

ISSN 0385-2105

RESEARCH REPORT  
OF  
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE  
TOHOKU UNIVERSITY

# 核 理 研 研 究 報 告

第 21 卷      第 2 号

1988 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判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21巻 第2号 目次

## I 原子核物理

- I-1  ${}^6\text{Li}(e,e'p)$  反応の研究 (I) .....139  
(核理研, 教養部\*, 情教センター\*\*)  
野村 昌弘, 玉江 忠明, 松山日出人, 田所 孝広  
菅原 真澄, 宮瀬 晴久\*, 坪田 博明\*, 川添 良幸\*\*
- I-2  $(e,e'n)$  同時計数実験による  ${}^{12}\text{C}$  巨大共鳴の研究 (I) .....145  
(核理研, 理学部物理\*, 教養部\*\*)  
高久 圭二, 斎藤悌二郎, 鈴木 伸介, 藤平 力\*  
中川 武美\*, 小林 幸則\*, 阿部 健\*\*
- I-3  $(e,e'\gamma)$  反応による原子核構造の研究 .....157  
(教養部, 核理研\*, 情教センター\*\*)  
坪田 博明, 宮瀬 晴久, 野村 昌弘\*, 川原 英明\*  
田中 陽\*, 玉江 忠明\*, 菅原 真澄\*, 川添 良幸\*\*
- I-4 Study of Photo-absorption Mechanisms at Intermediate Energy Region .....173  
(教養部, 核理研\*, メルボルン大\*\*)  
須田 利美, 野村 和泉\*, 寺沢 辰生\*, 鳥塚 賀治\*  
横川 淳\*, 前田 和茂, J. Eden\*\*, D. McLean\*\*,  
M. Thompson\*\*
- I-5  ${}^9\text{Be}(\gamma, \pi^+) {}^9\text{Li}^*$  による  ${}^9\text{Li}$  高励起状態の研究 .....184  
(核理研, 理学部物理\*, 教養部\*\*)  
竹下 邦和, 加賀谷 聡, 島田 太平, 山崎 寛仁  
庄田 勝房, 山屋 堯\*, 坪田 博明\*\*
- I-6 電子線照射による原子核からの  $\pi^+$  生成断面積の研究 .....188  
(核理研, 教養部\*)  
島田 太平, 庄田 勝房, 加賀谷 聡, 竹下 邦和  
山崎 寛仁, 坪田 博明\*, 小林 毅範



## II 物性物理

- II-1  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  超伝導酸化物の水素化 .....195  
(金研, 核理研\*)  
梶谷 剛, 松永 寿康, 平林 真, 富吉 昇一  
山内 宏, 神山 崇\*
- II-2 Relation between Proton Intersite Distance and Hydrogen-Bond Length in  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$  and the Other  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  Type Crystals. ....204  
(工学部応用物理, 核理研\*)  
山田 昌, 新村 信雄\*, 球 理恵子
- II-3  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  のヘリカルスピ構造 .....209  
(金研)  
富吉 昇一, 山口 泰男
- II-4 透過中性子法による生体物質の構造研究 (I) .....213  
(理学部物理, 核理研\*)  
片瀬 拓弥, 新村 信雄\*, 徳永 史生

## III 放射化学

- III-1 反跳インプランテーションによる化学反応機構の研究 .....219  
(理学部化学)  
関根 勉, 吉原 賢二
- III-2 Preparation of Carrier-free  $^{45}\text{Sc}$  and Impurity-diffusion .....226  
of Sc in Aluminum Single Crystals  
(工学部材料物性)  
藤川辰一郎, 牛野 俊一
- III-3 標準添加内標準法による放射化分析にたいする一つの試み  
—低合金鋼の光量子放射化分析について— .....236  
(金研, 核理研\*)  
原 光雄, 飯野 栄一, 榎本 和義\*, 八木 益男
- III-4 機器光量子放射化分析による GSJ 標準岩石試料の分析 .....243  
(核理研, 金研\*)



	榎本 和義, 八木 益男*	
Ⅲ-5	日本海, 久六島西方海底火山噴出物の微量元素組成 ……………	256
	(理学部地学, 広島大総合科学*)	
	吉田 武義, 佐藤 博明*, 青木謙一郎	
Ⅲ-6	北海道, 渡島大島火山噴出物の微量元素組成 ……………	268
	(理学部地学)	
	吉田 武義, 青木謙一郎	
Ⅲ-7	東北本州弧, 第四紀火山岩組成の広域的变化 ……………	281
	(理学部地学, 金沢大教育*)	
	吉田 武義, 酒寄 淳史*, 青木謙一郎	
Ⅲ-8	東北本州弧, 第四紀火山岩類へのプロセス判定図の適用 ……………	301
	(理学部地学)	
	吉田 武義, 青木謙一郎	
IV 加速器・測定器		
IV-1	プラスチックシンチレーターを用いた (e, e' p) 実験装置 ……………	319
	(核理研, 教養部*, 情教センター**)	
	松山日出人, 田所 孝広, 野村 昌弘, 菅原 真澄	
	玉江 忠明, 宮瀬 晴久*, 坪田 博明*, 川添 良幸**	
IV-2	Development of a Liquid Helium Target System for the ${}^4\text{He}(\gamma_{\text{tagged}}\text{X})$ Experiment ……………	326
	(核理研, 教養部*, メルボルン**)	
	今野 収, A. Bates**, 前田 和茂*, D. Mclean**	
	野村 和泉, 菅原 康弘, 寺沢 辰生	
IV-3	$\pi$ -中間子測定用広域電磁石 ……………	330
	(理学部物理, 核理研*, 教養部**, 富士通電****)	
	山屋 堯, 庄田 勝房*, 佐藤 理***, 小林 毅範*	
	加賀谷 聡*, 竹下 邦和*, 島田 太平*, 山崎 寛仁*	
	坪田 博明**	



- IV-4 Renewal of the KAKURIKEN On-line Data Taking System .....337  
(教養部, メルボルン大\*, 核理研\*\*)  
前田 和茂, D. McLean\*, 武藤 正勝\*\*, 菅原 康弘\*\*
- IV-5 Rearrangement of the TOF Neutron Diffractometer for the Special  
Environment Experiments .....342  
(金研)  
神垣 知夫
- IV-6 ストリークカメラによるバンチ構造の研究 .....346  
(核理研, 高エネルギー研\*)  
加藤 龍好, 小山田正幸, 中里 俊晴, 浦澤 茂一  
加賀谷 聡, 栗原 亮, 高橋 重信, 柴崎 義信  
佐藤 勇\*, 中原 和夫\*

Research Report of Laboratory of Nuclear Science  
Volume 21, Number 2, December 1988  
Content

I Nuclear Physics

- I - 1  ${}^6\text{Li}(e, e' p)$  Coincidence Experiment ( I ) .....139  
Masahiro Nomura, Tadaaki Tamae, Takahiro Tadokoro,  
Hideto Matsuyama, Masumi Sugawara, Haruhisa Miyase,  
Hiroaki Tsubota and Yoshiyuki Kawazoe
- I - 2 Study of the Giant Resonance in  ${}^{12}\text{C}$  via the  $(e, e' n)$  Coincidence  
Experiment ( I ) .....145  
Keiji Takahisa, Teijiro Saito, Shinsuke Suzuki,  
Tutomu Tohei, Takemi Nakagawa, Yukinori Kobayashi  
and Ken Abe.
- I - 3 Study of Nuclear Structure by the  $(e, e' \gamma)$  Reaction .....157  
Hiroaki Tsubota, Haruhisa Miyase, Masahiro Nomura,  
Hideaki Kawahara, Akira Tanaka, Tadaaki Tamae,  
Masumi Sugawara and Yoshiyuki Kawazoe
- I - 4 Study of Photo-absorption Mechanisms at Intermediate Energy Region .....173  
Toshimi Suda, Izumi Nomura, Tatsuo Terasawa,  
Yoshiharu Torizuka, Jun Yokokawa, Kazushige Maeda,  
James Eden and Maxwell N. Tompson
- I - 5  ${}^9\text{Be}(\gamma, \pi){}^9\text{Li}^*$  Highly Excited States .....184  
Kunikazu Takeshita, Akira Kagaya, Taihei Shimada,  
Hirohito Yamazaki, Katsufusa Shoda, Takashi Yamaya  
and Hiroaki Tsubota
- I - 6 Cross Sections of Positive Charged Pion Production from Several  
Nuclei using Electron Beam .....188  
Taihei Shimada, Katsufusa Shoda, Akira Kagaya,  
Kunikazu Takeshita, Hirohito Yamazaki, Hiroaki Tsubota



and Takenori Kobayashi

## II Material Science

- II - 1 Hydration of Oxide-Superconductor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  .....195  
Tsuyoshi Kajitani, Toshiyasu Matsunaga, Makoto Hirabayashi,  
Syohichi Tomiyoshi, Hiroshi Yamauchi and Takashi Kamiyama
- II - 2 Relation between Proton Intersite Distance and Hydrogen-Bond  
Length in  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$  and the Other  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  Type Crystals .....204  
Noboru Yamada, Nobuo Niimura and Rieko Ren
- II - 3 Helical Spin Structure of  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  .....209  
Syohichi Tomiyoshi and Yasuo Yamaguchi
- II - 4 Structure Study of Biological Materials by Neutron Transmission  
Method .....213  
Takuya Katase, Nobuo Niimura and Fumio Tokunaga

## III Radiochemistry

- III - 1 The Mechanisms of Chemical Reactions Initiated by Recoil  
Implantation .....219  
Tsutomu Sekine and Kenji Yoshihara
- III - 2 Preparation of Carrier-free  $^{45}\text{Sc}$  and Impurity-Diffusion of Sc in  
Aluminum Single Crystals .....226  
Shin-ichiro Fujikawa and Shun-ichi Ushino
- III - 3 A Test for Radioactivation Analysis by the Internal Standard  
Method Coupled with the Standard Addition Method  
— on the Photon Activation Analysis of a Low-alloy Steel .....236  
Mitsuo Hara, Eiichi Iino, Kazuyoshi Masumoto and Masuo Yagi
- III - 4 Instrumental Photon Activation Analysis of GSJ Rock Reference  
Samples .....243  
Kazuyoshi Masumoto and Masuo Yagi
- III - 5 Trace Element Abundances of the Rocks from Kyurokujima Seiho

	Submarine Volcano, Japan Sea .....	256
	Takeyoshi Yoshida, Hiroaki Sato and Ken-ichiro Aoki	
III - 6	Trace Element Abundances of the Rocks from Oshima-Oshima Volcano, Hokkaido .....	268
	Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki	
III - 7	Regional Variation of Volcanic Rock Compositions in the Northeast Honshu Arc .....	281
	Takeyoshi Yoshida, Atsushi Sakayori and Ken-ichiro Aoki	
III - 8	Estimation of Source Materials for the Volcanic Rocks from the Northeast Honshu Arc -Application of "Process Identification Diagram" .....	301
	Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki	
IV Accelerator and Instrumentation		
IV - 1	(e,e' p) Experiment Detector System using Plastic Scintillators .....	319
	Hideo Matsuyama, Takahiro Tadokoro, Masahiro Nomura, Masumi Sugawara, Tadaaki Tamae, Haruhisa Miyase, Hiroaki Tsubota and Yoshiyuki Kawazoe	
IV - 2	Development of Liquid Helium Target System for the ${}^4\text{He}(\gamma_{\text{tagged}} \text{ x})$ Experiment .....	326
	Osamu Konno, Anthony Bates, Kazushige Maeda, David McLean, Izumi Nomura, Yasuhiro Sugawara and Tatsuo Terasawa	
IV - 3	A Broad-Range Magnetic Pion Spectrometer .....	330
	Takashi Yamaya, Katsufusa Shoda, Osamu Sato, Takenori Kobayashi, Akira Kagaya, Kunikazu Takeshita, Taihei Shimada, Hirohito Yamazaki and Hiroaki Tsubota	
IV - 4	Renewal of the KAKURIKEN On-Line Data Taking System .....	337
	Kazushige Maeda, David McLean, Masakatsu Mutoh and Yasuhiro Sugawara	
IV - 5	Rearrangement of the TOF Neutron Diffractometer for the Special	



Environment Experiments .....	342
Kazuo Kamigaki	
IV-6 Measurements of Bunch Structure from an Electron Linac .....	346
Ryukou Kato, Masayuki Oyamada, Toshiharu Nakazato, Shigekazu Urasawa, Akira Kagaya, Akira Kurihara, Shigenobu Takahashi, Yoshinobu Shibasaki, Isamu Sato and Kazuo Nakahara	

# I. 原 子 核 物 理



${}^6\text{Li}$  (e, e'p) 反応の研究 (I)

核理研, 教養部\*, 情教センター\*\*

野村 昌弘・玉江 忠明・松山日出人

田所 孝広・菅原 真澄・宮瀬 晴久\*

坪田 博明\*・川添 良幸\*\*

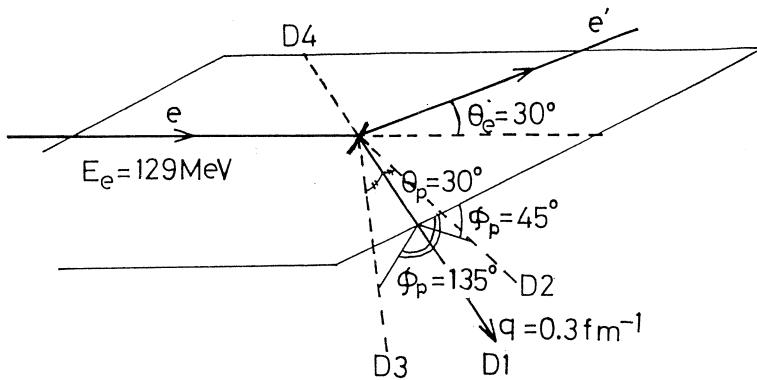
We have measured  ${}^6\text{Li}$  (e, e'p) coincidence cross sections at  $\theta_p=0^\circ$ ,  $30^\circ$  ( $\phi_p=45^\circ$  and  $135^\circ$ ) and  $180^\circ$ , at excitation energies between 20 and 25 MeV using a 129 MeV continuous electron beam from the pulse stretcher. Scattered electrons were detected at  $30^\circ$ . The mean value of the momentum transfer was  $q=0.33\text{fm}^{-1}$ . Charged particles were detected with 1 mm surface-barrier solid-state detectors (SSD's). A 50  $\mu\text{m}$  SSD was set in front of 1 mm one at  $\theta_p=0^\circ$  in order to identify particles.

## §1. 序

我々のグループでは前回までに (e, e'p) 反応により重陽子の研究を行なってきた<sup>1)</sup>。今回は、核内での重陽子の研究を目的に  $\alpha$ -d クラスタモデル<sup>2)</sup>で良く近似される ${}^6\text{Li}$ を標的核に選ばせそのテスト実験を行なった。

## §2. 実験条件及び結果

実験条件を第1図に示す。実験は入射エネルギー $E_e=129\text{MeV}$ の連続電子線を標的核 ${}^6\text{Li}$  (10mg/cm<sup>2</sup>, 95%)に照射し励起エネルギー $E_x=20\sim 25\text{MeV}$ に励起する。標的核により散乱された電子は二重収束型磁気スペクトロメーターにより運動量分析された後、その焦点面上に置かれた電子検出系により検出される。電子検出系は三層の多線比例計数管と二層のプラスチックシンチレーターから成る。他方標的核から放出された荷電粒子は、散乱槽内に設置された表面障壁型のシリコン半導体検出器 (SSD) により検出される。荷電粒子の測定は運動量移行 $\vec{q}$ の前方 $\theta_p=0^\circ$  (D1)と後方 $\theta_p=180^\circ$  (D4), それに同時計数実験の特徴である縦-横干渉項を測定する為に同じ $\theta_p=30^\circ$ の点で違う $\phi_p=45^\circ$  (D2),  $135^\circ$  (D3)の2点の計4点で測定した。D1は $\Delta E$ -E-E型に組み粒子識別を行なえるようにした。SSDの組み合わせ及び測定位置を第1表に示す。



第1図 実験条件。図に示した平面は散乱平面を表わす。又D1～4は放出粒子の測定点を示す。

今回測定したエネルギー領域では以下の反応が考えられる。

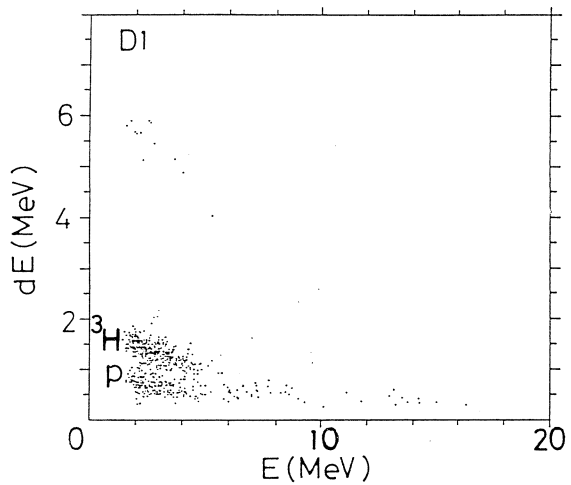
- i)  ${}^6\text{Li} \rightarrow \alpha + d$
- ii)  ${}^6\text{Li} \rightarrow \alpha + p + n$
- iii)  ${}^6\text{Li} \rightarrow {}^5\text{He} + p$
- iv)  ${}^6\text{Li} \rightarrow {}^5\text{Li} + n$
- v)  ${}^6\text{Li} \rightarrow {}^3\text{He} + {}^3\text{H}$
- vi)  ${}^6\text{Li} \rightarrow {}^3\text{H} + d + p$
- vii)  ${}^6\text{Li} \rightarrow {}^3\text{He} + d + n$

	SSD	$(\theta_p, \phi_p)$
D1	$\Delta E$ -E-E	$(0^\circ, \text{---})$
D2	E-E	$(30^\circ, 45^\circ)$
D3	E-E	$(30^\circ, 135^\circ)$
D4	E-E	$(180^\circ, \text{---})$

第1表 SSDの組み合わせ及び測定位置。 $\Delta E$ , Eそれぞれの厚さは $50 \mu\text{m}$ ,  $1 \text{mm}$ である。

今回は、 ${}^6\text{Li}$ を $\alpha$ -dのクラスターから成ると考え核内の重陽子の研究を目的としているので反応ii)及びiii)の測定を主に実験条件を設定した。

第2図にD1の粒子識別の様子を示す。陽子が他の粒子(主に ${}^3\text{H}$ )とははっきりと分離されている。これにより先づ陽子放出を含む反応を取り出した。次に陽子のmissing energy spectrumを作り反応の分離を行なう。missing energy  $E_M$ は以下に定義される量である。



第2図 粒子識別。D1の粒子識別の様子を示す。陽子と ${}^3\text{He}$ とがはっきり分かれている。



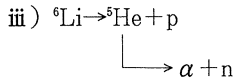
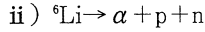
$$E_M = \omega - E_p - E_R$$

$\omega$  : 移行エネルギー

$E_p$  : 陽子の運動エネルギー

$E_R$  : 残留核の反跳エネルギー

$E_M < 21\text{MeV}$  の領域では  ${}^6\text{Li}$  の中の  $\alpha$  クラスターが壊れずに陽子が放出される反応つまり、



のみが可能な反応である。missing energy  $E_M = 5\text{MeV}$  付近のピークは  ${}^5\text{He}$  を基底状態に残す反応 ( $p_0$ ) である。又、 ${}^5\text{He}$  は励起エネルギー  $4\text{MeV}$  近傍に幅  $4\text{MeV}$  の準位<sup>3)</sup> が存在するが今回の解析では反応 iii) は全て  $p_0$  と考えて解析を行った。次にこれらの反応を分離する為に、反応 iii) には Gauss 分布、反応 ii) には 3 体崩壊の分布関数、

$$N(E)dE \sim \sqrt{(E(E_{\max}-E))}dE$$

$$E_{\max} = (E_\gamma - Q)(M - m) / M$$

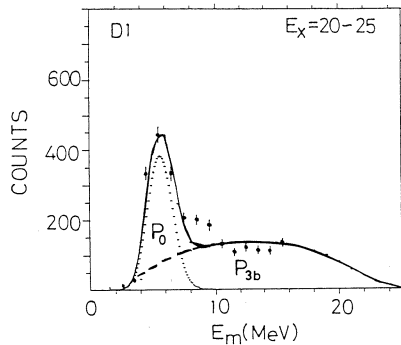
$E_\gamma$  : 入射  $\gamma$  線のエネルギー

$Q$  : 反応閾値エネルギー

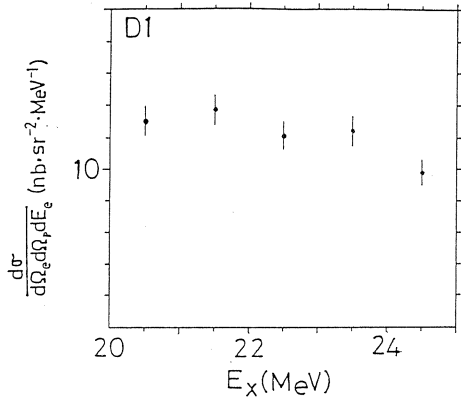
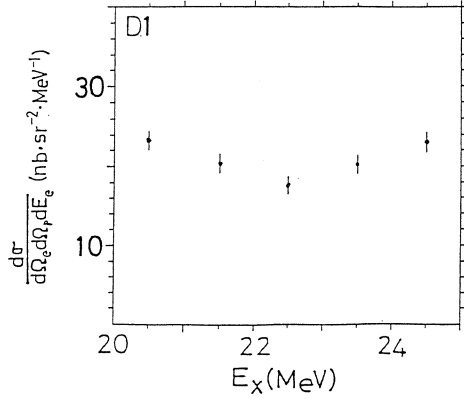
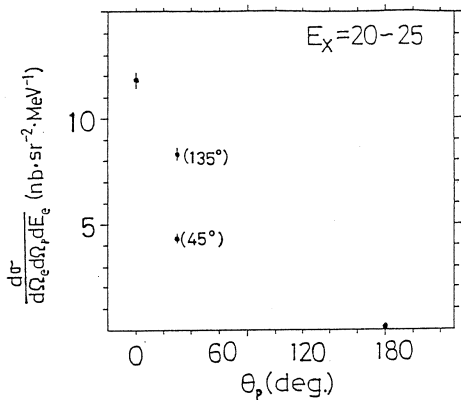
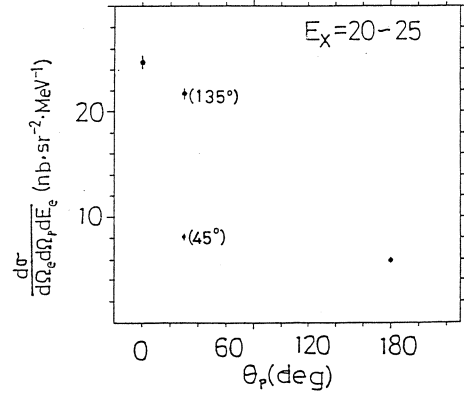
$M$  :  ${}^6\text{Li}$  の質量

$m$  : 陽子質量

を試行関数<sup>4)</sup> に選び、 $\kappa^2$ -fit を行ない反応 ii) と iii) つまり  $p_0$  と 3 体崩壊 ( $p_{3b}$ ) とを分離した。missing energy spectrum 及び分離の様子を第 3 図に示す。



第 3 図 D1 に於ける陽子の missing energy spectrum。実験点は測定エネルギー領域  $E_x = 20 \sim 25\text{MeV}$  で積分した値である。点線及び破線は本文中で述べた関数により  $\kappa^2$ -fit した時の  $p_0$ ,  $p_{3b}$  を示し、実線はその和を示している。 $p_0$ ,  $p_{3b}$  の反応の閾値はそれぞれ  $4.59$ ,  $3.70\text{MeV}$  であり、 $\alpha$  クラスターが壊れる反応 vi) の閾値は  $21.3\text{MeV}$  である。

第4図 p<sub>0</sub>反応のエネルギー分布第5図 p<sub>3b</sub>反応のエネルギー分布第6図 p<sub>0</sub>反応の角度分布。実験点は測定エネルギー領域E<sub>x</sub>=20~25MeVで積分した値である。図中の値はφ<sub>p</sub>の角度を示す。第7図 p<sub>3b</sub>反応の角度分布。実験点は測定エネルギー領域E<sub>x</sub>=20~25MeVで積分した値である。図中の値はφ<sub>p</sub>の角度を示す。

次に上記の方法により分離したそれぞれの反応のエネルギー依存性、角度分布についての考察を行なう。先ず初めに第4、5図にそれぞれの反応のエネルギー依存性を示す。今回の測定領域では顕著なエネルギー依存性は見られなかった。そこで次に測定エネルギー領域で積分した角度分布を第6、7図に示す。両反応とも前方ピークを成し $\theta_p=30^\circ$ の点では、縦-横干渉項により大きな $\phi_p$ 依存性が測定された。p<sub>0</sub>の角度分布に於ける大きな前方ピークは<sup>16</sup>O(e,e'p<sub>0</sub>)同時計数実験<sup>9)</sup>、RPA計算<sup>9)</sup>によるとDirect knockout反応により陽子が放出された場合には今回の様に前方ピークを成すとされている。又p<sub>3b</sub>つまり高いmissing energy領域での陽子放出反応については、<sup>6</sup>Li( $\gamma$ , pn) $\alpha$ 実験<sup>7)</sup>がE<sub>γ</sub>=25~65MeVの領域で行なわれておりこの領域では2核子による吸収が主であると言う実験結果がある。この事からも<sup>6</sup>Liは $\alpha$ -dクラスター依り成り、反応ii)はd→p+nと考え、前回はD(e,e'p)同時計数実験の結

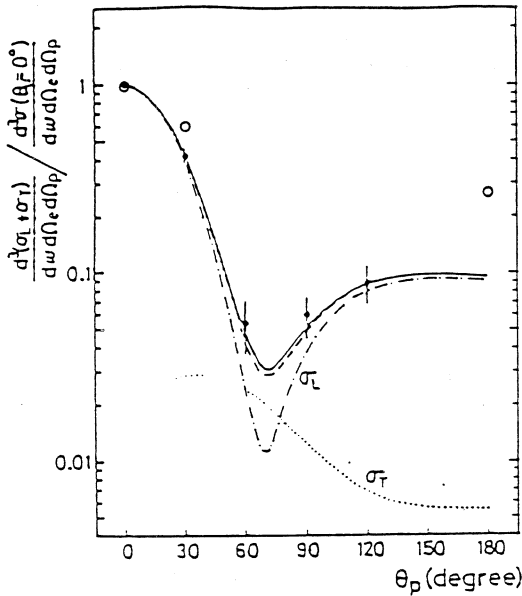
果と比較してみる事は興味ある事である。比較の際は以下の様に  $\sigma_L^3 + \sigma_T^3$  と  $\sigma_{L-T}^3$  を分離して行なった。

$$d^3\sigma / d\Omega_p d\Omega_e d\omega = \sigma^3 = \sigma_L^3 + \sigma_T^3 + \sigma_{L-T}^3 \cos(\phi_p) + \sigma_{T-T}^3 \cos(2\phi_p)$$

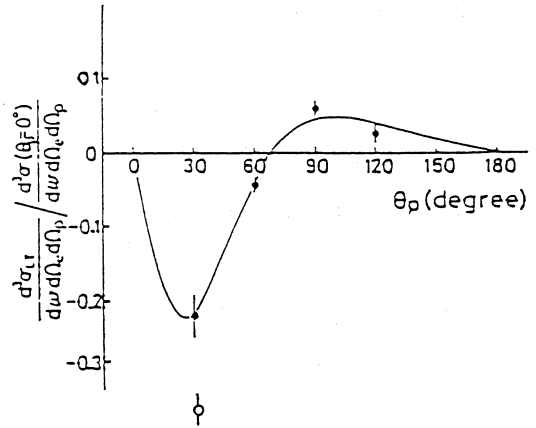
$$\sigma_L^3 + \sigma_T^3 = \{ \sigma^3(\phi_p=45^\circ) + \sigma^3(\phi_p=135^\circ) \} / 2$$

$$\sigma_{L-T}^3 = \{ \sigma^3(\phi_p=45^\circ) - \sigma^3(\phi_p=135^\circ) \} / 2$$

この様子を第8, 9に示す。多少の実験条件の違いはあるが、反応ii) が2核子吸収によるとするとこれが自由な重陽子と核内での重陽子との違いである。



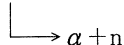
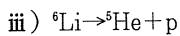
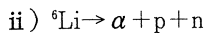
第8図 D(e,e'p) 反応と<sup>6</sup>Li(e,e'p<sub>3n</sub>) 反応との非干渉項  $\sigma_L^3 + \sigma_T^3$  での比較。黒丸はD(e,e'p), 白丸は<sup>6</sup>Li(e,e'p<sub>3n</sub>) のそれぞれの実験値を示し, 両実験点とも  $\theta_p=0^\circ$  で規格化している。図中の曲線については参考文献1) を参照されたい。



第9図 D(e,e'p) 反応と<sup>6</sup>Li(e,e'p<sub>3n</sub>) 反応との干渉項  $\sigma_{L-T}^3$  での比較。図中の記号は第8図と同じである。

### §3. まとめと今後

今回の実験結果をまとめてみると先づ第一に,



の両反応を分離出来た事があげられる。又その他には、

- $E_x=20\sim 25\text{MeV}$ の範囲では際立ったエネルギー依存性は見られない。
- 角度分布に関しては、両反応とも前方ピークをし  $\theta_p=30^\circ$  の点では大きな縦-横干渉項が測定された。

等があげられる。

今後は放出陽子の測定点を以下のように増やし、

$$\theta_p=0^\circ, 30^\circ, 60^\circ, \dots, 180^\circ$$

$$\phi_p=45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$$

高い missing energy 領域まで測定し、反応 ii), iii) を通じ格内の重陽子に対する更なる研究を行なう予定である。

#### 参 考 文 献

- 1) 玉江忠明他：核理研研究報告 **19** (1986) 1.  
玉江忠明他：核理研研究報告 **19** (1986) 193.  
T.Tamae *et al.*:Phys. Rev. Lett. **59** (1987) 2919.  
川原英明他：核理研研究報告 **21** (1988) 1.
- 2) J.C.Bergstrom *et al.* : Nucl.Phys. **A262** (1976) 196.  
J.C.Bergstrom : Nucl. Phys. **A327** (1977) 458.
- 3) F.Ajzenberg-Selove : Nucl. Phys. **A413** (1986) 1.
- 4) A.M. Baldin *et al.*:Kinematika Yadernykh Reaktii
- 5) V.F. Dmitriev *et al.*:Nucl.Phys. **A464** (1987) 237.
- 6) G. Co' and S. Krewald :Nucl. Phys. **A433** (1985) 392.
- 7) M.W.Wade *et al.*:Phys. Rev. Lett. **27** (1984) 2540.



(e, e' n) 同時計数実験による $^{12}\text{C}$ 巨大共鳴の研究 (I)

核理研, 理学部物理\*, 教養部\*\*

高久 圭二・斎藤悌二郎・鈴木 伸介

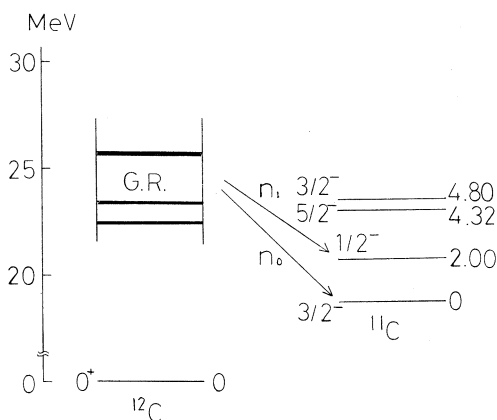
藤平 力\*・中川 武美\*

小林 幸則\*・阿部 健\*\*

## §1. 序

前回,  $^{12}\text{C}(e, e' n)$  反応の励起関数を22~40MeVの範囲で測定し, (e, e' n) 同時計数実験が可能である事を報告した<sup>1)</sup>。しかし前回報告程度のシールドでは, バックグラウンドがまだ大きく, シールドをもっと強化しなければならないことがわかった。今回はバックグラウンドの発生源と思われる箇所を局部的にシールドするとともに, 検出器も前回よりもよりシールドしやすいものを使い検出器に対するシールドの強化と工夫を行った。また, 角分布の情報を得るため, 検出器を一度に4台配置し, そのまわりをコンクリートで取り囲んだ。その結果, バックグラウンドのレベルが減り, すべての検出器において, 前回よりS/N比が10倍程度よいデータの測定に成功し, 中性子のエネルギーを決めるための $\gamma$ フラッシュが初めて測定できたので, その実験装置と測定結果について報告する。

今回の実験の目的は, 同時計数実験により終状態を限定し $^{12}\text{C}$ の巨大共鳴の崩壊に伴う放出中性子の励起関数及び角分布を測定し, 共鳴の多重極度を調べることである。第1図に巨大共鳴からの $^{11}\text{C}$ への崩壊を示す。 $^{12}\text{C}$ を使ったのは, ターゲットとして扱いが簡単であることと, ( $\gamma, n$ ) 反応<sup>2-4)</sup>及びシングルアームの電子散乱<sup>5-6)</sup>による巨大共鳴に関する詳しいデータが存在し, (e, e' p)<sup>7)</sup>の実験値があるため, 及び角度相関に関する理論<sup>8-9)</sup>の予測があるためである。その結果を ( $\gamma, n$ ) 反応及びシングルアームの電子散乱による実験値と比較することや, 理論の角分布の予測と比較すること等により,  $^{12}\text{C}$ の巨大共鳴の崩壊機構の研究を行う。

第1図  $^{12}\text{C}(e, e' n)$  の準位図。

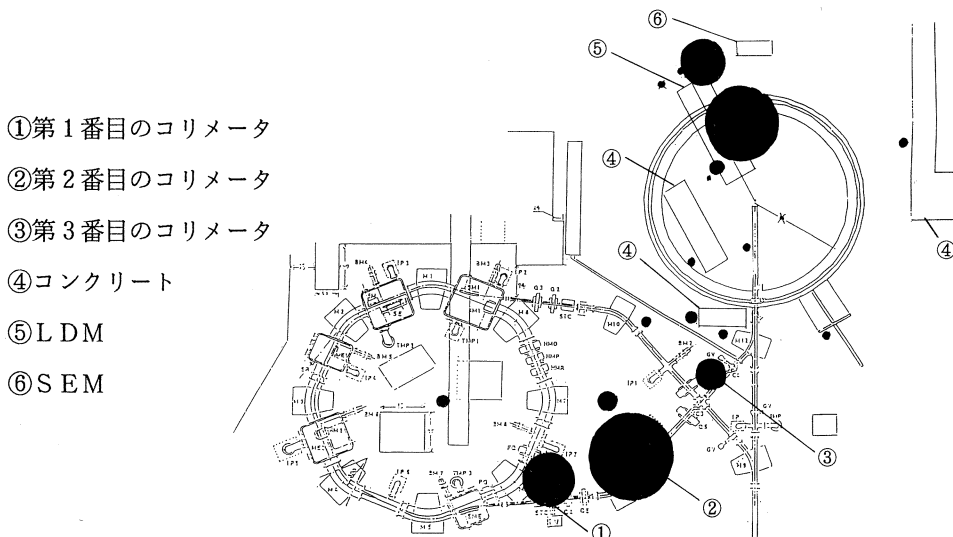
## §2. 実験室内のバックグラウンドの分布

前回バックグラウンドのレベルがまだ大きく、その発生源は特定できていなかったため、今回の実験に先立ちほぼ同じ実験状態である (e, e' p) 同時計数実験時に、第二実験室内のSSTR使用時におけるバックグラウンドの分布を測定するための便乗実験を行った。

前回まで、実験室内のバックグラウンドの分布の測定は、小型の中性子検出器を少しシールドした状態で位置を変えて行っていたが、シールドの手間等のため、短時間に移動できず、また場所をとるために置ける場所が限られていたので、バックグラウンドの発生源の断定には乏しいデータしか取れなかった。また、検出器の高さは、シールドの都合上、ビームライン上ではなかった。さらに、ビームの状態やその条件で、バックグラウンドの時間的変化が起こっているものと考えられるので、同時に測定していない前回のバックグラウンドの分布は、あまり確かなものとは言えない。

そこで、同時に数点のバックグラウンドの測定をする目的で、シールドをする必要がなく移動が容易なより小型の検出器 (30mm×100mm×5mmのプラスチックシンチレータに光電子増倍管HAMAMATSU-R1450を接続。) を4台使い、規格化のための1台を動かさず、あとの3台を移動させて計19地点について測定を行った。また、測定の高さはすべてビームラインと同一レベル (高さ1.6m) とし、検出器の検出閾値は $^{22}\text{Na}$ コンプトンエッジ (1.061MeVee) で行った。

測定結果を第2図に示す。これより、SSTR下流のダクト内にある第1, 第2番目のコリメータ



第2図 バックグラウンドマップ。図の●の大きさは、カウント数の大きさを表している。

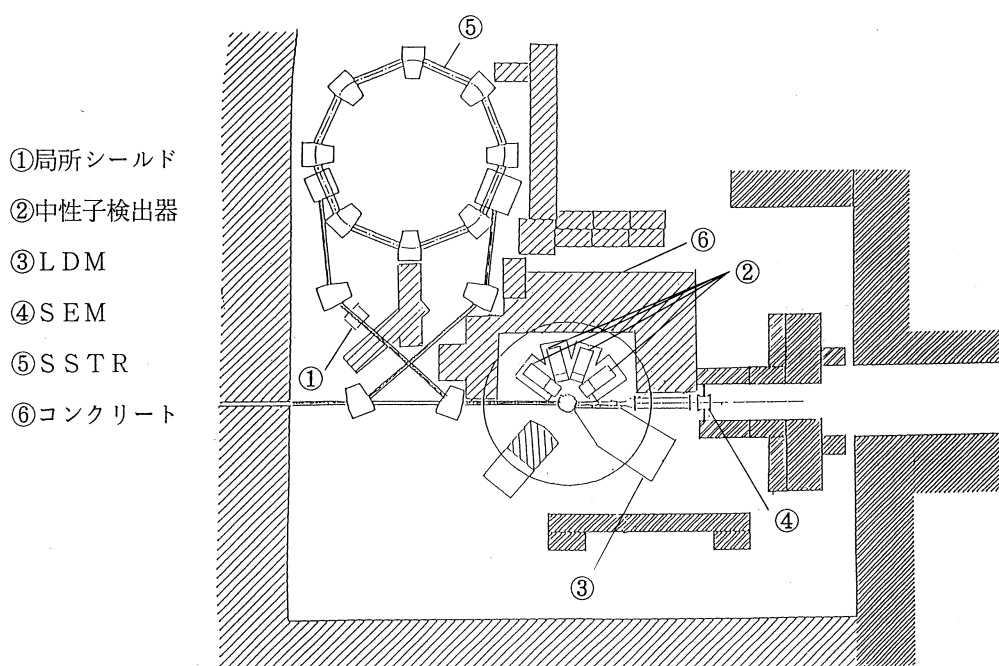
タ付近及びSEM（Secondary Emission Monitor）付近が特に大きいバックグラウンドの発生源になっていることが明らかになった。

