は第3図と同じ。

§ 5. 考 察

5.1 結晶分別作用

第4図, 第5図, 第6図に見られるような化学組成変化経路は, 通常マグマ溜り内部での分化過程によって生じると考えられる。本火山群ステージ1噴出物のソレイト系列の場合, コンパティブル元素MgO, Ni等が緩やかな減少を示すこと, 斑晶鉱物が正果帯構造を示すこと, 分化の進んだ岩石ほど斜長石のAn量, カンラン石と輝石のmg値が減少する傾向があることから, この化学組成変化では斑晶鉱物の結晶分別作用による効果が大きいと考えられる。

ステージ1ソレイト系列岩に見られる斑晶鉱物のうち, 分別結晶相として考えられるのは, 斜長石, カンラン石, 普通輝石, シソ輝石, 磁鉄鉱である。ピジョン輝石は常に微斑晶として存在するので分別結晶相から除外する。第3図に示したように, マフィック斑晶モード量比の違いが, FeO^*/MgO 量比と相関関係があることは既に他の火山で報告されている^{12, 13)}。初生マグマから, 斜長石/マフィック斑晶比の異なる晶出相が分別された場合, 残液中の両者の斜長石/マフィック斑晶モル量比は逆転し, FeO^* 濃集の差を生じることがT.L.Grove and M.B. Bakerによって相平衡図上で議論された。¹⁴⁾ 大小川沢溶岩類の岩石とその他のソレイト系列岩の間にもこの効果が仮説として考えられる。

そこでこの仮説を検討するために代表的な分析値を使用して, 最小二乗法によって分別鉱物の組合せとその量比の検討を行った。先に述べた分別結晶相の鉱物組成は, EPMAによる分析結果を参考にし, 第3表の代表的試料についてparentの岩石の斑晶コア組成に近いものを用いて残差の少ない計算結果を採用した。その計算結果を第4表に示す。その結果によれば, 大小川沢溶岩類を除くソレイト系列岩は, ほぼ実際に見られる斑晶組合せ及び斑晶鉱物組成の結晶分別作用で説明される。また, 大小川沢溶岩類についても計算結果と実際の分析値は良い一致を見る。このカンラン石を含まない結晶分別作用は, 岩石記載上の特徴と一致する。ソレイト系列の初生マグマはカンラン石斑晶に富み, $\text{MgO}=10\%$ 程度を持つことから, 大小川沢溶岩類も現在見られる組成変化経路より未分化な部分でカンラン石の結晶分別作用を受けていると考えられる。

従ってこの結晶分別作用は最初の仮説について否定的である。第7図に示されるように両者の結晶分別作用において斜長石とマフィック斑晶量比に明瞭な差は認められない。両者の主要成分組成変化経路の違い(特に FeO^*/MgO 比)は, 大小川沢溶岩類が他のソレイト系列岩より早い時期にカンラン石の結晶分別作用を終え, より遅れて磁鉄鉱を結晶分別したことで説明される。

第3表 最小二乗法に用いた試料の主要成分組成表。

No	TH0	TH1	TH2	TH3	TH4	TH5	TH*1	TH*2	TH*3	TH*4	TH*5
wt%											
SiO ₂	50.33	52.02	53.39	54.40	58.93	61.31	52.27	53.42	56.10	59.22	60.96
TiO ₂	0.96	0.90	0.91	0.74	0.84	1.01	1.22	1.10	1.20	1.05	1.04
Al ₂ O ₃	17.97	18.05	17.37	19.63	18.23	16.48	18.92	18.79	17.83	16.02	16.26
FeO*	11.29	9.98	10.38	7.96	7.94	8.65	10.41	10.19	11.49	9.85	9.12
MnO	0.19	0.19	0.19	0.16	0.10	0.16	0.21	0.23	0.20	0.19	0.19
MgO	6.56	4.96	5.24	4.19	2.86	2.25	3.65	3.42	3.13	2.86	2.35
CaO	10.38	10.78	9.69	10.12	7.92	6.18	10.21	9.58	6.99	6.80	5.97
Na ₂ O	2.20	2.07	2.53	2.59	2.93	3.52	2.83	2.88	2.78	3.26	3.29
K ₂ O	0.13	0.21	0.30	0.21	0.26	0.44	0.29	0.39	0.29	0.75	0.83

H₂O±を除き、FeO*に換算後総量が100%になるように再計算した。

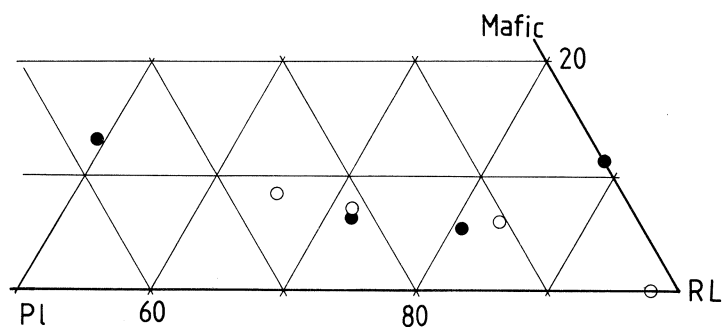
TH0：カンラン石玄武岩（ステージ2）

TH：ソレアイト系列岩（大小川沢溶岩類を除く）

TH*：ソレアイト系列岩（大小川沢溶岩類）

第4表 ステージ1のソレアイト系列岩の分別結晶組合せとその量比。

PARENT	DAUGHTER	ΣR^2	O1	CPX	OPX	OX	PL	Liq%
TH1	TH2	0.1707	1.73	3.83	—	—	8.17	86.27
TH2	TH3	0.2037	—	3.89	5.58	2.01	—	88.52
TH3	TH4	0.0175	—	5.72	6.59	0.93	24.24	62.53
TH4	TH5	0.0273	—	2.60	3.52	0.06	15.64	78.18
TH*1	TH*2	0.5333	—	—	—	—	2.11	97.89
TH*2	TH*3	0.2358	—	7.25	—	—	14.06	78.69
TH*3	TH*4	0.4107	—	—	4.18	4.25	17.75	73.81
TH*4	TH*5	0.0140	—	4.41	0.30	1.30	4.65	89.35
TH0	TH*1	0.4414	9.44	—	—	—	6.59	83.97



第7図 ソレアイト系列岩についての分別結晶相・残液の三角図（重量比）。

Mafic：分別結晶相のカンラン石+輝石+磁鉄鉱，

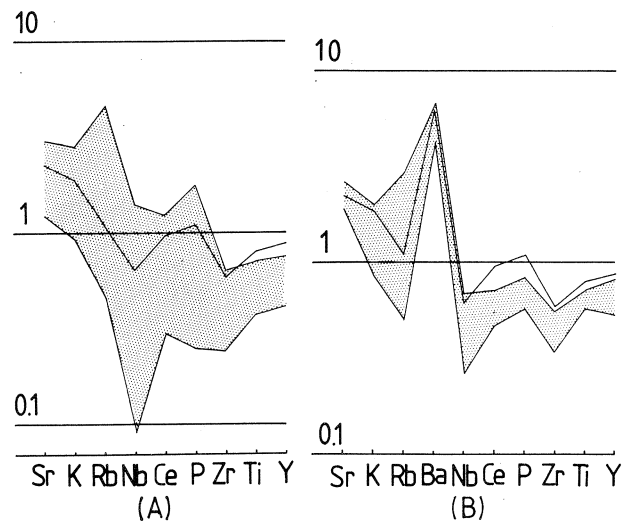
P1：分別結晶相の斜長石，

PL：残液。

5.2 大小川沢溶岩類の玄武岩

大小川沢溶岩類のもう1つの地球化学的特徴であるインコンパティブル元素の濃集を検討するためにインコンパティブル元素のMORB規格化パターン¹⁵⁾を第8図に示した。第8図(A)では他の脊梁火山列(八幡平¹³⁾, 岩手¹⁶⁾, 蔵王³⁾, 安達太良¹²⁾, 那須¹⁷⁾)のソレライト系列玄武岩と, また(B)では八甲田火山群^{6, 18)}のソレライト系列玄武岩と大小川沢溶岩類の玄武岩の比較を行った。(A)に見られるように脊梁火山列に属するものでも火山によってインコンパティブル元素の濃集比は著しく異なるが, 大小川沢溶岩類のCe, Zr, Ti, Yは他の火山と比較しても高い濃集比を示す。また八甲田火山群の中においても大小川沢溶岩類は特に, Ce, P, Zr, Ti, Yにおいて特に高い濃集比を示している。

初生マグマ組成について検討をするには, マグマ溜り内での地殻物質の混染, 結晶分化作用の影響の少ない玄武岩を用いる必要がある。大小川沢溶岩類で最も未分化な試料No. 2 (第2表)は先に述べたようにカンラン石の結晶分化作用を被っていると考えられる。そこでステージ2の最も未分化なソレライト, カンラン石玄武岩(第2表: 試料No. 1)を初生マグマと仮定して大小川沢溶岩類の玄武岩を生じ得るかを分別鉱物の最小二乗法によって計算を行い, 微量成分元素量をRayleigh fractionation modelで再現できるかを検討した(第4表および第5表)。この結果は, LIL元素についてはこのモデルで期待通りであるが, Ce, Zrについてはモデル計算値は実際の組成より相当低く



第8図 インコンパティブル元素のNタイプMORB規格化パターン。

実線: 大小川沢溶岩類の玄武岩 ($\text{SiO}_2 = 50.83\%$),

(A)ドットパターン: 八幡平, 岩手, 蔵王, 安達太良, 那須火山のソレライト系列玄武岩組成幅),

(B)ドットパターン: 八甲田火山群のソレライト系列玄武岩組成幅。

第5表 Rayleigh fractionation model.