### § 3. 実験装置

本実験は、核理研の300MeV電子線加速器と、連続ビームにするためのSSTRを使用し、エネルギー129MeVの連続電子線を使って行なわれた。

#### 3.1 シールド

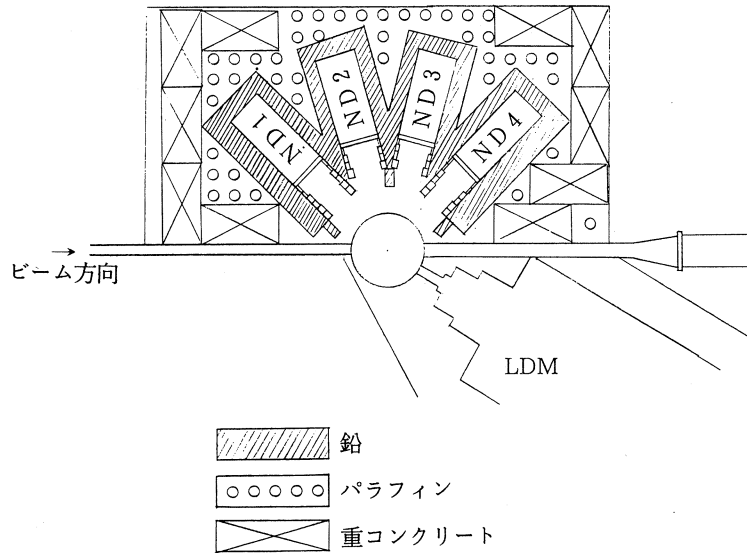
実験室のシールド（第3図）は、§ 2で示したバックグラウンドの分布の状態を参考にしたうえで、バックグラウンドをいかに減らすかという観点から行った。そこでまず第1に、ビーム上流のSSTRからくる中性子や $\gamma$ 線を防ぐためにSSTRのコリメータ付近に厚さ10cmの鉛で、局部的にシールドを行い、さらにコンクリートでシールドの強化を行った。第2に中性子検出器に対するシールドを強くするためにそのまわりをコンクリート等で取り囲み、徹底的にハウジングを強化した。そして第3にSEM付近とSEMよりビーム下流のシールドを強化することにより、SEMからのバックグラウンドとビームダンプ付近からのバックグラウンドの軽減化を計った。



第3図 全体図。

### 3.2 実験条件

実験は、巨大共鳴領域である励起エネルギー $23\text{MeV}\sim 27\text{MeV}$ の範囲で励起関数の測定を行った。散乱電子の測定角度は $\theta_e=30^\circ$ で、 $q=0.31\text{fm}^{-1}$ であり、E1励起が主である。TOF距離は $0.75\text{m}$ で、放出中性子の角分布は運動量移行方向より $\theta_n=20^\circ, 50^\circ, 80^\circ, 350^\circ$ の散乱面上の4点で測定した(第4図)。ターゲットは、 $^{12}\text{C}$ の厚さ $100\text{mg}/\text{cm}^2$ のものをを用い、平均ビーム電流は、 $50\text{nA}$ で実験を行った。なお、このターゲット厚とビーム強度は、ターゲット厚とビーム強度をそれぞれ変えて実験し、すべての中性子検出器でS/N比がよくなる条件であった。



第4図 拡大図。ND 1 =  $80^\circ$ , ND 2 =  $50^\circ$ , ND 3 =  $20^\circ$ , ND 4 =  $350^\circ$ 。

### 3.3 散乱電子検出系

ターゲットにより散乱され、磁気スペクトロメーター(LDM)により運動量分析された電子は、焦点面上に設置された192チャンネル3層の多芯式比例計数管(MWPC)により位置を検出される。このときバックアップカウンターとして3層のプラスチックシンチレータを用いその同時計数をとったが、シンチレータからのタイミング信号は、TOFのSTARTシグナルとして用いるので、LDM内の飛行距離の差を補正するため、1層目のバックアップカウンターを片読みにした。

### 3.4 放出中性子検出系

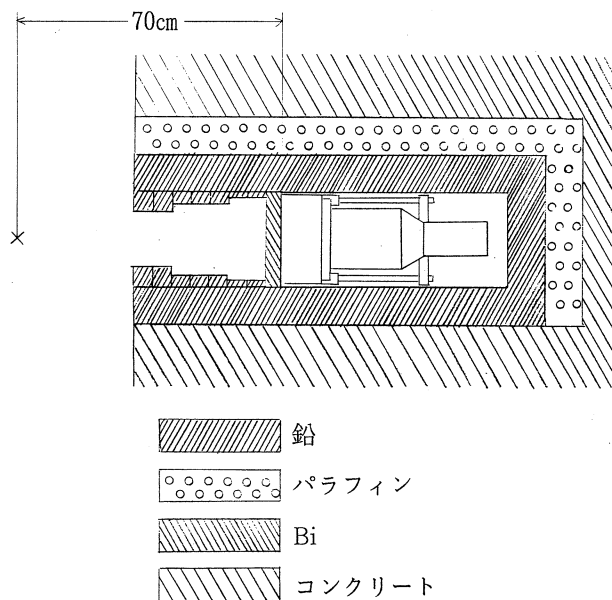
放出中性子は、液体シンチレーターNE213で検出し、散乱電子と同時計数したイベントの



ADCの情報とPSD (Pulse Shape Discriminator) の情報及びTOFの情報をCAMACを通しオンライン計算機にリストデータとして取り込み、 $\gamma$ 線と中性子をオフラインで解析し弁別した。検出器<sup>10)</sup>は前回の時よりシールドの強化をしやすくするために、外形が小型のものを使用した。その検出器の液体シンチレータは、直径18cm、厚さ10cmの約3リットルのものである。検出閾値は<sup>88</sup>Yコンプトンエッジ (0.699MeVee) に設定した。

散乱電子や低エネルギー $\gamma$ 線を止めるため吸収体として検出器前面には、Bi板を4cm設置した。Biを使用したのは、Biは我々の測定する中性子のエネルギー領域で中性子吸収の構造を持たないためである<sup>11)</sup>。さらに、ターゲット以外からの中性子と $\gamma$ 線の検出を防ぐため、ターゲットを臨むように鉛コリメータを30cm設置した。

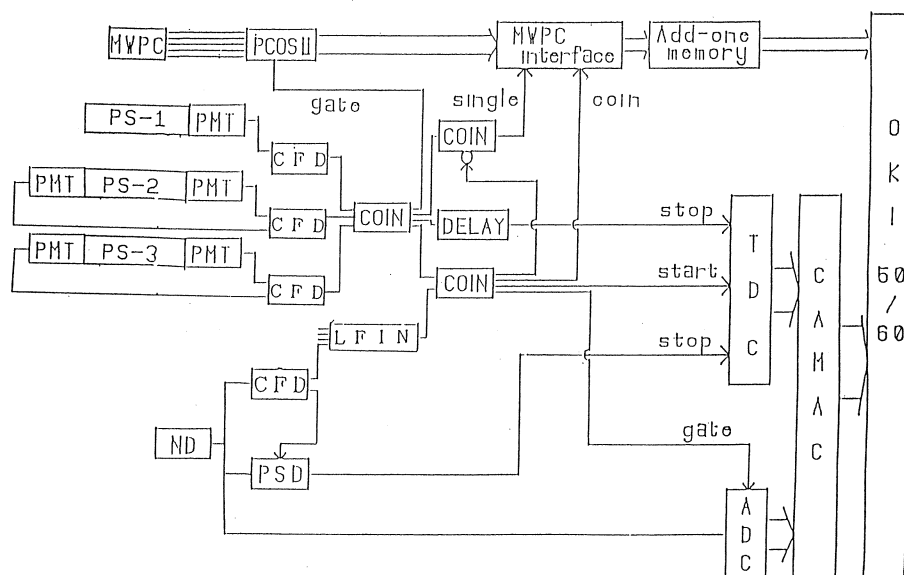
検出器に対しては、外側からコンクリート100cm、パラフィン10cm、鉛15cmのシールドを行った (第5図)。これは、中性子に対しては、コンクリートで減衰させ、パラフィンで減速・吸収させ、 $\gamma$ 線に対してはコンクリートと鉛で止めさせるためである。



第5図 中性子検出器。

### 3.5 測定回路系

測定回路 (第6図) では、散乱電子に対しては、MWPCの位置情報を、放出中性子に対しては、散乱電子と同時計数した中性子のADC及びPSDとTOFの情報をオンラインで取り込んでいる。



第6図 回路系概略図。

散乱電子と放出中性子の同時計数は、LDMのバックアップカウンターと中性子検出器の間で取っている。

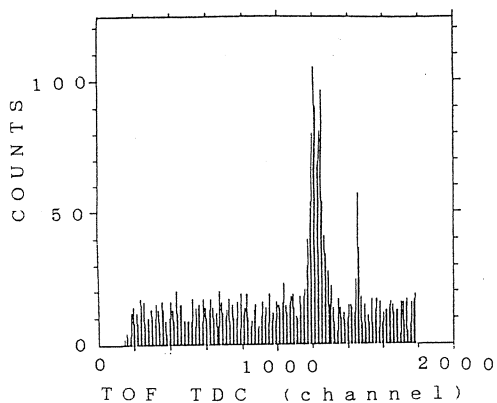
#### §4. 解析方法

散乱電子検出器系の検出効率<sup>12</sup>は<sup>12</sup>Cの弾性散乱のデータより輻射補正<sup>12-13</sup>を行い、計算コード TOELS<sup>14</sup>を使用してもとめたform factor<sup>15</sup>と比較して導出した。また、中性子検出器の検出効率は、1.061MeV<sub>e</sub>の閾値で計算コードTOTEFF<sup>16</sup>で計算した。東北大サイクロン・ラジオアイソトープセンターで昨年12月におこなった中性子のエネルギー10MeV付近の実験データにより、Biアブソーバーによる中性子の減衰率は60%として算出した。

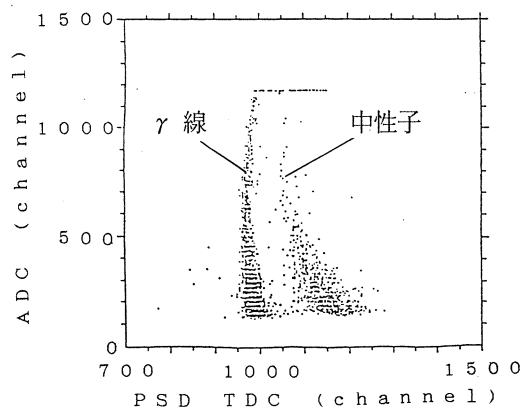
#### §5. 実験結果

前回のテスト実験 (S/N比 3 : 1) に比べ今回はシールドの工夫と強化、及びS/N比のよい測定条件を選んだことより、大幅にバックグラウンドが減少し、中性子と $\gamma$ 線を分離しなくても真に同時計数した事象を見ることが出来る程度になった (第7図: 1ch=0.1nsで10chを足したもの)。また、中性子と $\gamma$ 線の分離もよく (第8図) 中性子のみを取り出すとS/N比が10 : 1ときわめて良質のデータが得られた (第9図)。

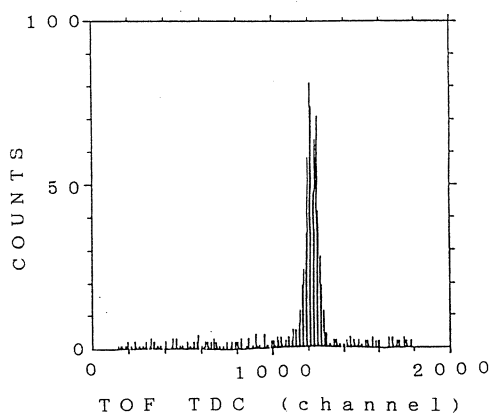
また、いままでターゲットは<sup>12</sup>Cしか行ってこなかったが、試験的に<sup>13</sup>C及び<sup>92</sup>Zrそして<sup>nat</sup>Pbの実験を行ってみたところ、すべて同時計数したイベントを測定することができ、中重核、重核



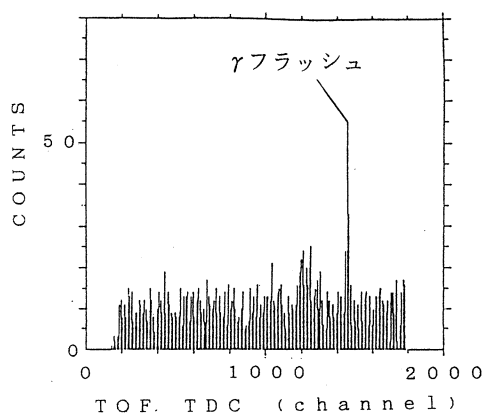
第7図 TOFスペクトル。



第8図 PSD-ADC 2次元プロット。



第9図 中性子TOFスペクトル。



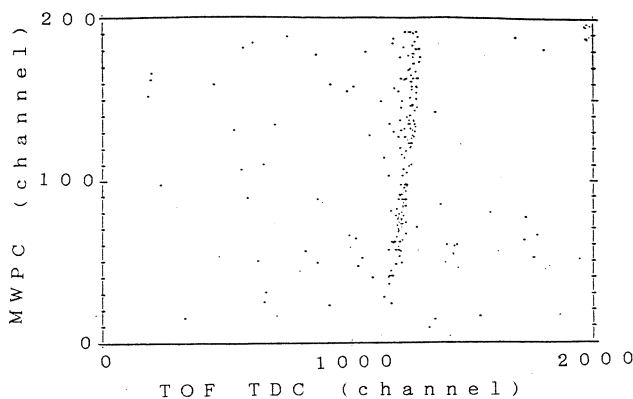
第10図 γフラッシュ。

でも (e, e' n) 同時計数実験が行えることがわかった。

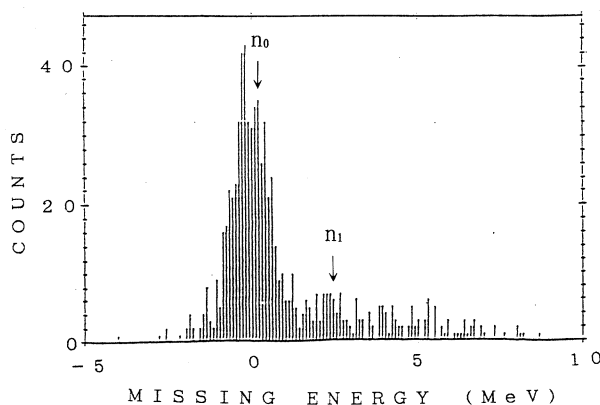
さらに、前回まで検出できなかったγフラッシュ（時間分解能は半値幅で1.2nsecであった）も測定でき（第10図）、TOFの時間軸の原点が決められた。その結果、中性子のエネルギーを導出することができた。

### 5.1 Missing energy spectrum

励起エネルギーと中性子エネルギーの関係（第11図：中心励起エネルギー24MeVのもの）よりmissing energy spectrumを出したものが、第12図（Missing energy spectrumより中性子放出の閾値18.7MeVを引いたスペクトル）である。このとき中性子のエネルギー分解能は、我々の測定領域（4～8 MeV）においては、半値幅で1.2MeVであった。これよりTOF=0.75 mにおいて2MeV離れた $n_0$ と $n_1$ が分離でき、その $n_1$ への分岐比は20%以下であることがわかった。この分岐比は、 $^{12}\text{C}(\gamma, n)^2$ の実験結果では、 $n_1$ の分岐比は17%であることがわかっている。



第11図 MWPC-TOF 2次元プロット。

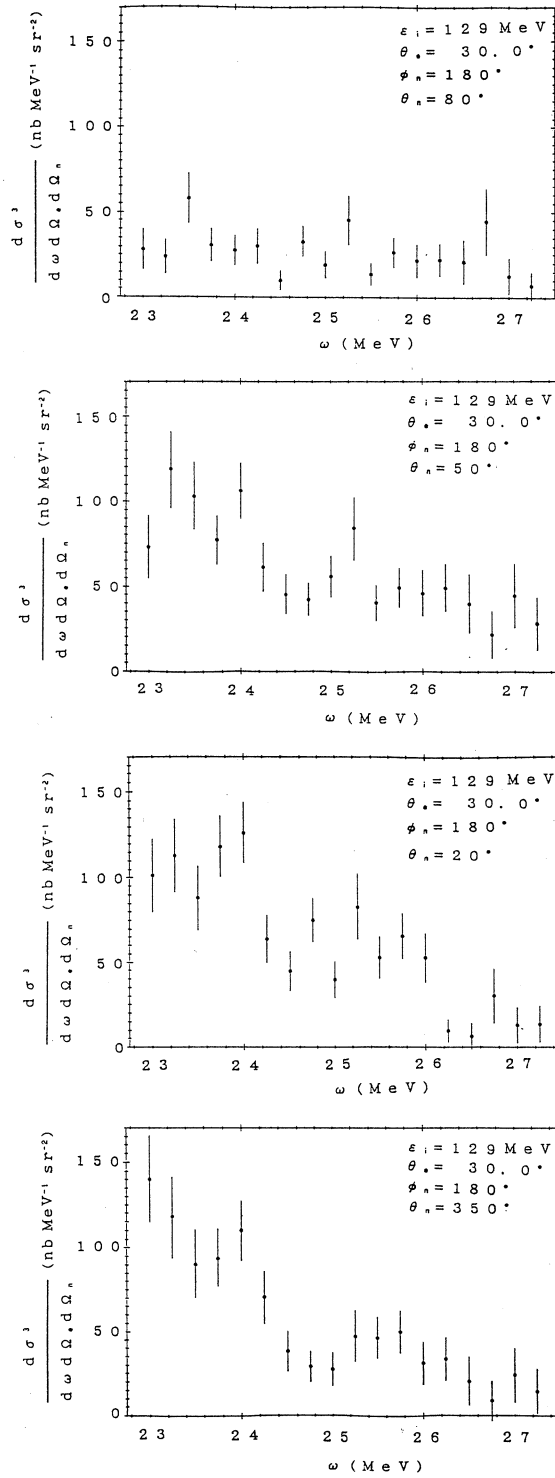


第12図 Missing energy spectrum。

### 5.2 励起関数

励起関数（第13図）は5.1より $n_0$ のみを取り出したものであるが、中性子の検出閾値をオフラインでは1.061MeVeeでおこなったので、中性子のエネルギーで約3 MeVからしか得られず、



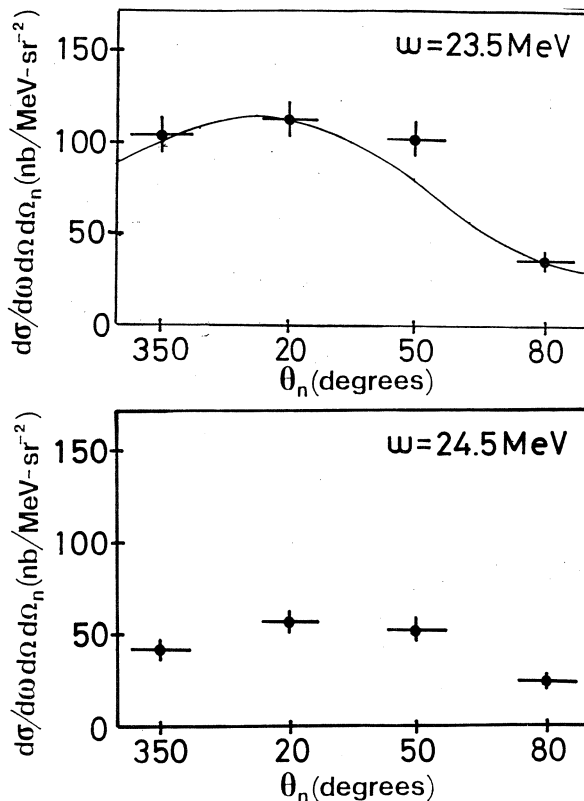
第13図  $n_0$ に対する励起関数。

励起エネルギーで23MeV付近からしか得られなかった。4点の角分布の励起関数の内、運動量移行方向付近 ( $\theta_n=20^\circ, 350^\circ$ ) においては $^{12}\text{C}(\gamma, n)$ の励起関数<sup>2)</sup>とよく似た形であり、 $^{12}\text{C}(e, e'p)$ の励起関数<sup>7)</sup>ともほとんど同じ様な形であった。ここで、シングルアームの電子散乱や、 $(\gamma, n)$ 反応等で明らかにされている23.8MeV ( $1^-$ )及び25.5MeV ( $1^-$ )の巨大共鳴のピークが観測された。

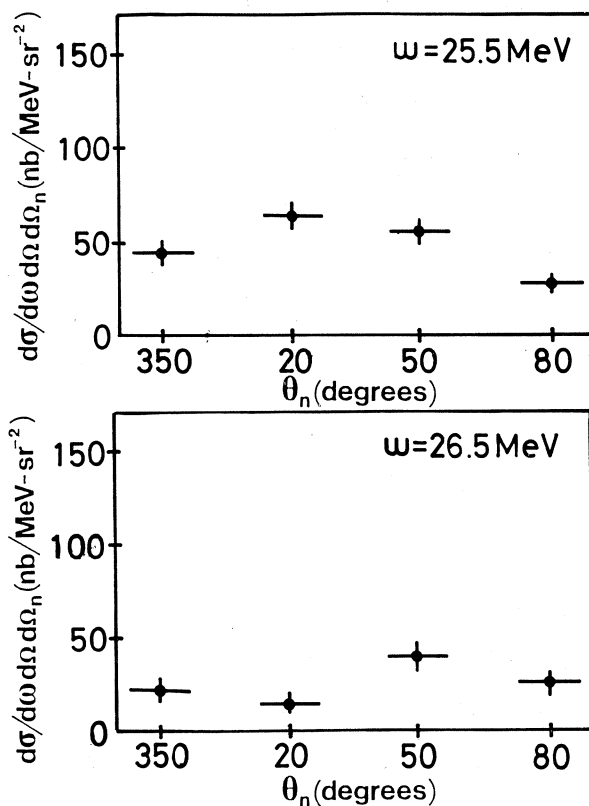
断面積の絶対値は、M. Cavinato 等のRPA計算<sup>8)</sup>による予測値 ( $\omega=22.5\text{MeV}$ ,  $q=0.4\text{fm}^{-1}$ )のほぼ2倍程度であった。これは $q$ の減少による形状因子の増加と散乱電子の測定角度 $\theta_n$ の減少によるMott散乱の増加を考慮すれば、ほぼ一致した結果といえる。

### 5.3 角分布

角分布(第14図)は5.1より $n_0$ のみを取り出したものであるが、23.5MeVより1MeVごとに26.5MeVまでを図に示した。23.5MeVにおいては、M.Cavinato等のRPA計算<sup>8)</sup>の予測と、ほぼ同じ分布を示している。実線は $20^\circ$ で規格化した相対値である。



第14図 角分布。実線はM.Cavinato等のRPA計算<sup>8)</sup>の予測値である。



第14図 続き。

## §6. 結 論

(e, e' n) 同時計数実験においてシールドを強化すれば、十分なS/N比で、角分布を測定できることがわかった。また、巨大共鳴のピークが観測でき、われわれの測定の正しさをより示す結果となった。

今後は、統計精度をあげ、反移行運動量方向側の角分布を測定することや、巨大共鳴の幅を出すために21MeV付近からの励起関数をとりたいたため、中性子検出器の閾値を下げることを行いたい。

また、中性子検出器の検出効率、現在計算コードを使って算出しているが、実験により検出効率の絶対値を決めることを行いたい。

## 参 考 文 献

- 1) 鈴木 伸介他 : 核理研研究報告 **20** (1987) 385.
- 2) S. C. Filtz *et al.*: Phys. Rev. **143** (1966) 790.
- 3) N. Bezić *et al.*: Nucl. Phys. **A 128** (1969) 426.
- 4) B. C. Cook *et al.*: Phys. Rev. **143** (1966) 724.
- 5) Y. Torizuka *et al.*: Phys. Rev. Lett. **25** (1970) 874.
- 6) A. Yamaguchi *et al.*: Phys. Rev. *C* **3** (1971) 1750.
- 7) J. R. Calarco: *Proc. 1980 RCNP Int. Sym. Highly Excited States in Nucl. Reactions, Osaka, 1980.*
- 8) M. Cavinato *et al.*: Nucl. Phys. **A 444** (1985) 13.
- 9) V. V. Balashov *et al.*: Nucl. Phys. **A 345** (1980) 367.
- 10) 須田他 : 核理研研究報告 **17** (1984) 417.
- 11) V. McLane *et al.*: *Neutron Cross Sections, Vol.2, BNL.*
- 12) 長尾 真実子他 : 核理研研究報告 **6** (1973) 22.
- 13) 福田 茂樹他 : 核理研研究報告 **6** (1973) 201.
- 14) 寺沢, 小山田による弾性散乱計算コード.
- 15) C. W. de Jager *et al.*: *Atomic data and nuclear data tables 14* (1975) p.470.
- 16) R. J. Kurz: University of Colorado Computer Program (unpublished).

## (e, e' $\gamma$ ) 反応による原子核構造の研究

教養部, 核理研\*, 情教センター\*\*

坪田 博明・宮瀬 晴久・野村 昌弘\*

川原 英明\*・田中 陽\*・玉江 忠明\*

菅原 真澄\*・川添 良幸\*\*

### §1. 序 論

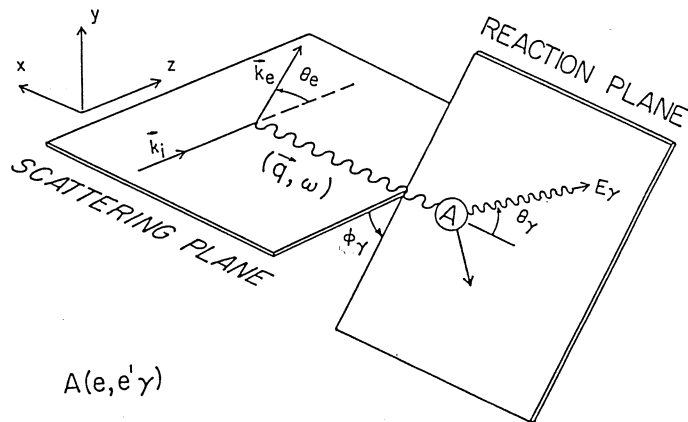
本研究の実験は1986年に2回, 1987年の終りに1回の3回に分けて行われた。これらの結果の一部は既に核理研研究報告に報告されている。<sup>1)2)</sup> 本報告は, 1986年に行われた<sup>12</sup>Cの15.1 MeVについての結果, <sup>58</sup>Niについての予備実験の結果及び1987年の<sup>58</sup>Niの本実験での測定結果(データは解折続行中)についてのまとめを示す。

電子散乱を用いる方法は, 原子核構造研究にとって非常に有用な方法であることが知られ, 古くからこの方法によって多くの原子核構造についての情報を得てきた。電子散乱は原子核と電磁場との相互作用であり, 理論的取り扱い方は比較的良好に知られている。しかしこの反応は, 従来単一の多重極度転移について, 又主として標的核のスピンの0の場合について実験的研究が多く行われてきた。スピンの0でない場合にはいくつかの多重極度転移が混在し測定結果からこれらの多重極度を分離することは極めて難しく, 従ってその実験結果を用いて核構造についての精密な議論をするのは容易でない。この電子散乱の研究を更に有効なものにするために, 標的核の偏極や, 放出粒子と散乱電子との同時計数を行う方法が理論的に計算され提唱されてきた。しかし同時計数法の実験に於てはデューティファクターの大きい加速器が要求されるため, この実験は近年まで企画されることは不可能であった。ところが最近東北大学原子核理学研究施設にデューティファクター約80%のストレッチャーが設置され連続電子線が得られるようになった。このことから本研究では, この連続電子線を利用して (e, e'  $\gamma$ ) 反応による e' と  $\gamma$  との同時計数測定を行い原子核構造についてのより精密な研究を試みた。(e, e'  $\gamma$ ) 反応は粒子放出の閾値以下の束縛状態についての情報を得るのに特に有用である。(e, e'  $\gamma$ ) 反応では以下に示すようにその同時計数によって測定される  $\gamma$  線の角分布は転移多重極度に応じた特徴的な角度分布の形状を示す。従ってスピンの0でない標的核の場合に於ても, 転移多重極度に分離して議論することが可能である。本研究では, 更に, この特徴を<sup>58</sup>Niの巨大共鳴領域に応用することにした。

平面波Born近似では、ある単一多重極度転移に対しての  $(e, e' \gamma)$  の反応の断面積は次のような形で与えられる。<sup>3)</sup>

$$\frac{d^4 \sigma}{d\Omega_\gamma d\Omega_e dE_e dE_\gamma} = \sigma_{\text{Mott}} \left\{ \left( \frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma} \right) V_L A_L |F_L(q)|^2 + V_T A_T |F_T(q)|^2 + V_L \cdot A_L \cdot F_L(q) \cos \phi_\gamma + V_S \cdot A_S \cdot F_\gamma(q) \cdot F_L(q) \cos 2\phi_\gamma \right\} \quad (1)$$

ここで、 $\sigma_{\text{Mott}}$ はMott散乱断面積、 $\Gamma$ 及び $\Gamma_\gamma$ は、夫々ある状態からの全崩壊幅及び $\gamma$ 線崩壊幅である。 $V_L$ 、 $V_T$ 、 $V_L$ 、 $V_S$ は夫々電子の運動学に依存する因数で、 $A_T$ 、 $A_L$ 、 $A_L$ 、 $A_S$ は $\gamma$ 線放出の幾何学的因数である。 $F_T(q)$ 、 $F_L(q)$ は、夫々電子の運動量損失 $q$ に対する形状因子の $q$ 方向に対する横、縦成分を表わす。以下の運動学の計算で用いられる幾何学的図を第1図に示す。

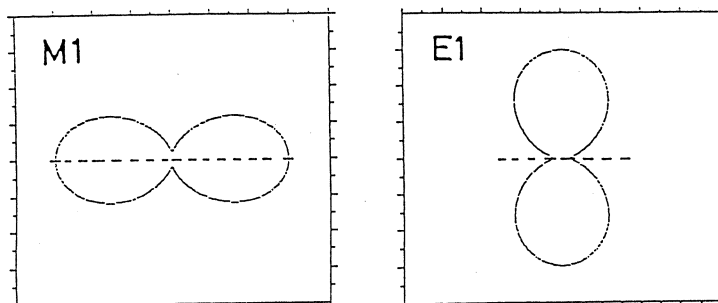


第1図  $(e, e' \gamma)$  同時計数実験運動学。

- $\vec{k}_i$ : 入射電子運動量,
- $\vec{k}_e$ : 散乱電子運動量,
- $\vec{q}$ : 移行運動量,
- $\omega$ : 移行エネルギー。

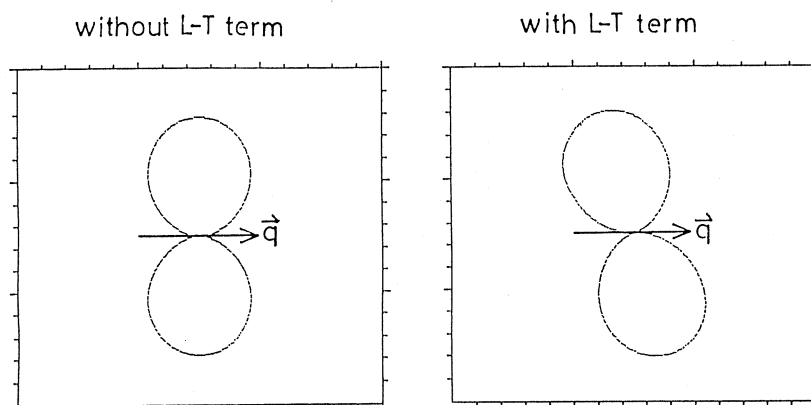
多重極転移の角度依存性をみるため(1)式を用いて放出 $\gamma$ 線の相対的強度の角度依存性を計算してみた。 $V$ 、 $A$ の具体的計算にはDrechsel et al.<sup>4)</sup>の計算式を用いた。入射電子エネルギー130 MeV、散乱電子の角度 $\theta_e = 30^\circ$ 、標的核の励起エネルギー $E_x = 15$  MeV、基底状態への転移としてE1、M1転移の場合の計算結果を第2～4図に示す。第2図は(1)式中の干渉項がない場





第2図 入射電子のエネルギー $E_e=130\text{MeV}$ ，散乱電子の角度 $\theta_e=30^\circ$ ，励起エネルギー $15\text{MeV}$ の条件でのM1，E1励起の $\phi_p$ 方向での $\gamma$ 線の角度分布。(  $\theta_p=90^\circ$ ，運動量移行 $\vec{q}$ は紙面に垂直方向。) 波線は散乱平面を示す。偏極ベクトルが散乱平面上にあるのがわかる。

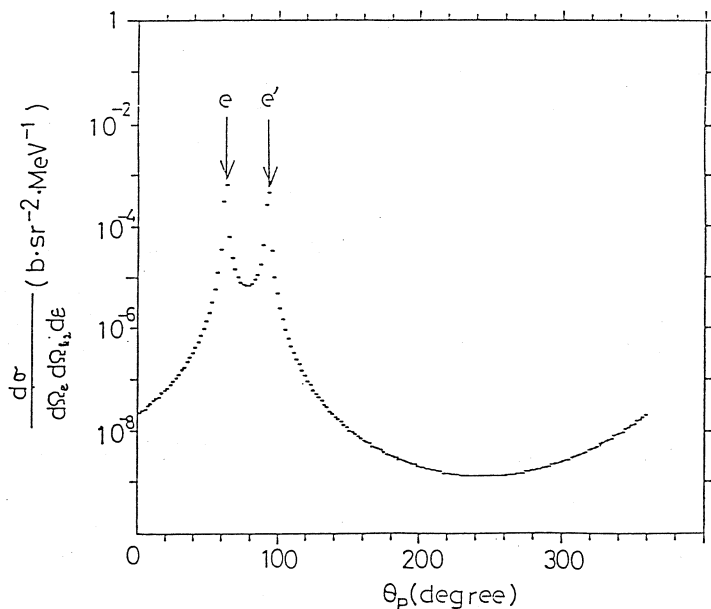
合のものである。この図で分るように，M1とE1転移では角度分布の形状が対称的に異なる。単一のM1転移では散乱平面上で，ドーナツ型の分布を示す。次に縦，横成分の干渉項がある場合の様子をみるためにE1転移についての計算を行ってみた。干渉項がある場合は傾きが生じてくる。従ってこの傾きから，縦，横成分の干渉項の大きさも推定できる。この様子は第3図に示されている。(  $e, e' \gamma$  ) 反応実験では，標的核による制動放射がバックグラウンドとなり



第3図 縦成分-横成分の干渉項を入れた場合と入れない場合での散乱平面上での $\gamma$ 線の角度分布の違い。実験条件は図2と同じ。

これが実験の成否を決める重要な要素となる。又制動放射の強度は原子番号 $Z$ と共に増大してくるため標的核を決めるための大きな要因ともなる。 $^{12}\text{C}$ についての計算例を第4図に示す。この図で分るように，制動放射分布は電子の入射及び散乱方向に極大値を持っており実験装置の配置はこれらのことを考慮して行われる必要がある。

本研究では先づ最初に，よく知られている $^{12}\text{C}$ の $15.1\text{MeV}$ ， $1^+$ 準位からの(  $e, e' \gamma$  ) 反応によって基底状態に転移する $\gamma$ 線(  $\gamma_0$  )を測定し，実験結果が予想されるようなM1転移の形状



第4図 標的核 $^{12}\text{C}$ ，入射電子のエネルギー $E_e=130\text{MeV}$ ，散乱電子の角度 $\theta_e=30^\circ$ ，励起エネルギー $15\text{MeV}$ の条件での制動輻射による $\gamma$ 線との同時計数の散乱平面上での微分断面積。 $e, e'$ はそれぞれ入射及び散乱電子の方向を示す。

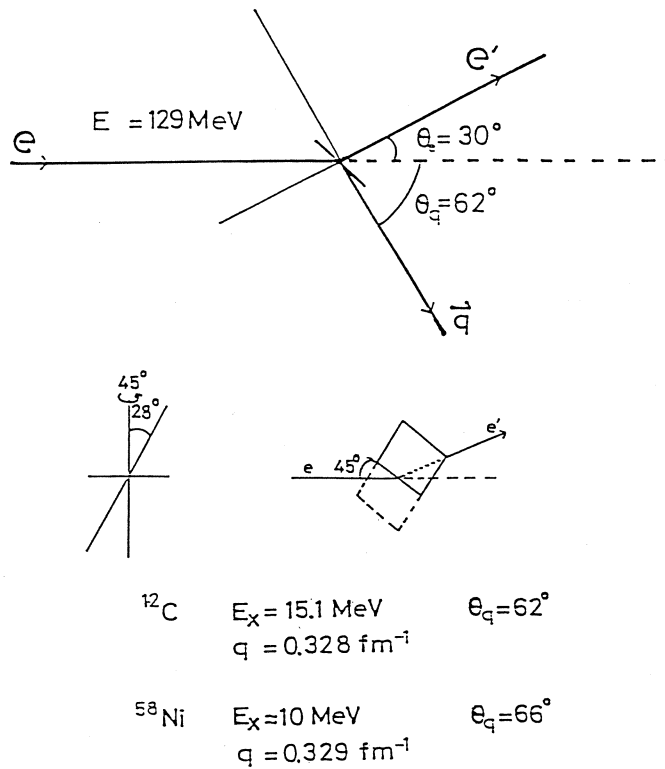
を示すかどうかを検証する。次いで、中重核で、しかもエネルギー状態が比較的混んでいる巨大共鳴領域近傍について、 $(e, e' \gamma)$  反応が利用可能かどうかを（制動輻射のバックグラウンドによる実験の制限）調べるために、 $^{58}\text{Ni}$ の励起エネルギー $E_x = 7 \sim 12\text{MeV}$ の領域についての $\gamma$ 強度を測定してみた。 $(e, e')$ の実験<sup>5)</sup>によると、 $^{58}\text{Ni}$ の $E_x=10\text{MeV}$ 近傍にはM1転移がかなり強く集中していることが示されている。しかしこの領域はE1巨大共鳴領域のすそにあたり、E1成分もかなり強いと予想され、又E2吸収のアイソスカラー部分の存在も予想され、従ってM1, E1, E2が混在していると思われる。このことから $(e, e' \gamma)$ 反応の $\gamma_0$ を測定し、この結果と $(e, e')$ 、 $(\gamma, \gamma')$ 反応等の実験結果と比較して、 $(e, e' \gamma)$ 反応の有効性を検証することを試みた。

本研究の実験は1986年に2回、1987年の終りに1回の3回に分けて行われた。本報告書には主として1986年に行われた $^{12}\text{C}$ の $15.1\text{MeV}$ についての結果及び $^{58}\text{Ni}$ についての予備実験の結果について記す。1987年終りに行われた $^{58}\text{Ni}$ についての測定データは現在解析中であるので、本報告書には、解析途中のデータの一部分を述べるにとどめる。

## §2. 実験方法及び測定結果

### 2.1 実験方法

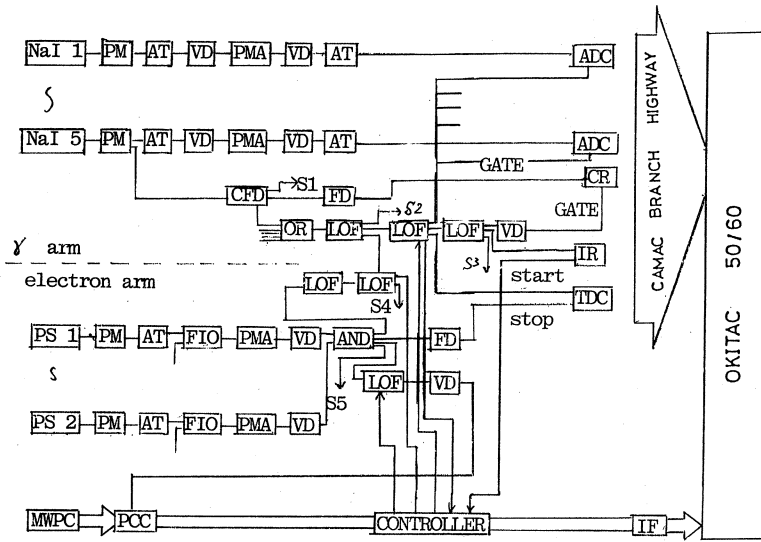
実験は東北大学原子核理学研究施設ライナックに接続された150MeV電子線ストレッチャー<sup>6)</sup> (デューティファクター約80%, 電流約1  $\mu$ A,  $\Delta E_e/E_e=0.2\%$ ) からの連続電子線を用いて行われた。ストレッチャーからの129MeVの連続電子線は散乱槽内の標的核 ( $^{12}\text{C}$ :natural, 202 mg/cm<sup>2</sup>, 薄板;  $^{58}\text{Ni}$ :99.9%濃縮, 49.9mg/cm<sup>2</sup>, 薄板) に照射される。標的核は入射電子と45°に傾け, 更に板の傾きは散乱平面と62°となるように設置した。入射電子線量は標的核後方に設置された二次電子放出モニター (SEM) で測定した。この実験での条件を第5図に示す。又



第5図 実験条件。

この実験のデータ集積にはCAMACシステムを用いた。このブロックダイアグラムを第6図に示す。

( $e, e', \gamma$ ) 反応による散乱電子は2重収束型の磁気スペクトロメーターで運動量分析される。このスペクトロメーターの焦点面には3層の多線比例計数管 (MWPC) が設置され, 更にバックアップ計数管として2層のプラスチックシンチレーション計数管が配置されている。



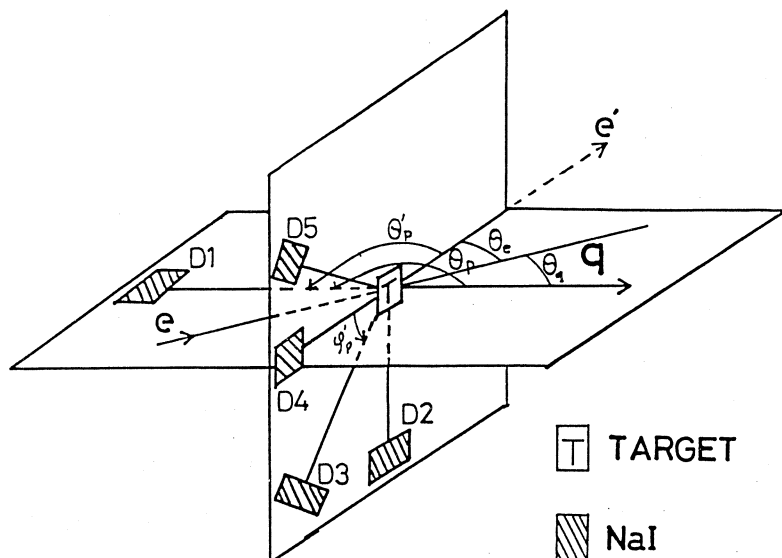
- |     |                                  |     |                              |
|-----|----------------------------------|-----|------------------------------|
| PM  | :高電子増倍管                          | FIO | :linear fan in out           |
| AT  | :attenuator                      | ADC | :analog to digital converter |
| V.D | :variable delay                  | C.R | :coincidence register        |
| PMA | :高電子増倍管用増幅器                      | T.R | :interrupt register          |
| CFD | :constant fraction discriminator | TDC | :time to digital converter   |
| LOF | :logic fan in out                | I.F | :interface                   |

第6図 回路系及びデータ収集系。

図の中のS1~5はスケーラー1~5を意味する。s.e.c.eはそれぞれsingle event, coincidence eventを示している。

この3層のバックアップシンチレーション計数管からの同時計数信号をMWPCの測定ゲートとした。MWPCの各線間の相対効率 $\epsilon$ は弾性散乱電子の $\epsilon_0$ すその、構造の見あたらない部分の計数値に対して一次曲線をフィットしてもとめた。又絶対効率 $\epsilon_a$ は電子弾性散乱を測定し、計算値との比較から決めた。(但しこの場合はSEMの効率も含めたもの)。又この実験でのMWPCのエネルギー分解能は $E_e = 129\text{MeV}$ で約250keVである。

( $e, e' \gamma$ ) 反応による $\gamma$ 線は数組のNaI(Tl) 検出器で測定されたが、これらの検出器は先に述べたような運動学を考慮して、M1, E1転移の区別ができるだけ容易に行えるように配置を工夫した。第7図は $^{12}\text{C}$ の15.1MeV準位及び $^{58}\text{Ni}$ の予備実験で用いられた場合の配置である。 $^{58}\text{Ni}$ の本実験では第7図の中のD2(真下)を除いた4個の検出器で測定を行った。(第7図の角度の記号は第1図のものと幾分異なることに注意)



第7図  $\gamma$ 線検出器の配置図。 $\gamma$ 線検出器の位置を示すときは通常の $(\theta_p, \phi_p)$ と定義が違  
う。 $\gamma$ 線検出器の位置を示すときはこの図で定義された $(\theta_p, \phi_p)$ を使用する。  
 $\theta_p'$ は散乱電子方向との角度で、入射電子と散乱電子との波を $\theta$ 、入射電子と運動量  
移行との角を $\theta_q$ とすると、

$$\theta_p' = \theta_p - (\theta_e + \theta_q)$$

の関係がある。 $\phi_p'$ は散乱電子方向を含む散乱面に垂直な平面( $\gamma$ 線検出器D2~5  
を含む平面)上で、 $\gamma$ 線検出器と散乱面との成す角である。 $\phi_p'$ は、

$$\phi_p' = \phi_p \text{ である。}$$

第1表 NaI検出器、配置等の実験条件

検出器	大きさ	距離	立体角	効率
D 1	4"×4"	85cm	11msr	71 %
D 2	3"×3"	23cm	37msr	68 %
D 3	3"×3"	35cm	25msr	68 %
D 4	3"×2"	33cm	30msr	53 %
D 5	3"×3"	38cm	21msr	68 %

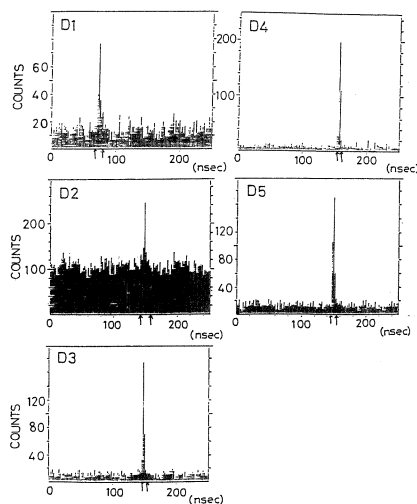
検出器	散乱電子方向を基準にした角度 ( $\theta_p', \phi_p'$ )	運動量移行 $q$ を基準にした角度	
		$^{12}\text{C}$	$^{58}\text{Ni}$
D 1	(90, 180)	(182, 0)	(186, 0)
D 2	(180, 270)	(270, 90)	(270, 90)
D 3	(180, 225)	(271, 45)	(274, 45)
D 4	(180, 180)	(272, 0)	(276, 0)
D 5	(180, 150)	(272, -30)	(275, -30)

この実験で行われたNaI(Tl) 検出器の仕様, 配置を表1にまとめる。又表には幾何学的に計算した検出効率も示してある。 $\gamma$ 線のスペクトルの数え落しを補正するために,  $\gamma$ 線検出器の $\gamma$ 線のエネルギーに対する応答関数が必要であるが, 正確な応答関数は現在検討中である。最初の近似としてBergere et al.<sup>7)</sup>の3"×3"NaI(Tl) 検出器についてのモンテカルロ法による計算結果を用いた。 $\gamma$ 線検出器のエネルギー校正は<sup>137</sup>Cs (0.66MeV), <sup>22</sup>Na (1.28MeV) 及びAm+Be (4.4MeV) の $\gamma$ 線源を用いて行われたが, 約12MeVまでの外挿のため幾分誤差が生ずる。又更に重要な問題は, 測定中, バックグラウンドのための光電子増倍管の電流が過剰となり, 増幅度が低下する効果があらわれることである。この増幅度の変動の有無を検証するため, 電子線照射前後で検出器系のエネルギー校正を行った。この効果は検出器の蔽遮にも大きく依存するが, 本実験では, 測定の途中でチェックを行い, 電子線強度を加減したりして, この光電子増倍管の増幅度変動を最少になるように注意した。この問題は (e, e'  $\gamma$ ) 反応の実験で最も注意しなければならないものの1つである。

## 2.2 測定結果

以上のようなMWPC及びNaI(Tl) 検出器系によって得られた, 諸スペクトルを以下に示す。但し<sup>58</sup>Niの本実験のデータは解析途中のものである。

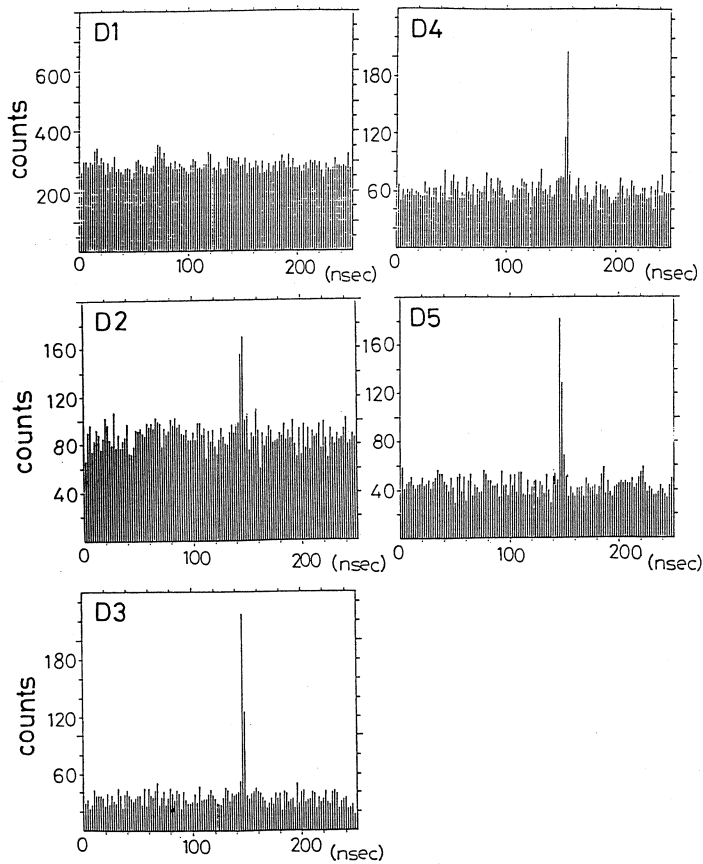
第8, 9図は散乱電子と放出 $\gamma$ 線との時間差スペクトルである。図中のDの記号は第7図の検出器の番号である。第8図は<sup>12</sup>Cの15.1MeV状態からの $\gamma$ 線の結果である。<sup>12</sup>Cは



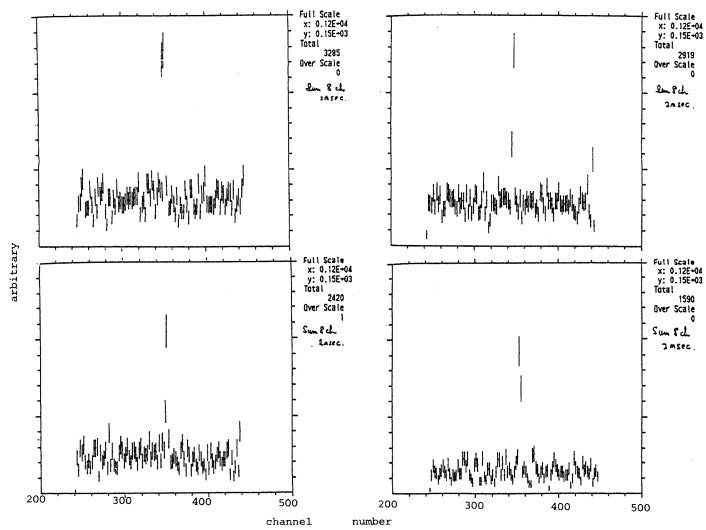
第8図 <sup>12</sup>C Part I の時間スペクトル。  
図に示した範囲の中に真の事象の中にはバックグラウンドである内部放射の $\gamma$ 線の事象も含まれている。

(ある期間を置いて) 2回の実験が行われたが ( $\gamma$ 線検出器の波高閾値が幾分異なる。PART I, PART II と記号を付ける。) 図のものはPART Iのものである。S/N比はD2で1.2/1, D4では11/1である。第9図は<sup>58</sup>NiのEx $\approx$ 10MeVの時間差スペクトルである。D1のS/N比は極めて悪いがこれは第1表に示されたように, 使用されたNaI(Tl) の大きさが4"×4"で, 他の検出器に比べて大きく, 又標的核の距離が他の検出器に比べてかなり離れているため, ルームバックグラウンドが効くためである。本実験ではD1, D4共に3"×3"のサイズ





第9図  $^{58}\text{Ni}$ の時間スペクトル。予備実験で得られたもの。

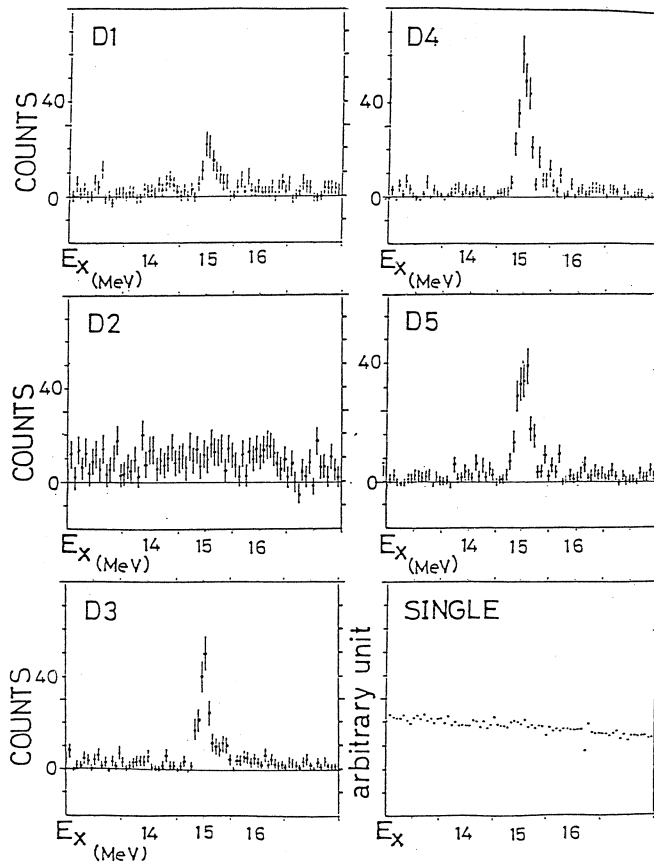


第10図  $^{58}\text{Ni}$ の時間スペクトル。本実験結果。

の検出器にし、D1の距離も30cmにして他の検出器と類似の測定条件にした。その結果の時間差を第10図に示す。このスペクトルのS/N比は極めて良く改善されていることが分る。

$^{12}\text{C}$ の断面積をもとめる場合には15.1MeV準位と隣接の準位とは約1MeV離れているため、他の準位からの基底状態への転移 $\gamma$ 線( $\gamma_0$ )をある程度区別できる。このことから核による制動輻射によるバックグラウンドを推定することができる。もとめた $^{12}\text{C}$ の断面積はこのバックグラウンドを除いたものである。しかし $^{58}\text{Ni}$ の $E_x=10\text{MeV}$ 近傍では準位が混んでいるため制動輻射の寄与を、測定データから決めることができないため断面積にはこのバックグラウンドが含まれている。

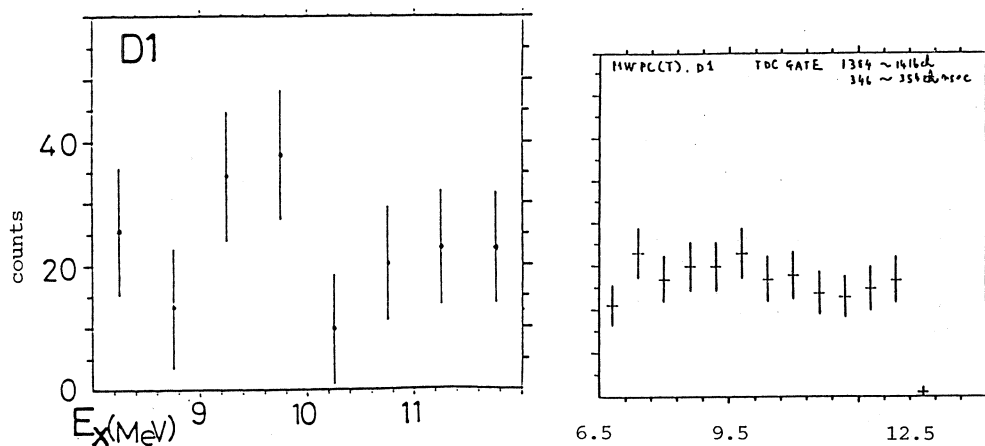
第11図は散乱電子スペクトルの $^{12}\text{C}$ の例である。図中のSINGLEは散乱電子のシングルスペク



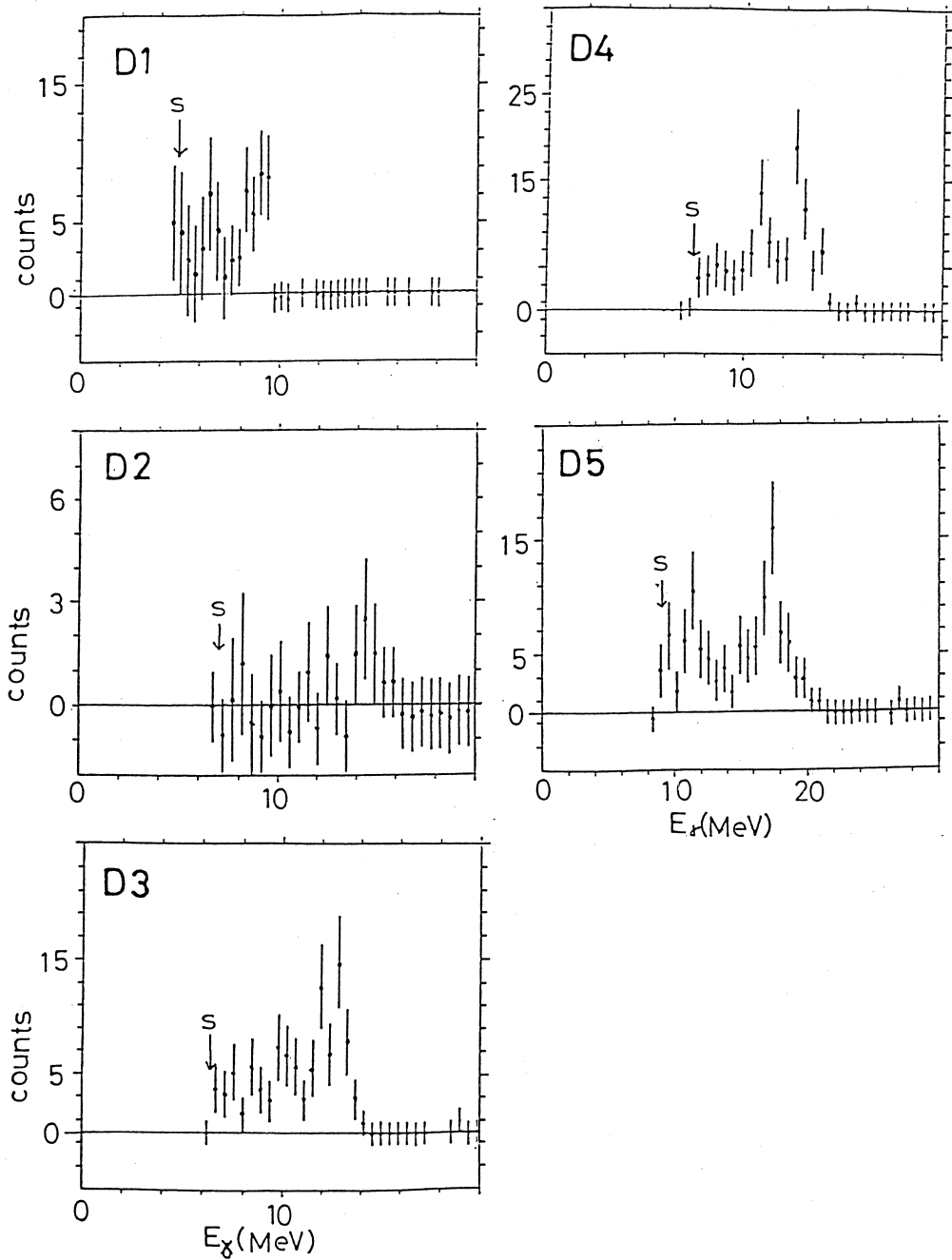
第11図  $^{12}\text{C}$  Part I の $\gamma$ 線の同時計数した散乱電子のスペクトルとシングルのスペクトル。シングルのスペクトルでは見えなかった15.1MeV,  $1^+$ 準位のピークが $\gamma$ 線と同時計数した散乱電子のスペクトルでははっきり見えている。

トルである。他のスペクトルは $E_\gamma=14.6\sim 15.9\text{MeV}$ の $\gamma$ 線との同時計数のもので、ピークがよく見えている。又第12図は $^{58}\text{Ni}$ の場合の予備実験のものと本実験での解析途中の結果との比較を示している。

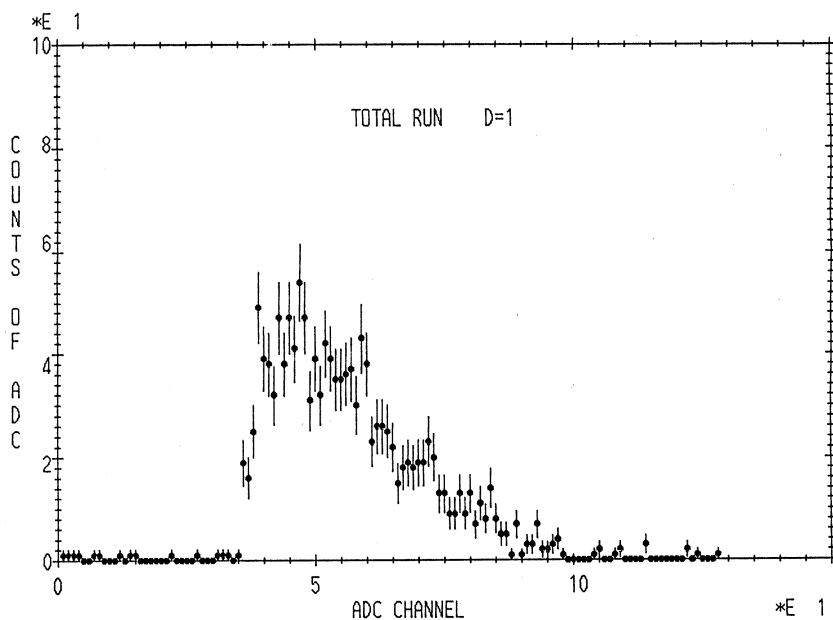
第13図は $^{12}\text{C}$ のPART IIの $\gamma$ 線エネルギースペクトルを示す。図中のSは閾値設定の位置を示す。これらのスペクトルは第8図の時間差スペクトルの矢印で示された範囲内でのスペクトルである。第14, 15図は $^{58}\text{Ni}$ の本実験結果の例を示す。第14図は $^{58}\text{Ni}$ の $E_x=7\sim 12\text{MeV}$ のすべての準位から崩壊する $\gamma$ 線のエネルギースペクトル, 又第15図は $E_x=10\sim 12\text{MeV}$ 励起に対応する散乱電子との同時計数のものである。



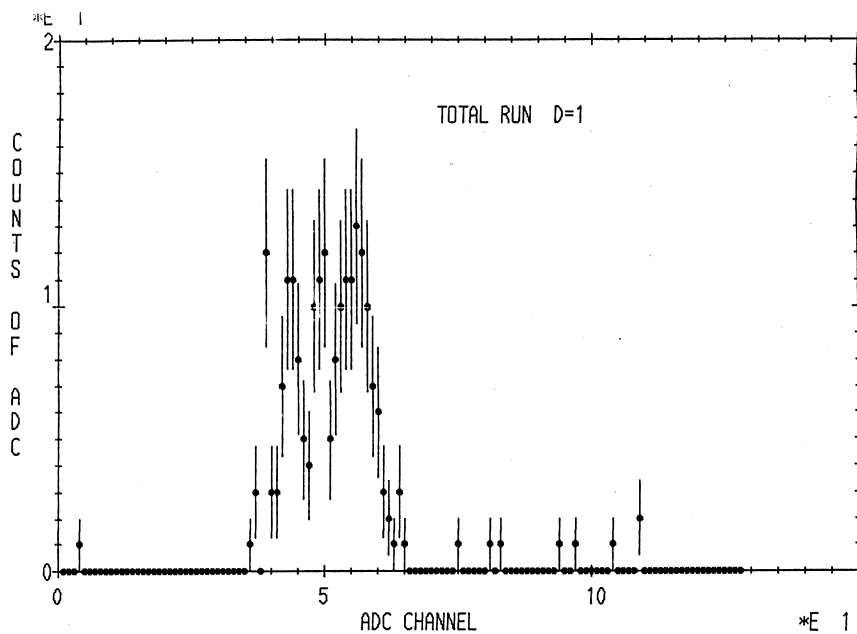
第12図  $^{58}\text{Ni}$ の散乱電子スペクトル。検出器D1についての予備実験(a)のものと本実験(b)との比較。



第13図  $^{12}\text{C}$  Part IIの  $\gamma$ 線のエネルギースペクトル。図のSは設定した閾値を示している。



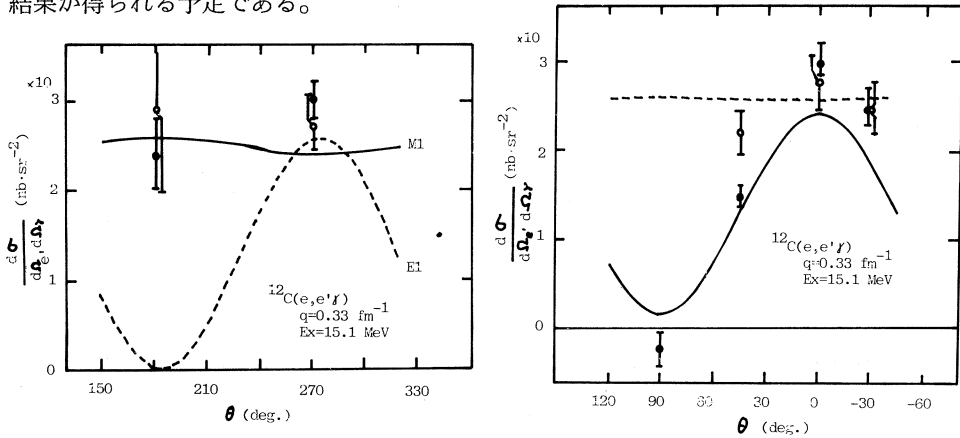
第14図  $^{68}\text{Ni}$ の $\gamma$ 線エネルギースペクトル。(解析中のもの)。  
励起された全ての準位から放出される $\gamma$ 線と核による制動輻射を含む。



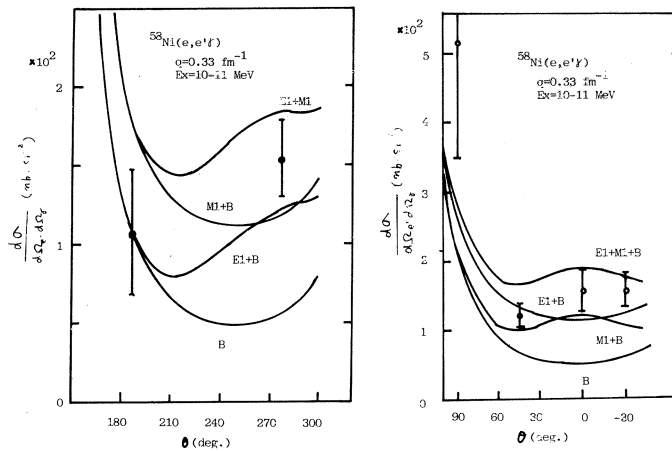
第15図  $^{68}\text{Ni}$ の $\gamma$ 線エネルギースペクトル。(解析中のもの)。  
 $E_x = 6.0 \pm 0.5 \text{ MeV}$ の準位から放出される $\gamma$ 線のスペクトル。他は図14と同じ。

### §3. 実験結果と議論及びまとめ

以上のようにして得られた角分布を第16, 17図に示す。 $^{58}\text{Ni}$ については、図に示されたのは予備実験で行われたものであり、本実験の測定データは解析中である。将来もっと精度の良い結果が得られる予定である。



第16図 (a)  $^{12}\text{C}$ の散乱平面上での  $^{12}\text{C}(e, e' \gamma_0)$ の微分断面積の角度分布。●はPart I, ○はPart IIの実験値を示す。実線は15.1MeV,  $1^+$ 準位からの  $\gamma_0$ の角度分布の計算値。  
(b)  $^{12}\text{C}$ の散乱面上に垂直な平面での  $^{12}\text{C}(e, e' \gamma_0)$ の微分断面積の角度分布。●はPart I, ○はPart IIの実験値を示す。実線は15.1MeV,  $1^+$ 準位からの  $\gamma_0$ の角度分布の計算値。



第17図 (a)  $^{58}\text{Ni}(e, e' \gamma_0)$ の微分断面積の散乱平面上での角度分布。実線Bは内部放射の  $\gamma$ 線との同時計数の微分断面積を示す。実線はM1励起, E1励起, E1励起+M1励起による準位からの  $\gamma_0$ の微分断面積を示す。図に示した誤差は統計誤差だけである。  
(b)  $^{58}\text{Ni}(e, e' \gamma_0)$ の微分断面積の散乱面上に垂直な平面での角度分布。実線Bは内部放射の  $\gamma$ 線との同時計数の微分断面積を示す。実線はM1励起, E1励起, E1励起+M1励起による準位からの  $\gamma_0$ の微分断面積を示す。図に示した誤差は統計誤差だけである。



第16図は $^{12}\text{C}$ の15.1MeV、 $1^+$ 準位からの $\gamma_0$ の角度分布である。実験が2回にわたって行われたので夫々に得られた結果をPART I, PART IIと区別して示してある。ここで縦棒は統計誤差のみを示す。十分な測定時間が得られなかったので計数が少なく誤差がかなり大きい、2つのデータはその傾向が良く一致している。第16図(a)は $\phi=0$ の面上での角分布で、2点の角度での測定結果である。図16(b)は散乱平面に垂直な面での $\phi$ についての角分布である。図(a)の $\theta=180^\circ$ の結果と図(b)の $\phi=90^\circ$ の結果は誤差が大きい。これは検出器の前方遮蔽を厚くしたため、計数が少なくなったためである。図中の実線は、 $^{12}\text{C}$ の15.1MeV、 $1^+$ 準位から基底状態へ転移するM1転移についての計算値である。この計算では励起の形状因子としてFlanz et al.<sup>8)6)</sup>の(e, e')反応の実験結果を用いた。又15.1MeV状態から基底状態へ転移する分岐率は( $^3\text{He}$ , t)反応によって求められた値<sup>7)</sup>(0.9)を用いた。この実験で得られた結果は理論的予想と極めてよく一致しており、明瞭にM1転移の形を示している。比較のため、E1転移の角分布の計算結果相対値を図中に点線で示してある。このことは先に予想されたように、(e, e'  $\gamma$ )反応の角分布には、極めて敏感に転移多重極の形状があらわれ、この反応の利用は転移多重極度を決定する有効な手段であることを示している。

第17図は $^{58}\text{Ni}$ の $E_x=10\sim 11\text{MeV}$ についての予備実験での結果である。ここで示された断面積は標的核による制動輻射のバックグラウンドを差し引いていない。図中の実線は、制動輻射B、及び $^{58}\text{Ni}$ の $E_x=10\sim 11\text{MeV}$ から基底状態への転移 $\gamma$ 線についてのE1, M1転移を仮定した時の計算値である。ここでM1励起の形状因子はLindgren et al.<sup>10)</sup>の実験結果を用いた。E1励起の形状因子としては、E1巨大共鳴(ピーク値18.5MeVとした)をローレンツ線と仮定してからもとめた。(  $\gamma$ ,  $\gamma'$  )反応の実験<sup>11)</sup>によると $E_x=10\text{MeV}$ 近傍の状態からの基底状態以外に崩壊する幅は非常に小さいことが示されている。これから、基底状態への分岐比を1とした。得られた予備実験の結果は極めて誤差が大きいので、詳細な議論はできないが、計算結果との比較をみると実験結果はE1, M1の両方の混在を示している。実験の統計精度を良くし、測定点を増すことによって転移多重極が正確に分離できることを示している。尚 $^{58}\text{Ni}$ についての本実験については現在解析中であるが、M1転移強度分布が得られ、又干渉項の寄与の度も得られる見込みである。この結果と(e, e'), (  $\gamma$ ,  $\gamma'$  )反応との比較等から中重核のM1転移についての新しい知見が得られると予想される。

以上の研究結果をまとめると、第1に(e, e'  $\gamma$ )反応は単一の多重極転移の研究について、特に粒子放出の反応閾値エネルギー以下では、極めて有効であることが $^{12}\text{C}$ の15.1MeV準位からの転移を検証することから確かめられた。第2には、複数の多重極転移が混在する場合に於

でも、統計精度のよい実験を行うことによって特定の転移を分離し、更に、(e,e')反応では得られない干渉項についての情報が得られることが<sup>58</sup>Niの結果から予想される。このように(e,e'  $\gamma$ )反応は原子核構造の研究にとって極めて有効であることが本研究で明らかになったが、実験的には留意すべき点も多くあることが分った。一つに制動輻射によるバックグラウンドの問題である。これは原子番号と共に増大するため対照となる原子核が制限される。しかし本研究の結果によると少なくとも<sup>58</sup>Ni核までは検出器系の配置等の工夫によって実験可能であることが分った。又本研究で最も留意したのは多量のバックグラウンドによる光電子増倍管の増幅率の変動であった。(e,e'  $\gamma$ )反応では検出器系の遮蔽は極めて重要な課題である。

多重極転移を原子核に対して系統的に測定することは、原子核構造研究にとって極めて重要である。次の課題としては、本研究で得られた成果を基礎にして、少なくともNi核以下の原子核に対して、(e,e'  $\gamma$ )反応を用いてM1転移やその他の転移について、系統的に測定することである。これによって原子核構造についての新しい知見が得られると予想される。

東北大学原子核理学研究施設の150MeV電子線ストレッチャー稼働にあたって、同研究施設の今野 収氏に多大のお世話になった。又、加速器グループの方々、計測グループの方々にも多くの御援助を戴いた。ここにこれらの方々に感謝の意を表します。

## 参 考 文 献

- 1) 野村昌弘他：核理研研究報告 19 (1986) 179.
- 2) 野村昌弘他：核理研研究報告 19 (1986) 199.
- 3) C.N.Papanicolas *et al.*: Phys. Rev. Lett. 54 (1985) 26.
- 4) D.Drechsel *et al.*: Phys. Rev. 181 (1969) 1383.
- 5) H.Spangenberg *et al.*: Nucl. Phys. A 448 (1986) 21.
- 6) T.Tamae *et al.*: Nucl. Instr. and Meth. A 264 (1988) 173.
- 7) M.J.Bergere *et al.*: Nucl. Instr. and Meth. A 104 (1972) 317.
- 8) J.B.Flanz *et al.*: Phys. Rev. Lett. 24 (1979) 1922.
- 9) D.E.Alburger *et al.*: Phys. Rev. C 5 (1972) 384.
- 10) R.A.Lindgren *et al.*: Phys. Rev. C 14 (1976) 1789.
- 11) K.Ackermann *et al.*: Nucl. Phys. A 372 (1981) 1.

## Study of Photo-absorption Mechanisms at Intermediate Energy Region

T.Suda, I.Nomura<sup>†</sup>, T.Terasawa<sup>†</sup>,  
Y.Torizuka<sup>†</sup>, J.Yokokawa<sup>†</sup>, K.Maeda,  
J.Eden<sup>††</sup>, D.McLean<sup>††</sup> and M.Thompson<sup>††</sup>

*College of General Education, Tohoku  
University, Kawauchi, Sendai 980 Japan*

<sup>†</sup> *Laboratory of Nuclear Science, Tohoku  
University, 1-2-1 Mikamine, Sendai 980 Japan*

<sup>††</sup> *School of Physics, University of Melbourne,  
Parkville, Victoria, 3052, Australia*

We have studied the photo-absorption mechanisms in the photon energy region above the Giant Dipole Resonance (GDR) but below the  $\pi$ -photoproduction threshold using tagged photons. The simultaneous measurements of  ${}^9\text{Be}, {}^{10}\text{B}(\gamma, p), (\gamma, pn)$  cross sections clearly show that the dominance of a two-nucleon photoabsorption process in this energy region.