Sample No. ppm	TH0 Anal.	TH* 1	
		Anal.	Calc.
Ni	37.1	11.0	17.3
Sc	25.3	32.0	29.8
Rb	3.7	2.2	4.4
Sr	261	267	303
Ba	98	124	116
Ce	4.7	9.6	5.6
Zr	34.6	52.2	41.0

再現性に乏しい。本来の初生ソレイトマグマはこの玄武岩組成にカンラン石を約10%程度加えたものと考えられるが、これらのインコンパティブル元素のカンラン石と液間の分配係数は著しく低いので¹¹⁾ 仮定条件との差違による影響は少ないと考えられる。したがっ

て大小川沢溶岩類は、他のソレイト系列岩と異なる初生マグマ組成を持つことが推定される。

異なる組成の初生マグマが生じる原因としては、部分溶融の違い¹⁸⁾、マントルダイアピルの定置深度の違い¹⁹⁾、マントル組成の不均一性²⁰⁾、マントル交代作用^{21, 22)}が考えられる。しかしこれらの原因についての議論にはインコンパティブル元素比が用いられるが、八甲田火山群のK, Rb量は東北日本弧の中でも最も低いこと、大小川沢溶岩類の特に安山岩組成インコンパティブル元素量の組成幅が大きいことが、八甲田火山群での議論を困難にしている。これらの原因については更に検討を要する課題である。

§ 6. さいごに

八甲田火山群のステージ噴出物の中で、大小川沢溶岩類は同時期の他のソレイト系列の岩石と比較して、主要成分組成ではMgO量に乏しく、Na₂O, K₂O量に富んでいる。また、FeO*/MgO比がより高い。微量成分元素では、Rb, Zr, Nb, Y, Ce量に富み、Ni, Cr量に乏しい。これらの異なる全岩組成変化経路は、カンラン石および磁鉄鉱が分別結晶相に現われる時期の違う結晶分化作用で説明が可能である。また、大小川沢溶岩類とその他のソレイト系列岩では、初生マグマのCe, P, Zr, Ti, Y元素量比に違いがあることが指摘された。

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助教授、榎本和義博士ならびにライナックマシニンググループの皆様、東北大学サイクロトロンRIセンターの中村尚司教授、山寺亮博士ならびに宮田孝元氏をはじめとする職員方々には試料の放射化ならびに測定にあたって御世話になった、同岩石鉱物鉱床学教室の大沼晃助教授、藤巻宏和博士ならびに同教養部石川賢一博士には諸般にわたって御協力頂いた。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金(62103003)を使用した。以上の方々、ならびに当局に感謝する。

参 考 文 献

- 1) 藤田至則：日本列島の成立(1973) p. 256.
- 2) 今田正, 大場与志男：地質見学案内書「蔵王火山」 p. 16.
- 3) 酒寄淳史, 吉田武義, 青木謙一郎：核理研研究報告 20(1987)156.
- 4) 大槻憲四郎, 斉藤常正, 吉田武義：島弧横断ルート, No. 24, 北村信編「新生代東北本州
弧地質資料集(宝文堂)24-1.
- 5) 高橋正樹：月刊地球(1986)729.
- 6) 佐々木寧仁, 吉田武義, 青木謙一郎：核理研研究報告 19(1986)288.
- 7) 中川光弘, 霜鳥洋, 吉田武義：岩鉱 81(1986)146.
- 8) H. Muraoka, H. Hori, and S. Takagi : 1985 International Symposium on
Geothermal Energy, p. 481.
- 9) 村岡洋文：地質調査所月報 37(1986)33.
- 10) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki : J. Jpn. Assoc. Mine. Petr. Econ. Geol.
81(1986)406.
- 11) J. B. Gill : *Orogenic andesite and plate tectonics* (Springer-Verlag, 1981) p.390.
- 12) 藤縄明彦, 吉田武義, 青木謙一郎：核理研研究報告 17(1984)356.
- 13) 吉田武義, 渡部均, 青木謙一郎：核理研研究報告 16(1983)309.
- 14) T. L. Grove and M. B. Baker : J. Geophys. Res., 89 B 5 (1984) 3254.
- 15) J. A. Pearce : *Continental basalts and mantle xenoliths*. eds. C. J. Hawkesworth
and N. J. Norry (Shiva, 1983) p. 230.
- 16) 石川賢一, 吉田武義, 青木謙一郎：核理研研究報告 17(1984)330.
- 17) 伴雅雄, 吉田武義, 青木謙一郎：核理研研究報告 20(1987)165.
- 18) M. D. Feigenson, A. W. Hoffman and F. J. Spera : Contrib. Mineral. Petrol.
84(1983)390.
- 19) 巽好幸：火山, 第2集, 第30卷(1986)特別号 ps.153.
- 20) S. S. Sun and R. W. Nesbitt : Earth. Planet. Sci. Lett. 35(1977)429.
- 21) O. Ujike : J. Jpn. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. 82(1987)245.
- 22) J. F. G. Wilkinson and W. Le. Maitre : J. Petrol. 28(1987)37.

Study of Impurity-diffusion of Gold in Copper
Single Crystals in High-temperature Range
Using Radioisotope ^{196}Au

Shin-ichiro Fujikawa and Alfred Seeger †

†*Department of Materials Science, Faculty of Engineering, Tohoku University, Sendai 980*

††*Max-Planck Institut für Metallforschung, Institut für Physik, Heisenbergstrasse 1, Stuttgart 80, Fed. Rep. of Germany*

The impurity-diffusion coefficients of ^{196}Au in copper single crystals were determined by the serial sectioning method in the high-temperature range between 993 and 1350 K. The activation energy difference between the impurity-diffusion of Au in copper and the self-diffusion of copper was evaluated by Le Claire's electrostatic theory.

§ 1. Introduction

The non-linear Arrhenius behavior and the contribution of divacancy mechanism have been often discussed for the self-diffusion and impurity-diffusion in noble metals.¹⁾ In order to clarify the problems, it is necessary to measure the temperature and pressure dependences of tracer diffusion coefficients (D^T) and the isotope effect, over the wide range of temperature. However, very few results have been reported for such a study, because in low-temperature range below $0.7 T_m$ (T_m : melting temperature expressed in Kelvin) the precious ion-beam sputtering equipment²⁻⁶⁾ as sectioning method must be employed instead of simple mechanical sectioning used in high-temperature range.

In the present work, the values of D^T of Au in copper single crystal were measured in the high-temperature range between 993 and 1350 K using the radioactive tracer ^{196}Au ($t_{1/2} = 6.18 \text{ d}$) and a microtome⁶⁾ as the sectioning method. The results were compared with the values of D^T for other works of Au diffu-

sion in copper and self-diffusion of copper in the same temperature range. An investigation of the impurity-diffusion of Au in copper in the high-temperature range was chosen from the following reasons :

(1) The diffusion study of Au in copper in the low-temperature range has been reported by us.²⁻⁶⁾

(2) The pressure dependence of D^T for Au in copper has been carried out by us.⁷⁾

(3) The results of the earlier works on Au diffusion in copper⁸⁻¹¹⁾ differ considerably in the high-temperature range. Therefore, an analysis of the non-linear Arrhenius behavior of the impurity-diffusion of Au in copper using the previous data in the high-temperature range is not reliable.

(4) The values of partial phase shift for Au in copper has been obtained. They are useful for the calculation of the activation energy difference (ΔQ) between the self-diffusion and the impurity-diffusion.

(5) Recently, Cu wire is noticed as the bonding wire for electric device instead of Al wire. Therefore, the diffusion data of Au in copper is very important.

§2. Experimental Procedure

High-purity Au was used as the production of ^{196}Au . Bremsstrahlung irradiation was carried out by means of the 300 MeV linear electron accelerator (Linac) of Tohoku University. The Linac was typically operated at an energy of 50 MeV for 8 hours. The target was placed horizontally on the axis of the electron beam in close contact with the back of a Pt converter 2 mm thick cooled by running tap water. The radio-isotope ^{196}Au of high specific activity was prepared using the photonuclear reaction $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$. The irradiated Au was dissolved in a small volume of a mixture of concentrated hydrochloric and nitric acids and evaporated to dryness. Cylindrical single crystals of pure copper 5 mm in diameter were grown by the Bridgman technique from polycrystalline rods with 99.999 mass % nominal purity. The single crystals were spark-cut into the specimen of about 10 mm in length. Each specimen was ground carefully with Si carbide paper and

preannealed for several hours at 1273 K in high purity He gas atmosphere. Finally, the specimens were electropolished in an aqueous solution of phosphoric acid. The radio-isotope ^{196}Au was electroplated on the polished surface. The thickness of the electroplated layer was less than 10 nm. The diffusion annealing was carried out in the temperature range between 993 and 1350 K in high purity He gas. The diffusivities were determined by the serial sectioning method using the microtome. The thickness of the layer removed was determined from the weight of the sections using a microbalance. The thickness was typically 10 μm . The activity of each section was counted by means of a well-type Na(Tl) scintillation counter or a Ge(Li) detector. The radio-isotope ^{196}Au was found to be very useful for the diffusion study because of the longer life time and higher specific activity than ^{198}Au generally used.

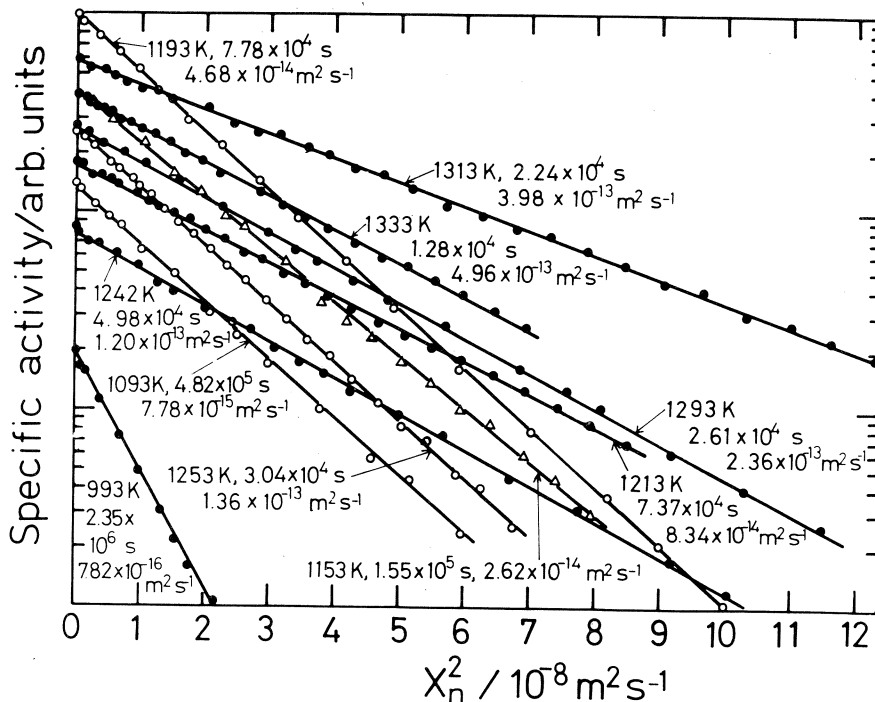


Fig.1. Penetration plots for diffusion of ^{196}Au in copper.

§3. Results and Discussino

Fig.1 shows the penetration curves of ^{196}Au in copper in the high-temperature range. Good linearity is obtained at all annealing temperatures in plots of logarithm of the activity as a function of penetration distance squared, indicating that

Table 1. Impurity-diffusion coefficients of gold in copper in high-temperature range.

Temperature (K)	Time (s)	D^T ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)	$2(D^T t)^{1/2}$ (μm)
1350	7.20×10^3	6.28×10^{-13}	135
1350	7.20×10^3	6.60×10^{-13}	139
1343	1.11×10^4	5.16×10^{-13}	151
1343	1.11×10^4	5.69×10^{-13}	159
1333	8.86×10^3	4.50×10^{-13}	126
1333	8.86×10^3	4.96×10^{-13}	133
1323	1.47×10^4	4.09×10^{-13}	155
1313	2.24×10^4	3.98×10^{-13}	189
1313	2.24×10^4	4.21×10^{-13}	194
1303	2.33×10^4	3.20×10^{-13}	172
1293	2.61×10^4	2.36×10^{-13}	157
1293	2.61×10^4	2.56×10^{-13}	163
1283	3.09×10^4	2.09×10^{-13}	161
1283	3.09×10^4	2.34×10^{-13}	170
1273	2.92×10^4	2.07×10^{-13}	155
1263	3.64×10^4	1.57×10^{-13}	151
1253	3.04×10^4	1.36×10^{-13}	129
1242	4.98×10^4	1.29×10^{-13}	160
1242	4.98×10^4	1.20×10^{-13}	154
1233	6.22×10^4	1.14×10^{-13}	168
1213	7.37×10^4	8.34×10^{-14}	157
1193	7.78×10^4	4.68×10^{-14}	121
1193	7.78×10^4	5.10×10^{-14}	126
1153	1.55×10^5	2.98×10^{-14}	136
1153	1.55×10^5	2.62×10^{-14}	127
1153	1.55×10^5	2.98×10^{-14}	136
1153	1.55×10^5	2.62×10^{-14}	127
1113	3.33×10^5	1.36×10^{-14}	135
1093	4.82×10^5	7.78×10^{-15}	122
1073	1.04×10^6	4.73×10^{-15}	140
1053	1.10×10^6	3.84×10^{-15}	130
1053	1.10×10^6	3.90×10^{-15}	131
1001	6.35×10^2	$1.02 \times 10^{-15*}$	1.61
993	2.35×10^6	7.82×10^{-16}	86

* determined using ion-beam sputtering technique.