### §1. Introduction

A photon energy region above the Giant Dipole Resonance (GDR) but below the  $\pi$ -photoproduction threshold is called as the intermediate energy region. This is the region where the total photoabsorption probability becomes minimum. This is due to the fact that one-nucleon emission process,  $(\gamma, N)$  ( $N$ : nucleon), is largely suppressed because of a momentum mismatch between the incoming photon and outgoing nucleon. Then it has been expected that one can obtain the informations on other processes such as the two nucleon involved process. It has been well known that the phenomenological Levinger's quasi-deuteron model accounts for the total photoabsorption cross sections<sup>1)</sup>, which assumes the interaction of a photon with a pn pair (a quasi-deuteron) in nuclei. This fact suggests the importance of photoabsorption by two-nucleons, then the intermediate

energy region has been considered to be adequate for the investigation of the reaction mechanisms that two nucleons are involved. However there had been very restricted such exclusive( $\gamma, N$ ) results and almost no( $\gamma, NN$ ) data in the intermediate energy region. One of the reasons was a lack of monochromatic photon beam source in this energy region. At the Laboratory of Nuclear Science of Tohoku University, the pulsed beam stretcher (SSTR) has been attached to the electron linac<sup>2)</sup> and high duty factor electron beam( $d.f. \approx 80\%$ ) from the SSTR made possible to perform coincidence experiments, like the photon tagging, ( $e, e'p$ ), ( $e, e'\gamma$ ) and ( $e, e'n$ ) experiments. Photo-nuclear experiments such as ( $\gamma, p$ ), ( $\gamma, n$ ) and ( $\gamma, pn$ ) using the photon tagging technique have become available for a wide photon energy range of  $40 \leq E_\gamma \leq 100 \text{ MeV}$ <sup>3)</sup>.

In this brief report, we present the experimental results of  $^9\text{Be}$  and  $^{10}\text{B}$  ( $\gamma, p$ ), ( $\gamma, pn$ ) and ( $\gamma, pp$ ) reactions measured at the Photon Tagging Facility in Sendai.

## §2. Experimental Details

A continuous electron beam from SSTR bombarded a thin Au foil and produced bremsstrahlung. The recoiled electrons were momentum analyzed in the tagging magnet and detected by the 32 electron detectors set in the focal plane. Each detector had the same momentum bite of  $2.6 \text{ MeV}/c$  for an incident electron beam of energy  $E_0 = 130 \text{ MeV}$ . The photon beam was collimated using a series of lead collimators and cleaning magnets, and irradiated a nuclear target. The reaction products such as protons or neutrons were detected by particle detectors in coincidence with the recoiled electron ( $E_e$ ) to define the absorbed photon energy ('tag' a photon) following a simple equation :

$$E_\gamma = E_0 - E_e \quad (1)$$

Figure 1 shows the detector arrangements of ( $\gamma, pn$ ) experiment. Four proton detectors consisting of thin plastic scintillators ( $\Delta E$ ) and NaI( $E$ ) were set at the photon emission angles of  $\theta_p = 30, 45, 65$  and  $90$  degrees. Six neutron detectors (NE213) were arranged 1m from the target at angles consistent with the deuteron photo-disintegration kinematics. In order to identify a charge of the detected particle by the neutron detector, thin plastic scintillators were placed in front of each neutron detector. Target thickness for ( $\gamma, p$ ),

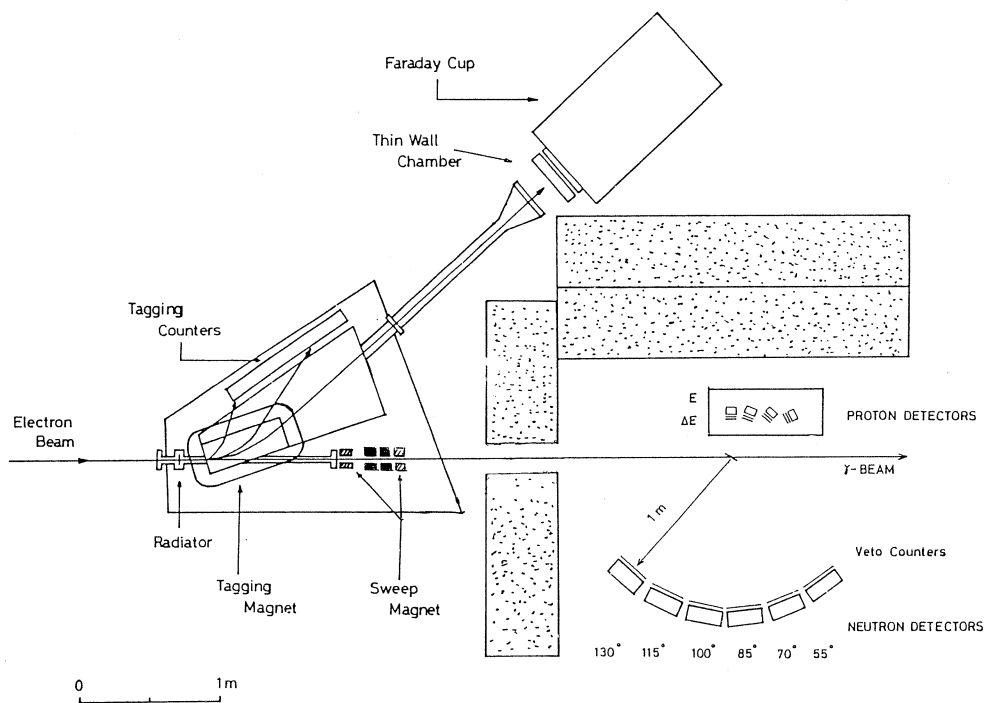


Fig. 1. Experimental arrangements for  $(\gamma, pn)$  experiment.

$(\gamma, pn)$  were 300 and 292  $\text{mg}/\text{cm}^2$  for  ${}^9\text{Be}$  and  ${}^{10}\text{B}$ , respectively. Photon intensity was  $1.5 \sim 2.0 \times 10^6$   $\gamma/\text{sec}$  for  $(\gamma, pn)$  experiment, this intensity was determined in order to keep the signal-to-noise ratio (S/N ratio) less than about 5% for  $(\gamma, p)$ . Typical time resolution of the electronics is about 1.5 nsec.

### § 3. Results and Discussions

Figure 2 shows examples of  ${}^9\text{Be}$  and  ${}^{10}\text{B}(\gamma, p)$  missing energy spectra, where missing energy is defined as;

$$E_m = E_\gamma - E_p - E_R \quad (2)$$

$E_\gamma, E_p$  and  $E_R$  are the energies of the incident photon, ejected proton and recoiling nucleus, respectively. In this brief report, the cross sections in high missing energy region ( $E_m \geq 20$  MeV) of these spectra are presented. The cross sections of the  $(\gamma, p_0)$  region, where the residual nucleus remains in its ground state or several low excited states, will be discussed

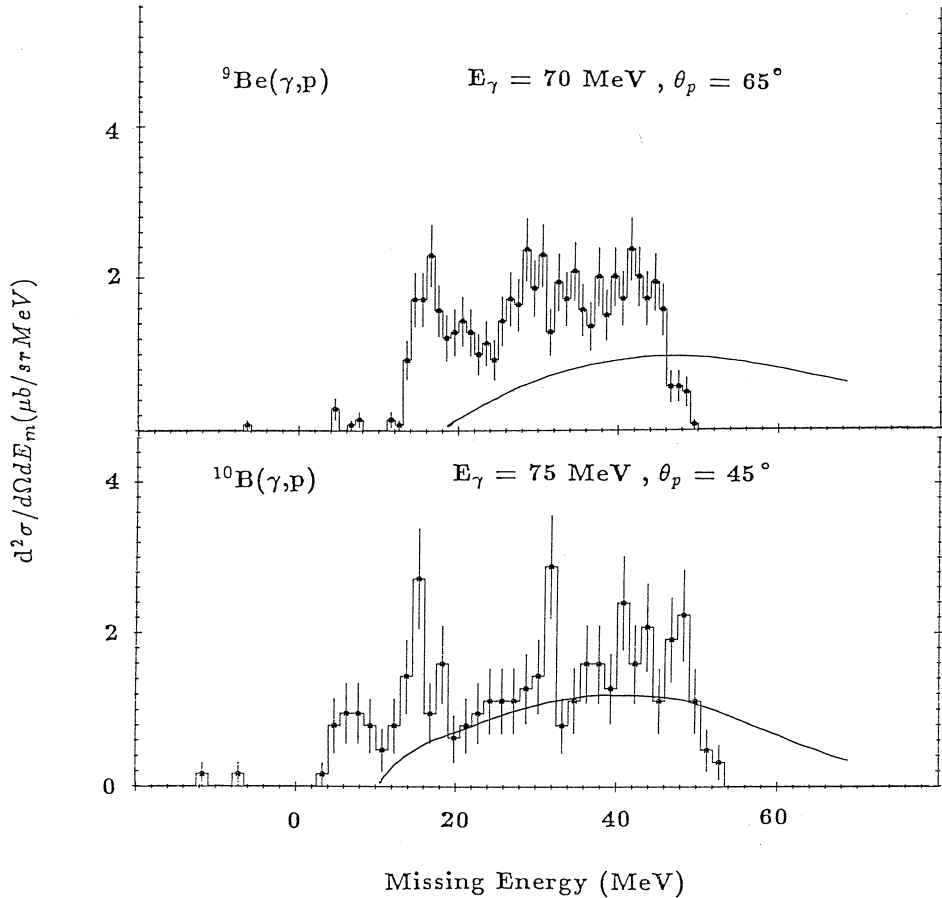


Fig.2. A typical missing energy spectra of the  ${}^9\text{Be}, {}^{10}\text{B}(\gamma, p)$  reactions, plotted as a function of the missing energy. The solid curves represents the results of the quasi-deuteron model (QDM) calculations described in the text.

elsewhere. This high missing energy region is where the 1 s-protons have been observed in the quasi-elastic ( $e, e'p$ ) reaction as shown in figure 3. This figure shows the response function of  ${}^9\text{Be}(e, e'p)$  reaction measured at Saclay<sup>4)</sup> as functions of missing energy  $E_m$  and recoil momentum  $p_m$  which is equivalent to the initial proton momentum in PWIA formalism. The  $p_m$ -dependence of the observed sharp peak at around  $E_m=17\text{MeV}$  is found to be consistent with the 1 p-shell momentum density. There is another bump structure peaked at around  $24\text{MeV}$ , whose  $p_m$ -dependence indicates the contributions of the 1 s-shell protons. If we assume the quasi-free proton knock-out process (QFK) in  $(\gamma, p)$  reaction as in the case of ( $e, e'p$ ), the strength of the high missing energy region should be much smaller



compared with the cross section for the  $(\gamma, p_0)$  region. This is due to the fact that the magnitude of  $1s$  momentum density probed by  $(\gamma, p)$  process in our kinematics (shown by arrows in the figure 3) are much smaller than that of  $1p$ -shell in the frame work of the QFK model. Then it is expected that the strength of the high missing energy region should be much smaller than that of  $1p$ -shell region according to the QFK interpretations.

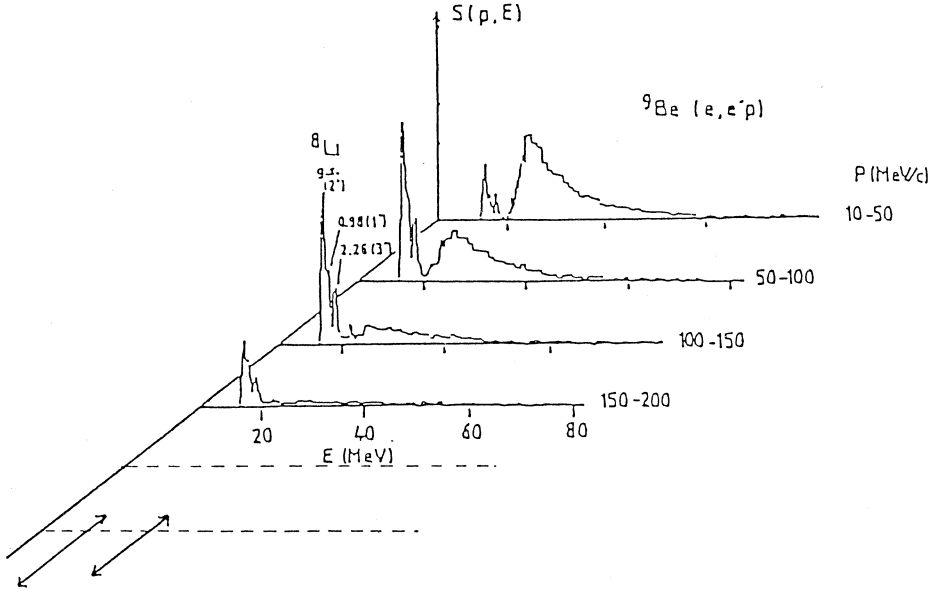


Fig.3. The response function of the  ${}^9\text{Be}(e, e'p)$  reactions measured at Saclay, presented as functions of the missing energy  $E_m$  and the recoiled momentum  $p_m$ .

The cross sections at the high missing energy in the  $(\gamma, p)$  spectra, however, show the comparable magnitude with the  $(\gamma, p_0)$  cross section. This may indicate that there exists some difference of the reaction mechanisms between  $(\gamma, p)$  and  $(e, e'p)$  at least in the high missing energy region. Considering the momentum mismatch for the  $(\gamma, p)$  process, the quasi-deuteron model (QDM) are applied in this missing energy region where the two nucleon emission becomes possible. The QDM is expressed as;

$$\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE_m} = \eta L \frac{NZ}{A} \int d\vec{p} F(\vec{p}) J \frac{d\sigma^{CM}}{d\Omega_d} \quad (3)$$

This model includes the effects of the Fermi motion of the quasi-deuteron as a momentum distribution function  $F(\vec{p})$ . Nucleon transparency factor  $\eta$ , which corrects for the loss of proton flux due to the strong final state interaction, was assumed to be

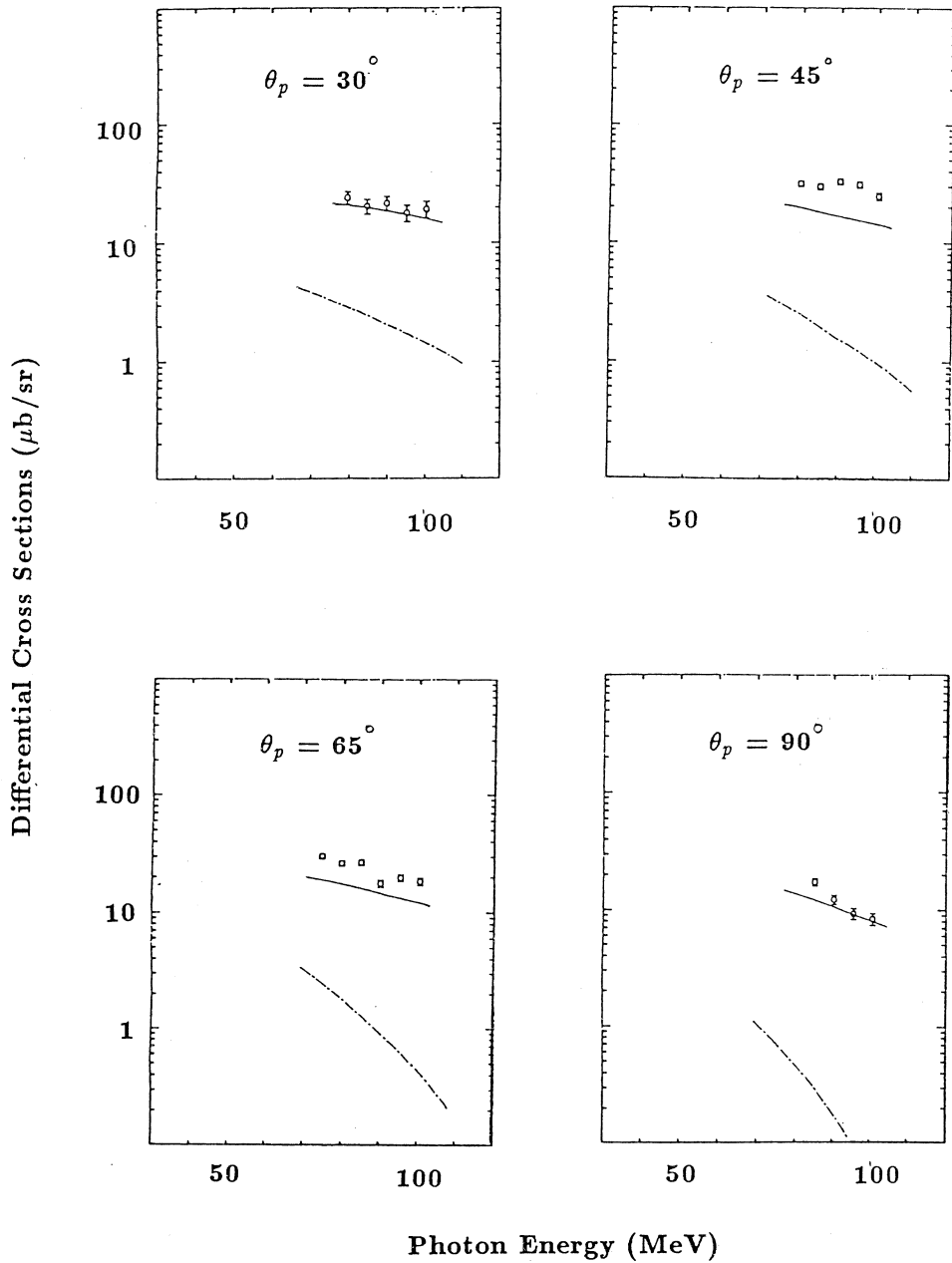
${}^9\text{Be}(\gamma, p)$  cross sections ( $30 \leq E_m \leq 50$  MeV)

Fig.4-1. The differential cross sections of the  ${}^9\text{Be}(\gamma, p)$  reactions integrated over  $30 \leq E_m \leq 50$  MeV in the missing energy spectra. A dot-dashed curve shows the quasi-free knockout (QFK) model calculation using 1s-proton momentum density. The solid curve represents the QDM calculation.

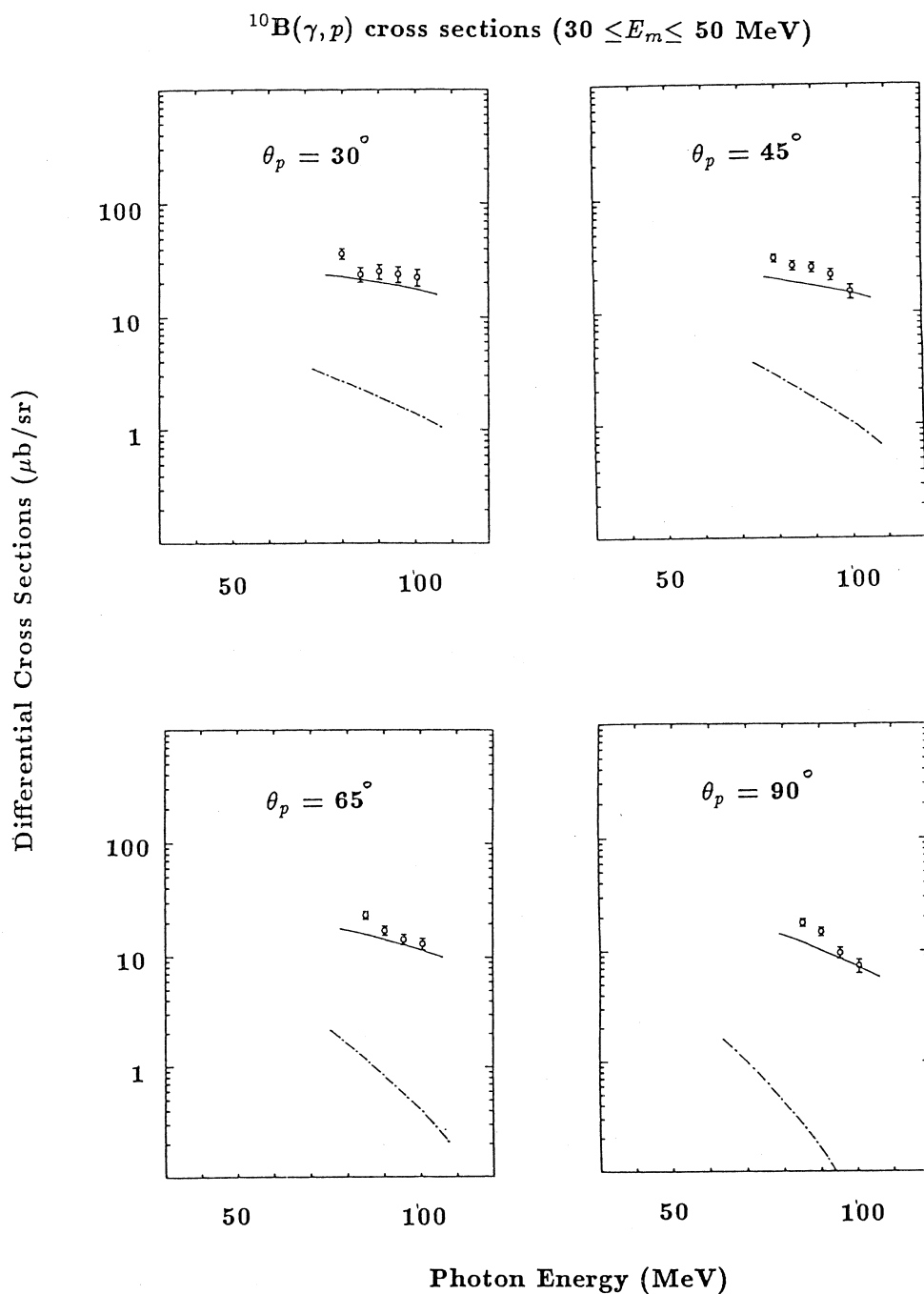


Fig.4-2. The differential cross sections of the  $^{10}\text{Be}(\gamma, p)$  reactions integrated over  $30 \leq E_m \leq 50$  MeV in the missing energy spectra. The theoretical curves are the same as Fig.4-1.

constant at  $0.5^3$ . The Levinger parameter  $L$  was set to 5.6 as suggested by Tavaras *et al.*<sup>6)</sup> The solid curves in figure 4 are the results of the QDM calculations.

For the quantitative discussions, the integrated cross sections in the missing energy region of  $30 \leq E_m \leq 50 \text{ MeV}$  are compared with the predictions of the 1s-shell QFK model and QDM. The results are shown in Fig.4 with data of  ${}^9\text{Be}$  and  ${}^{10}\text{B}(\gamma, p)$  together. As expected from Fig.3, the QFK model underestimates the  $(\gamma, p)$  cross sections about an order of magnitude. The QFK calculation was performed according to Londergan & Nixon<sup>7)</sup> using the 1s-shell momentum distribution. On the other hand, the agreement between the QDM calculations and the data seems satisfactory in both magnitude and the photon energy dependence.

In order to quantify the two nucleon photoabsorption,  $(\gamma, pn)$  cross sections have been measured for  ${}^9\text{Be}, {}^{10}\text{B}$  nuclei. Fig.5 is the proton-neutron angular correlations of

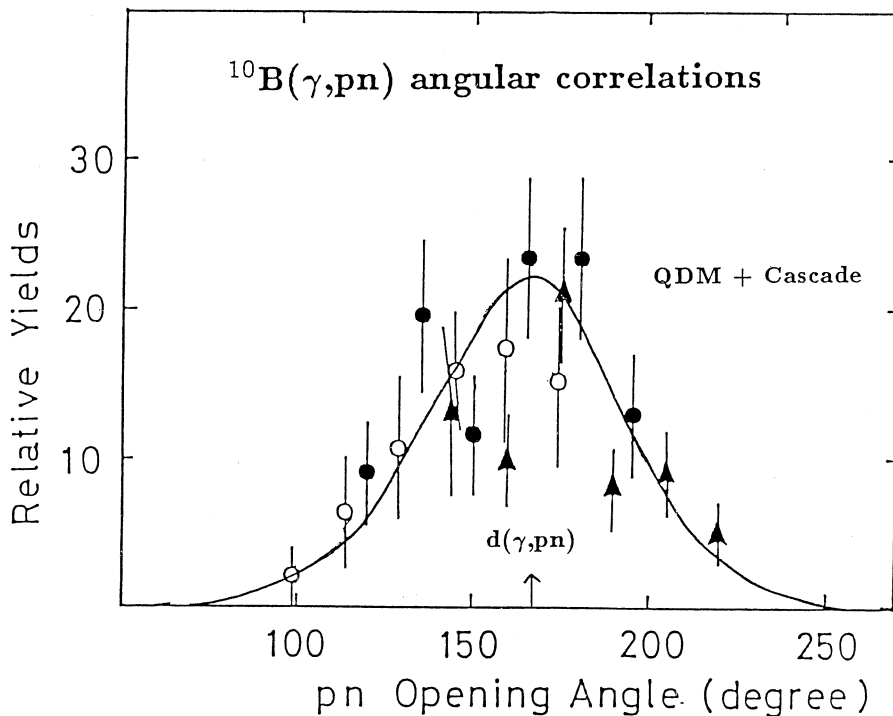


Fig.5. The  ${}^{10}\text{B}(\gamma, pn)$  angular correlation plotted against their pn opening angles. The data are summed for photon energies  $66 \leq E_\gamma \leq 103 \text{ MeV}$ . Open circles, solid circles and triangles represent the  $(\gamma, pn)$  events for proton emission angles of 45, 65 and 90 degree, respectively. The solid curves shows the result of the QDM calculation. The effect of the final state interaction are taken into account by the intranuclear cascade model.

$^{10}\text{B}(\gamma, \text{pn})$  events measured using the detector arrangement shown in Fig.1. Even though statistics are rather poor, the angular correlation forms a broad peak corresponding to free deuteron photodisintegration kinematics ( $\theta_{pn} \approx 160$  degree). It is difficult kinematically to explain this angular distributions on the base of the photoabsorption by a proton, and successive collision with a neutron. This experimental results can be understood as the result of the two nucleon photoabsorption process. The solid curve in this figure represents a simulation results of the QDM. The effects of the final state interaction, which may make the correlation peak somewhat broader, are taken into account by the intra-nuclear cascade model. The QDM calculation reproduces the trend of the data. Fig.6 is a  $(\gamma, \text{p})$  missing energy spectra gated by the  $(\gamma, \text{pn})$  events for  $80 \leq E_\gamma \leq$

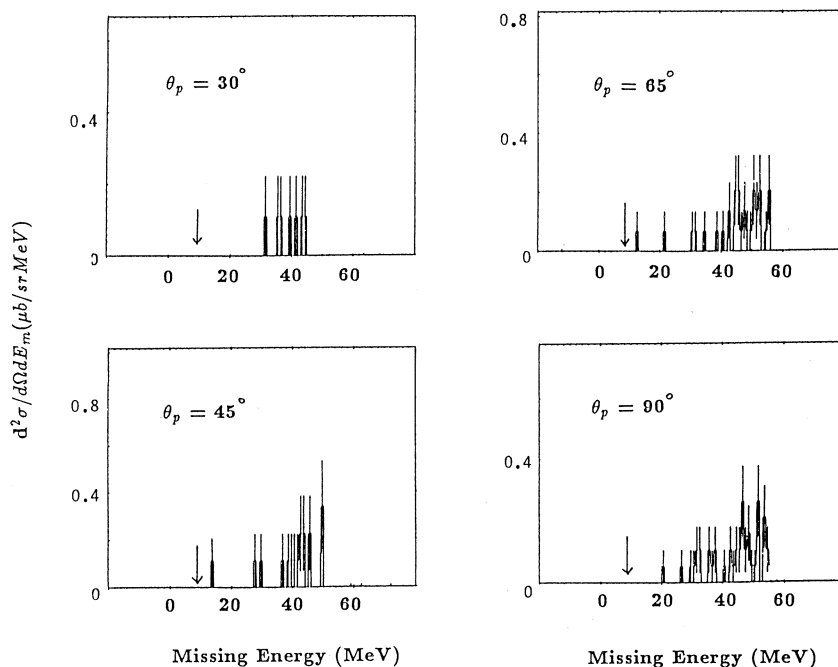


Fig.6. The  $^{10}\text{B}(\gamma, \text{p})$  missing energy spectra constructed from the  $(\gamma, \text{pn})$  events in the photon energy range from 80 to 100MeV for each proton emission angles. An arrow indicated the pn-separation energy.

100MeV. Using the measured angular correlation and the neutron detection efficiency calculated by TOTEFF code<sup>8)</sup>, we can obtain the  $(\gamma, \text{p})$  cross sections, which accompany neutron emission, by integrating over the neutron emission angle and its kinetic energy. The ratio of the integrated  $(\gamma, \text{pn})$  cross sections and measured  $(\gamma, \text{p})$  cross sections are

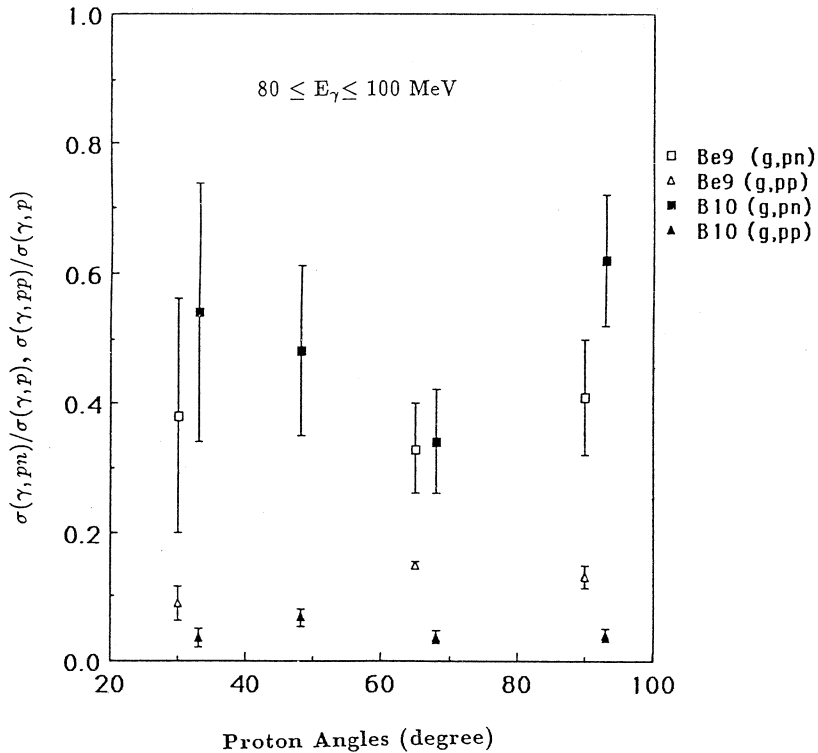


Fig.7. The ratio of the differential cross sections of the inclusive  $(\gamma, p)$  reaction and those of deduced from the pn- and pp-coincidence data for  $80 \leq E_\gamma \leq 100$  MeV. Open and solid squares represent those of the pn data for  $^9\text{Be}$  and  $^{10}\text{B}$ , open and solid triangles indicate the ratio of the pp-coincidence data for  $^9\text{Be}$  and  $^{10}\text{B}$ , respectively.

shown in Fig.7 for  $^9\text{Be}$  and  $^{10}\text{B}$  according to proton emission angles. The only statistical errors are presented in the figure. The systematic error due to the uncertainty of the p-n angular correlations for the integration were estimated to be 15%. The  $(\gamma, pn)$  coincidence data consume about 40-50% of the measured  $(\gamma, p)$  cross sections, and the  $(\gamma, pp)$  data are found to be about 10% of the measured cross sections. The  $(\gamma, pp)$  cross sections were deduced by the same manner as the  $(\gamma, pn)$ . The  $(\gamma, pn)$  angular correlation were assumed due to poor statistics of the detected  $(\gamma, pp)$  data.

It is quite interesting to know how much of the high missing energy  $(\gamma, p)$  cross sections arise from the quasi-deuteron photoabsorption process where the photoneutron is not detected. In order to do this it is necessary for the measured  $(\gamma, pn)$  cross section to be corrected by the neutron attenuations. A value of 0.5 was chosen to be consistent with the proton transparency factor in the QDM. After scaling the  $(\gamma, pn)$  cross sections with

this factor, about 80-100% of the measured  $(\gamma, p)$  cross sections can be attributed to the pn-photoabsorption process. The ratio of the  $(\gamma, pp)$  coincidence cross sections over the  $(\gamma, p)$  cross section are simulated by the QDM with the intra-nuclear cascade model. In this model calculation, the energetic neutron after pn-photoabsorption can knock out a proton in the cascade process, i.e.  $(\gamma, pn)(n, p)$ , and such an event is expected to be measured as  $(\gamma, pp)$ . Simulation results of 7% seems to agree with data, thus it seems to be possible to understand the most of measured  $(\gamma, pp)$  cross sections as an effect of the final state interactions.

As conclusion of this brief report,  ${}^9\text{Be}$  and  ${}^{10}\text{B}(\gamma, p), (\gamma, pn)$  cross sections have been measured in photon energy range at  $50 \leq E_\gamma \leq 100 \text{ MeV}$ . The measured  $(\gamma, p)$  cross sections in high missing energy region, where 1s-shell proton has been observed in the quasi-elastic  $(e, e'p)$  reactions, are reproduced by the Quasi-Deuteron Model. The  $(\gamma, pn)$  cross sections integrated over neutron arm accounts for about the half of the measured  $(\gamma, p)$  cross sections. After the correction of the final state interactions to the  $(\gamma, pn)$  cross sections,  ${}^9\text{Be}$  and  ${}^{10}\text{B}(\gamma, p)$  cross sections in the high missing energy region are confirmed to be attributed to the pn-photoabsorption process.

### References

- 1) J.Levinger:Phys. Rev **84** (1951) 43.
- 2) T.Tamae *et al.*:Nucl. Instr. and Meth. **A 264** (1988) 173.
- 3) T.Terasawa *et al.*:Nucl. Instr. and Meth. **A 248** (1986) 4291.
- 4) J.Mougey *et al.*:Nucl. Phys. **A 262** (1976) 461.
- 5) J.McGeorge *et al.*:Phys. Lett. **179 B** (1986) 212.
- 6) O.Tavaras *et al.*:Lett. Nuovo. Cimento **27** (1980) 358.
- 7) J.Londergan and G.Nixon:Phys. Rev. **C 19** (1979) 998.
- 8) R.J.Kurz:Private communication.