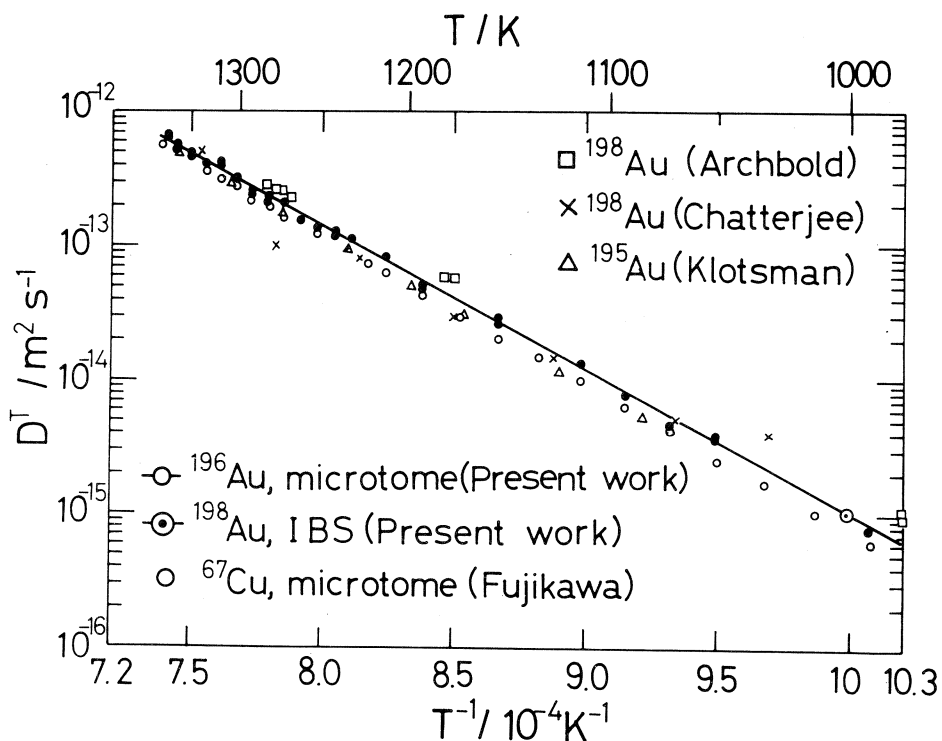


Fig. 2. Temperature dependence of impurity-diffusion coefficients of gold in copper, along with self-diffusion coefficients of copper.

the thin-film solution of Fick's second law is applicable. The values of D^T determined from the slopes are given in Fig.1 and Table 1. Fig.2 shows the Arrhenius plot for the diffusion of Au in copper in the high-temperature range. Our data are compared with the data for the diffusion of Au in copper by other workers⁸⁻¹¹⁾ and the self-diffusion data of copper^{13),14)} obtained by using a method similar to the present work. The Arrhenius plot of our data is linear in this high-temperature range. It is interesting to note that the highest value³⁾ which we obtained by using the ion-beam sputtering technique is in very good agreement with the data obtained by the microtome.

The values of the pre-exponential factor (D_0) and the activation energy (Q) are given in Table 2, showing that the values nearly agree with those of

Table 2. Comparison of pre-exponential factor (D_0) and activation energy (Q) for diffusion of gold in copper and self-diffusion of copper by different workers.

Tracer Method	D_0 ($10^{-5} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$)	Q (kJ mol^{-1})	Temp. range (K)	Reference
^{196}Au , M	5.37 $\begin{smallmatrix} +0.61 \\ -0.55 \end{smallmatrix}$	205 ± 0.9	993 - 1350	Present work
^{198}Au , IBS	0.803 $\begin{smallmatrix} +0.132 \\ -0.067 \end{smallmatrix}$	191 ± 0.8	633 - 982	2), 3)
^{196}Au , M ^{198}Au , IBS	2.43 $\begin{smallmatrix} +0.14 \\ -0.13 \end{smallmatrix}$	198 ± 0.4	633 - 1350	3)
^{195}Au , M	8.97 $\begin{smallmatrix} +0.92 \\ -0.84 \end{smallmatrix}$	212 ± 1	1085 - 1342	8)
^{198}Au , M	6.90 ± 0.7	208 ± 2	973 - 1303	9)
^{67}Cu , M	7.48 ± 0.36	210 ± 0.5	992 - 1353	13), 14)
^{64}Cu , IBS	2.96 $\begin{smallmatrix} +0.56 \\ -0.47 \end{smallmatrix}$	202 ± 1	632 - 905	17)

M : Mechanical sectioning ; IBS : Ion-beam sputtering.

Tomizuka's work⁹⁾ which has not been published in detail but which is frequently cited. Fig.3 shows a forced Arrhenius fit of the impurity-diffusivities of Au in copper from the present work and the low temperature data determined by us. The values of D_0 and Q determined from the forced fit are also in Table 2. As shown in Fig.3, a slight curvature is observed in the Arrhenius plot. A detailed analysis of the non-linear Arrhenius behavior will be published elsewhere.

Here, we have calculated the screening potential about a gold impurity in a dilute copper alloy by the partial wave phase shift¹²⁾ and have evaluated the value of ΔQ by Le Claire's theory¹⁵⁾. Also, the result is compared with the experimental work. The Friedel type screening potential⁶⁾ used in the present work is given by

$$V(r) = \frac{\alpha_0 \cdot e}{4\pi \cdot k_F^2} \cdot \frac{\cos(2k_F \cdot r + \Phi)}{r^3}, \quad \dots\dots\dots (1)$$

where $V(r)$ is the electrostatic potential at a distance (r) from the impurity atom and k_F is the Fermi wave vector for the solvent, where $\alpha_0 = 2\alpha$ is a

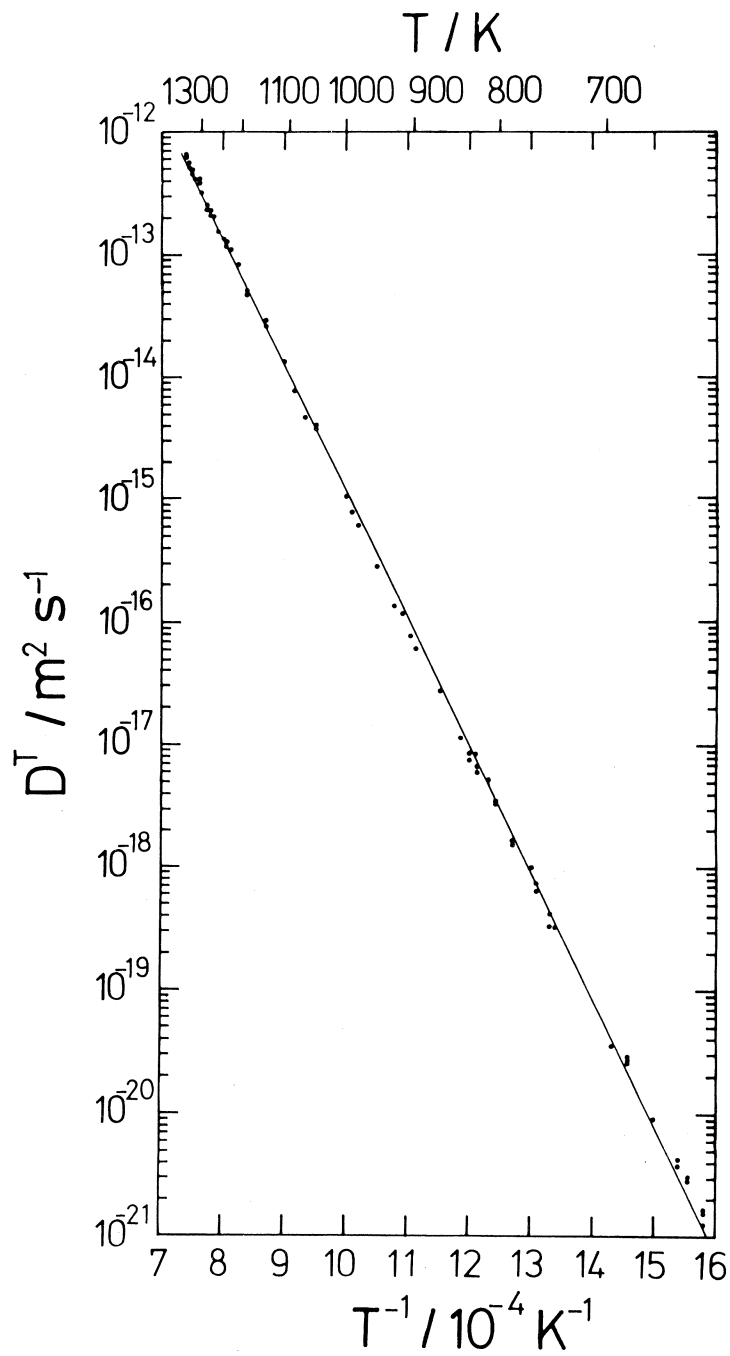


Fig.3. Forced Arrhenius of impurity-diffusion coefficients of gold in copper in wide range of temperature.

constant and ϕ is a phase angle. The constants are given by the following relations,

$$\alpha \cos \phi = \frac{1}{2} \sum_{l=0}^{\infty} (-1)^l (2l+1) \sin 2\eta_l (E_F) \quad \dots\dots\dots (2)$$

$$\alpha \sin \phi = 2 \sum_{l=0}^{\infty} (-1)^l (2l+1) \sin^2 \eta_l (E_F), \quad \dots\dots\dots (3)$$

where $\eta_l (E)$ is the phase shift for the impurity evaluated at the Fermi energy of the solvent. The used parameters for the calculation of $V (r)$ are given in Table 3.

Table 3. Parameters to calculate screening potential for gold impurity in copper.