${}^9\text{Be}(\gamma, \pi^+){}^9\text{Li}^*$ による ${}^9\text{Li}$ 高励起状態の研究

核理研, 理学部物理\*, 教養部\*\*

竹下 邦和・加賀谷 聡・島田 太平  
山崎 寛仁・庄田 勝房・山屋 堯\*  
坪田 博明\*\*

( $\gamma, \pi^+$ ) 反応による高励起状態の研究は, 核理研において ${}^{12,13}\text{C}$ ,  ${}^6,7\text{Li}$ について行われてきた。今回我々は,  ${}^9\text{Be}$ について3シフトの予備実験を行ったので, その結果を報告する。

## §1. 序

( $\gamma, \pi^+$ ) 反応はその素過程演算子の特徴により, 反応の閾値付近では原子核の  $\sigma\tau$  モードをほぼ選択的に励起するという他の反応にはみられない著しい特徴を持っており, アイスベクトル型 spin-dipole (SD) 型遷移の研究に適している。ここでいうSD型遷移とは, spin flip する  $1\hbar\omega$  励起 ( $\Delta L=1$ ) を示し, その名前は遷移演算子  $[\mathbf{Y}_1 \times \boldsymbol{\sigma}]_{\sigma_1\tau_2}$  の形に由来する。核理研では ( $\gamma, \pi^+$ ) 反応によるSD型遷移の研究は,  ${}^{12,13}\text{C}$ ,  ${}^6,7\text{Li}$  について行われている。 ${}^{12,13}\text{C}$  のような重い 1p 殻核におけるSD型遷移は, 1p 殻核子が  $2s1d$  殻に遷移するモード (valence 励起) が主である。他方, 軽い 1p 殻核においてはこの他に, 1s 殻核子が 1p 殻に遷移するモード (core 励起) も大きいと考えられる。 ${}^6,7\text{Li}$  については, これら2つのモードのSD型遷移を実験的に調べる目的で実験が行われ<sup>1,2)</sup>, 残留核に何本かのSD状態が発見された。これらのレベルのエネルギー分布及び強度は, Kissener, Eramzhyan らの計算とよく一致している。計算値との比較により, 上記の2つのモードは configurational splitting を起こしていることが判明した。

これらの実験によって, 1p 殻核のSD型遷移の系統的な研究が進みつつあるが,  $A=6, 7$  系では, 低励起状態でさえ, 例えばCohen-Kurath の波動関数<sup>3)</sup>に見られるように, 他の 1p 殻核とは異なった取扱が必要である。従って, 1p 殻核のSD型遷移の系統的な研究の為には, 殻模型がよく成り立っている  $A \geq 9$  の核でのSD型遷移の実験的研究が不可欠である。

## §2. 実 験

実験は東北大学核理研の300MeV電子リニアックを用いて行われた。実験方法は他の文献<sup>4)</sup>



に詳しいので省略する。実験条件は入射電子エネルギー $E_e=200\text{MeV}$ 、そのエネルギー分解能は0.2%、標的の厚さは $129\text{mg}/\text{cm}^2$ 、測定角度は $60^\circ$ で、測定エネルギー範囲は残留核 ${}^9\text{Li}$ の励起エネルギーで0 MeVから16MeVである。

### §3. 解 析

我々のグループで行っている実験は、電子ビームを用いての $(e, \pi^+)$ 反応であり、その測定結果に仮想光子理論を適用して $(\gamma, \pi^+)$ 反応微分断面積を求めている。このような方法で高励起状態を研究する際には、低励起状態からの寄与と準自由粒子過程の寄与が問題となり、解析は困難になる。高励起状態の解析方法として種々の方法が考えられるが、今までのところ、それらの解析を行うには統計精度が足りない。そこで、反応微分断面積の大きい数本の準位を見つける事のみを目的として、以下に述べる解析方法を用いた。

準自由粒子過程の寄与を無視すると $(e, \pi^+)$ エネルギースペクトル $Y(\omega)$ と $(\gamma, \pi^+)$ 反応断面積 $\sigma(E_{\alpha i})$ の関係は、一般に次のような形にかける。

$$Y(\omega) = \sum_{i=1}^n \{ \sigma(E_{\alpha i}) \times \phi(k) \}$$

ここで $\omega$ は、 $\gamma$ 線のエネルギーを入射電子の運動エネルギーとしたときに生成される $\pi$ の運動エネルギーから得られる ${}^9\text{Li}$ での励起エネルギーである。また $k$ は $\gamma$ 線エネルギーであり、これは $\omega$ 、 $E_{\alpha}$ の関数である。 $\phi(k)$ は仮想光子及び標的中で発生する実光子のエネルギースペクトルである。

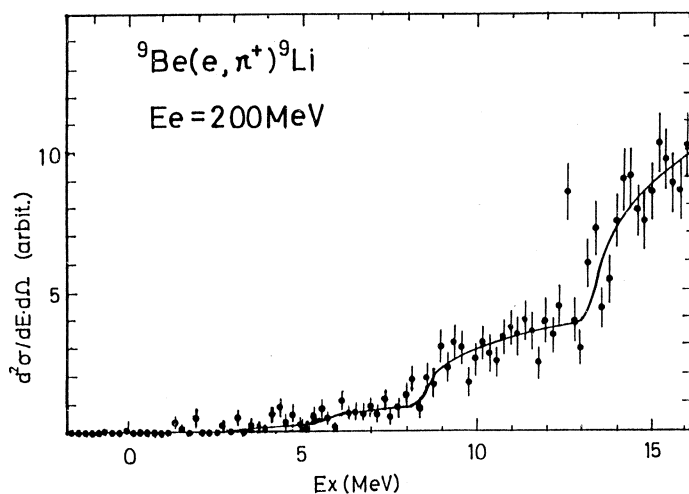
本解析では、残留核の励起エネルギーが既知の準位については反応微分断面積のみを、未知の準位については励起エネルギーと反応微分断面積の両方をパラメータとして、 $\chi^2$ -fittingによりこれらを求めた。但し、既知の準位のうち6.43MeVの準位はスピンの値が $9/2$ 以上であることが知られており、本実験の運動量移行では寄与は少ないと考えられるので、今回の解析では省いた。

### §4. 結果及び考察

実験で得られた $\pi^+$ エネルギースペクトルを第1図に、解析で得られた準位及び反応微分断面積(相対値)を第1表に各々示す。本解析では、8.4MeV及び13.3MeVに新しい準位が発見された。これらの反応微分断面積が比較的大きいのは、準自由粒子過程からの寄与を無視している為であると考えられる。

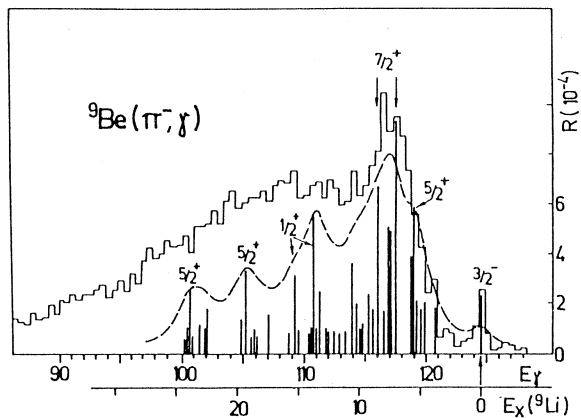
第1表 解析結果。8.4MeV及び13.3MeVは今回発見された準位である。

$E_x$ (MeV)	$J^\pi$	$d\sigma/d\Omega$ (arbit.)	error (%)
0.0	$3/2^-$	0.10	194
2.7	$(1/2^-)$	0.57	85
4.3		0.14	547
5.38		0.15	53
6.43	$\geq 9/2$	-----	-----
$8.4 \pm 0.16$		7.2	9.9
$13.3 \pm 0.15$		17.1	9.7

第1図  ${}^9\text{Be}(e, \pi^+){}^9\text{Li}$ 反応の $\pi^+$ エネルギースペクトル。

実線は解析によって得られた反応微分断面積に光子スペクトルをかけて得られた曲線。

${}^9\text{Li}$ のSD型遷移を調べた実験は、唯一 $(\pi^-, \gamma)$ 反応があるのみである。 $(\gamma, \pi^+)$ 反応の逆反応である $(\pi^-, \gamma)$ 反応の実験結果及びKissener等による理論値を第2図に示す<sup>5)</sup>。残留核の8 MeV及び14 MeV付近にわずかにbumpが見られるが、準自由粒子過程からの寄与が大きく、詳細は不明である。Kissener等によると反応微分断面積の大きい準位として8.4 MeVにvalence励起、13.7 MeVにcore励起が示唆されている。今回発見された準位はそれらに対応すると考えられる。 $(\gamma, \pi^+)$ 反応の場合、準自由粒子過程からの寄与は小さいことが経験的に知られており、8.4 MeV及び13.3 MeVに



第2図  $(\pi^-, \gamma)$  の実験結果及び理論値。

顕著なbreakが見られる。

又  $(\gamma, \pi^+)$  反応は,  $\pi^+$  の検出角度を変えることによって原子核への運動量移行が可変となり遷移多重極度を決定することが出来る。

今後は, 更に統計精度を上げ, より詳細な解析を可能にし, また遷移多重極度を決定するために角分布を測定する予定である。

### 参 考 文 献

- 1) 佐々木修: 博士論文 (1983).
- 2) 遠山伸一: 博士論文 (1985).
- 3) S. Cohen and D. Kurath: Nucl. Phys. **73** (1965) 1.
- 4) 竹下邦和: 修士論文 (1986).
- 5) H. R. Kissener *et al.*: Nucl. Phys. **A 312** (1978) 394.

電子線照射による原子核からの  $\pi^+$  生成断面積の研究

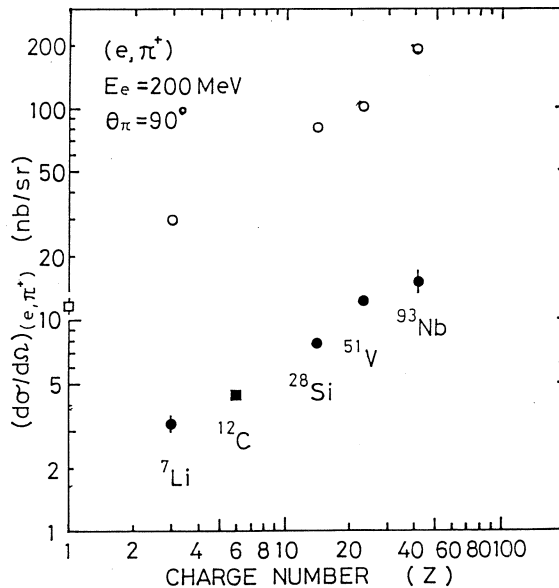
核理研, 教養部\*

島田 太平・庄田 勝房・加賀谷 聡  
 竹下 邦和・山崎 寛仁・坪田 博明\*  
 小林 毅範

東北大学核理研 ( $\gamma, \pi$ ) グループは, 昭和63年度前期9シフトのマシントイムで  $^7\text{Li}$ ,  $^{28}\text{Si}$ ,  $^{93}\text{Nb}$  を標的とした ( $e, \pi^+$ ) 反応のエネルギースペクトルの測定を行なった。この課題について, 未だ解析は完了していないが, 現在までの結果を報告する。

## §1. 実験の目的

以前, 東北大学核理研の ( $\gamma, \pi$ ) グループでは, 準自由過程による中間子生成について調べる為に, 反応のしきい値において  $^7\text{Li}$ ,  $^{28}\text{Si}$ ,  $^{51}\text{V}$ ,  $^{93}\text{Nb}$  を標的とした ( $e, \pi^+$ ) 反応の実験を行なった<sup>1)</sup>。この実験では,  $\pi^+$  中間子の検出角を  $90^\circ$  に限定してエネルギー分布を測定し, このスペクトルを  $\pi^+$  中間子の運動エネルギーについて積分して ( $e, \pi^+$ ) 反応の微分断面積を求



第1図 ( $e, \pi^+$ ) 反応微分断面積の電荷依存性。横軸は標的核の原子番号, 縦軸は反応微分断面積。入射電子エネルギーは200MeV,  $\pi^+$  検出角は  $90^\circ$ 。白丸はFermi gas model による計算値である。

めた。第1図に結果を示す。この実験により次の2点が明らかになった。

1. (反応微分断面積) = (定数)  $\cdot Z^{2/3}$ の関係がある。ここで、 $Z$ は標的核の原子番号である。上記の定数は素過程反応  $H(e, \pi^+)n$  の微分断面積と推定される。しかし測定値は、この推定の  $1/7.5$  である。これは新しい発見であり、反応機構の点からより詳細な検討をすることが重要である。

2. Pauli の排他律を考慮したFermi gas model では、第1図に示すように反応微分断面積の  $Z^{2/3}$ 依存性は再現するが、この計算値の絶対値は実験値よりも約10倍大きい。△領域での実験では、このような抑圧は観測されていない。

このような計算値と実験値との不一致の原因を解明する為に、次の様な条件の下で詳しい検討を行なった。入射電子エネルギーを前回の実験と等しくおいて、中間子の検出角を変えてエネルギースペクトルの測定を行なった。検出角を変えるということは、原子核への移行運動量を変えるということであり、従って反応に寄与する遷移多重極度の異なる領域で測定し、検出角  $90^\circ$  の実験を確認することを意味している。

## §2. 実 験

### 2.1 実験装置

実験は、東北大学核理研の300MeV電子線形加速器を用いて行なった。第二実験室の散乱槽内に設置した標的に電子線を照射して、 $\pi^+$ 中間子を生成した。この $\pi^+$ 中間子をmomentum acceptance 5.3%の二重集束型磁気スペクトロメーターによって運動量分析した後、多芯比例計数管とその後ろにあるバックアップカウンターとから成る検出器によって検出した<sup>2)</sup>。多芯比例計数管は検出粒子の運動量を決定する為にある。またバックアップカウンターは、プラスチックシンチレータとチェレンコフカウンターから成り、粒子識別を行なう。電子線量は標的上流側のcore monitor と標的下流側のSEMとによって測定した。

### 2.2 実験条件

実験条件を第1表に示す。電子線エネルギーと標的核種は、前述の検出角 $90^\circ$ での実験との整合性から定めた。標的の原子数は標的の面積及び質量を測定することによって決めた値である。 $\pi^+$ 中間子の検出下限エネルギーは、生成した $\pi^+$ 中間子が検出される前に失う運動エネルギーによって決まる。なお<sup>91</sup>Vの標的はマシンタイムの都合により今回は省略した。

第1表 実験条件。

入射電子エネルギー	200MeV
ビーム分解能	0.18%
$\pi^+$ 中間子検出角	45°, 135°
$\pi^+$ 中間子検出エネルギー	15MeV以上
標 的	厚 さ
LiH	221mg/cm <sup>2</sup>
<sup>7</sup> Li	120
<sup>28</sup> Si	132.0
<sup>92</sup> Nb	133.5

### §3. 実験の解析と結果

#### 3.1 (e, $\pi^+$ ) 反応のエネルギースペクトル

測定値より (e,  $\pi^+$ ) 反応のエネルギースペクトルは、次式によって与えられる。

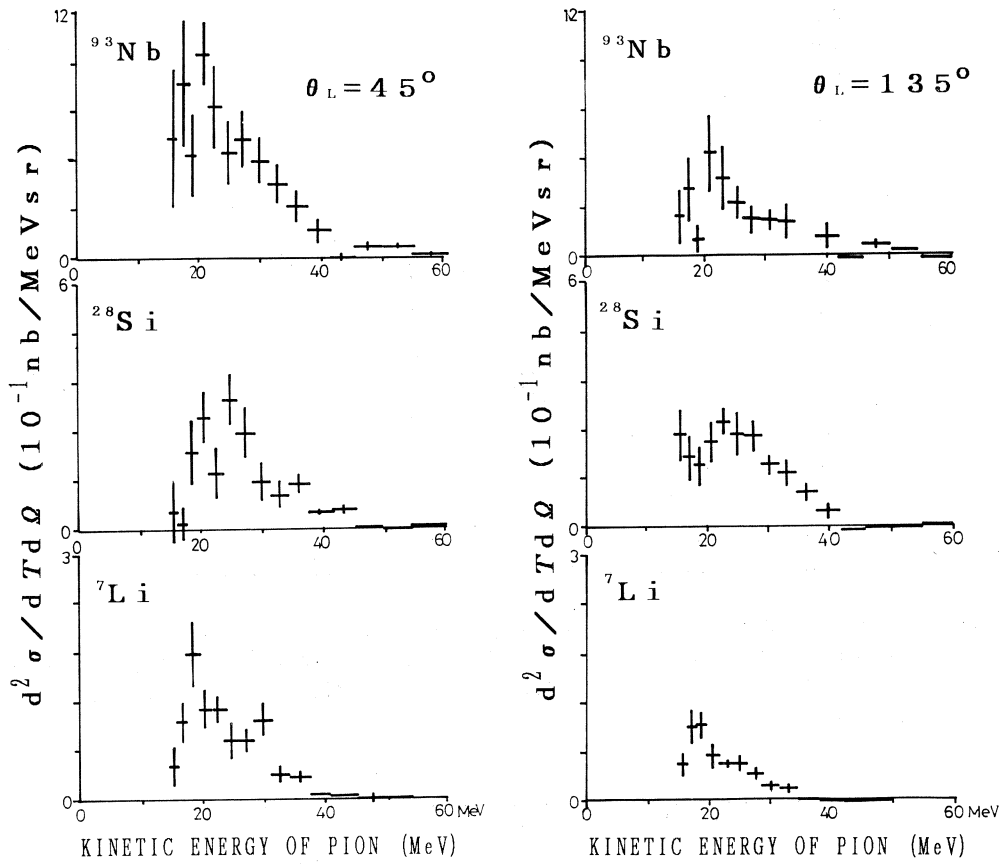
$$\frac{d^2\sigma}{dT_x d\Omega} = \frac{N_\pi}{\Delta\Omega \bar{\eta}_\pi \eta_{SEM} Q N_T \Delta T_x \lambda^{-1}(T_x) (1-D) \cdot F} \quad (1)$$

ここで、 $N_\pi$ は測定された $\pi^+$ 中間子の個数、 $\Delta\Omega$ はスペクトロメーターの立体角、 $\bar{\eta}_\pi$ は $\pi^+$ 中間子の検出効率、 $\eta_{SEM}$ は線量計の効率、 $Q$ は入射電子線量、 $N_T$ は標的原子数、 $\Delta T_x$ は測定した $\pi^+$ 中間子の運動エネルギー幅、 $\lambda^{-1}(T_x)$ は $\pi^+$ 中間子の自然崩壊に対する補正係数、 $D$ はデータ収集のdead timeである。 $F$ は総光子数と仮想光子数の比である。ここで反応に関与する光子は実光子と仮想光子であるが、仮想光子のみの反応を考えた。この時、仮想光子と実光子のエネルギースペクトルが相似であると近似した。得られたスペクトルを第2図に示す。

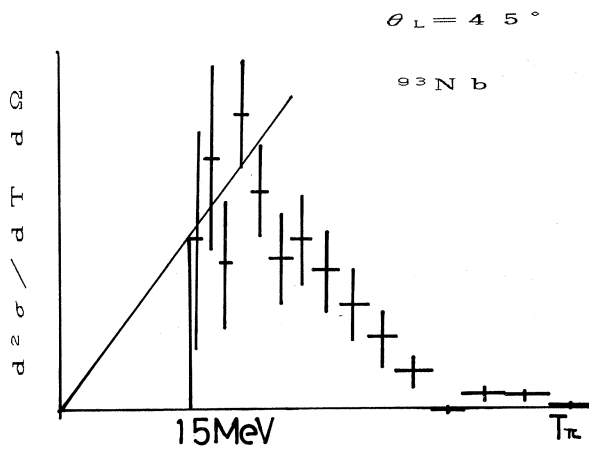
#### 3.2 (e, $\pi^+$ ) 反応の微分断面積

(1)で得られたエネルギースペクトルを $\pi^+$ 中間子の運動エネルギーについて積分すると、微分断面積が得られる。ここで、§2の(2)で述べたように $\pi^+$ 中間子の検出可能な運動エネルギーは15MeV以上に限られている。従って15MeV以下のスペクトルを、原点を通り $\pi^+$ 中間子の運動エネルギーが15MeVの点での値が近傍3点の値の平均値となるような直線により近似できると仮定した(第3図)。

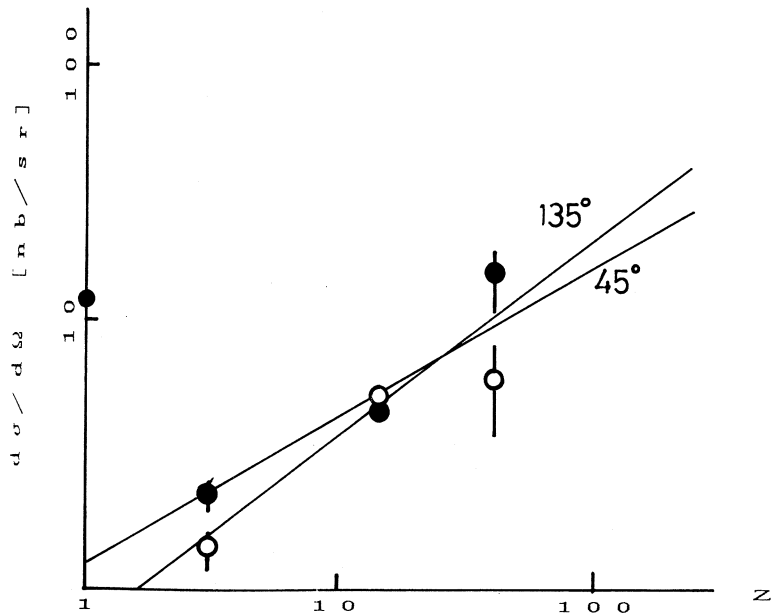
第4図に、以上のようにして求めた微分断面積を示す。ただし横軸は標的核の原子番号であり、縦軸は微分断面積である。第4図において、検出角45°と135°での微分断面積についてそれぞれ



第2図 本実験で得られたエネルギースペクトル。横軸は $\pi^+$ 中間子の運動エネルギー、縦軸は単位エネルギー幅あたりの微分断面積。



第3図 運動エネルギー15MeV以下の測定できない領域のスペクトルは、図に示す直線により近似できると仮定した。



第4図 本実験で得られた  $(e, \pi^+)$  反応微分断面積の電荷依存性。黒丸は検出角 $45^\circ$ ，白丸は検出角 $135^\circ$ の微分断面積。横軸は標的核の原子番号，縦軸は反応微分断面積。入射電子エネルギーは $200\text{MeV}$ である。直線は  $\sigma = \sigma_0 Z^x$  の関数形を仮定した fitting の結果である。

第2表  $\sigma = \sigma_0 \cdot Z^x$  の関数形を仮定した fitting の結果。

検出角	$\sigma_0$	x
$45^\circ$	$1.10 \pm 0.26 \text{ nb/sr}$	$0.59 \pm 0.10$
$135^\circ$	$0.60 \pm 0.12$	$0.79 \pm 0.10$

$$\sigma = \sigma_0 Z^x \quad (\text{パラメータは } \sigma_0, x) \quad (2)$$

の関数形を仮定して最小自乗法を行ない，第2表に示す結果を得た。

## §4. 考 察

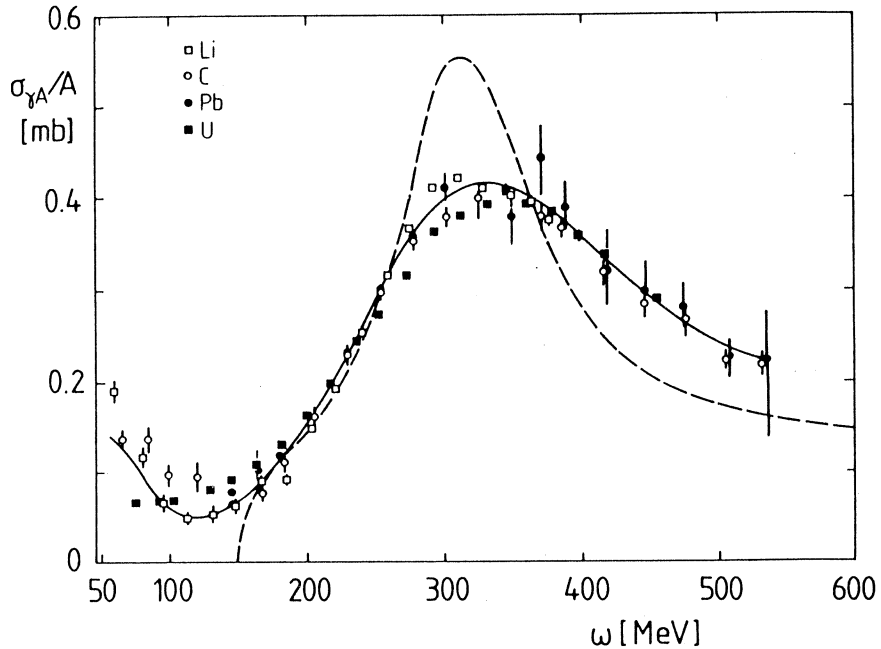
### 4.1 Z-依存性について

第4図より  $\pi^+$ 中間子の検出角 $45^\circ$ ， $135^\circ$ においても $90^\circ$ の場合と同様に，反応微分断面積は  $Z^{2/3}$  に比例することがわかる。これは，Pauli の排他律を考慮した Fermi gas model により予測されていたことである。

### 4.2 絶対値について

$\pi^+$ 中間子検出角 $45^\circ$ において，第2表に示す  $\sigma_0$  の値と水素の微分断面積を比べると水素の場合の方が約10倍大きい。これは検出角 $90^\circ$ での実験と同様の結果であり，水素の微分断面積





第5図 Li, C, Pb, U の光核反応全断面積を示す<sup>3)</sup>。横軸は入射  $\gamma$  線のエネルギー，縦軸は核子あたりの断面積である。曲線は各データの平均値であり，破線は自由陽子の断面積である。

と他の原子核の微断面積の不整合性は，特定の遷移多重極度によるものではないと判断できる。したがって反応全断面積についても

$$\sigma_{H(e, \pi^+)n} \gg \frac{\sigma(e, \pi^+)}{Z^{2/3}} \quad (3)$$

と考えられる。

第5図にAhrens等による光吸収断面積の実験結果を示す<sup>3)</sup>。この実験によると，光子エネルギー200MeV付近の光吸収断面積を標的核子数で割った値は，水素からウランまでほとんど一定である。それにもかかわらず， $E_0=200\text{MeV}$ 付近での  $(e, \pi^+)$  反応において(3)式で示す様な関係があることにより，何らかの理由で  $(e, \pi^+)$  反応が抑制されていて他の反応チャンネルの割合が増えている事が示唆される。

### 参 考 文 献

- 1) K. Shoda *et al.* : Nucl.Phys. A 486 (1988) 512.
- 2) K. Takeshita : 修士論文 東北大学理学部 昭和61年度.
- 3) J. Ahrens *et al.* : Nucl.Phys. A 485 (1988) 621.

## Ⅱ . 物 性 物 理

YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> 超伝導酸化物の水素化

金研, 核理研\*

梶谷 剛・松永 寿康<sup>†</sup>・平林 真  
富吉 昇一・山内 宏・神山 崇<sup>\*††</sup>

超伝導酸化物, YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> ( $x \sim 0.06$ ) に水素ないし重水素を YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>H(D)<sub>1.0</sub> 組成まで吸蔵して 4 k から 300 k の温度範囲で電気抵抗と磁化率を測定した。その結果, 組成比 H(D) / YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> = 0.4 までの水素濃度をもつ試料が超伝導転移を起こすことがわかった。

YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>H<sub>0.2</sub> の粉末試料について TOF 型装置により粉末中性子回折実験を行い, プロファイル—致法 (profile refinement technique) を用いて水素の侵入サイトを決定した。水素は Pmmm 空間群に属する単位胞の 1 b (0.500) サイトに位置することがわかった。このサイトは元酸素が欠損していた所である。

YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>H<sub>0.53</sub> の粉末試料について TOF 型中性子散乱装置を用いて水素原子の局所振動モードのエネルギー固有値を測定した。水素の局所振動のエネルギー固有値は 85 ± 13 meV と 115 ± 8 meV であった。

## § 1. 序 論

123(Y/Ba/Cu) 型超伝導酸化物は高い超伝導転移温度, T<sub>c</sub> ~ 93K, をもち, しかも比較的容易に製造することができる。しかし吸湿性が高く, 大気中に放置すると 1ヶ月程度で超伝導性を失う。本研究はこの 123 型超伝導酸化物に水素を吸蔵し, 水素量に応じた結晶構造の変化と T<sub>c</sub> の変化を平行して測定しようとしたものである。

123 型超伝導酸化物が YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>H<sub>1.0</sub> 組成まで安定的に水素化されることはすでに報告した通り<sup>1)</sup>である。一方, Reilly ら<sup>2)</sup>は YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>H<sub>0.5</sub> 組成まで水素化でき, YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>H<sub>2.0</sub> までの範囲まで超伝導転移を起こすと報告した。藤井ら<sup>3)</sup>は YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> を水素化した場合, 水素が YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>H<sub>0.7</sub> 以上の水素濃度で元の斜方晶から正方晶へと変化することを示したがこれは Reilly ら<sup>2)</sup>の示唆とも矛盾しない。また, 斜方晶試料中では水素化による目立った T<sub>c</sub> の低下はない

† 現在 株式会社リクルート

†† 現在 筑波大学物質工学系

としている。

水素は金属結晶等に対する添加元素効果の大きな元素であり、結晶の機械的性質や電気伝導度に対する影響が大きい。局在状態 (ground state) にある水素はNMR測定や中性子非弾性散乱実験によって比較的容易に研究できる。従って、結晶中に水素を添加することができれば、水素を一種の造影剤とすることができる。水素の添加による $T_c$ の変化と水素原子近傍の結晶格子の局所的变化の関係が明らかになれば大変興味深い。

最近、Nikiら<sup>9)</sup>はNMR測定を行い、水素による吸収ピークの半値幅の温度変化から $YBa_2Cu_3O_{7-x}H_0$ 試料の超伝導状態における磁場の侵入深さ (penetration depth) が $T = 0$  Kにおいて約 $2500 \text{ \AA}$ であることを見出した。この値は $\mu$ SR測定<sup>5,6)</sup>によって $La_{1.88}Sr_{0.12}CuO_{4-x}$ について求められた値、約 $2500 \text{ \AA}$ 、ともMeissner効果の測定<sup>7)</sup>によって求められた $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ の値、約 $1500 \text{ \AA}$ 、とも良く一致している。

本研究においては水素化した超伝導酸化物 $YBa_2Cu_3O_{7-x}H_{0.53}$ 中の水素の局所振動のエネルギー固有値を非弾性散乱装置を用いて測定した。水素化ないし重水素化した $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 試料の電気抵抗測定と磁化測定を10Kから室温までの温度範囲で行い、 $T_c$ 等の決定と超伝導転移に及ぼす水素の同位体効果について検討した。また粉末中性子回折実験を行い水素の侵入サイトを決定した。

## §2. 実験方法

$YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 試料は $Y_2O_3$ 、 $Ba(OH)_2 \cdot 8H_2O$ 及び $CuO$ 粉末を反応焼結することによって得た。詳細は文献1に述べた通りである。この酸化物に対する水素ないし重水素の添加はジーベルツ型ガス添加装置によって行った。

まず、 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ を570 Kにて2時間真空焼鈍して脱ガス処理を行う。次に570Kに保ったまま420Pa (150Torr) 以下の水素ないし重水素ガスと接触させた後徐冷する。

試料中の(重)水素ガス量は試料室の(重)水素ガス圧力の低下量から計算できる。(重)水素ガスの添加は金属結晶に対するものよりも容易であり最終ガス圧力はほぼ零気圧である。水素の局所モードのエネルギー固有値の測定には、TOF型クリスタルアナライザー<sup>8)</sup>を用いた。

電気抵抗測定は四端子法によって行い、磁化測定は振動試料測定法によって20Oeの外部磁場中で行なった。

十分に焼鈍した $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 試料の酸素量は以前の研究<sup>9)</sup>によって単位胞当たり6.94であることがわかっているので以下123型超伝導酸化物を $YBa_2Cu_3O_{6.94}$ と表示することにする。

水素化した $YBa_2Cu_3O_{6.94}H_{0.2}$ 試料の結晶構造はTOF型装置によって得た粉末中性子回折強度分



布をプロファイル一致法<sup>10)</sup> (profile refinement technique) によって解析し、決定した。測定した中性子回折強度分布のうち  $2\theta = 150^\circ$  のものからBa, Y及びCuの温度因子とBaとCuの座標パラメーターを決定し,  $2\theta = 60^\circ$  のものから水素の位置と水素と酸素の占有率および酸素の座標を決定した。 $2\theta = 150^\circ$  の中性子回折強度分布は比較的短い格子間隔の格子面,  $d = 0.8 \sim 2.3 \text{ \AA}$ , の反射を示し, 散乱長が大きく, しかも温度因子,  $B (\text{ \AA}^2)$ , の小さい原子の寄与が大きい。 $2\theta = 60^\circ$  のデータは比較的長い格子間隔の格子面,  $d = 1.1 \sim 3.2 \text{ \AA}$ , の反射強度であり, 酸素のような温度因子の大きい原子の寄与が大きい。これらの特徴を生かして回折強度の分析を行なった。

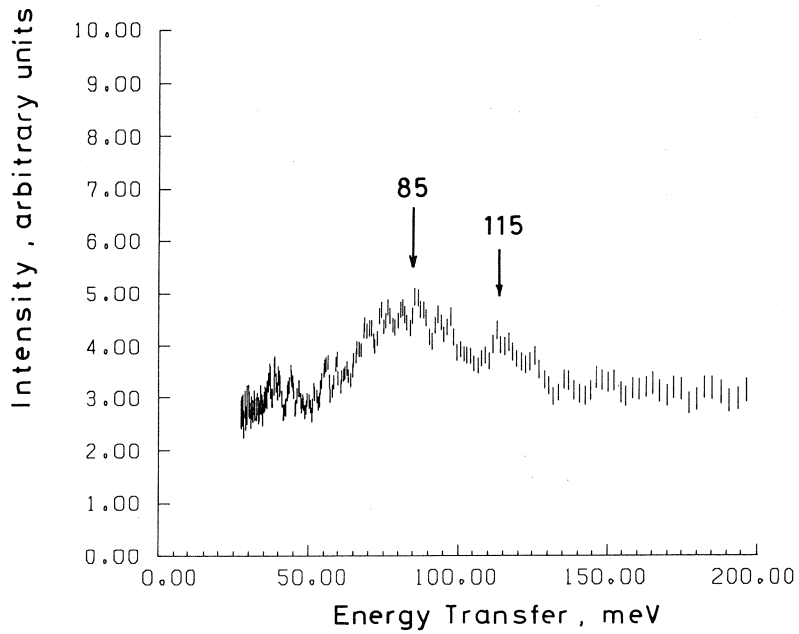
通常中性子線による水素化合物の結晶構造解析には水素を重水素で置換して非干渉性散乱を減らす努力を行うが, 重水素と酸素の散乱長は互いに接近,  $b_D = 6.672 \text{ fm}$ ,  $b_O = 5.805 \text{ fm}$ , しているので酸化物中では区別し難い。それに対して水素は非干渉性散乱強度は大きい負の散乱長  $b_H = -3.741 \text{ fm}$  を持っているため酸素との区別が比較的容易である。

### §3. 結果と討論

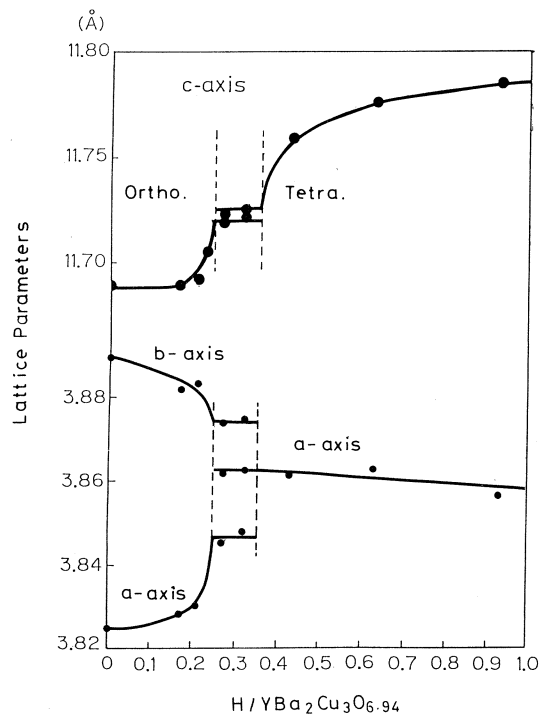
第1図はクリスタルアナライザーによって測定した  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.53}$  の室温における非弾性散乱強度分布を示す。この強度分布の測定は核理研の運転シフト数12を費して得たものである。

図中には約85meVをピーク位置として半値幅が25meV程度のブロードなピークと115meVに半値幅が15meV程度の鋭いピークがある。これらは水素が八面体格子間位置に入る典型的な結晶である  $\beta\text{-V}_2\text{H}$  における水素の局所振動ピーク<sup>11)</sup> と良く似ている。ただし,  $\beta\text{-V}_2\text{H}$  の水素ピークは本研究の場合よりも約30meV低いエネルギー領域にある。得られた局所振動モードについて詳細な解析を行う必要があるが, 図1のスペクトルは完全に縮退しているか, それに近い状態にある85meVのモードと縮退していない115meVのモードとに分かれると見做すことができる。水素は四面体配置のサイトか八面体配位のサイトに入る原子である。上記のようなスペクトルを示すのは, 八面体配位にある場合である。85meVのモードがわずかに分裂しているのであれば水素の侵入している八面体は多少ひずんでいる筈である。

第2図はX線回折実験によって決定した  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_Y$  ( $Y = 0 \sim 1.0$ ) の格子定数を示す。結晶は  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.25}$  組成程度までは斜方晶であるが  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.35}$  組成より高い水素濃度の領域では正方晶である。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.25}$  から  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.35}$  組成の間は斜方晶と正方晶の2相共存域である。水素の添加量の増加によってa軸とb軸の軸長の差が縮まり, c軸が伸びる様子は水素freeの試料での酸素量の減少に伴う軸長の変化<sup>12)</sup> と良く似ている。

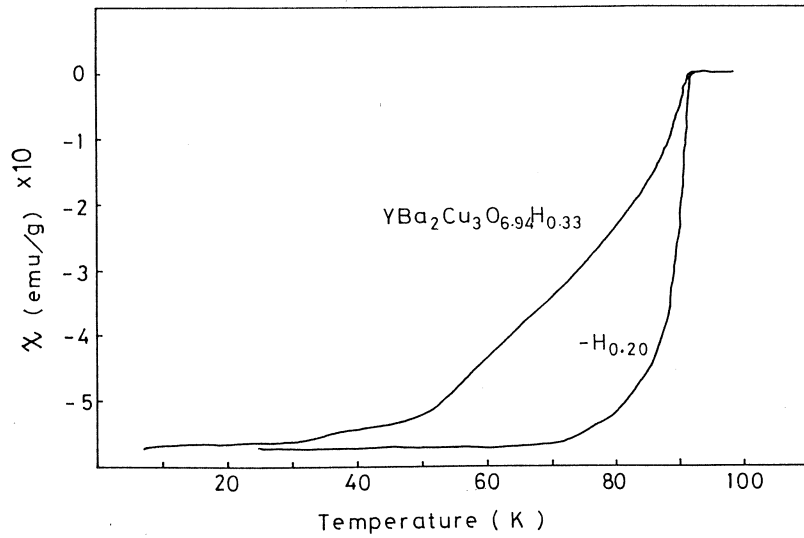


第1図 YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.94</sub>H<sub>0.53</sub>の中性子非弾性散乱スペクトル。

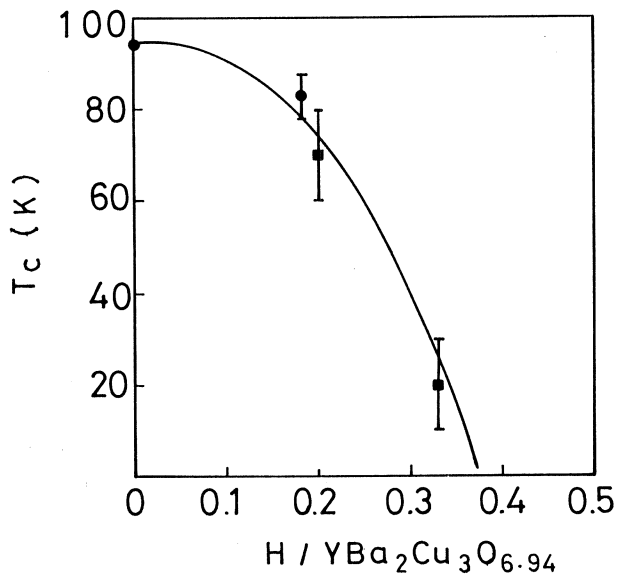


第2図 YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.94</sub>H<sub>x</sub> (X < 1.0) の格子定数変化。

四端子法による $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.7x}\text{H}_x$  ( $x < 0.5$ ) の超伝導転移温度の水素濃度依存性を第3図に示す。水素の添加によって $T_c$ が低下してゆく事がわかるが $T_c$ は斜方晶領域では余り低下せず、正方晶結晶との混晶状態では急に低下し正方晶領域では消失する。



第3図  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_x$  ( $x < 0.5$ ) の超伝導転移温度 (off-set temperature)。



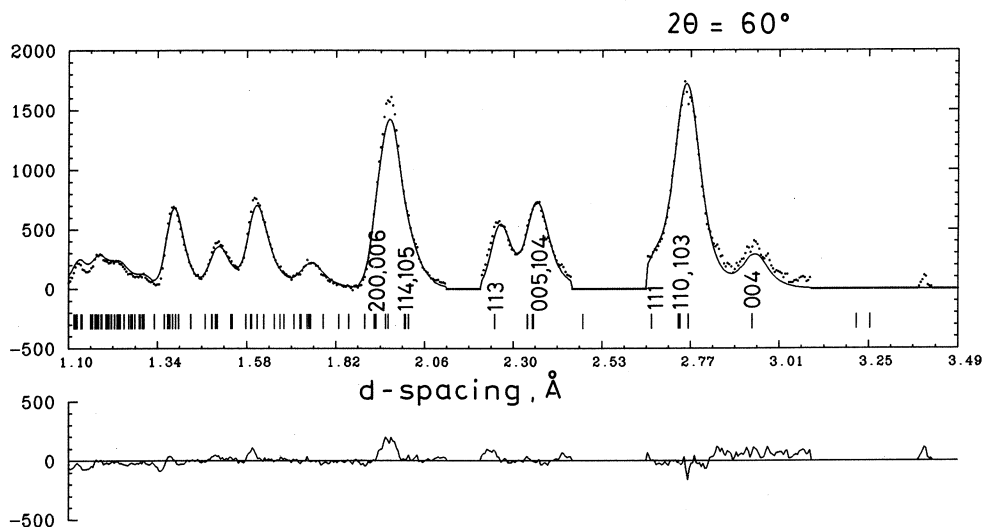
第4図  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.2}$  と  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.33}$  の磁化率の温度曲線。

第4図は磁化測定によるMeissner効果に及ぼす添加水素の影響を示す。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.2}$ と $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.33}$ は共に零抵抗温度をもっているが超伝導転移の開始温度は約92Kとほぼ一定である点が注目されている。 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.2}$ が斜方晶単相であるのに対して $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.33}$ は斜方晶と正方晶の混晶である。混晶状態では試料中の $T_c$ のゆらぎが広がり、零抵抗温度が低温領域にまで伸びてゆく様子がわかる。

重水素を添加した試料について電気抵抗測定と磁化測定を繰り返したが水素の同位体効果は認められなかった。従って(重)水素添加による $T_c$ の低下は(重)水素ないし $\text{OH}(\text{D})^-$ イオンの動力学的効果によるものではなく $\text{OH}(\text{D})^-$ イオンの静電的效果によると考えられる。

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.2}$ の粉末中性子回折図形を第5図と第6図に示す。第5図と第6図はそれぞれ散乱角,  $2\theta$ , が $60^\circ$ と $150^\circ$ の場合のものである。

第5図と第6図は測定したデータからバックグラウンドを差し引いた後に、予め測定してある入射中性子の強度分布で標準化したものである。

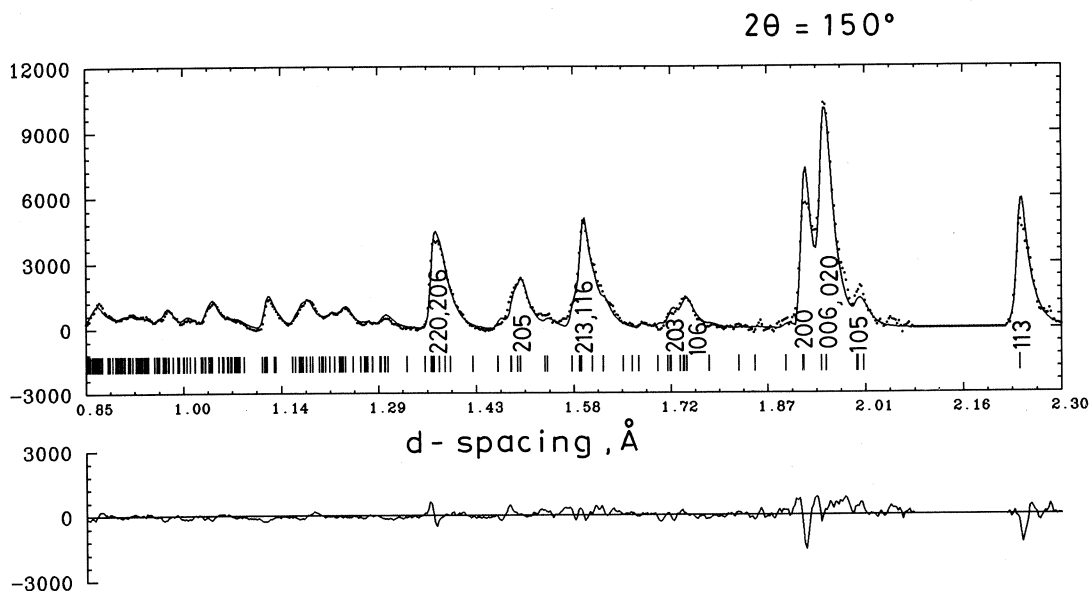


第5図  $2\theta=60^\circ$  における $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}\text{H}_{0.2}$ の粉末中性子回折強度。

$2\theta=60^\circ$  のデータには析出物によると見られる回折強度が見られたのでその部分については結晶構造解析の対象から外した。第5図の105ピークと113ピークの間や104ピークと111ピークの間等の部分を計算の対象から外している。しかし、第6図にはそのような析出物によると見られる回折強度はほとんど見られていない。第5図と第6図は著者らが以前<sup>13)</sup>に公表した



YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.94</sub>H<sub>0.2</sub>の中性子回折強度分布と多少異っている。前論文<sup>13)</sup>では散乱角60°の中性子回折強度分布には析出物による強度はほとんど現れていない。今回用いた試料は前論文で用いたものと同一であるが時間の経過(約2ヶ月)と共に多少変質した可能性がある。



第6図  $2\theta = 150^\circ$  におけるYBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.94</sub>H<sub>0.2</sub>の粉末中性子回折強度。

今回新たに最小自乗法によって決定したYBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.94</sub>H<sub>0.2</sub>の結晶学パラメーターを表1に示す。水素は1b ( $\frac{1}{2}$ 00) サイトに入っていて、1e ( $0\frac{1}{2}$ 0) サイトは酸素原子だけが占有していると考えられる。前論文では水素は酸素と混合した状態で1e ( $0\frac{1}{2}$ 0) サイトにあると考えていたが本論文では斜方晶YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.94</sub>では酸素の欠損していた1b ( $\frac{1}{2}$ 00) サイトが主として水素に占有されることが結論された。

酸素と水素の温度因子は大きく異っている筈であるが実験データの統計と回折装置の分解能に限界があるために独自に決定することができず、表中のような値を仮定してその他の結晶学パラメーターの最適化を行なった。金属原子、Ba、Y及びCuの座標と温度因子は散乱角150°のデータから求め、Oの座標等は散乱角60°のデータから求めている。散乱角60°の場合の計算値に対する残差、 $R_B$ 、 $R_P$ 及び $R_{WP}$ が比較的大きいのは今回用いた試料の中に析出物が現れて来ているためである。

前論文においても本論文においても、水素はYBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.94</sub>の単位胞の中のBa層とBa層との間に位置していることが結論できる。

第1表 プロファイル一致法 (profile refinement technique) によって決定した  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.91}\text{H}_{0.2}$  の結晶学パラメーター。中性子回折によって決定された試料の化学組成は  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.91(6)}\text{H}_{0.18(4)}$  である。

原子	サイト	座 標			B(Å <sup>2</sup> )	席占有率
Ba	2t	1/2	1/2	0.1881 (12)	1.19 (28)	1.0
Y	1h	1/2	1/2	1/2	0.87 (40)	1.0
Cu <sub>1</sub>	1a	0	0	0	0.01 (34)	1.0
Cu <sub>2</sub>	2q	0	0	0.3551 (10)	0.65 (20)	1.0
O <sub>1</sub>	1e	0	1/2	0	2.5	0.85 (3)
O <sub>2</sub>	1b	1/2	0	0	2.5	0.09 (3)
O <sub>3</sub>	2q	0	0	0.1535 (16)	0.6	1.0
O <sub>4</sub>	2s	1/2	0	0.3877 (27)	0.86	1.0
O <sub>5</sub>	2r	0	1/2	0.3642 (28)	0.86	1.0
H	2b	1/2	0	0	5.6	0.18 (4)

残 差 (%)	R <sub>B</sub>	R <sub>P</sub>	R <sub>WP</sub>
ND2θ=60°	11.2	10.0	13.0
ND2θ=150°	9.7	10.7	13.5

空間群 Pmmm (No.47)  
 格子定数 a=3.8400 (8) Å  
 b=3.8958 (8) Å  
 c=11.7266 (40) Å

(重) 水素化した斜方晶中での超伝導転移温度が水素を含まない結晶と余り差がないことから、超伝導現象を担っている正孔の流れはOH (D)<sup>-</sup>があるBa/Ba層間にはないと考えられる。

水素が斜方晶  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.91}$  の酸素欠損サイト 1b (1/2 00) を順次埋めてゆくことによって a 軸長と b 軸長とがそれぞれ伸長、短縮してゆき、ついに  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.91}\text{H}_{0.35}$  組成以上では正方晶になる点から水素は金属結晶中と同様に  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.91}$  の格子を局所的に押し広げる働きをする事がわかる。

水素の添加によってBa/Ba層間に酸素と水素が混合した層が出現するが、水素と酸素との間の化学結合力が極めて強いことから見て添加された水素は同じ層内の酸素とOH<sup>-</sup>イオンを作るべく規則配列をする可能性もあるがこの点を解明するのが次の研究課題になる。

本研究は一部日本学術振興会の補助金によって援助されたものである。

### 参 考 文 献

- 1) T.Kamiyama, S.Tomiyoshi, M.Omori, H.Yamauchi, T.Kajitani, T.Matsunaga and H.Yamamoto: *Physica* **148** B (1987) 491.
- 2) J.J.Reilly, M.Suenaga, J.R.Jhonson, P.Thompson and A.R.Moodenbaugh: *Phys.Rev.* **B36** (1987) 5694.
- 3) H.Fujii, H.Kawasaka, W.Ye, S.Orino and H.Fukuba: *Jpn.J.Appl.Phys.* **27** (1988) L525.
- 4) H.Niki, T.Suzuki, S.Tomiyoshi, H.Hentona, M.Omori, T.Kajitani, T.Kamiyama and R.Igei: submitted to *Solid State Comm.*
- 5) G.Aeppli, R.J.Cava, E.J.Arsoldo, J.H.Brewer S.R. Kreitzman, G.M.Luke, D.R.Noakes and R.F.Kiefl: *Phys. Rev.* **B35** (1987) 7129.
- 6) W.J.Kossler, J.R.Kempton, X.H.Yu, H.E.Schone, Y.J.Uemura, A.R.Moodenbaugh, M.Suenaga and C.E.Stronach: *Phys. Rev.* **B35** (1987) 7133.
- 7) R.J.Cava, B.Batalogg, R.B.VanDover D.W.Murphy, S.Sunshine, T.Siegrist, J.P.Remeika, E.A.Rietman, S.Zahurak and G.P.Espinosa: *Phys.Rev. Lett.* **58** (1987) 1676.
- 8) 渡辺 昇, 古坂道弘, 三沢正勝: *核理研研究報告* **12** (1979) 72.
- 9) T.Kajitani, K.Kusaba, M.Kikuchi, Y.Syono and M.Hirabayashi: *Jpn J. Appl. Phys.* **27** (1988) L354.
- 10) R.B.VonDreele, J.D.Jorgensen and C.G.Windsor: *J. Appl. Cryst.* **15** (1982) 581.
- 11) D.Klauder, V.Lottner and H.Scheuer: *Solid State Commun.* **32** (1979) 617.
- 12) E.Takayama-Muromachi, Y.Uchida, A.Fujimori and K.Kato: *Jpn.J.Appl. Phys.* **26** (1987) L1550.
- 13) T.Matsunaga, T.Kajitani, T.Kamiyama, M.Omori, S.Tomiyoshi, H.Yamauchi and M.Hirabayashi: *Proc. MRS Int. Meet. Advanced Materials, Tokyo, 1988.*

# Relation between Proton Intersite Distance and Hydrogen-Bond Length in $\text{KH}_2\text{AsO}_4$ and the Other $\text{KH}_2\text{PO}_4$ Type Crystals

Noboru Yamada, Nobuo Niimura\* and Rieko Ren  
*Department of Applied Physics, Faculty of Engineering,*  
*Tohoku University, Sendai 980*

\* *Laboratory of Nuclear Science, Faculty of Science,*  
*Tohoku University, Mikamine 1-2-1, Sendai 982*

## §1. Introduction

Recently one of the authors (N. Yamada)<sup>1)</sup> has reported that there is a linear relation between the transition temperature  $T_c$  and the hydrogen-bond length  $R_{00}$  in tetragonal  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  type crystals, irrespective of whether the crystals are deuterated or undeuterated. This indicates that a large isotopic effect of the transition temperature  $T_c$  does not occur owing to direct proton tunnelling effect but due to the change of the hydrogen-bond length. But it should be noticed that there is some scattering of the data around the straight line in Fig.1 of ref.1 and an accuracy of the used experimental data seems as insufficient to detect a small difference between H-salt and D-salt. Furthermore the number of compounds had been restricted only three, because an accurate measurement of  $R_{00}$  at  $T_c$  has not been reported for other tetragonal compounds. The first purpose of our investigation is to get structural data of  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$  by X-ray and neutron diffraction methods. On the other hand, a behavior of the proton in double minimum potential has been treated quantum theoretically<sup>2)</sup> and it has been shown that the isotope effect of H-inter-site distance can be expressed as a superposition of geometric isotope effect due to the change of  $R_{00}$  and direct proton tunnelling effect. Furthermore an error introduced in  $\delta$  vs  $R_{00}$  relation is smaller than that of  $T_c$  vs  $R_{00}$ , because the relation of  $\delta$  vs  $R_{00}$  is free from the measured temperature. The second purpose of this paper is to make a thorough examination for relationship between  $\delta$  and  $R_{00}$  in  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  type crystal using the all available structural data.

## §2. Experimental and Results

### 2.1 X-Ray diffraction

The crystal structures of  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$  at 293 K, 231 K, 177 K and 119 K were studied by X-ray method. The intensity data were collected with monochromatized  $\text{MoK}\alpha$ , using a four-circle diffractometer. Refinements were made by means of diagonal-matrix least-squares calculations. The details of the investigation were summarized in the master thesis<sup>3)</sup> of one of the authors (R.Ren). Only the lattice parameters, atomic coordinates of O-atom and hydrogen-bond lengths are shown in Table I. Temperature dependence of the hydrogen-bond length,  $R_{\infty}$ , is shown in Fig.1.

Table I. The temperature dependence of the lattice constants, the fractional coordinates and the hydrogen-bond length of  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ .

	293 K	231 K	177 K	119 K
$a(\text{Å})$	7.6295	7.6175	7.6105	7.6065
$c(\text{Å})$	7.1600	7.1380	7.1230	7.1130
$x(\text{O})$	0.15990	0.16050	0.16122	0.16181
$y(\text{O})$	0.08589	0.08604	0.08705	0.0886
$z(\text{O})$	0.13508	0.13639	0.13645	0.13650
$R_{\infty}(\text{Å})$	2.508	2.503	2.476	2.4608

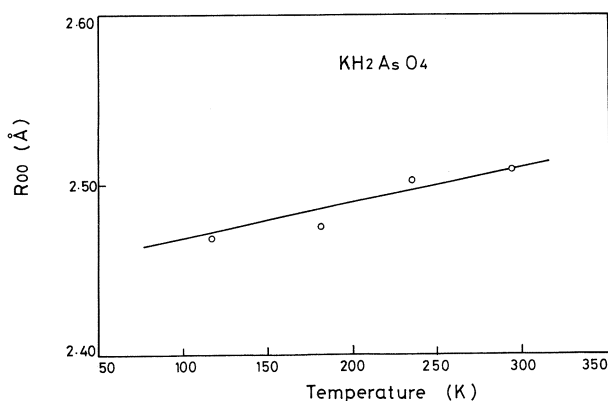


Fig. 1. The temperature dependence of the hydrogen-bond length in  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$ .

## 2.2 Neutron diffraction

The neutron diffraction measurements of  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$  were carried out on the four-circle single crystal diffractometer in the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University.

The measurement was done by the PSD-TOF method where white neutron is used.

Structural refinement was made using the block diagonal least-squares method. The results are to be published in *J. Phys. Soc. Jpn.*<sup>4)</sup> The relation between  $\delta$  and  $T$  which is a part of the results of ref. 4 is shown in Fig.(2) by open circles and the filled circles indicate the corrected values for the riding motion of H on O.<sup>5)</sup> It can be said that  $\delta$  linearly changes with  $T$ .

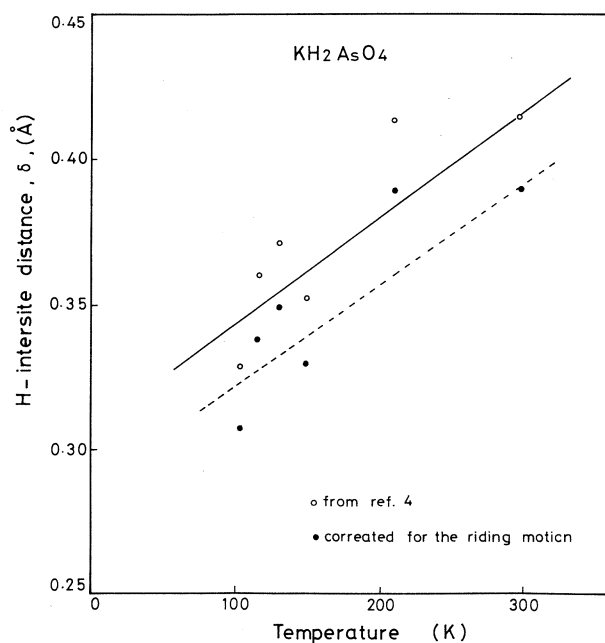


Fig. 2. The temperature dependence of the H-inter-site distance in  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$ .

## §3. Discussion

The relation between  $\delta$  and  $R_{00}$  which is obtained from Table I and Fig. 2 is shown in Fig. 3. It can be seen from Fig. 3 that  $\delta$  linearly depends on  $R_{00}$  with free from the temperature. Realization of this relation for  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  crystal already has been indicated by the present authors<sup>6)</sup> using the crystal data reported by Nelmes and coworkers.<sup>7,8)</sup> In

Fig. 4 the present result was superimposed on the  $\delta$  vs  $R_{00}$  plotting in ref.6. We notice that each group of H-salts and D-salts makes a straight line, respectively, and the line of D-salts shifts above the line of H-salts. This fact strongly suggest that the isotope effect in  $\delta$  contains direct tunnelling effect. Here it must be stressed that the  $\delta$  vs  $R_{00}$  straight line is being constructed by the various kinds

of compounds at the different temperatures and different pressures. Thus we conclude that H-intersite distance in O-H-O hydrogen-bond depends only on the O-O distance  $R_{00}$  irrespective of the kind of compounds, measured temperature and measured pressure.

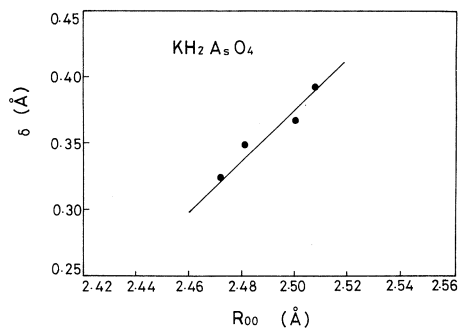


Fig. 3. The relationship between the H-intersite distance and the hydrogen-bond length in  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$ .

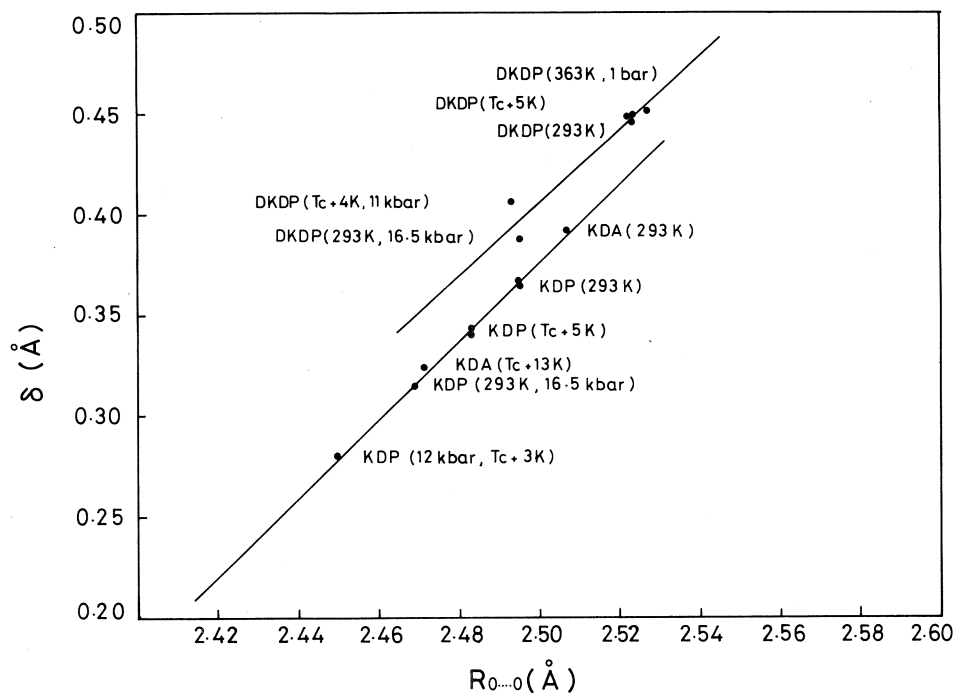


Fig. 4. The relationship between the H-intersite distance and the hydrogen-bond length in  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  type crystals. The values of  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$  was determined in this paper and the other values were taken from the references 7 and 8.  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ,  $\text{KD}_2\text{PO}_4$  and  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$  were abbreviated as KDP, DKDP and KDA, respectively.

#### §4. Summary and Conclusion

The crystal structure of  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$  was refined using X-ray and neutron diffraction methods at several temperatures, (294 K, 148 K and 106 K, for X-ray and 294 K, 209 K, 148 K, 130 K, 118 K and 106 K for neutron). The relation between H-intersite distance,  $\delta$ , and hydrogen-bond length,  $R_{\text{oo}}$ , in  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  type crystals was examined using the present result and the structural data reported by Nelmes and coworkers. The linear relation between  $\delta$  and  $R_{\text{oo}}$  was found in H-salts and D-salts, respectively, and it was indicated that the separation between the two lines of H-salts and D-salts is a evidence of the direct tunnelling effect in isotope effect of  $\delta$ .

#### References

- 1) M. Ichikawa, K. Motida and N. Yamada :Phys. Rev. **B 36** (1987) 874.
- 2) E. Matsushita and T. Matsubara :Prog. Theor. Phys. **67** (1982) 1.
- 3) R. Ren :Master Thesis, Tohoku University (1987).
- 4) M. Matsuda, N. Niimura, S. Kawano, A. Nonaka and N. Yamada :J. Phys. Soc. Jpn. **57** (1988) 3824.
- 5) C. K. Johnson and H. A. Levy :*Internatjonal Table for X-ray Crystallography* Vol IV (1974) p.311.
- 6) Preprints of the Spring Meeting of the Physical Society of Japan, Kooriyama, April, 1988.
- 7) R. J. Nelmes :Ferroelectrics **71** (1987) 87.
- 8) R. J. Nelmes, Z. Tun and W. F. Kuhs :Ferroelectrics **71** (1987) 125.



Mn<sub>3</sub>Sn のヘリカルスピ構造

金研

富吉昇一・山口泰男

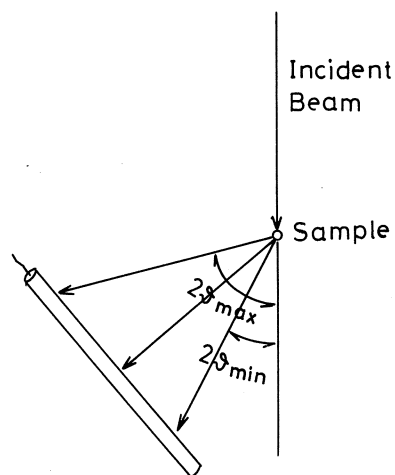
## §1. 序 論

パルス中性子源を用いる単結晶試料の中性子回折の特徴は、非常に効率良く Bragg 反射の測定が行えるということである。ある一定散乱角に設置した counter では、逆格子の原点を通る線上の逆格子点が一度に測定でき、また、ある範囲の散乱角に設置した position sensitive counter では、それに対応する広い範囲の逆格子面上の Bragg 反射が一度に測定出来る。このような特徴のために、パルス中性子源では、position sensitive counter の利用がさかんであるが、波長に依存する色々な補正の問題などがあり、精密構造解析という点では、まだ解決しなければならない問題が多い。一方、1本の counter のみを用いる方式は、一定波長で必要な Bragg 反射のすべてを取るなどすることにより、波長依存の補正の問題を避けることができるので、精密構造解析に向けた測定方法であると思われる。

このような点を考慮に入れると、パルス中性子源を用いる単結晶用中性子回折装置としては、広い逆格子が一度にみえるように、position sensitive counter を散乱角の片側におき、そして、精密化のために、他の側に、散乱角可変の single counter をもつよう装置が最も有用であろう。

TOF 法による単結晶の中性子回折は、解決しなければならない問題を多く含んでいるのが現状であり、今後の発展のために、色々な試みをやってみることが重要であると思われる。ここでは、パルス法中性子回折が開発された初期のころ、Buras が試みた横置きの single counter を用いて、Mn<sub>3</sub>Sn のヘリカルスピ構造による magnetic satellite 反射の測定を行うことを試みる。この方法は、Mn<sub>3</sub>Sn の magnetic satellite 反射のように (h00) 反射線のまわりで [001] 方向にあらわれる satellite を測定するような場合に非常に適しており、分解能もかなり良い<sup>2)</sup>

第1図は counter の配置を示す。この場合、 $2\theta_{\max}$  と



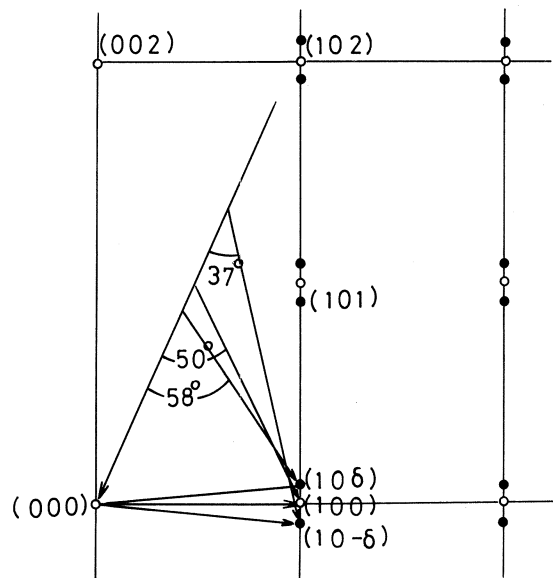
第1図 横置き single counter の配置図、散乱角 $2\theta_{\min}$ から $2\theta_{\max}$ までの回折パターンが時間的に重ね合って測定される。

$2\theta_{\min}$  の間の散乱角にあらわれる Bragg 反射が測定されるが、position sensitive counter ではないので、各散乱角に対応する diffraction pattern は時間軸に重ね合わさって現われる。しかし、 $Mn_{3.6}Sn$  の場合、(100) の main peak に付随した各 satellite は time analyser 上では、(100) の main peak の前後にあらわれるので、(100) のまわりを [001] 方向に scan したのと全く同じような pattern を与え、screw のピッチの変化、強度の変化等を求めたいときには大変有用な測定方法である。

## §2. 実験結果

$Mn_3Sn$  (測定は  $Mn_{3.6}Sn$  の試料) はネール点420Kの三角スピンの反強磁性体であり、Dzyaloshinski - Moriya 相互作用のために、いわゆる逆向き三角スピン配列が安定化され、弱い強磁性成分が六方晶の  $c$ -面内にあらわれる<sup>3)</sup>。ところが、充分長時間低温で熱処理した試料では、240 K 以下の温度に於て、ヘリカルスピン構造への転移がみられる。この場合、各  $c$ -面内の三角配列スピンの  $c$ -軸方向で約10枚ピッチの周期で回転する構造であることが明らかになっており、弱い強磁性成分はヘリカル構造へ転移するとともに消失する。

第2図にヘリカル構造の場合の  $Mn_{3.6}Sn$  の  $a^*c$ -面内の逆格子面を示す。同図に書き入れてあるのは (100) のまわりの測定を行う場合の回折条件の配置図である。散乱角  $2\theta = 50^\circ$  で (100) 反射が測定されるようにすると、 $(1, 0, \delta)$  は  $2\theta = 58^\circ$ 、 $(1, 0, -\delta)$  は  $2\theta = 37^\circ$  で測定される。すなわち  $2\theta$  で、それぞれのピークが  $10^\circ$  くらいも離れており、この配置で測定すれば、main peak と satellite peak は充分分離できる。我々が以前行った原研の2軸回折装置 ( $\lambda = 1 \text{ \AA}$ ) で行った実験では、これらの分離がもう少し足りないという感じであり<sup>3)</sup>、そのような点でこの測定方法を試みることは非常に興味あることと思われる。

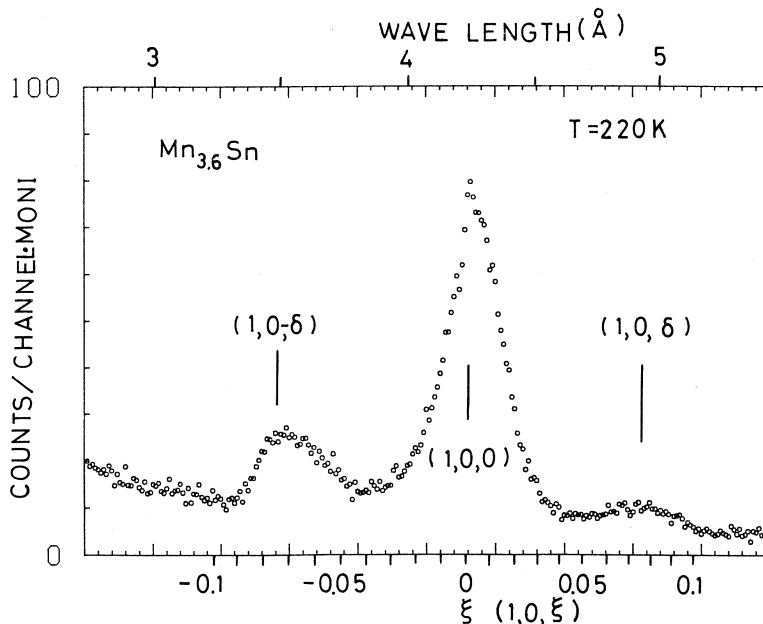


第2図  $Mn_{3.6}Sn$  の (h0l) 逆格子面と、横置きカウンターの散乱条件図、○は基本反射、●はサテライト反射、それぞれの散乱角で各反射線が観測される。

測定に用いた装置は、核理研に設置されている単結晶用の中性子回折装置で、片側に single counter, もう一方の側に横型の single counter が配置されている。single counter で精度良く結晶の軸出しを行い、それを基に、第2図の配置になるように結晶を回転し横置きカウンターで測定を行った。

第3図は  $Mn_{3.6}Sn$  の220Kの温度で測定した回折パターンである。100のまわりのサテライト反射がはっきりと分離して観測されており、予想通り分解能は非常に良い。この単結晶試料はモザイクネスの中がもともと広がっているので各回折線の中は、装置の分解能よりかなり広がっている。この図で、 $\xi$ は(100)からの[001]方向への逆格子の位置を(001)を単位としてあらわしたものである。サテライトのピーク位置から  $\delta=0.075$ が求まる。以前大森らが発表している値  $\delta=0.083\sim 0.085$ より少し小さい値である<sup>2)</sup>。これはヘリックスのc軸方向にピッチがだいたい13枚周期であることをあらわす。

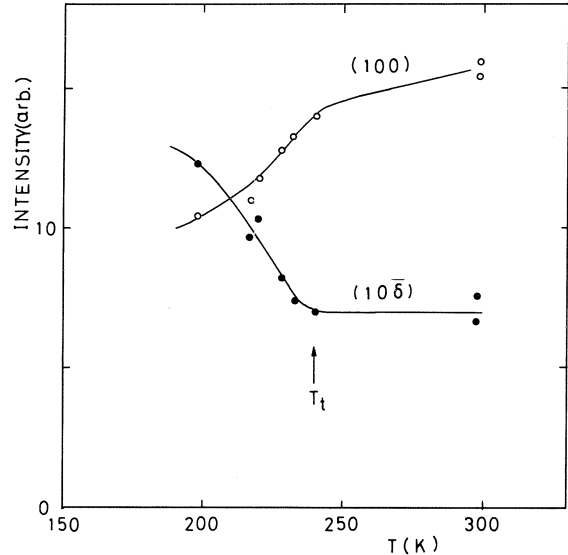
この回折パターンで(10 $\delta$ )のピークの方が小さいのは、入射中性子ビームの波長分布  $i(\lambda)$  が長波長側ほど小さいことによるものであり、 $i(\lambda)$  で規格化すれば、二つのサテライトは等しい構造因子をもつ。



第3図  $Mn_{3.6}Sn$  のTOFパターン、横軸は波長及び(1,0, $\xi$ )  $\xi=0\sim 0.1$ で示す。

第4図は(100)と(10- $\delta$ )の積分強度の温度変化を示す。この図ではバックグラウンドは差引いてないので少しまぎらわしいかも知れないが、サテライトはほぼ240Kで消失する。サテライトの消失に伴って(100)ピークは増大するが、これはヘリカルスピン構造が、回転のない三角スピン構造へ転移するためであり、これはOhomoriらの実験結果と一致する<sup>1)</sup>。また、ピッチの温度変化はほとんどなく、ほぼ $\delta=0.075$ である。

以上が得られた結果である。今回の測定は狭い温度範囲の測定しか行わなかったが、今後、低い温度の測定も行いたいと考えている。この実験によって、TOF法が手がしているある逆格子空間の方向へのscanが、比較的容易に行えることが明らかになった。今後はposition sensitive counterとの比較などを行いたいと考えている。



第4図 (100)と(10- $\delta$ )の積分強度の温度変化。バックグラウンドは差引いていない。ヘリックスは $T_t=240$ Kで、通常のスピン構造へ変る。

## 参 考 文 献

- 1) H.Ohomori, S.Tomiyoshi, H.Yamauchi and H.Yamamoto : J.Mag. Mag. Mater. **70** (1987) 249.
- 2) 大森広之 : 修士論文 (昭和61年).
- 3) S.Tomiyoshi and Y.Yamaguchi : J.Phys. Soc. Japan **51** (1982) 2478.