$\Delta Z_{\text{eff}}^{\text{Blatt}}$	$\Delta \rho c^{-1} (\frac{\mu \Omega \cdot}{\text{m} \cdot \text{at.} \%^{-1}})$	η_0 (rad)	η_1 (rad)	η_2 (rad)	α	ϕ (rad)
-0.32	5.5	0.182	-0.087	-0.147	-0.448	-0.551

The calculating method of ΔH_f , ΔE , ΔH_2 , ΔH_1 , ΔH_3 , C and ΔQ using equation (1) and Le Claire's theory has been already described in another papers^{13,14}, where the values of ΔH_f , ΔE , ΔH_2 and C mean the difference in the energy required to form a vacancy next to an isolated impurity in the solvent and in the pure solvent, the impurity-vacancy binding energy and the temperature dependence of the correlation factor for impurity-diffusion, respectively. The values of ΔH_1 , ΔH_2 and ΔH_3 are the energy difference between W_1 , W_2 and W_3 and W_0 jumps respectively, in five-frequency model. Table 3 shows the values of ΔQ^{exp} , ΔQ^{cal} , ΔH_f , ΔE , C , ΔH_1 , ΔH_2 and ΔH_3 obtained in the present work. The values of ΔQ^{cal} and ΔQ^{exp} in the low-temperature range obtained using the results^{2), 3), 17)} are shown in Table 4. The values of ΔQ^{exp} and ΔQ^{cal} obtained in the present work are negative and moreover, both numerically agree with each other in magnitude. It is interesting that the value of ΔE is very small but negative. The contribution from divacancy mechanism in Au diffusion in copper will be discussed elsewhere.

Table 4. Calculated values of ΔH_f , ΔE , ΔH_2 , ΔH_1 , ΔH_3^{av} , C and ΔQ^{cal} and ΔQ^{exp} .

ΔH	ΔE	ΔH_2	ΔH_1	ΔH_3^{av} (1200 K)	ΔH_3^{av} (800 K)	C (1200 K)	C (800 K)	ΔQ^{cal} (992–1353 K)	ΔQ^{exp} (992–1353 K)	ΔQ^{cal} (992–1353 K)	ΔQ^{exp} (992–1353 K)
3.2	-3.2	-7.7	-1.7	0.18	0.15	-1.7	-0.95	-2.8	-4.8	-3.5	-11

The unit is expressed by kJ mol^{-1} .

§ 4. Conclusions

The impurity-diffusion coefficients of Au in copper single crystal were determined by serial sectioning method with radioactive tracer ^{196}Au and a microtome in the temperature range between 993 and 1350 K. The temperature dependence is given by the following equation :

$$D_{\text{Au/Cu}}^T = (5.37_{-0.55}^{+0.61}) \exp \{ - (205 \pm 0.9) \text{ kJ mol}^{-1} / RT \} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}.$$

The values of D^T was found to be somewhat larger than the self-diffusivity of copper. We have evaluated the difference in activation energy (ΔQ) between the impurity-diffusion of Au in copper and the self-diffusion of copper by means of the oscillating potential and Le Claire's theory. The result shows that the value of ΔQ^{cal} is in good agreement with the value of ΔQ^{exp} .

The present work was supported by Max-Planck-Gesellschaft and Grant-in Aid (No. 62850118) from the Japanese Ministry of Education, Science and Culture.

Reference

- 1) see, G. Neuman : *Diffusion in Solids : Recent Developments*, p. 1, Ed. by M. A. Dayananda and G. E. Murch (The Metallurgical Society of AIME, U. S. A. 1985).
- 2) S. Fujikawa and H. Mehrer : Proc. 12th Int. Smp. Hosei Uni. on *Application of Ion Beams in Materials Science*, in press (Hosei University press, Tokyo, 1987).
- 3) S. Fujikawa, M. Werner, H. Mehrer and A. Seeger : *Mater. Sci. Forum* **15** – 18

(1987) 431.

- 4) S. Fujikawa : Bull Jpn. Inst. Met. **25** (1986) 608 (in Japanese).
- 5) S. Fujikawa : Solid State Physics **20** (1985) 923, AGNE GIJUTSU CENTER,
(in Japanese).
- 6) S. Fujikawa : Metals & Technology, **56** (1986) 52. AGNE (in Japanese).
- 7) S. Fujikawa, M. Werner, H. Mehrer and A. Seeger : to be published in Int.
Conf. Diffusion in Metals and Alloys, Sept. 1988, Hungary.
- 8) B. A. Gorbachev, S. M. Klotzman, Y. A. Raborsky, B. K. Talincky and A. N.
Tinofee : Phys. Met. Metallog. **44** (1977) 214 (in Russian).
- 9) C. T. Tomizuka : Bull. An. Phys. Soc. **2** (1957) 123.
- 10) T. F. Archbold and W. H. King : Trans. Met. Soc. AIME **233** (1965) 839.
- 11) A. Chatterjee and D. J. Fabin : Acta Met. **17** (1969) 1141.
- 12) P. T. Coleridge, N. A. W. Hotzwarth and M. J. G. Lee : Phys. Rev. **B10** (1974)
1213.
- 13) S. Fujikawa and K. Hirano : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ **15** (1982)
127.
- 14) S. Fujikawa and K. Hirano : *Point Defects and Defect Interactions in Metals*,
p. 554, Ed. by J. Takamura, M. Doyama and M. Kiritani, (University of Tokyo
Press, Tokyo, 1982).
- 15) A. D. Le Claire : Philos. Mag. **7** (1962) 141.
- 16) A. P. Blandin and J. L. Deplante : J. Phys. Chem. Solids **26** (1965) 381.
- 17) K. Maier : Phys. Status. Solidi A **44** (1977) 567.

IV. 加 速 器 · 測 定 器

(e, e'n) 同時計数実験測定装置(I)

核理研, 理学部物理*, 教養部**

鈴木伸介・斎藤悌二郎・高久圭二

藤平 力*・中川武美*・小林幸則*

阿部 健**

§ 1. 序

核理研ではパルスビーム・ストレッチャー (SSTR) より得られる連続電子線を用いて (e, e'p), (e, e'r), Tagged Photon 等の実験が行われている。我々は新たに (e, e'n) 同時計数実験を行うため, 実験装置を製作してきた。

今回, ^{12}C の巨大共鳴領域からの放出中性子を利用し, 散乱電子と中性子との同時計数実験を行ったところ, バックグラウンドと分離して中性子スペクトルなどが得られ, (e, e'n) 実験の可能性が見いだされたので, 以下に実験装置及び測定結果について報告する。

§ 2. (e, e'n) 実験

(e, e'n) 実験と同種の実験として, 核理研では (e, e'p) 実験が行われているが, 両者を比較することにより放出される粒子の違いによる共鳴のアイソスピン依存性に関する情報を得ることができる。また, Z の大きい核においては, 中性子放出の断面積が大きくなるため, (n, e'n) 実験が強力な手段となりうる。しかし, 同時計数実験はビームのデューティー・ファクターが高くないと難しいため, パルスビーム・ストレッチャーやマイクロトロン, 超伝導加速器などの加速器を用いねばならず, また (e, e'n) 実験は電子線特有の r 線や中性子の大きなバックグラウンドを伴うため, 実験そのものが非常に困難である。(e, e'n) 実験は世界的にもまだほとんど測定の実例がなく, イリノイ大学のマイクロトロンを用いた実験の報告があるのみである¹⁾。

このように (e, e'n) 実験は, 困難ではあるが原子核を調べる上で重要な研究手段のひとつである。

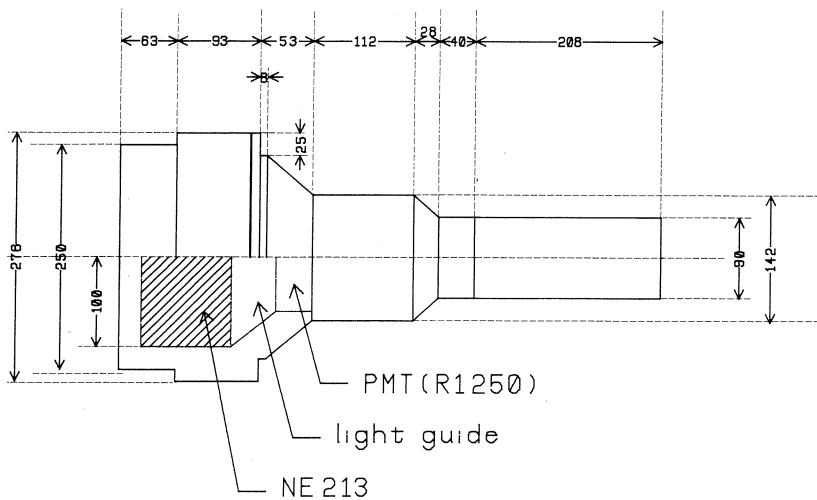
§ 3. 装置の概要

散乱電子の検出器, 多芯式比例計数管 (MWPC), データ収集系の詳細は, 以前の核理研報告²⁻³⁾ を参照されたい。ここでは主に中性子検出について述べる。

ライナックからのパルスビームは SSTR に入射され, 連続ビームとなって散乱槽に導かれ

ターゲットに照射される。散乱電子は大型電子線磁気スペクトロメーター(LDM)によって運動量分析され、3層のMWPC及び2層のプラスチックシンチレーターによって検出される。

一方、標的核から放出される中性子は、8"φ×4"のNE 213液体シンチレーターによって検出される。中性子検出器はTOF法により中性子のエネルギーを測定するため、ターゲットよりある距離をおいて設置する。今回の実験ではTOF距離70cmで測定したが、距離が短かったためエネルギー分解能が悪く、 n_0 と n_1 は分解できなかった。中性子検出器を第1図に示す。立体角は64msrであった。

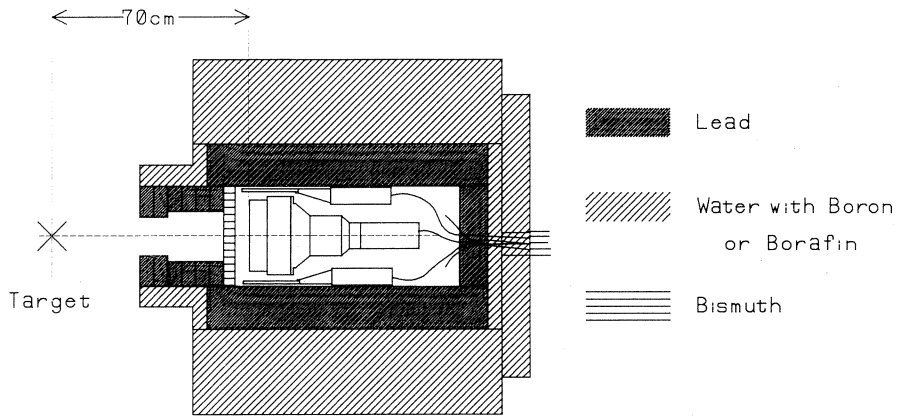


第1図 中性子検出器。

中性子検出器の遮蔽はボロン入り水槽，Cdシート，鉛ブロックの3段階のシールドになっている。そのわけはそれぞれ，ボロン入り水槽で速中性子を熱中性子化し吸収させ，さらに抜けてきた熱中性子をCdシートで吸収させるためである。鉛のブロックは γ 線を吸収させることを目的としている。また，宇宙線に対しては上下左右をプラスチックシンチレーターで囲み，中性子検出器との間で反同時計数を行ない落とす。

中性子検出器の前面は，ターゲットからの散乱電子を止めるため，Bi板4cmを配置した。Biは中性子の吸収が構造を持たないため検出器の前面におくのに適当である。また，斜めからのバックグラウンドを除くため鉛コリメータを50cm配置し中性子検出器がターゲットのみを臨むようにしてある。検出器全体の配置を第2図に示す。

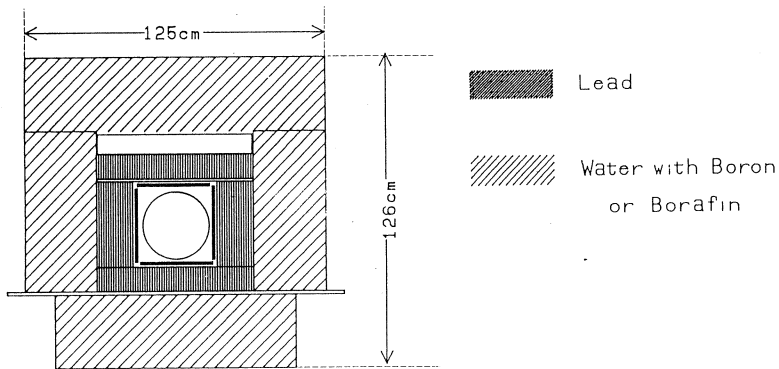
検出器の回路系を第3図に示す。同時計数はLDMのバックアップ用プラスチックシンチレーターからの電子の信号と中性子検出器の信号との間でとられた。各イベント毎にMWPCのチ



第2図 中性子検出器の遮蔽。

a) 側面図

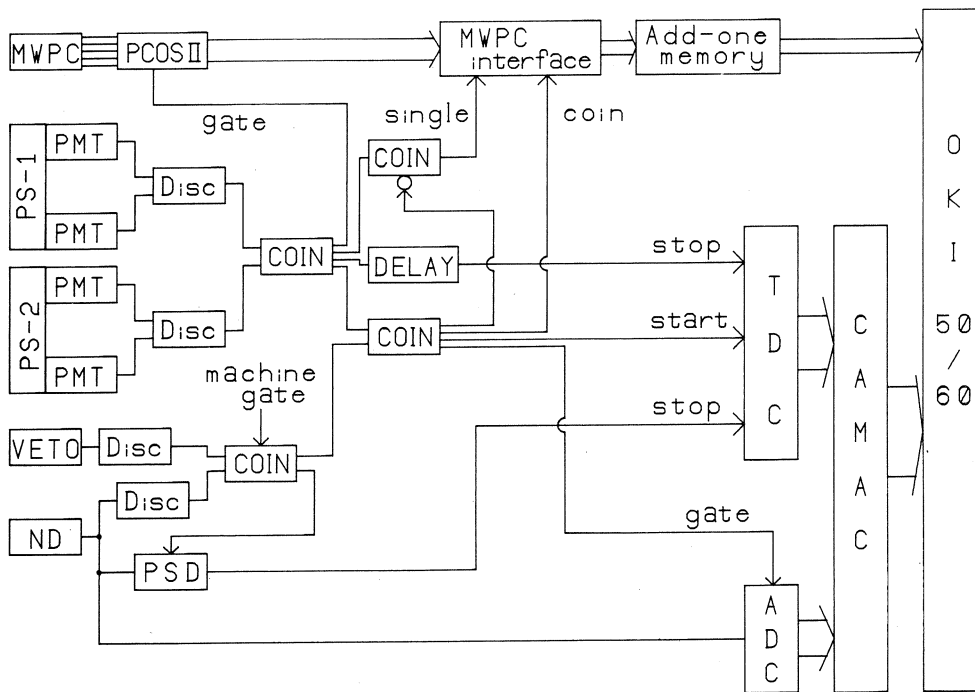
中性子検出器の前面には散乱電子の入射を防ぐため
Bi 4 cm が置いてある。



b) 正面図

左右 15 cm, 上下 10 cm の鉛の外側に Cd シートが巻
いてある。その周囲にボロン入り水槽が配置してある。

チャンネル, 中性子検出器の出力波高, バックカウンターの信号と中性子検出器の信号との時間差, 中性子検出器の信号と Pulse Shape Discriminator (PSD) 出力との時間差をリストデータとして取り込み, 後にオフラインで処理をした。またそれらのリストデータとは別にシングルアームの散乱電子スペクトルのデータも取り込んだ。

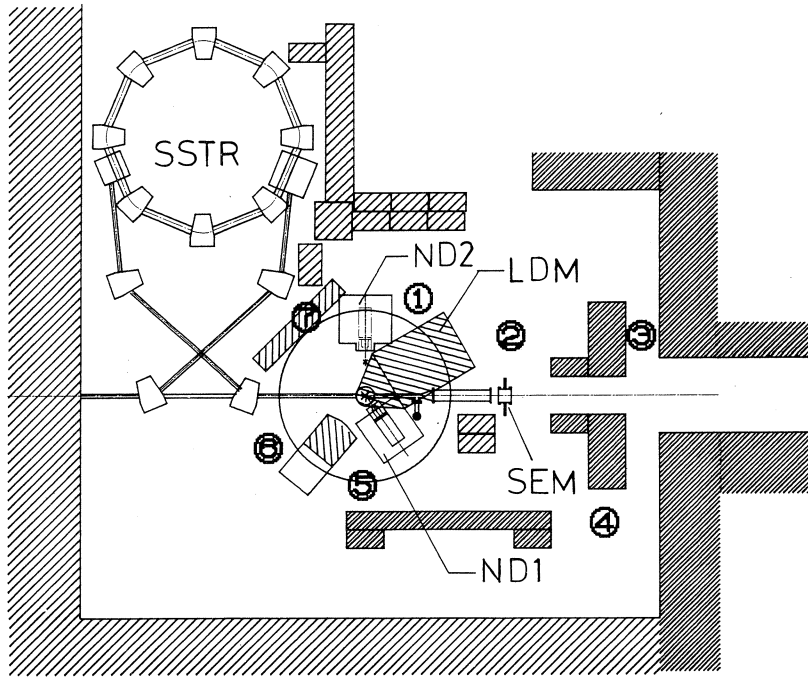


第3図 回路のブロック図。

§ 4. バックグラウンドの測定

以前に行った予備実験より第2実験室内のバックグラウンドが大きく測定が困難であることが解ったのでバックグラウンドの源を調べるために2"φ×2"のNE213液体シンチレーターを用い、オンビーム、オフターゲット時の第2実験室内のr線と中性子の分布を調べた。その測定点を第4図に、測定結果を第1表に示す。これよりSSTRは大きなr線の源となっているのが解る。また、SSTRからビームを引き出すダクトの延長上のr線の量が多く、ビームダクト回りの遮蔽が困難であることから中性子検出器のビーム上流方向の遮蔽を強くしなければならないことが解った。

ビームの下流方向では、SEM及びその下流がバックグラウンドの源になっている。そのため、実験時には、SEMの下流にヘリウムバックを設置しバックグラウンドの軽減を計った。これにより、1割程度バックグラウンドが減少した。



第4図 中性子検出器の配置及びバックグラウンド測定点。
 図中の各点の r 線及び中性子の量を第1表に示す。
 点⑦は2.5 mのコンクリートブロックの上で測定した。その他の点は床から高さ1 mの位置で小型の中性子検出器はすべて5 cmの鉛で遮蔽してある。

第1表 各点における r 線と中性子の量。
 単位は1万カウント/50 μ C。 r 線の閾値は約200keV。

位置	r 線	中性子
①	20	2.1
②	33	2.2
③	60	11
④	47	0.4
⑤	26	0.08
⑥	375	21
⑦	586	0.5

§ 5. 実験結果

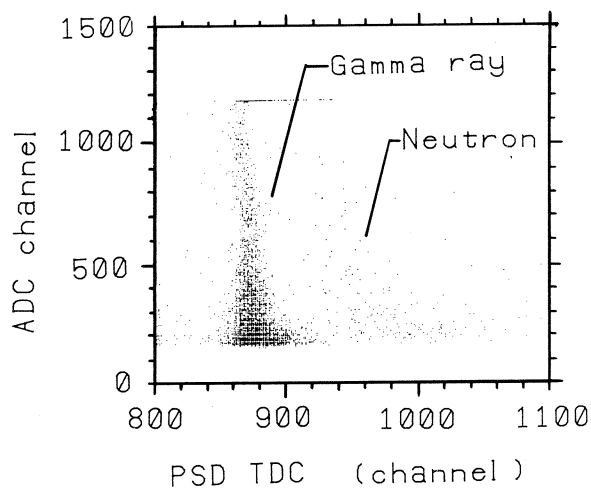
実験は ^{12}C の巨大共鳴領域である励起エネルギー $20\text{MeV}-40\text{MeV}$ での励起関数を測定した。ビームの入射エネルギーは 130MeV である。ターゲットの厚さは $370\text{mg}/\text{cm}^2$ で入射電子に対して 60° 傾けてある。ビームの平均電流は 80nA で、中性子検出器は移行運動量方向に配置した。中性子の閾値はバックグラウンドの関係上あまり下げられず、 1.3MeVee で測定した。これは中性子のエネルギーにして約 4MeV に対応する。

5.1 中性子- γ 線弁別

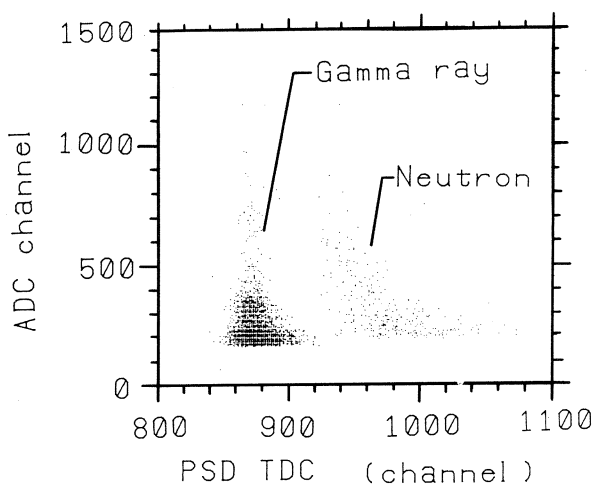
計算機で取り込んだリストデータのうち、中性子検出器の信号とPSD出力信号の時間差を横軸に、中性子検出器の出力波高を縦軸にプロットしたグラフを第5図(a)に示す。中性子検出器中での発光量が約 $10,000$ イベント/秒と多いためパルスの形が崩れ中性子- γ 線の弁別が悪くなる恐れがあったが、図のように中性子と γ 線を分離することができた。第5図(b)は中性子線源Am-Beのデータであり、(b)と比較し(a)でも中性子- γ 線の分離ができていることが分かる。

5.2 時間スペクトル

第5図での中性子の部分を取り出し、励起エネルギー $21\text{MeV}-27\text{MeV}$ に対応する散乱電子と中性子間の時間スペクトルを第6図に示す。中央のピークの部分が真の事象で平らな成分は偶然事象である。中性子のエネルギーは $4\text{MeV}-8\text{MeV}$ であるが、TOF距離が短く大きな時間差としては現れていない。次に同じデ