## 透過中性子法による生体物質の構造研究(I)

理学部物理, 核理研\*

片瀬拓弥・新村信雄\*・徳永史生

## §1. 序

物質に入射した中性子は、物質内の原子に衝突し、吸収や散乱を受ける。今、単位体積当たり  $N$  個の原子を含む厚さ  $dx$  の板に中性子が入射すると考えると、この板に入射する中性子線束を  $\phi$  とすると単位時間当たりの衝突の数は、 $\phi \sigma_T N dx$  と書ける。ここで  $\sigma_T$  は原子 1 個当たりの衝突の確率であり、全断面積という。

なお、ここでは、 $dx$  は十分に小さく原子は中性子の入射方向から見て重なり合っていないものとする。

中性子線束は  $d\phi$  を通過する事によって、 $\phi \sigma_T N dx$  の数だけ減少するので

$$d\phi = -\phi \sigma_T N dx$$

が成り立ち、したがって厚さ  $x$  を通過した中性子線束は

$$\phi = \phi_0 \exp(-N \sigma_T x) \quad \text{となる。}$$

ここで  $\phi_0$  は試料に入射する前の中性子線束である。又、 $\phi / \phi_0$  は入射中性子と透過中性子線束の比である。これが、透過中性子法の基礎理論である。

つまり、真の透過中性子線束を得るためには、上述のように、一度でも散乱された中性子を除かねばならない。従来、この問題を解決するために、ピンホールスリットを用いていたが、それでは、強度をあまり得られないため、我々は、収束型コリメーターを用いて、強度の損失の少ない真の透過中性子を測定する方式を開発してきた<sup>1,2)</sup>。

以下、透過中性子法を用いた、2つの課題について記述する。

- i) 液体の  $D_2O$  と  $H_2O$  の混合液を用いて、軽水中の重水の定量を試みる。これは、水素 (hydrogen) と重水素 (deuterium) の中性子散乱断面積の違いを利用するものである。
- ii) i) の発展として重水中に、ある種の水溶性タンパク質を混合して、タンパク質が重水中に、どの程度、溶解しているかを定量する。

しかし、不均一な分子を混合させた場合、その透過率に小角散乱の影響が出る。i) の場合、その影響は無視できると考えられるが、重水とタンパク質の分子では、小角散乱の影響が現れると思われる。

そこで透過中性子法の測定を行うためには、この小角散乱の影響を検討する必要がある。

## §2. 実 験

測定には、収束型ソラースリットを装備した核理研の小角散乱装置<sup>1-2)</sup>を用いた。

パルス中性子源から、検出器までの距離  $L$  は  $L=7645\text{mm}$  で時間分析器の 1 チャンネルは  $16\ \mu\text{sec}$  となっている。

試料は次の 2 種類について行った。

- i)  $\text{D}_2\text{O}$  の定量を行うために、容量  $0.9\text{ml}$  のセルを用いた。 $\text{H}_2\text{O}$  と  $\text{D}_2\text{O}$  の混合液を  $\text{D}_2\text{O}$  の重量にして 0%, 10%, 20%, …… , 100% のように 10% おきに作成し、測定を行った。
- ii) 水溶性タンパク質として、ニワトリの卵白リゾチームを用いた。これを選定した理由は、重量比にして約 20% 近く溶解する事にある。試料として  $\text{D}_2\text{O}$  中に 5%, 10%, 15%, 19% のリゾチームの溶解したものを作成した。尚、この試料の作成において 19% 溶液を順次、薄める形を取る事にした。

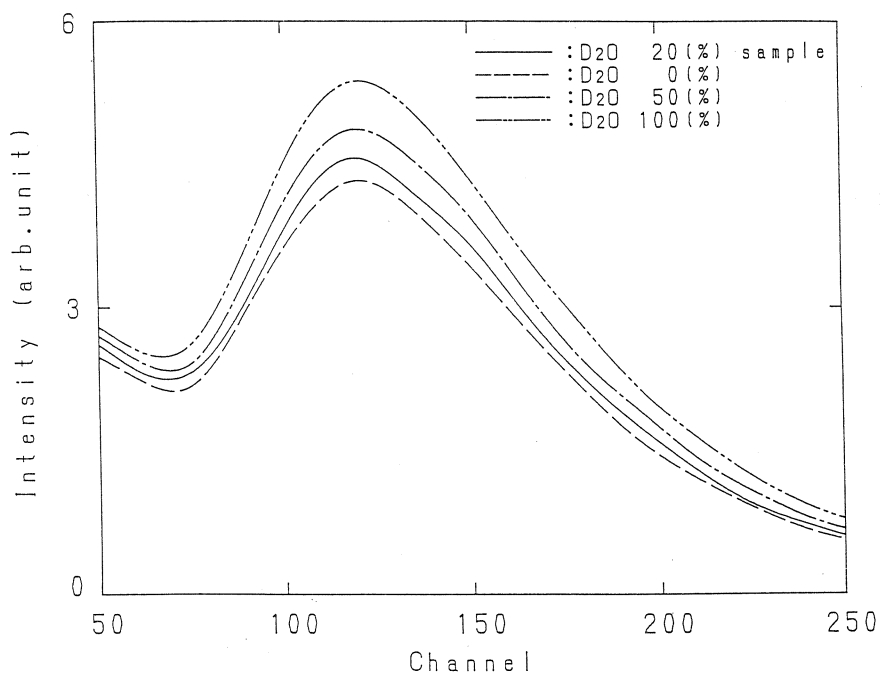
## §3. 結果と考察

i)  $\text{H}_2\text{O}$  溶液中の  $\text{D}_2\text{O}$  を定量する際、我々の使用した方法として、 $\text{D}_2\text{O}$  の含有率が、重量比にして 0% から 10% おきに 100% までの基準となる測定結果を得る。そして、未知の含有率の試料をその基準試料より得られたデータから定量する。具体的には、新しく作成した既知の含有率の試料を、未知のものとして扱う事による。

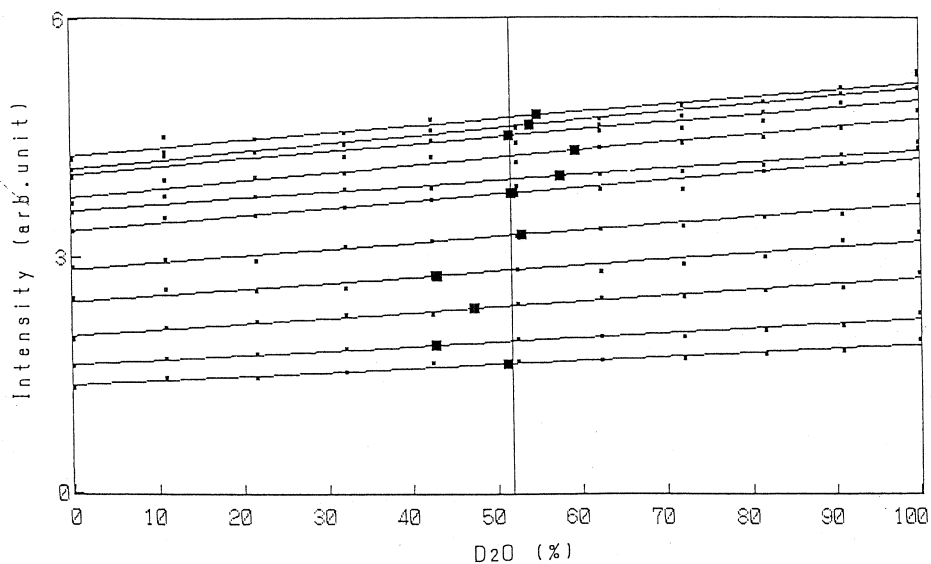
解析方法としては、100~200チャンネル ( $0.82\ \text{\AA} \sim 1.65\ \text{\AA}$ ) までの各チャンネルおきに  $\text{D}_2\text{O}$  含有率とモニターで割った強度との直線近似による最小自乗直線を作り、未知の試料の強度をその直線に当てはめて、100チャンネル分を平均して含有率を算出する方法を取った。このチャンネル間を選んだ理由として、この領域では計数の統計誤差が 1% 以下になる事が上げられる。

第 1 図は、実線が未知試料としての  $\text{D}_2\text{O}$  含有率 20% のもので、破線の  $\text{D}_2\text{O}$  含有率 0% ( $\text{H}_2\text{O}$  100%) と、一点鎖線の  $\text{D}_2\text{O}$  含有率 50% の間にある事が確認できる。尚、二点鎖線は  $\text{D}_2\text{O}$  含有率 100% のものである。

第 2 図は、100~200チャンネルまでの最小自乗直線を 10チャンネルおきに表示したもので未知試料として 50% を用いている。結果として 51.8% と 2% 以内の良い定量を示している。



第1図 D<sub>2</sub>O含有率20%, 0%, 50%, 100%のスペクトル, 生データにスプライン関数で近似補間してある。

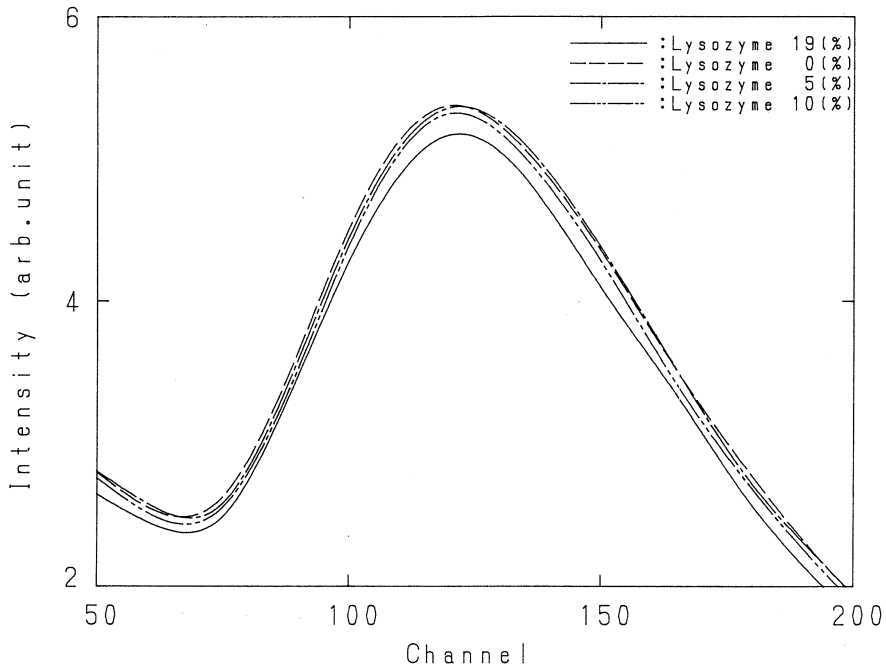


第2図 ■ …各チャンネルでの未知試料の定量点,  
 ■ …基準試料の測定点,  
 最小自乗直線 (100~200チャンネル)。

ii) リゾチームの定量に関しては, 小角散乱の寄与を検討せねばならないが, 今回のものだ

けでは、データが不十分と判断したので、考慮していない。

第3図は、実線、破線、一点鎖線、二点鎖線が、それぞれリゾチーム含有率19%、0%、5%、10%のスペクトルに当たる。15%スペクトルも測定したが、一度の測定であるため試料濃度が正確さを欠いていたか、測定系の問題のためか、原因は不明であるが、良い結果を得られていない。そのため、この定量方法では、現在、定量不能である。



第3図 リゾチーム含有率19%、0%、5%、10%のスペクトル生データにスプライン関数で近似補間してある。

最後に、まだ参考までにしか記述できないが、小角散乱の寄与を検討してみる。

方法としては、セル中の混合液にリゾチーム分子が、何個入っているかを推定し、リゾチーム1分子が、中性子全散乱断面積にしてH<sub>2</sub>O分子の何個分に相当するかを換算し、i)を応用して、小角散乱の寄与のない時の強度を推定し、実際の測定結果とを比較する。

強度の比較としては、(111~130)チャンネルの値を積分してMonitorで割ったものを使用する。

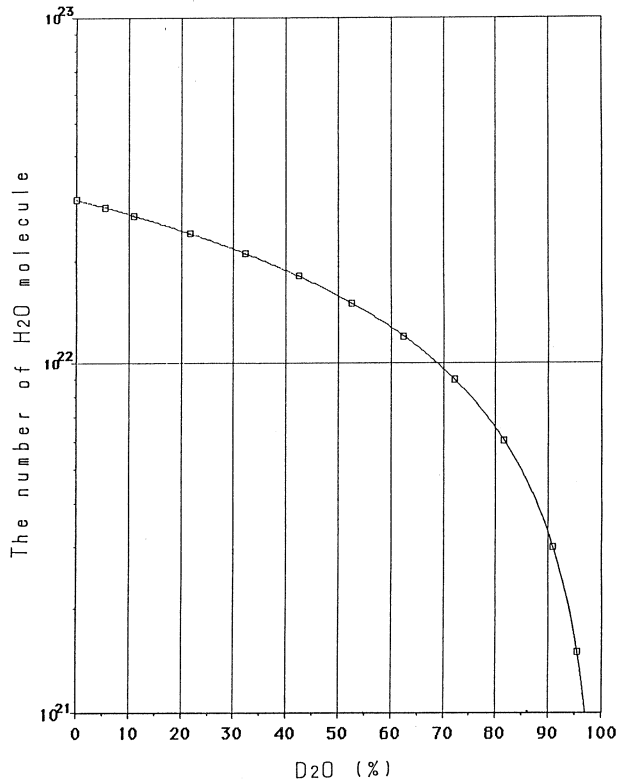
これは、換算で用いた数値が、1.08Åの中性子全散乱断面積である事より、チャンネル数に換算して約120チャンネルを含んでいる事、それと我々の使用している装置は、全試料を同時に測定出来るものではないので装置系のゆらぎによる、チャンネル数の変化を極力、抑制する



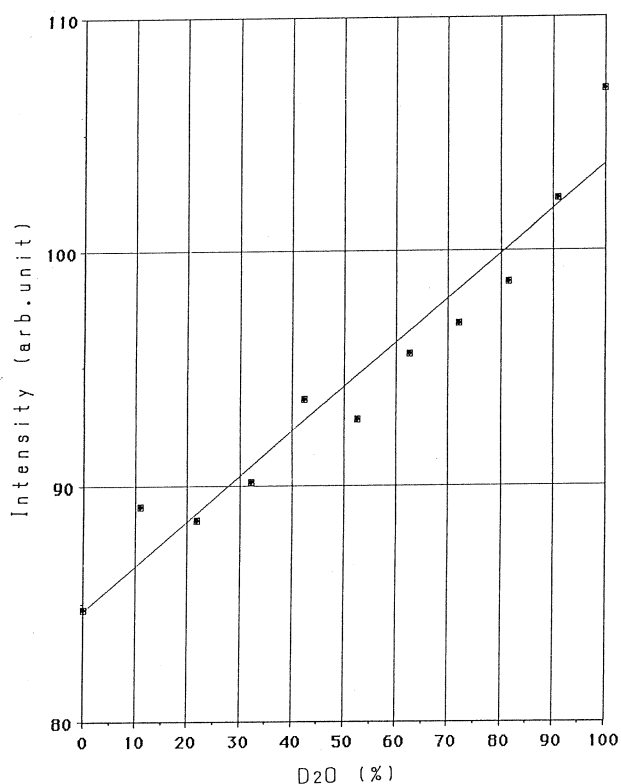
ためである。又、熱中性子領域の全散乱断面積は、波長に比例するので積分した上での影響はないと考えられる。

第4図と第5図は、それぞれ、 $\text{H}_2\text{O}$  分子の数と  $\text{D}_2\text{O}$  含有率、強度と  $\text{D}_2\text{O}$  含有率の関数を示すグラフである。

第1表に結果を示した。表を見る限り15%溶液を除いて、理論強度に対する測定強度の増加が3%見られる。この増加が小角散乱の寄与なのか、今後検討を行う必要がある。



第4図  $\text{H}_2\text{O}$  分子の数と  $\text{D}_2\text{O}$  含有率の関係。



第5図 強度と D<sub>2</sub>O 含有率の最小自乗直線。

第1表 小角散乱の寄与。

リゾチーム 含有率 (重量比)	pH	H <sub>2</sub> O分子に 換算された 時の数( $\times 10^{21}$ )	H <sub>2</sub> O分子に 換算された 時の重量比	理論強度	測定強度
5%	6.25	2.214	93.6%	102.8	105.9
10%	6.2	4.358	86.3%	101.4	104.4
15%	6.15	7.305	77.6%	99.8	99.0
19%	6.3	9.961	69.2%	98.1	101.7

### 参 考 文 献

- 1) 新村信雄, 山田和芳, 杉崎康昭, 三沢正勝, 石田明: 核理研研究報告16 (1983) 241.
- 2) 新村信雄, 山田和芳, 杉崎康昭, 三沢正勝, 石田明: 核理研研究報告17 (1984) 66.

# Ⅲ. 放 射 化 学

## 反跳インプラントーションによる化学反応機構の研究

理学部化学

関根 勉・吉原賢二

The chemical reaction induced by recoil implantation was studied by bremsstrahlung irradiation of the mixture of Cr metal powder and tris ( $\beta$ -diketonato) Fe(III) ( $\beta$ -diketone : hexafluoroacetylacetone (H·hfa), trifluoroacetylacetone (H·tfa), acetylacetone (H·acac), thenoyltrifluoroacetone (H·tta), dipivaloylmethane (H·dpm), dibenzoylmethane (H·dbm)). The yield of  $^{51}\text{Cr}$  ( $\beta$ -diketone) $_3$ , substitution product of the central metal atom of the complex by the recoil atom, was strongly influenced by the catcher complex and it increased in the order of  $\text{Fe}(\text{hfa})_3 < \text{Fe}(\text{tfa})_3 < \text{Fe}(\text{acac})_3 < \text{Fe}(\text{tta})_3 < \text{Fe}(\text{dpm})_3 < \text{Fe}(\text{dbm})_3$ . This trend was discussed with respect to stability of the catcher complex against energy deposition by the recoil atom. A two-step model, which includes an attack process of a recoil atom to a catcher molecule and a competition process between a recoil atom and a central metal atom of catcher complex, was proposed.

## §1. 緒 言

われわれの研究室では、反跳インプラントーション法あるいは類似の放射化学的手法を用いてテクネチウムやプロメチウムなどの新しい化合物を合成してきた<sup>1-4)</sup>。これらの手法を用いてある化合物を合成しようとするときには、基の化合物の中心金属をテクネチウムなどで置き換えるようにターゲット系を選択するのが通常のやり方であるが、それら中心金属置換生成物の収率に及ぼす化学的な要因を系統的に調べた報告はきわめて少なく、その反応機構はまだよくわかっていないのが現状である。

以前、われわれは $\beta$ -ジケトン錯体混合物あるいは混合配位子錯体を捕集体として用い、種々の核反応で生成する $^{51}\text{Cr}$ を打ち込んだ場合のトリス $\beta$ -ジケトナト錯体の生成収率分布を調べたが<sup>5,6)</sup>、その結果、反跳クロム原子の反応圏はホットゾーンモデルで考えられているような大きなものではないことがわかった。また、捕集錯体の配位子が同じであっても中心金属が変わることにより収率が変化するという興味ある結果を得、その収率は捕集錯体の中心金属-配位子間の結合の強さと、反跳原子-配位子間のその相対関係に依存していることがわかった<sup>7,8)</sup>。



そこで今回はそれらをより系統的に理解するために、捕集錯体の中心金属を一定とし、いくつかの配位子のトリス錯体を捕集体とした時の中心金属置換収率に与える影響について調べた。

## §2. 実 験

捕集錯体の中心金属には Fe(III) を選び、配位子としてはジベンゾイルメタン (H•dbm, 1, 3 - diphenyl - 1, 3 - propanedione), ジピバロイルメタン (H•dpm, 2, 2, 6, 6 - tetramethyl - 3, 5 - heptanedione), テノイルトリフルオロアセトン (H•tta, 4, 4, 4 - trifluoro - 1 - (2 - thienyl) - 1, 3 - butanedione), アセチルアセトン (H•acac, 2, 4 - pentanedione), トリフルオロアセチルアセトン (H•hfa, 1, 1, 1 - trifluoro - 2, 4 - pentanedione), ヘキサフルオロアセチルアセトン (H•hfa, 1, 1, 1, 5, 5, 5 - hexafluoro - 2, 4 - pentanedione) を選び、そのトリス錯体を合成した。再結晶あるいは真空昇華による精製をした後, C, H 元素分析によりその生成を確認した。ターゲットは捕集錯体とクロム金属粉末をメノウ乳鉢にて混合し, ペレットとしたものを用いた。

照射は東北大学原子核理学研究施設の電子 LINAC を用いた。制動放射線の最大エネルギーは 50 MeV で, 未転換電子はスウィープマグネットにより除去し, 約 8 時間の照射を行なった。ターゲットは液体窒素で冷却した窒素ガスを吹き付けることにより冷却した<sup>(9)</sup>。照射を終えた試料は分析時までドライアイス中に保存した。

試料はキャリアとしてそれぞれのクロムのトリス錯体を加え, ベンゼンに溶解後, 遠心分離によって反跳源粉末を除き, アルミナカラムあるいはシリカゲルカラムクロマトグラフィにより目的成分を溶離した。




放射能測定は, pure Ge 検出器あるいは Ge(Li) 検出器 - 4kPHA により行なった。

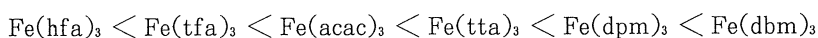
## §3. 結果と考察

第 1 表には, 用いた捕集錯体の種類とその  $\beta$ -ジケトンの置換基, および放射性クロム原子で中心金属を置換した収率の実験値の平均値を示す。なお捕集体中に打ち込まれた <sup>51</sup>Cr の総量を 100% とした。また誤差は, 繰り返し実験から得られた実験値の標準偏差である。

この結果より, 放射性クロムの中心金属置換収率は同じ鉄のトリス錯体でも配位子が変わることによって 9% ぐらいから 40% 程度と大きく影響されていることがわかる。その収率の大きさの順番は配位子を R<sub>1</sub>COCHCOR<sub>2</sub> として

第1表 The percent yield of  $^{51}\text{Cr}(\text{L})_3$  for Iron(III)  $\beta$ -diketonates.

Catcher	$\text{Fe}(\text{dbm})_3$	$\text{Fe}(\text{dpm})_3$	$\text{Fe}(\text{tta})_3$	$\text{Fe}(\text{acac})_3$	$\text{Fe}(\text{tfa})_3$	$\text{Fe}(\text{hfa})_3$
functional group	$\text{R}_1$ 	$\text{CH}_3 - \overset{\text{CH}_3}{\underset{ }{\text{C}}} - \text{CH}_3$		$\text{CH}_3$	$\text{CH}_3$	$\text{CF}_3$
	$\text{R}_2$ 	$\text{CH}_3 - \overset{\text{CH}_3}{\underset{ }{\text{C}}} - \text{CH}_3$	$\text{CF}_3$	$\text{CH}_3$	$\text{CF}_3$	$\text{CF}_3$
$^{51}\text{Cr}(\text{L})_3$ yield(%)	43.8 $\pm 3.1$	28.6 $\pm 1.2$	24.0 $\pm 0.9$	20.5 $\pm 1.8$	13.0 $\pm 0.8$	9.8 $\pm 0.3$



となった。

捕集錯体の安定性という見地からこれらを比較してみると、安定性の高い捕集錯体ほど高い置換収率を与えている。たとえば、acac 錯体、tfa 錯体、hfa 錯体ではその順に置換収率が低くなっている。これらにおいては、置換基の  $\text{CH}_3$  基がその順にひとつずつ  $\text{CF}_3$  基に置き変わったものであるが、 $\text{CF}_3$  基の電子吸引性により金属と配位子の酸素との間の結合が弱くなることが知られている<sup>10)</sup>。これらの様子は中心金属と配位子の酸素との間の伸縮振動の波数にも現われており<sup>11)</sup> (第2表)、波数の小さくなる方向に中心金属置換収率も小さくなっていることが

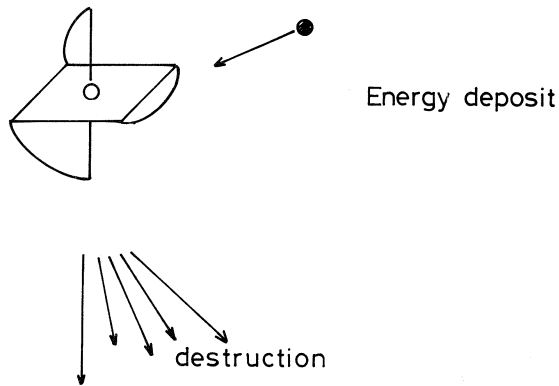
第2表 The percent yield of  $^{51}\text{Cr}(\text{L})_3$  and frequency of metal - oxygen bond<sup>11)</sup>.

	$\text{Fe}(\text{dpm})_3$	$\text{Fe}(\text{acac})_3$	$\text{Fe}(\text{tfa})_3$	$\text{Fe}(\text{hfa})_3$
$^{51}\text{Cr}(\text{L})_3$ %	28.6	20.5	13.0	9.8
$\nu(\text{M}-\text{O})$ $\text{cm}^{-1}$	479	437	424	421

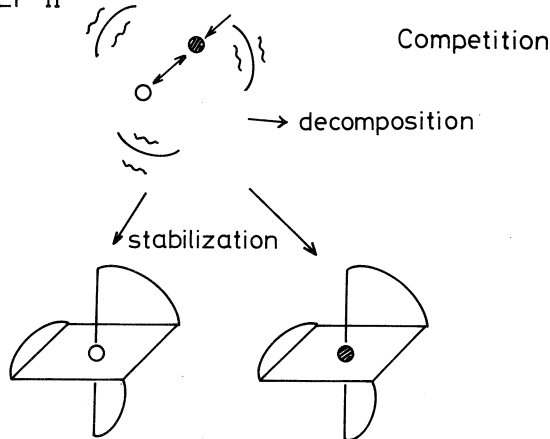
わかる。したがってここで得られた傾向は、安定性を増した捕集錯体ほど中心金属の置換を促進しているという方向が推察される。

以前に、3価のFe, Al, Cr, Coのアセチルアセトナト錯体を捕集錯体としたときの $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{97}\text{Ru}$ のインプランテーションの際、中心金属の置換収率はアルミニウム、コバルト、クロム、鉄の順番で増加している傾向が得られた<sup>7,8)</sup>が、これは捕集錯体中の中心金属と配位子の酸素との間の結合力の指標である力の定数の小さくなっていく順番と一致し、結合が弱くなる順番と理解された。これは、中心金属置換反応を起こす対象錯体の中心金属と反跳原子との間で錯形成をする瞬間において競合過程が存在することを示唆している。この置換収率の変化の傾向は、見かけ上、上で得られた傾向と矛盾しているように見える。すなわち、中心金属一定で配位子を変えた場合には安定な捕集錯体ほど置換収率が増し、配位子一定で中心金属を変えた場合には結合の弱い捕集錯体ほど置換収率が増している。これらを同時に矛盾なく説明するためには、少なくとも中心金属置換に預かるまでに二つのプロセスが関与していると考えざるをえ

## STEP I



## STEP II



第1図 Two step model for the substitution of the central metal atom of the catcher complex by the recoil atom.

ない。一つは、反跳原子がその飛程末端で反応する際、反応対象錯体にアタックする過程で必ずエネルギー付与が行われるはずである(第1図)。このような場合に起こる反応の一次過程としては考えられる反応はイオン化反応あるいは励起である。 $\beta$ -ジケトン錯体のエネルギー付与に対する安定性は、電子衝撃による分解過程がマスペクトロメーターを用いた実験によって研究されている<sup>12)</sup>。また、X線光電子分光法による研究もある<sup>12)</sup>。これらによるとM( $\beta$ -diketone)<sub>3</sub>の1価の正イオンの出現電圧は中心金属の違いによる差よりも配位子が異なることにより大きく影響を受けることがわかる(第3表)。たとえば、アセチルアセトン錯体では中

第3表 Appearance potential of  $ML_2^+$ <sup>12)</sup>.

	Al(III)	Cr(III)	Co(III)	Fe(III)	
acac	7.95	8.10	7.80	8.45	V
	8.27	7.87	7.81	8.64	
tfa	9.05	9.09		9.10	V
				9.38	
hfa	9.80	10.13	10.2	10.2	V
	10.30	9.97	10.34	10.34	

心金属がAl, Cr, Co, Feと変化してもほぼ8V程度の値を与えるが、配位子がトリフルオロアセチルアセトン、ヘキサフルオロアセチルアセトンと変化することによって、9V, 10Vと段階的に変化が認められている。これは最初に脱離する電子が配位子に帰属するものであることを示している。すなわち、第一次近似的に考えると初期のイオン化過程においては中心金属の違いにはあまり関係なく配位子の違いによる影響の大きいことが理解される。また、1価の正イオンの生成割合が銅の2価錯体について報告されているが<sup>13)</sup>(第4表)、hfa, tfa錯体で

第4表 Production yields of  $CuL_2^+$  and  $CuL^+$ <sup>13)</sup>.

	dbm	tta	acac	tfa	hfa	
$CuL_2^+$	38.0	31.8	12.1	1.7	3.6	%
$CuL^+$	42.7	10.8	22.6	2.6	0.6	%



その割合が小さく、acac, tta, dbm 錯体という順番でその量が大きくなっていることがわかる。われわれの系にあわせて考えてみると、反跳原子が中心金属置換を起こす対象となる錯体にエネルギー付与をすることになるから、その時点において錯体自身、あるいは配位子を激しく壊す反応を起こしたのではトリス錯体が最終的に生成することにはならない。これは、混合配位子錯体をターゲットとしたときのトリス錯体生成物がほとんど親錯体の形をとっていたこと<sup>6)</sup>や、ベンゾイルアセトンのトリス錯体の幾何異性体を用いたときにも標識される錯体の幾何異性が保存される傾向にあること<sup>14)</sup>などから支持される。すなわち反応に預かる対象錯体は1分子と考えてよく、その分子がもともとの形を保持できるかできないかが標識収率の大小を左右することになると考えられ、第4表の傾向が本実験で得られた収率の傾向と合致する。また、このような安定性という概念はいわゆる放射線に対する安定性という概念にも通じるところがある。たとえば、壊変現象に対して安定性を示す化合物は $\pi$ 電子系を有する化合物に多い。よく知られているフタロシアニン錯体や、テトラフェニルボルフィリン化合物はマクロ的にも耐放射線性がすぐれているだけでなく、その中心金属においてオージェ過程をかなり含む壊変が起こった場合においてもそのままの形で標識化される割合が極めて大きいことが報告されている<sup>15)</sup>。われわれの系で最も大きな収率の得られているジベンゾイルメタン錯体の場合がこれに相当すると考えられるが、フェニル基の導入によってキレートリングとのメソメリー効果が期待され中心金属と配位子間の結合が強くなることが報告されている<sup>10,11)</sup>。

さて、その様にして錯体中心付近に入り込んだ反跳原子は次のプロセスに進み、もともとそこにいた中心金属と錯形成の競合過程を引き起こし<sup>7,9)</sup>、結合の強いものに有利になるように収率を高める(第1図)。この際には、反跳原子と配位子間、およびもともとの中心金属原子と配位子間の結合の強さが収率を支配するようになると考えられ、ここで大きく中心金属の影響が反映される。

以上のように、反応の過程を2つのプロセスに分けて考えると、中心金属を置換する際の配位子の与えた効果と、捕集錯体の中心金属自身が与えた効果を同時に理解することができる。

最後に照射に際して大変お世話になった核理研の樹本和義博士とマシングループの皆様に感謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) K.Yoshihara, T.Omori and H.Kido : J.Inorg. Nucl. Chem. **43** (1981) 639.
- 2) K.Yoshihara, T.Omori, T.Sekine and M.Saito : Radiochim. Acta. **29** (1981) 131.
- 3) T.Sekine and K.Yoshihara : *ibid.* **29** (1981) 139.
- 4) K.Yoshihara, M.Saito and T.Sekine : *ibid.* **30** (1982) 25.
- 5) T.Sekine and K.Yoshihara : Radiochem. Radioanal. Lett. **52** (1982) 311.
- 6) 佐野正明, 関根 勉, 吉原賢二 : 核理研研究報告 **17** (1984) 139.
- 7) T.Sekine and K.Yoshihara : J.Radioanal. Nucl. Chem. Lett. **105** (1986) 229.
- 8) T.Sekine, M.Sano and K.Yoshihara : *ibid.* **107** (1986) 207.
- 9) 関根 勉, 吉原賢二, 八木益男, 榎本和義 : 核理研研究報告 **15** (1982) 219.
- 10) K.Nakamoto, Y.Morimoto and A.E.Martell : J. Phys. Chem. **66** (1962) 346.
- 11) R.D.Hancock and D.A.Thornton : J. Mol. Structure **4** (1969) 361.
- 12) J.B.Westmore : Chem. Rev. **76** (1976) 695.
- 13) C.Reichert and J.B.Westmore : Can. J. Chem. **48** (1970) 3213.
- 14) T.Sekine and K.Yoshihara : J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett. **118** (1987) 137.
- 15) 池田長生, 莊司 準, 酒井陽一, 中島 茂 : 核理研研究報告 **9** (1976) 253.

## Preparation of Carrier-free $^{47}\text{Sc}$ and Impurity-diffusion of Sc in Aluminum Single Crystals

Shin-itiirô Fujikawa and Shun-ichi Ushino

*Department of Materials Science, Faculty of Engineering*

*Tohoku University, Sendai 980, Japan*

In order to obtain the radioactive tracer of Sc with high-specific activity for the diffusion study, the preparation of the carrier-free  $^{47}\text{Sc}$  from a natural Ti metal target was investigated by using the photo-nuclear reaction,  $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)^{47}\text{Sc}$ . The preliminary but the first measurements for the impurity-diffusion coefficients of Sc in aluminum single crystals were carried out by serial-sectioning method in the very limited temperature range near  $T_m$  between 873 and 926 K. The results were compared with those of transition elements in aluminum.

### §1. Introduction

It is well known that the volume diffusion of transition elements in aluminum is characterized by *anomalously* large pre-exponential factor ( $D_0$ ) and activation energy ( $Q$ ), compared with those for the self-diffusion. The theoretical interpretation of this results is not clear at present. Furthermore, it is much difficult to obtain the reliable data of impurity-diffusion for transition elements in aluminum because of the hold up phenomena of the tracers near surface of specimens.

Scandium is the first element of the transition elements in the periodic table and classified as one of rare earth elements owing to the similarities of chemical properties. Recently, Al-Sc alloys have attracted researchers in the view of the large age-hardenability<sup>1)</sup> and residual resistivity<sup>2)</sup>. The impurity-diffusion data of Sc in aluminum, which is very useful to analyze kinetically the phase transition during thermal treatments, have not yet been reported because of the very expensive tracer,  $^{46}\text{Sc}$  and the difficulty to obtain the carrier-free tracer of Sc.

In the present work, the new preparing method of the carrierfree  $^{47}\text{Sc}$  ( $t_{1/2}=2.96\times 10^5\text{s}$ )

was investigated and the impurity-diffusion coefficients of Sc in aluminum at several temperatures near  $T_m$  were determined using the carrier-free  $^{47}\text{Sc}$  and the high-specific activity  $^{44\text{m}}\text{Sc}$  ( $t_{1/2}=2.11 \times 10^5 \text{s}$ ). The  $^{47}\text{Sc}$  is very difficult to produce in the carrier-free state by means of either a cyclotron or a reactor. Yagi and Kondo<sup>9)</sup> have already succeeded in preparing the carrier-free  $^{47}\text{Sc}$  using the photonuclear reaction. In the present work, the new separating method, which is different from them, was developed.

## §2. Experimental procedure

### 2.1 Preparation of radioactive tracer $^{44\text{m}}\text{Sc}$ and $^{47}\text{Sc}$

Natural Sc and Ti metals (purity : both more than 99.9 mass%) were used as the targets for the preparation of  $^{44\text{m}}\text{Sc}$  and  $^{47}\text{Sc}$ , respectively. Bremsstrahlung irradiation was carried out by means of the 300 MeV linear accelerator (Linac) of Tohoku University. The Linac was operated typically in the condition of 30 MeV for 10 hours. The sample tube was placed horizontally on the axis of electron beam in close contact with the back of a Pt converter of 2 mm in thickness cooled by running tap water. The integrated electron beam current was kept constant at about 0.2 Coulomb through irradiation period. The high specific activity  $^{44\text{m}}\text{Sc}$  was prepared using the photonuclear reaction  $^{45}\text{Sc} (\gamma, n) ^{44\text{m}}\text{Sc}$ . The irradiated Sc metal was dissolved using conc. chloric acid and made into the Sc chloride by dry up. Table 1 summarizes the possible photonuclear reactions on titanium leading to the production of radionuclides, indicating that the  $^{47}\text{Sc}$  is produced mainly by the  $^{48}\text{Ti} (\gamma, p) ^{47}\text{Sc}$  in the case of 30 MeV bremsstrahlung. The carrier-free  $^{47}\text{Sc}$  was successfully separated from the irradiated Ti foil using the radiocolloidal method. The flow chart of the process is shown in Figure 1. After dry up, a trace of the carrier-free Sc alone remained in the bottom of a beaker. Figure 2 and Table 2 show the gamma-ray spectrum of the final product prepared in the method shown in Figure 1 and the result of peak search for Figure 2, respectively.

Table 1 Possible photonuclear reactions on titanium.

target nuclide (abundance:%)	reaction type	Q value (MeV)	product nuclide	half-life of product (s)
<sup>46</sup> Ti (7.99)	( $\gamma$ , n)	13.2	<sup>45</sup> Ti	1.11x10 <sup>4</sup>
<sup>46</sup> Ti	( $\gamma$ , p2n)	31.4	<sup>43</sup> Sc	1.41x10 <sup>4</sup>
<sup>46</sup> Ti	( $\gamma$ , pn)	21.7	<sup>44</sup> Sc	1.41x10 <sup>4</sup>
<sup>47</sup> Ti (7.32)	( $\gamma$ , 2n)	22.1	<sup>45</sup> Ti	1.11x10 <sup>4</sup>
<sup>47</sup> Ti	( $\gamma$ , p3n)	40.2	<sup>43</sup> Sc	1.41x10 <sup>4</sup>
<sup>47</sup> Ti	( $\gamma$ , p2n)	30.6	<sup>44</sup> Sc	1.41x10 <sup>4</sup>
<sup>47</sup> Ti	( $\gamma$ , p)	10.5	<sup>46</sup> Sc	7.25x10 <sup>4</sup>
<sup>48</sup> Ti (73.99)	( $\gamma$ , 3n)	33.7	<sup>45</sup> Ti	1.11x10 <sup>4</sup>
<sup>48</sup> Ti	( $\gamma$ , p4n)	51.9	<sup>43</sup> Sc	1.41x10 <sup>4</sup>
<sup>48</sup> Ti	( $\gamma$ , p3n)	42.2	<sup>44</sup> Sc	1.41x10 <sup>4</sup>
<sup>48</sup> Ti	( $\gamma$ , pn)	22.1	<sup>46</sup> Sc	7.25x10 <sup>6</sup>
<sup>48</sup> Ti	( $\gamma$ , p)	11.4	<sup>47</sup> Sc	2.96x10 <sup>5</sup>
<sup>49</sup> Ti (5.46)	( $\gamma$ , 4n)	42.8	<sup>45</sup> Ti	1.11x10 <sup>4</sup>
<sup>49</sup> Ti	( $\gamma$ , p4n)	50.3	<sup>44</sup> Sc	1.41x10 <sup>4</sup>
<sup>49</sup> Ti	( $\gamma$ , p2n)	30.2	<sup>46</sup> Sc	7.25x10 <sup>6</sup>
<sup>49</sup> Ti	( $\gamma$ , pn)	20.4	<sup>47</sup> Sc	2.96x10 <sup>5</sup>
<sup>49</sup> Ti	( $\gamma$ , p)	11.4	<sup>48</sup> Sc	1.58x10 <sup>5</sup>
<sup>49</sup> Ti	( $\gamma$ , 2p)	20.8	<sup>47</sup> Ca	3.91x10 <sup>5</sup>
<sup>50</sup> Ti (5.25)	( $\gamma$ , 5n)	52.8	<sup>45</sup> Ti	1.11x10 <sup>4</sup>
<sup>50</sup> Ti	( $\gamma$ , p3n)	41.3	<sup>46</sup> Sc	7.25x10 <sup>6</sup>
<sup>50</sup> Ti	( $\gamma$ , p2n)	30.5	<sup>47</sup> Sc	2.96x10 <sup>5</sup>
<sup>50</sup> Ti	( $\gamma$ , pn)	22.3	<sup>48</sup> Sc	1.58x10 <sup>5</sup>
<sup>50</sup> Ti	( $\gamma$ , 2pn)	31.7	<sup>47</sup> Ca	3.91x10 <sup>5</sup>

Table 2 Results of peak search for  $\gamma$ -ray spectrum, shown in Figure 2.

peak channel	net count	nuclide
159.74	94526	<sup>47</sup> Sc
176.60	9	<sup>48</sup> Sc
890.17	4553	<sup>46</sup> Sc
984.39	245	<sup>48</sup> Sc
1038.48	179	<sup>48</sup> Sc
1121.46	3728	<sup>46</sup> Sc
1312.87	187	<sup>48</sup> Sc

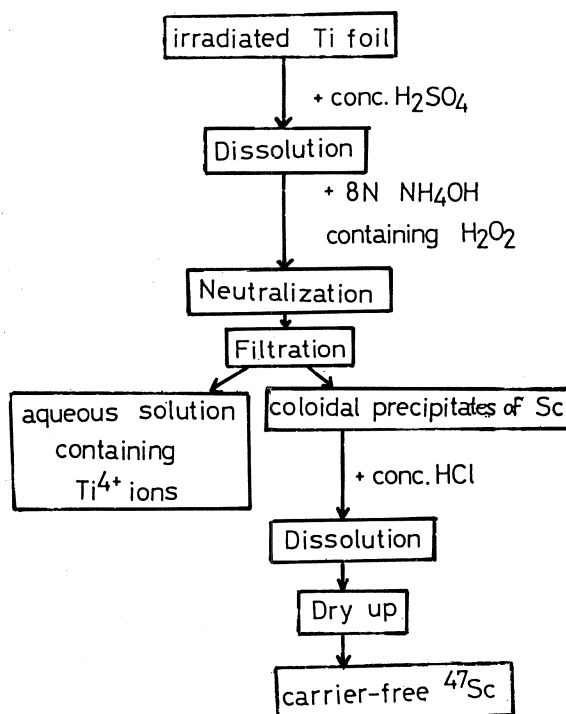


Fig. 1 Flow chart of preparation for carrier-free  $^{47}\text{Sc}$  by radiocoloidal method.