第5図 中性子- γ 線弁別。
a) 測定時。

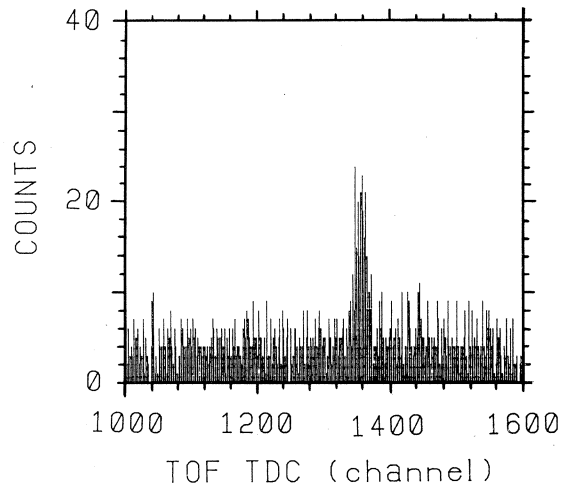


b) 中性子源。

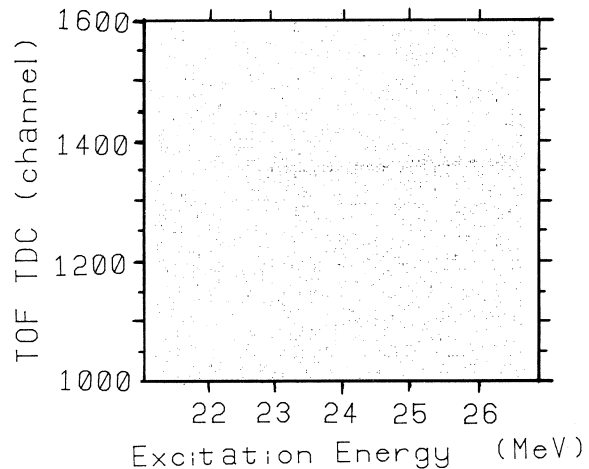
ータで横軸にMWPCのチャンネル（励起エネルギーに換算してある）、縦軸に時間スペクトルをとり2次元表示したものが第7図である。 ^{12}C の中性子放出閾値は約19MeVで、今回の実験では4 MeVより大きなエネルギーの中性子を測定しているため中性子のイベントが23 MeVより立ち上がっているのが分かる。

5.3 励起関数

以上のデータより真の事象のみを取り出し、励起エネルギー1 MeV、1 mCごとの中性子の生成量を求めたものが第8図である。実線はFultzらによる $^{12}\text{C}(r, n)$ のデータである⁴⁾。移行運動量が65MeV/c辺りではE1の寄与が大きく (r, n) とのデータとあまり変わらないと考えられるが、 (r, n) の断面積の22MeV付近のピークの裾の形が今回の $^{12}\text{C}(e, e'n)$ のものが良く一致しており、測定が正しいことの証明となっている。



第6図 TOF スペクトル(250ps/ch)

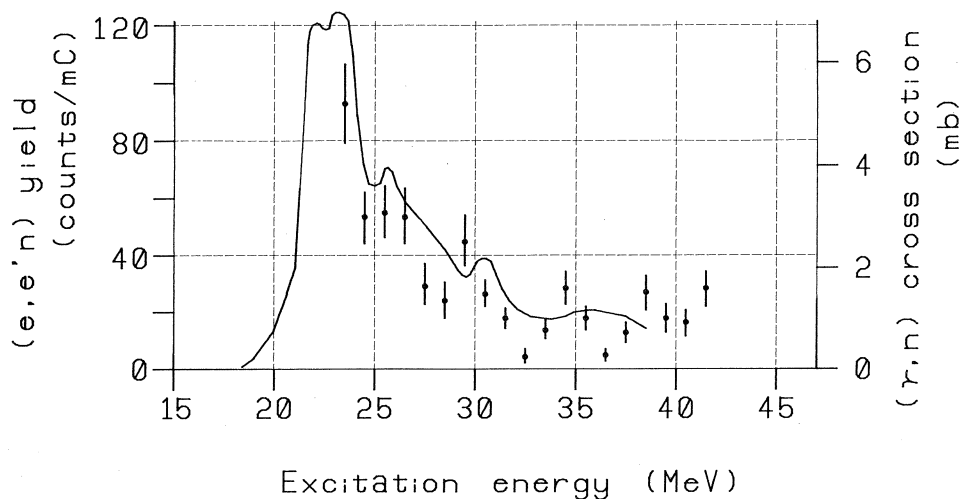


第7図 MWPC-ADC 2次元スペクトル表示。

§ 6. まとめ

以上に述べてきたように、核理研において巨大共鳴領域の $(e, e'n)$ が測定できるようになった。しかしながら、問題点もまだ多く存在する。

まず第1に、第2実験室内でビームを出した状態でのバックグラウンドが大きく、TOF距離を延ばすとS/N比が悪くなり測定が難しくなる。もう少しエネルギーの低い中性子を測定し、巨大共鳴領域の全域を測定したいが、閾値が下げられないためもっとS/N比を向上させたい。現在ではターゲット下流のバックグラウンドが問題となっているため、ターゲットの厚さ等の



第8図 $^{12}\text{C}(e, e'n)$ 中性子生成量。
実線はFultzらの $^{12}\text{C}(r, n)$ のデータ⁴⁾。

工夫が必要である。

また、中性子検出器及びその遮蔽で大きなスペースを使っているため、角分布をとるために多くの検出器を配置することが困難である。検出器と遮蔽をもっと小型化する必要がある。そのためには、中性子検出器を遮蔽するよりも、バックグラウンドの源自体を遮蔽し、実験室内のバックグラウンドを減少させることを考えねばならない。

参 考 文 献

- 1) Nuclear Physics Research and High Duty Factor Electron Accelerators, University of Illinois, 1983 Report, p.11~95.
- 2) 日野 威他：核理研研究報告 **17**(1984)228.
- 3) 川原英明他：核理研研究報告 **17**(1984)427.
- 4) S.C.Fultz *et al.*: Phys. Rev. **143**(1966) 790.

電子リニアック、パルスビーム・ストレッチャ制御系の 現状と改造計画について

核理研

武藤正勝・柴崎義信・大沼忠弘

§ 1. はじめに

電子リニアック(以下リニアックと略す)の運転・監視を目的として昭和50年度にMELCOM-70ミニコンピュータ(三菱電機製)を導入した。当初、このコンピュータはリニアックの運転データを収集する程度の使われかたで、運転するうえで目立った効果を上げるには致らなかった。しかし、昭和56年度に完成したパルス・ビーム・ストレッチャ(以下SSTRと略す)の制御は、コンピュータの使用を前提として製作したため、ここでようやく加速器のコンピュータ制御らしいシステムを作り上げることができた¹⁾。それから今日まで、リニアックの各所を改造しながら制御システムの充実を図ってきたが、制御の中心となっているMELCOM-70は老朽化していることや処理能力の面からいっても限界であることなどから、最新の処理能力の高いコンピュータへの更新を要求していた。幸いにも今回予算が認められ、DEC社の μ -VAX IIを導入することとなり、現在そのための準備を進めている。制御プログラムは全面的に書換えなければならないので、これを機会に新しい観点から加速器の制御方法について考えてみるつもりである。今回は、制御系の現状とこれからの改造計画について報告する。

§ 2. 制御系の現状

MELCOM-70を導入した頃、リニアックの制御を行うための作業を開始したものの、コンピュータ制御以前の困難な問題が沢山あった。例えば、各機器間に電位差があって簡単にコンピュータと接続ができない、クライストロン・モジュレータのノイズでインターフェース回路が誤動作する、加速器の電源やRF源の動作があまり安定ではない、制御に有効なビーム・モニタが揃っていないなどである。その後、関係者の協力を得ながらリニアックの整備を行い、こうした問題を一つ一つ取り除いた結果、最近になってようやく本格的なコンピュータ制御が行える状況になってきた。こうした整備の経過を含めて現状について記す。

1. コンピュータ・システム

第1図にシステムの構成を示す。コンピュータはMELCOM-70(32KW)とMELCOM-70/25(64KW)の2台である。前者は主に収集した運転データの後処理と制御プログラムの開

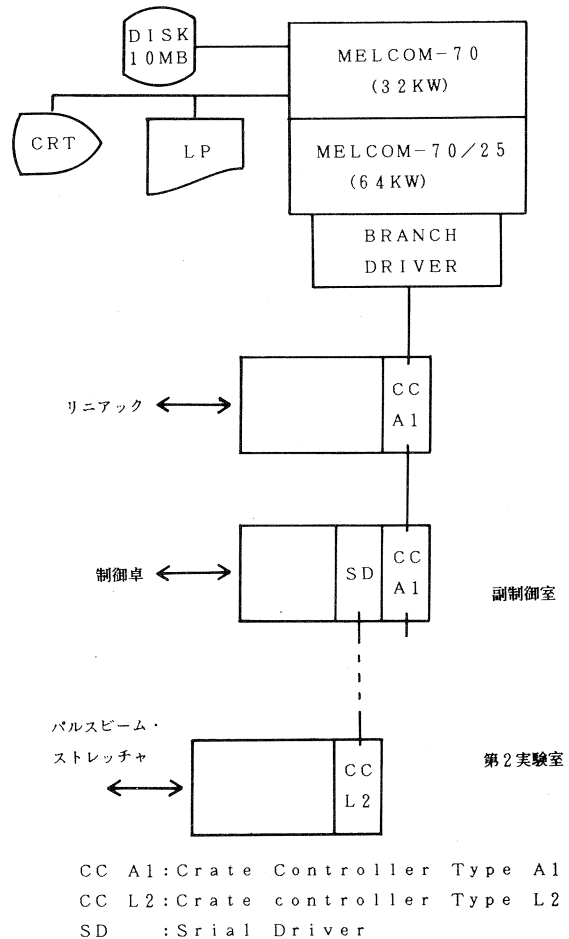
発に使われ、後者は加速器のインターフェースとして採用しているCAMAC系を通じて直接各機器を制御するという分担になっている。コンピュータはブランチ・ドライバ(三菱電機製), ブランチ・ハイウエイを介してCAMACクレートと接続している。2台のクレートのうち1台はリニアックと、他の1台は制御卓の機器とつながっている。一方, SSTRでは電源やモニタはすべて第2実験室にあるため, これらを制御するクレートは第2実験室に設置し, 副制御室との間はシリアル・ドライバ, タイプL2クレート・コントローラを組み合わせたシリアル・ライン(データ転送速度1Mビット/秒)で結ばれている。

2. リニアックの安定化

リニアックを構成している一つ一つの機器が安定に動作することはコンピュータ制御を行うための前提条件である。コンピュータを使えばこうした問題も解決できそうに思われがちだが, コンピュータはシステム全体を制御するのが目的であり, 個々の機器の不安定動作の吸収まで考えていたら効率の悪いシステムになってしまう。

リニアックから出てくるビームの特性を安定なものにするには, ビーム電流, 加速のためのマイクロ波(周波数, パワー・レベル, 位相), 各部の温度, 各種マグネットの磁場などの安定な動作が求められる。

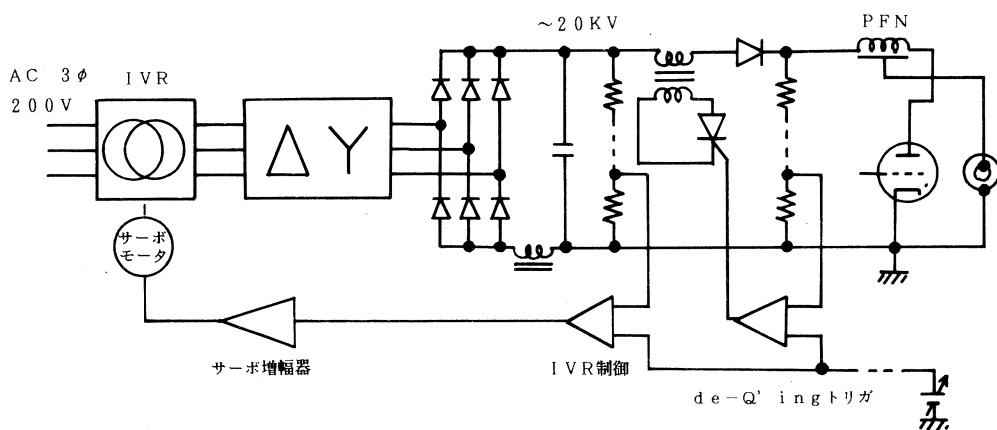
電子銃からのビーム電流の変動はリニアックから出てくるビームのエネルギーの変動となり, それが原因でECS系やビーム・トランスポート系ではビームがダクトなどに当り真空トラブルにもなっていた。ビーム電流の安定化に関しては, 本来なら電子銃周辺の真空系の改良などとい



第1図 リニアック, パルスビーム・ストレッチャ制御のための制御系の構成。

った不安定要因を取り除く抜本的な対策を取るべきであるが、事の緊急性から簡便な方法として、電子銃から出るビーム電流を測定し、その値がいつも一定になるように電子銃のグリットに加えるパルスの波高電圧を制御するフィードバック・ループを設けた²⁾。このフィードバック・ループの形成によってビーム電流が安定になり、変動が原因と思われるトラブルは殆どなくなった。更に、電子銃のカソード・パルサへ de-Q'ing 回路を取付け電子銃関係の総合的な安定化を行ったが、グリット・パルサについては未だ不安定動作の問題が未解決のまま残っており、早急に改善策を図る必要がある。

次にマイクロ波源の安定化については、クライストロン・モジュレータの de-Q'ing 回路の整備²⁾と Induction Voltage Regulator (IVR) 駆動モータのサーボモータ化を行った。クライストロン・モジュレータの構成を第 2 図に示す。PFN に加わる直流電圧は IVR で可変する。従来はこの制御に電圧調整継電器と交流誘導モータを使っていて、IVR の出力が設定電圧より数%ずれたらその範囲以内に収めるようなオン・オフ制御になっていた。今回の改造では IVR の駆動に直流サーボモータを採用して、常に高圧直流電圧が設定値になるように制御している。このことによって高圧直流電圧の変動が 1%以下と安定になり、de-Q'ing の動作点の変動も小さくなった。また、高圧直流電圧の設定用参照電圧と de-Q'ing 動作点設定用参照電圧を同一のものにすることによって、従来のように別々に設定する煩わしさもなくなり、操作性が向上すると同時に、コンピュータからも設定出来るようになった。



第 2 図 クライストロン・モジュレータ。

マグネットの電源も施設開設以来の古いものはごく一部を残すだけで、他はここ数年の間で殆ど更新した。更新を機会に新しい電源はすべてコンピュータから制御出来るようになっている。特に、Q マグネット、分析マグネット、ECS マグネットの各電源の制御にはマイクロ・コ

ンピュータを内蔵したVME (Versa Module Europe)回路を採用し、制御部の標準化を図っている。そして、これら制御回路は後で述べる光ループを介してMELCOM-70とつながっている。ステアリングコイル、入射部のフォーカスコイルの電源についても同じ制御方式を採用することで準備を進めている。これらの作業で電源のふらつきが原因と思われるビームの不安定性の問題も一掃出来るものと考えている。

3. ビームモニタ

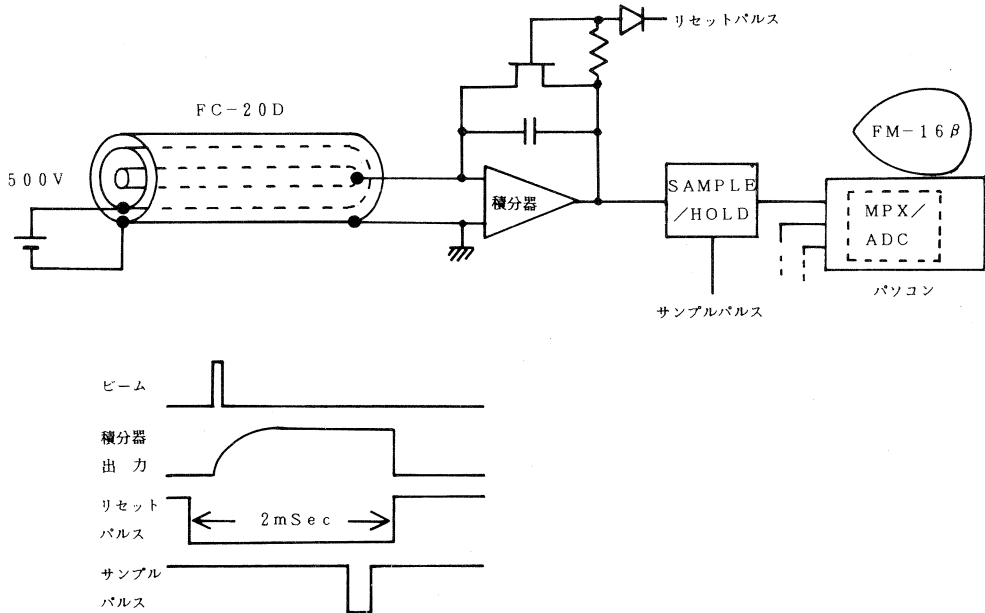
従来ビームモニタとして、ビーム電流の読み取りにはフェライトのコアモニタを利用し、ビームの位置及びプロファイルを知るためにはベリリウム・オキシド(BeO)板にビームを当て、その光をITVを利用して観測するものが使われていた。コンピュータ制御を行うためには正確な、そして信頼性のあるビーム・モニタの設置は重要であるので、いくつかのモニタの開発を試みた。

ビームを遮ることなくビームの位置を精度よく測定するのに空洞共振器を利用するモニタ³⁾が広く知られている。核理研でもこのモニタの試作を行いテストしたことがあった。SN比もよく、ビームの中心位置を正確に測定するためのセンサとして優れていることを確かめることが出来たが、しかし工作に寸法精度が要求されること、加速管と同様な温度コントロールが必要なこと、信号処理に高価なマイクロ波用パーツが必要なことなどに加え、核理研のリニアックの場合、取付けられる場所がごく限られた一部だけであるということからその利用を見合せた。

ビームの透過状態が容易に観測出来るものとしてはビームロス・モニタがある。これは加速中のビームの一部が加速管やダクトなどに当たって発生した γ 線の線量、すなわちビームの損失量を測定するためのイオンチェンバである。第3図にその構成図を示す。イオンチェンバとしては静電遮蔽ケーブル(藤倉電線:FC-20D)を使っている。このケーブルの構造は、内部の絶縁物が螺旋状になっているため、中に空気を入れて空気イオンチェンバを形成することができる。ケーブルの外部導体はアルミのパイプになっていて、パイプの外側には被覆の上に静電遮蔽のためのアルミのテープが巻かれている。モニタは加速管から30cm離して架台に加速管2本に1台の割合で設置され、モニタの総数は11台である。モニタの長さは加速A部では2.5m、加速B部では4.5mとなっている。イオン収集のための直流電圧(500V)はアルミパイプの外部導体と静電遮蔽用アルミテープ間に加えられ、イオン電流は中心導体より取り出される。イオン電流は積分器で積分され、その出力はリセットされる直前にサンプル・ホールド回路に取り込まれる。信号はその後、表示用パソコン(富士通:FM16 β)に内蔵した12ビットのADCで読み取られる。ADCはビームとは非同期で0.5秒毎に11台のモニタのデータすべてを

読み取って制御卓上に表示している。第4図はディスプレイしている様子を示す。画面最下部に加速管及びモニタの位置を表示し、縦の棒状の表示はその場所でのビームロス量である。

このモニタはビームを遮ることなくステアリングコイル、Qマグネットなどに流す電流の適



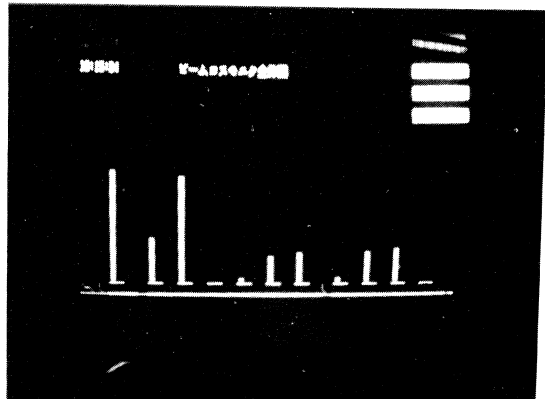
第3図 ビームロス・モニタの構成とタイミング・チャート。

否がリアルタイムで表示できるので、特にリニアックの起動の際のビーム調整では有効に活用されている。

数年前からBeOモニタに代って酸化アルミ板を利用したモニタを加速管列とビーム・トランスポート系で使っている。現在、ITVで観測した画像をコンピュータで読み取るための信号処理装置を検討中で、ビームのプロファイルを定量的に表示したいと考えている。

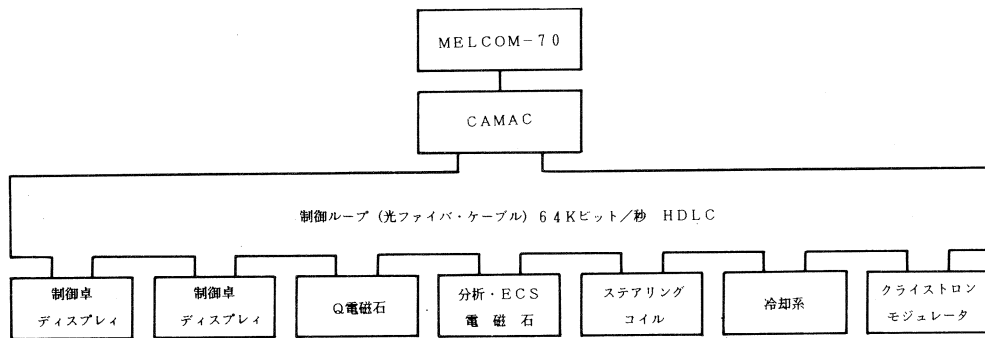
4. 光ループとローカル制御装置

リニアックの制御系を整備していく過程で、被制御機器の制御をすべてCAMACを介して1台のコンピュータに集約するよりは各機器の制御部をインテリジェント化し、それら制御部



第4図 運転中でのビームロスの表示。

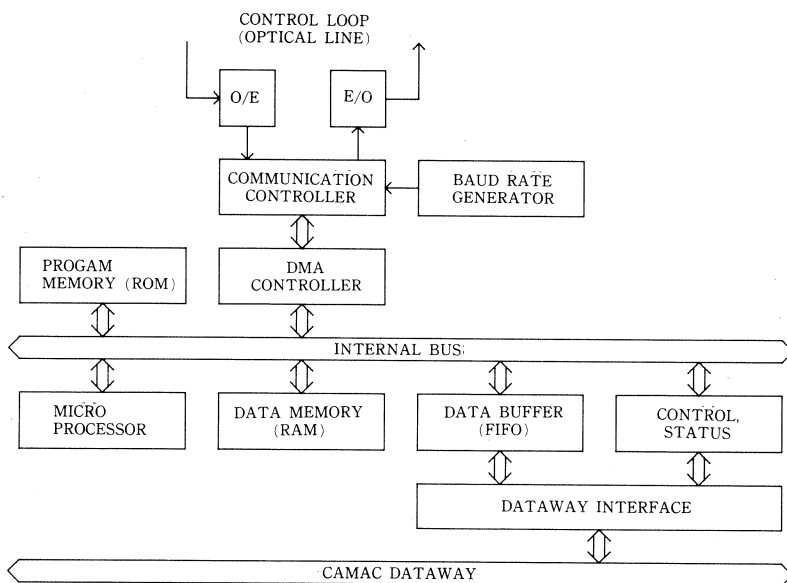
(ローカル制御装置)とコンピュータとの間はネットワークで結ぶという分散処理の考え方を取り入れることにした。それは、各機器の種類や個々の特性に合った細かな制御はローカル制御装置に任せて、コンピュータの負荷を分散して効率化を図ること、制御機器が増えても容易に対応出来る拡張性に富んでいることなどの理由からである。第5図に制御ループとローカル制御装置の構成を示す。ループはCAMACの制御モジュール、光ファイバ・ケーブル、それにローカル制御装置として採用したVME回路で構成されている。このループの通信方式として



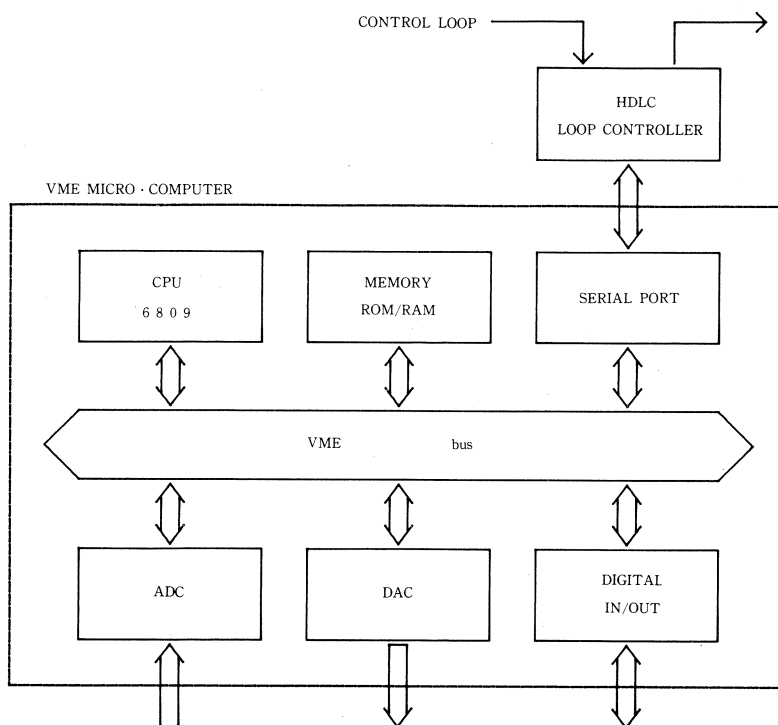
第5図 制御ループとローカル制御装置。

は、CAMACモジュールを1次局とし、被制御機器の制御回路を2次局としたHDLC(High Level Data Link Control)を採用している。これは他の通信方式に比べて性能、信頼性に優れていることからである。親局となるCAMACモジュールの構成を第6図に示す。この回路のネットワークを制御するコミュニケーション・コントロールの部分ではJIS規格に準拠したコミュニケーション・プロトコルを取り扱う部分で、すべての動作はモジュールに内蔵されているマイクロ・コンピュータによって制御される。また、ループとマイクロ・コンピュータとの間の送受信データは、DMAモードによって転送される。ホスト・コンピュータとの間のデータはCAMACデータウェイを介して行われるが、多量のデータをCAMACのブロック転送を使って高速度で行えるようにデータ・バッファの内蔵したデータウェイ・インターフェースを採用している。これらの回路は1幅のCAMACモジュールになっている。

被制御機器の制御回路のブロックダイヤグラムを第7図に示す。現在使っているVMEボードはシングルハイトのもので、マイクロ・プロセッサは8ビットのものである。現状ではホスト側の指示によって電源の電流や電圧を設定したり、状態を監視する程度の制御であるので8ビットのマイクロ・プロセッサで充分である。このバスに被制御機器の種類や数に応じて電流や電圧を測定するためのA-D変換(ADC)ボード、パラメータなどを設定するためのD-A変



第6図 制御ループのためのCAMACモジュールのブロック図。



第7図 電源制御のための制御回路のブロック図。

換(DAC)ボード,そしてイターロック関係などを監視・制御する接点信号入出ボードを組合せて制御回路を構成している。VMEバスは産業用として広く使われていて,市販されているモジュールの種類が多いため用途に応じて最適な組合せができること,最近では価格も安くなってきていること,保守の容易さなどから採用することにした。ソフトウェアについては,オペレーティング・システムにはリアルタイム・マルチタスクが可能なOS-9を採用し,プログラムはアセンブラのような細かな記述ができて他のシステムへの移植性にも優れているC言語を使って開発している。

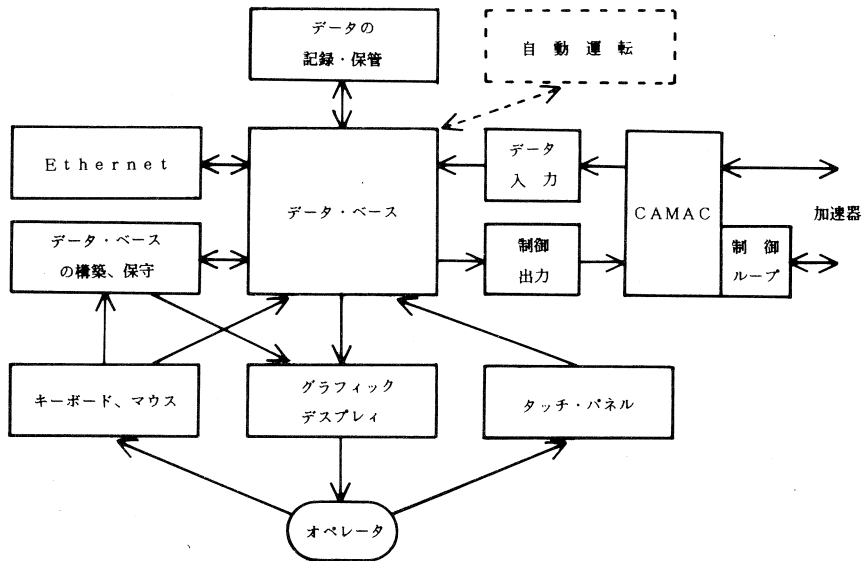
§ 3. 新しい制御システムについて

制御用コンピュータをMELCOM-70から μ -VAX IIへ置換えることで制御プログラムは全面的に作り直さなければならない。そこで,現在使っているプログラム(又は制御方式)にとられることなく全く白紙の状態で作成システムを構築していく考えである。システムは第1図のコンピュータが替るだけで当面はほとんど同じ構成である。

新しい制御システムの主な特徴を上げると次のようになる。

- ・制御プログラムはデータ・ベースを活用した柔軟性のあるものとする。
- ・グラフィック・ディスプレイとマウスを利用して操作性の向上を図る。
- ・ローカル制御装置のプログラムを標準化する。
- ・Ethernetを構内に敷設して,加速器の運転に活用する。

制御プログラムの構成を第8図に示す。プログラムの中心となるのがデータ・ベースである。これは加速器を構成しているあらゆる機器の制御のための情報をデータ・ベース化したものである。それには例えば,機器の動作状況(故障中,正常動作中など),データの読取り手順(CAMACアドレスや制御ループのノード番号,マルチプレクサの番号など),データの設定手順(CAMACアドレス,ノード番号,DACかパルスモータかなど),機器の特性(最大値,表示のための補正係数,値をゼロから最大値まで可変する許容時間など),現在・過去の運転データの記録などといったものがある。制御プログラムでは,こうしたデータ・ベースを参照しながら,加速器の立ち上げの際には過去のデータをもとに各機器の初期設定をしたり,一定時間毎にサンプリングしたデータから機器の動作状況の推移を表示したりする。オペレータの手動操作ではデータ・ベース内の該当する機器のデータの変更となり,それは機器を直接制御しているプログラムによって各機器へ伝達される。制御プログラムとしてはこの他に,各機器の動作状態の監視,異常時の処置,運転記録の保管,データ・ベースの構築・保守などの機能も含まれ



第8図 新しい制御系における制御プログラムの構成。

ている。このようにデータ・ベースの周りに機能毎にモジュール化したプログラムを配置することで、例えば加速器の機器に変更があってもデータ・ベースの内容の一部を変えるだけで対応することが出来、柔軟性のある制御システムにすることが可能である。

制御卓上のディスプレイには、現在使っているパソコンとタッチパネルを組合せたものを補助ディスプレイとして使い、主ディスプレイにはDEC社のグラフィック・ディスプレイ（19インチ、カラー、解像度1024×864ピクセル）を使用する。 μ -VAX IIが提供するビットマップ表示、マルチウィンドなどのグラフィック表示の機能を最大限に活用し、更に今までのタッチパネルやノブに代ってマウスを利用した新しい感覚の運転方法を取入れ操作性の向上を図るつもりである。

次にローカル制御装置の制御プログラムの標準化についてであるが、先に述べたVME回路で動作しているプログラムは、今のところ各機器に応じた別々の内容になっている。そこで、これらのプログラムをすべて同じものに出来れば拡張性、保守性は著しく向上する。このためには、各機器の固有の制御手順などをデータ・ベース化し、制御対象に応じてデータ・ベースを入れ替えるだけで充分対応出来るものと考えている。

最後にEthernetの活用について記す。 μ -VAX IIの導入を機会に差し当っては管理棟にEthernet（Dec-net）を敷設する予定である。これにはパソコンを接続する他に、オンラ

イン・データ処理用のコンピュータもつなぐ計画である。各パソコンからは、コンピュータの端末としてプログラムの開発を行うということはもちろんのこと、加速器の運転状況をモニターすることも可能であり、更には各機器の動作状況の推移から機器の故障診断といったことも可能である。

§ 4. 最後に

新しいコンピュータは62年12月には納入される予定である。制御プログラムの作成は63年1月から本格的に開始出来るように現在その準備を着々進めている。いままで述べたものをすべて短時間で仕上げることはむずかしいが、63年度末までは新しいシステムに切換えられるように作業を進めていきたいと考えている。

参 考 文 献

- 1) 武藤他：核理研研究報告 **15** (1982) 164.
- 2) 武藤他：核理研研究報告 **16** (1983) 333.
- 3) 榎本他：核理研研究報告 **13** (1980) 289.

編 集 委 員

齋 藤 悌二郎 (委員長) 寺 沢 辰 生
新 村 信 雄 榊 本 和 義

核 理 研 研 究 報 告 第20卷 第2号

1987年12月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設
 仙台市三神峯 1-2-1 (郵便番号982)
 電話 022-245-2151 (代)

印刷所 株式会社 東北プリント
 仙台市立町 24 番 24 号
 TEL (263) 1166 (代)

RESEARCH REPORT OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

Volume 20 Number 2 December 1987

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