## 2.2 Diffusion experiment

Single crystals were grown in a high purity graphite crucibles from 99.9995 mass% purity aluminum by the Bridgman method. Diffusion samples of 13 mm in both diameter and length were cut from the single crystals using a precision cutter. They were chemically polished and annealed in a  $\text{H}_2$  atmosphere at 900 K for about  $2.0 \times 10^4$  s to decrease dislocation density. One face of each specimen was polished with a diamond paste, and finally was electropolished in a solution consisting of ethyl alcohol and perchloric acid. The radioactive tracers  $^{44\text{m}}\text{Sc}$  and  $^{47}\text{Sc}$  in the form of chloride were deposited on the flat surface of the specimens using an infrared lamp. A small amount of ethyl alcohol was added to the solution containing the tracers to avoid inhomogeneous distribution of them on the surface. The metallic tracer layer was produced by the reduction of the chloride with Al in the very early stage of diffusion annealing. The thickness of the tracer layer was estimated to be less than about 10 nm. The specimens were then diffusion annealed in

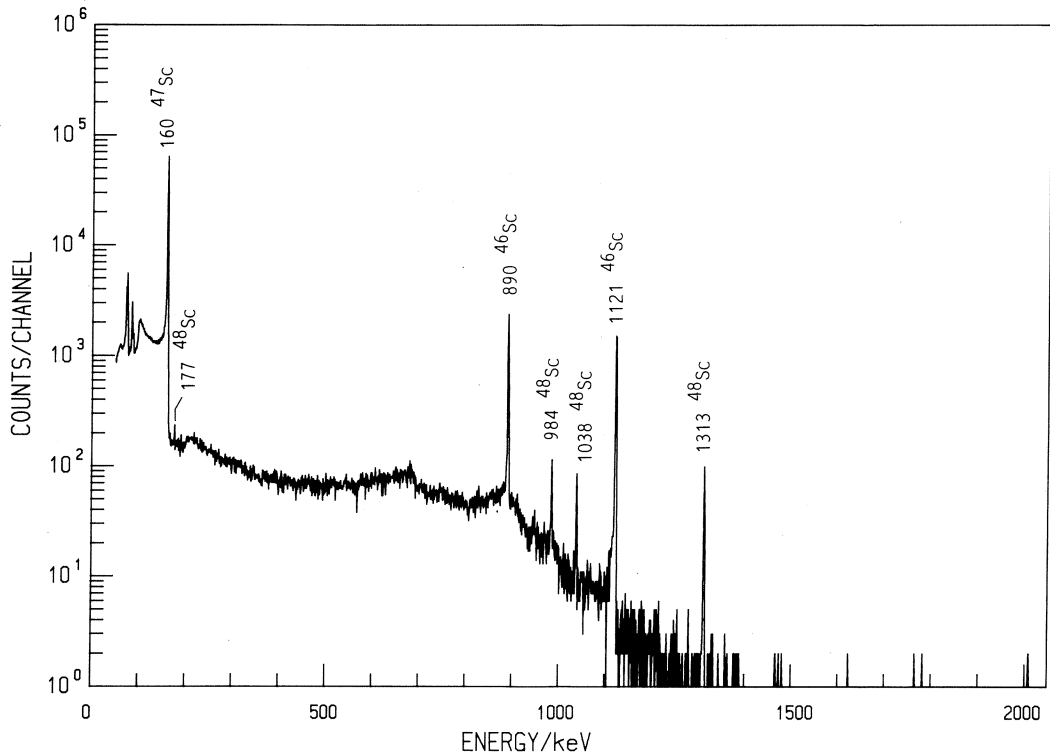


Fig. 2  $\gamma$ -ray spectrum of carrier-free  $^{47}\text{Sc}$ .

a silica glass tube containing about 27 kPa at 293 K of purified He gas to avoid the oxidation of both the tracers and Al surface. The diffusion annealing, carried out in a resistance furnace controlled to  $\pm 1$  K, varied over the temperature range between 873 and 926 K. The diffusion time for each specimen was selected for  $2(D^*t)^{1/2}$  to be nearly equal to 200  $\mu\text{m}$ . The impurity-diffusion coefficients of Sc in aluminum were determined by the serial-sectioning method using a precision microtome. The activities were measured using a Ge (Li) detector and a multichannel PHA. Each section was counted to  $10^4$  or more counts above background using an autoexchanger of specimens. The thickness of each section was measured by a microbalance.

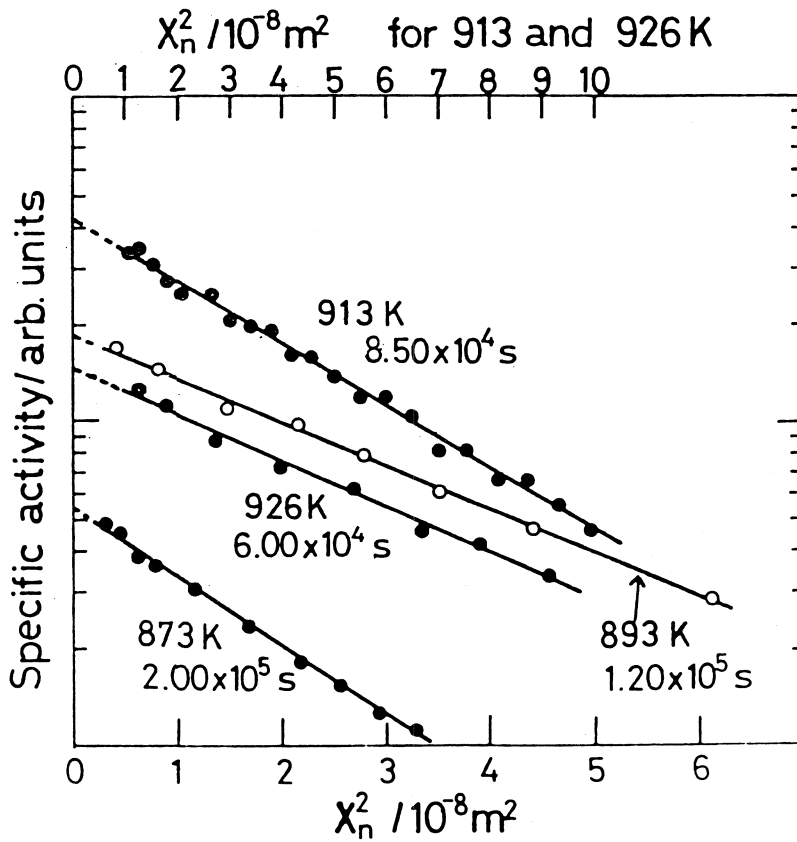


Fig. 3 Log specific activity vs.  $X_n^2$  plots for impurity-diffusion of Sc in aluminum

Table 3 Impurity-diffusion coefficients of Sc in aluminum.

$T$ (K)	Time (s)	$D^T$ ( $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ )	probable error( $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ )	$2(D^T t)^{1/2}$ ( $\mu\text{m}$ )	tracer
926	$6.00 \times 10^4$	$2.58 \times 10^{-13}$	$+3.83 \times 10^{-14}$ $-2.95 \times 10^{-14}$	249	$^{44}\text{mSc}$
913	$8.50 \times 10^4$	$1.33 \times 10^{-13}$	$+7.34 \times 10^{-14}$ $-3.48 \times 10^{-14}$	212	$^{44}\text{mSc}$
903	$9.00 \times 10^4$	$8.04 \times 10^{-14}$	$+3.09 \times 10^{-14}$ $-1.74 \times 10^{-14}$	170	$^{44}\text{mSc}$
893	$1.20 \times 10^4$	$6.71 \times 10^{-14}$	$+5.08 \times 10^{-15}$ $-4.41 \times 10^{-15}$	162	$^{47}\text{Sc}$
873	$2.00 \times 10^4$	$2.49 \times 10^{-14}$	$+2.23 \times 10^{-15}$ $-1.89 \times 10^{-15}$	141	$^{44}\text{mSc}$



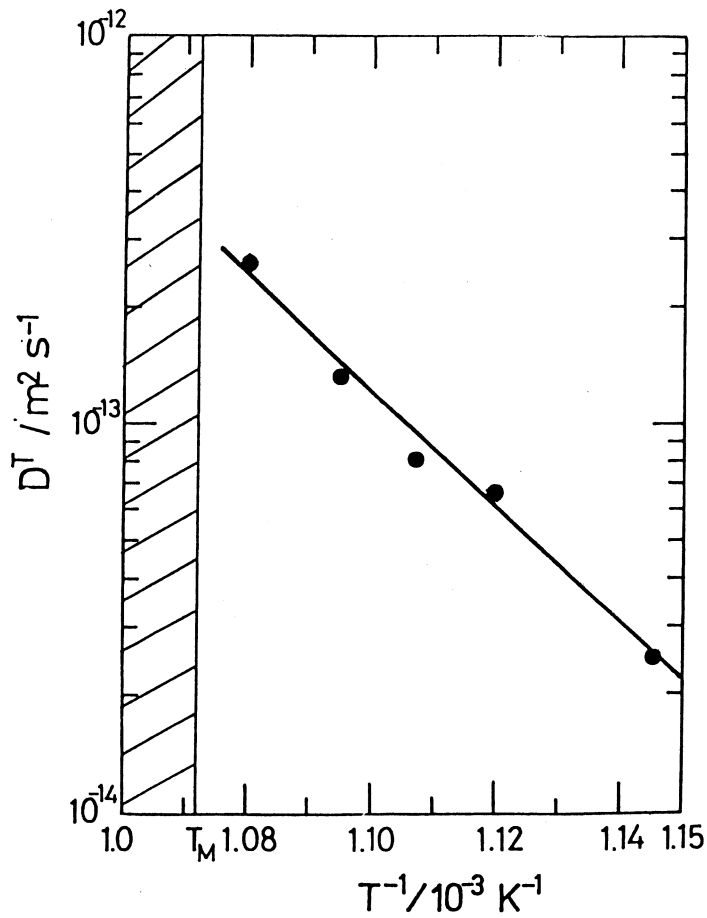


Fig. 4 Temperature dependence of  $D^T$  for impurity-diffusion of Sc in aluminum.

Table 4 Diffusion parameters for impurity-diffusion and self-diffusion in aluminum.

element	$D_0(\text{m}^2\text{s}^{-1})$	$Q(\text{eV})$	temperature	source
Sc	$3.56 \times 10^3$	2.97	873-926	present work
Mn	$3.17 \times 10^{-2}$	2.25	843-927	Fujikawa <sup>4)</sup>
Fe	$9.1 \times 10$	2.68	791-931	Hood <sup>5)</sup>
Fe	$5.3 \times 10^{-3}$	1.90	794-924	Beke <sup>6)</sup>
Cr	$1.84 \times 10^{-1*}$	2.62*	859-922	Peterson <sup>7)</sup>
Zr	$7.28 \times 10^{-2}$	2.51	804-913	Fujikawa <sup>8)</sup>
Cu	$6.54 \times 10^{-5}$	1.41	594-928	Fujikawa <sup>9)</sup>
Al	$2.25 \times 10^{-4}$	1.50	673-883	Beyeler <sup>10)</sup>

\* recalculated values by Fujikawa in Ref. (8)

### § 3. Results and discussion

The solution of Fick's second law for the initial condition of thin-film is

$$c = \text{const.} \exp(-X_n^2/4D^T t), \quad (1)$$

where  $c$  is the specific activity of a section, the center of which is  $X_n$  from the original surface,  $D^T$  the tracer diffusivity and  $t$  the diffusion time. In the penetration plot for the diffusion of transition elements in aluminum, the steep slope at small penetration distance is often observed. For the diffusion of Sc in aluminum such a "near-surface effect" was also observed, but the degree of the drop in specific activity was rather small. Figure 3 shows the semilog plot of specific activity vs.  $X_n^2$ . Within experimental error, a good linear relationship is obtained over a sufficiently large penetration distance. Hence the straight-line portion presents volume diffusion. The values of  $D^T$  determined using equation (1) are given in Table 3. Figure 4 shows the temperature dependence of the impurity-diffusion coefficients of Sc in aluminum measured in the present work. The temperature dependence of the diffusivities is given by

$$D_{\text{Sc/Al}} = 3.56 \times 10^3 \exp(-(2.97 \pm 0.13)\text{eV}/kT)\text{m}^2\text{s}^{-1} \quad (2)$$

Table 4 shows the diffusion parameters ( $D_0$  and  $Q$ ) for Sc and other elements<sup>4-10)</sup> in aluminum. The values of  $D_0$  and  $Q$  for Sc in aluminum are too large, compared with the already reported values. In the present work, a few measurements have been carried out over a very limited range of temperature and therefore further measurements are necessary. Figure 5 shows the temperature dependence of diffusivities of Al, Sc, Fe, Mn, Zr and Cr in aluminum. Each straight line in Figure 5 is drawn for the respective temperature range of the experiment. The diffusivities of Sc in aluminum are nearly equal to those of Fe in aluminum by Hood<sup>5)</sup> and larger than those of Mn<sup>4)</sup>, Zr<sup>8)</sup> and Cr<sup>7)</sup> in aluminum.

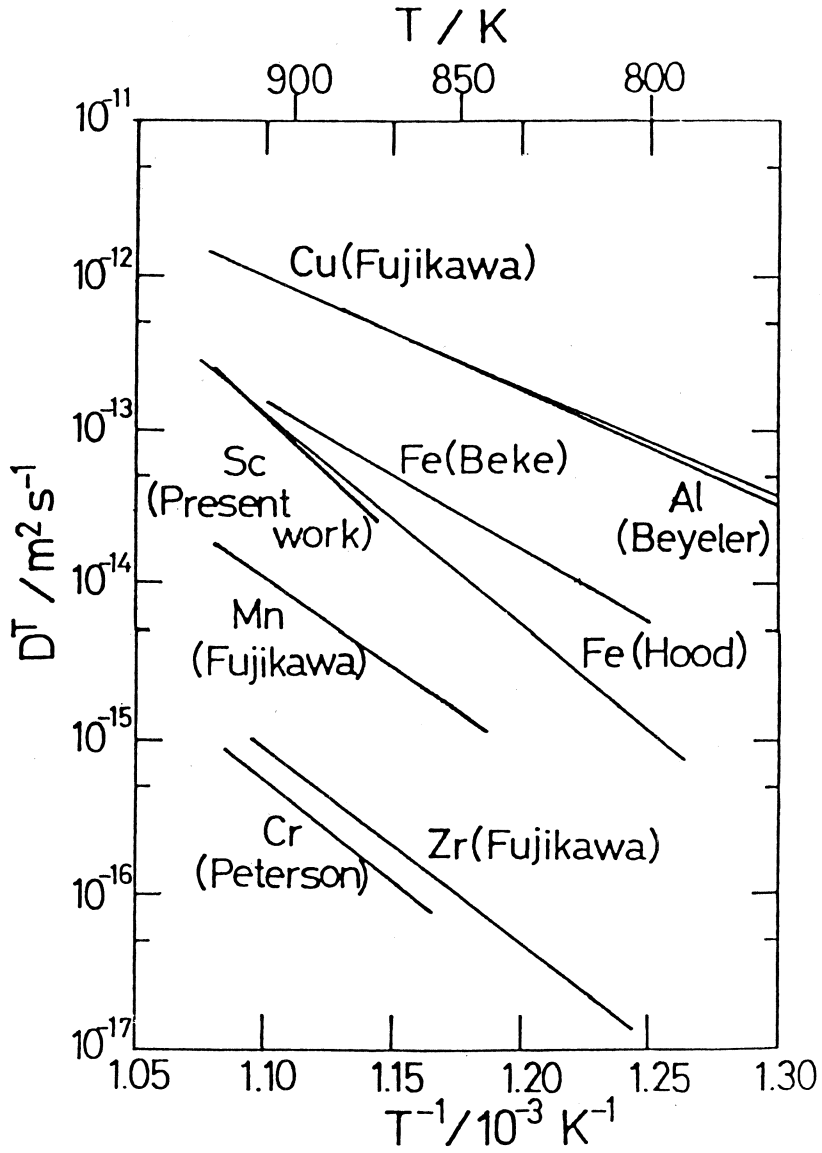


Fig. 5 Comparison of  $D^T$  of Sc in aluminum with those of other transition elements and Al in same host metal.

#### §4. Conclusions

We have developed the new separating method of the carrier-free  $^{45}\text{Sc}$  from the Ti foil after bremsstrahlung irradiation. The impurity-diffusion coefficients of Sc in aluminum were determined at several temperatures near  $T_m$ . The values of  $D^r$  is nearly equal to those of Fe in aluminum. The detailed study is now in progress.

#### Acknowledgements

We thank Dr. K. Masumoto for the experimental suggestions in the preparation of the carrier-free  $^{45}\text{Sc}$ . We further acknowledge Prof. K. Hirano for the encouragement.

This work was supported by a grant in Aid (No. 62850118) from Ministry of Education, Science and Culture and The Light Metal Educational Foundation Inc. (Osaka).

#### References

- 1) M. E. Dritz, S. G. Pavlenko, L. S. Toropova, J. G. Bikov and L. G. Ber: Akad. Nauk. SSSR, 1981, 353.
- 2) S. Fujikawa, M. Takei, M. Sugaya and K. Hirano: J. Less-common Metals **63** (1979) 87.
- 3) M. Yagi and K. Kondo: Int. J. Appl. Radiat. Isotopes **28** (1977) 463.
- 4) S. Fujikawa and K. Hirano: Mat. Sci. Forum **13/14** (1987) 539.
- 5) G. M. Hood: Phil. Mag. **21** (1970) 305.
- 6) D. L. Beke, I. Godeny, G. Erdelyi and F. J. Kedves: Mat. Sci. Forum **15/18** (1987) 425.
- 7) N. L. Peterson and S. J. Rothman: Phys. Rev. **B1** (1970) 3264.
- 8) T. Marumo, S. Fujikawa and K. Hirano: Japan Inst. Light Metals **23** (1973) 17.
- 9) S. Fujikawa and K. Hirano: Mat. Sci. Forum, in press.
- 10) M. Beyeler and Y. Adda: J. Physique **29** (1968) 345.

## 標準添加内標準法による放射化分析にたいする一つの試み —低合金鋼の光量子放射化分析について—

金研, 核理研\*

原 光雄・飯野栄一

榎本和義\*・八木益男

The usefulness of the internal standard method coupled with the standard addition method has been tested by setting a beginner. For this test, determination of trace elements in a standard reference material of low alloy steel (NBS-464) by instrumental photon activation analysis was picked up. As an internal standard,  $^{52}\text{Mn}$  produced through the  $^{54}\text{Fe}(\gamma, \text{pn})$  reaction was used, and then 8 elements, such as Cr, Co, Ni, As, Zr, Nb, Mo and Sb, were determined simultaneously. As a result, it was demonstrated that the highly accurate and precise multielement determination can be achieved easily.

### §1. はじめに

先に八木, 榎本によって開発された標準添加内標準法<sup>1)</sup>は, 試料自身に定量目的元素の既知量を加えたものを比較標準として利用するため, 照射や測定時のマトリックス効果が相殺されるという特色と, 試料と比較標準のそれぞれの被照射線量は試料中に存在する特定元素を内標準に利用するため, 定量にかかわる系統誤差の主要要因は殆んど除去されてしまうという特色をあわせ持っている。また, この方法はあらゆる放射化法による多元素同時定量に適用できるため, 各種機器分析用標準試料の調製とその検定にたいして優れた卓越性が発揮され<sup>2-10)</sup>, 従来の放射化分析法にとってかわるものと高く評価されている。

この方法の有用性を実証する研究はより広範な試料にたいして, 現在まだ継続実施されている段階であるが, 今回はこの方法の普遍化にたいする一つの試みが行われたので, それについて報告したい。この試みは放射化分析はおろか化学分析すら行った経験がない学部学生に, 何の予備知識も与えないで, いきなりこの方法による低合金鋼における Cr, Co, Ni, As, Zr, Nb, Mo および Sb の光量子放射化分析をしてもらうということで行われた。所謂, ずぶの素人が実験してどの程度のデータをだすことができるかという甚だ興味ある試みである。

## §2. 実 験

### 2.1 試料および試薬

試料としてNBS-464低合金鋼を選び、化学処理をしやすくするため0.3mm厚の薄板に圧延した。一方、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  $\mu\text{g}/\text{g}$ )を適宜希釈することによって用いた。その他の試薬、酸等はすべて精密分析用のものを用いた。

### 2.2 照射試料の調製

#### 2.2.1 比較標準の調製

試料薄板の約0.5gを正確に測りとり、テフロン製ルツボに移し1:1硝酸5mlを加え、さらにこれに定量目的元素の混合溶液(第1表を参照)の一定量を添加した。ルツボは分解容器(ユニシール)に入れたのち100°Cで1時間放置し、試料の完全溶解をおこなった。ついで一旦硝酸を蒸発させ、再び4M硝酸およびテトラエチルシリケート各3mlを加えて攪拌しシリカゲルを生成させた。このシリカゲルは電子レンジを用いて蒸発乾固し、さらに400°Cの電気炉中で2時間加熱することで脱水粉末化した。最終的には得られた粉末試料の約0.2gをとり、直径10mmのペレットに加圧成型し、高純度アルミニウム箔に包んで照射試料とした。

第1表 Amounts of 8 elements added to the comparative standard as internal standards.

Element	Amounts ( $\mu\text{g}/\text{g}$ )
Cr	637
Co	182
Ni	1275
As	182
Zr	182
Nb	363
Mo	363
Sb	182

#### 2.2.2 試料の化学処理

試料自身の照射試料は定量目的元素の標準溶液を加えることなく、比較標準と同様に化学処理しペレットに調製した。

### 2.3 照射および放射能測定

照射は加速エネルギー30 MeV、平均電流120  $\mu\text{A}$ の電子線を厚さ2mmの白金板で制動放射に転換しておこなった。この際、試料および比較標準は同じ石英管に封入し、水冷式照射ホルダー内の白金コンバーターの後方約5cmの位置に固定し3時間照射した。照射終了後両者はそれぞれ新しいアルミニウム箔に再包装し、放射線測定用ホルダーにセットした。放射能測定

は Ge 検出器を多重波高分析器に接続し、さらにマイクロ・ロボットを利用した自動測定装置<sup>41)</sup>を用いておこなった。照射の2日後から15日後にわたって継続測定し、えられたデータの中から、定量目的元素および内標準元素から生成した放射性核種のガンマ線のSN比が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 標準添加内標準法による放射化分析

標準添加内標準法による放射化分析の定量式は以下のように示される。定量目的元素の  $W_a$  g を含む試料にその元素の既知量  $W_a^*$  g を添加して比較標準とし、試料と同じエネルギーの粒子線で同時間照射する。照射後、定量目的元素と試料中の内標準元素と定めた元素から生成する核種の放射能比を試料 (R) と比較標準 (R\*) についてそれぞれ測定すると、未知量  $W_a$  は、

$$W_a = W_a^* / [(R^*/R) - 1] \quad (1)$$

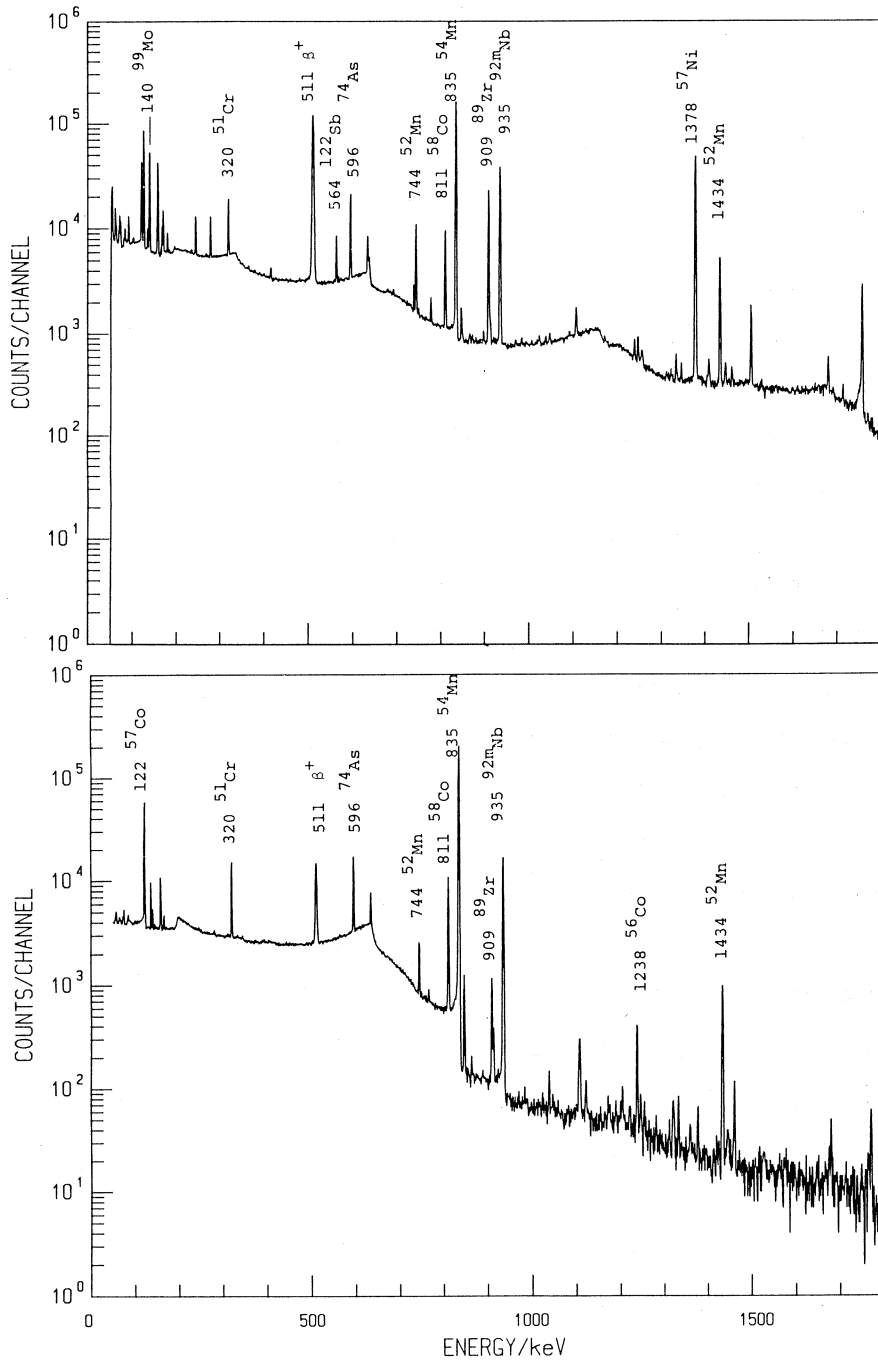
という非常に簡単な式で与えられる。ここで R と R\* は通常ガンマ線のピーク面積比で求められる、この方法は原理的に多元素同時定量に利用できる。

#### 3.2 定量目的元素と内標準元素

照射試料のガンマ線スペクトルは第1図に示した。これから Cr, Co, Ni, As, Zr, Nb, Mo および Sb の8元素を定量目的元素に選んだ。また、内標準元素としてはマトリックス元素である Fe を選び、これら関係元素の核データは第2表に示した。この実験においては、い

第2表 Available photon induced nuclear reactions for 8 elements and an internal standard.

Element	Target nuclide (abundance, %)	Reaction	Product nuclide	Half-life	Principal $\gamma$ -ray energy, MeV
Cr	<sup>52</sup> Cr (83.789)	( $\gamma$ , n)	<sup>51</sup> Cr	27.704 d	0.320
Co	<sup>59</sup> Co (100)	( $\gamma$ , n)	<sup>58</sup> Co	70.916 d	0.811
Ni	<sup>58</sup> Ni (68.27)	( $\gamma$ , n)	<sup>57</sup> Ni	1.503 d	1.378
As	<sup>75</sup> As (100)	( $\gamma$ , n)	<sup>74</sup> As	17.78 d	0.596
Zr	<sup>90</sup> Zr (51.45)	( $\gamma$ , n)	<sup>89</sup> Zr	3.268 d	0.909
Nb	<sup>93</sup> Nb (100)	( $\gamma$ , n)	<sup>92m</sup> Nb	10.15 d	0.935
Mo	<sup>100</sup> Mo (9.63)	( $\gamma$ , n)	<sup>99</sup> Mo	2.7477 d	0.140
Sb	<sup>123</sup> Sb (42.7)	( $\gamma$ , n)	<sup>122</sup> Sb	2.70 d	0.564
Fe	<sup>54</sup> Fe (5.8)	( $\gamma$ , pn)	<sup>52</sup> Mn	5.591 d	0.744, 0.936, 1.434



第1図 Gamma-ray spectra of the irradiated NBS-464.  
Upper and lower spectra were measured 2 and 15 days after  
the end of irradiation, respectively.



づれの定量目的元素も生成核の半減期が測定しやすいものを対象とした。しかし、Mnの定量はマトリックスであるFeからの $^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{54}\text{Mn}$ の影響が大きいため、ここでは割愛することにした。

### 3.3 定量法と妨害反応

前述したように内標準元素としてはFeを選び、第2表に示した反応を内標準反応として利用した。この反応によって生成する $^{52}\text{Mn}$ は3本の分岐比の大きいガンマ線を放出する。しかし、この実験では0.744および1.434MeVガンマ線を測定することにした。また分析目的元素から生成した核種の測定ガンマ線は第2表に示したものを利用することにした。

核反応やガンマ線の重なりによる妨害は通常定量結果にプラスの誤差を与える。核反応による妨害としてはCrの定量の場合に注意しなければならない。Crを $^{51}\text{Cr}$ の生成量から定量する場合は、 $^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha n)^{51}\text{Cr}$ 反応によっても $^{51}\text{Cr}$ が生成されこれが妨害することになる。したがって、この妨害の程度はあらかじめ測定しておき、それによる寄与を補正してやる必要がある。この実験では $^{56}\text{Fe}(\gamma, pn)^{52}\text{Mn}$ 反応で試料中のFe濃度を求め、さらに $^{56}\text{Fe}(\gamma, \alpha n)^{51}\text{Cr}$ 反応による $^{51}\text{Cr}$ の生成量を別に測定することでその寄与を補正することにした。つぎに測定ガンマ線の重なりによる妨害としてはCoとNbの定量の場合に注意しなければならない。これらの場合には両者の半減期の差を利用して問題を解決するか、あるいは同一核種から放出される他のガンマ線を利用してそれを解決するという手段がとられる。Coの定量に $^{58}\text{Co}$ (70.9日)の0.811 MeVガンマ線を利用すると、成分元素に基づく $^{58}\text{Ni}(\gamma, 2n)^{56}\text{Ni}$ 反応による $^{56}\text{Ni}$ (6.1日)の0.812 MeVガンマ線と重なってしまい定量値に誤差が導かれる。この場合は両者の半減期にはかなりの差があるので、 $^{56}\text{Ni}$ が壊変してから $^{58}\text{Co}$ を測定すればこの問題は解決できることになるが、ここではそれをおこなわず、Ni中に生成する $^{56}\text{Ni}$ を測定してそれによる寄与を差引く方法で補正することにした。一方、Nbの定量に用いる $^{92m}\text{Nb}$ (10.15日)の0.934 MeVガンマ線は、内標準としている $^{52}\text{Mn}$ (5.6日)の0.936 MeVガンマ線と重なってしまいこれが妨害となっている。しかし、 $^{52}\text{Mn}$ には他に大きな分岐比のガンマ線が2本あるため、それらとの対比から0.936MeVガンマ線への寄与を知ることができる。それ故、Nbの定量では $^{52}\text{Mn}$ の寄与を差引く方法で補正することにした。

## §4. 定量結果

NBS-464低合金鋼中の8元素の定量結果は第3表に示した。各定量値の相対標準偏差は最大で8%以下であり、Co, Ni, As, ZrおよびMoのそれらは3%以下であった。またSbを

除いた定量値はすべて公定値と極めてよく一致していることを示した。Sb の場合は公定値が与えられていないが、ここで定量した他元素の場合から類推すれば、これも極めて信頼できる値であると推定された。

第3表 Determination of 8 elements in the NBS-464 low alloy steel.

Element	Concentration of element, ppm				
	Run-1	Run-2	Run-3	Average	Certified
Cr	779	812	733	775±40	780
Co	277	283	270	277±7	280
Ni	1381	1379	1366	1375±8	1350
As	193	185	190	189±4	180
Zr	94.3	91.7	91.6	92.5±1.5	100
Nb	372	390	432	398±31	370
Mo	276	269	271	272±4	290
Sb	16.7	18.0	18.3	17.7±0.9	—

## §5. まとめ

今回は標準添加内標準法の普遍化にたいする一つの試みとして、全くの素人に標準低合金鋼中の8元素の光量子放射化分析を行ってもらい、どのようなデータが提示されてくるかを検証した。その結果、予想以上に精度の高い定量値が提示されたという甚だ興味ある結果がもたらされ、この試みは成功した。これをもって万事を推察することは危険であるが、方法の普遍化を考える上でこの試みは貴重な結果をもたらしてくれた。

本テストを実行してくれた本人は、引続き今度は素人でなく玄人として実験を継続してくれることになっている。したがって、方法の普遍化にたいするより一層興味あるデータを提供してくれるものと期待される。

## 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. ,**116** (1987) 213.
- 8 ) K.Masumoto and M.Yagi, J. Radioanal. Nucl. Chem. ,**116** (1987) 375.
- 9 ) K.Masumoto and M.Yagi, J. Radioanal. Nucl. Chem. ,**121** (1988) 131.
- 10) K.Masumoto and M.Yagi, J. Radioanal. Nucl. Chem. , (in press).
- 11) M.Yagi, K.Masumoto and M.Muto, J. Radioanal. Nucl. Chem. ,**98** (1986) 31.

## 機器光量子放射化分析法による GSJ 標準岩石試料の分析

核理研, 金研\*

梶本和義・八木益男\*

A series of rock reference samples, "Igneous rock series" and "Sedimentary rock series", prepared by the Geological Survey of Japan, have been determined by the instrumental photon activation analysis using the comparative method. As the comparative standard, NBS SRM-1633a coal fly ash has been used. Abundances of trace elements in the standard were determined by the internal standard method coupled with the standard addition method. All measurements and analyses have been done automatically by using a newly developed system based on a personal-computer and a micro-robot. About 20 elements have been determined simultaneously. It was shown that analytical results were reasonably accurate and precise, except for some elements such as yttrium and zirconium, abundances of which were slightly lower than the presented values.

### §1. 序

著者らは、これまで各種試料の標準化のために、主に精度および正確さの向上に重点を置いた定量法の開発を行ってきた。<sup>1-4)</sup>ところで、放射化分析法のもうひとつの活用法としてより数多くの試料についてより多くの元素を簡便に定量することも必要とされている。とくに、最近、当施設では光量子放射化分析による各種試料の分析が非常に増加してきた。そこで、ルーチン分析のための自動定量プログラムを開発し、実際に環境試料中のウラン、タリウムの分析に適用し好結果が得られたことは既に報告した。<sup>5)</sup>今回は日本地質調査所配布の岩石標準試料“火成岩シリーズ”13種、“堆積岩シリーズ”3種について、比較法により約20元素の同時定量を実施したので報告する。

### §2. 実 験

#### 2.1 試料および比較試料

試料は、GSJ 岩石標準試料 JG-1a, JG-2, JG-3, JR-1, JR-2, JA-2, JA-3, JB-1a, JB-2,

JB-3, JGb-1, JP-1, JF-1, JLk-1, JLS-1 および JDo-1 の16種である。比較試料にはNBS SRM-1633a coal fly ashを利用することにした。比較試料中の微量元素全てについて保証値が示されているわけではなく、本実験ではまず標準添加内標準法により比較試料の濃度決定を行った。定量した微量元素はAs, Ba, Ce, Co, Cr, Cs, Mo, Nb, Ni, Pb, Rb, Sb, Sc, Sr, Tl, U, Y, Zn および Zr である。その他, Ca, Ti および Fe などの比較的濃度の高い元素もあわせて定量した。

これらの試料はあらかじめ乾燥させたうえで、約300mgをとって高純度アルミニウム箔に包み10mm φペレット状に成型した。試料3個毎に比較試料を1個並べ、石英管に封入した。

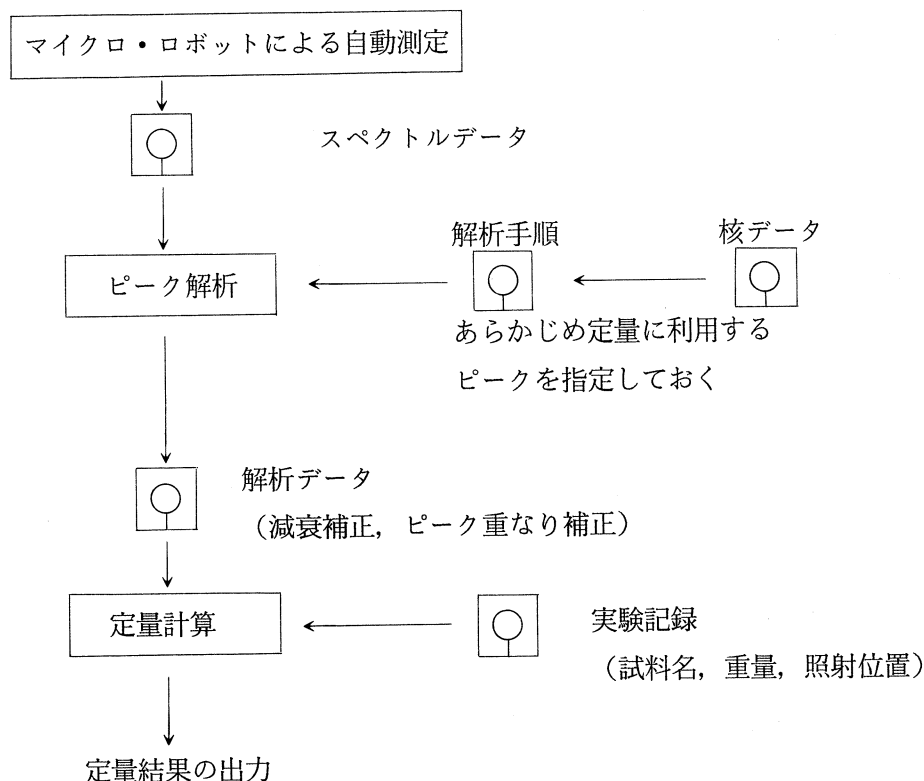
## 2.2 照射および測定

照射は加速エネルギー30 MeV および20 MeV, 平均電流はそれぞれ約120  $\mu$ A および70  $\mu$ A の電子線を厚さ2mmの白金板で制動輻射に転換して行なった。試料は白金板後方数cmの位置で3時間照射した。照射後、各試料はアルミニウム箔で再包装し、自動測定用のホルダーに取り付けた。

測定はOrtec社製HPGe検出器(FWHM 1.9 keV, 相対効率30%)をCanberra社製シリーズ35+MCAに接続し、三菱電機製マイクロ・ロボットRM-101, 富士通製FM-16 $\beta$ からなる自動測定装置を用いて $\gamma$ 線測定を行なった。照射後約2~5時間, 3~4日, 7~10日および3~4週目の4つの測定期間に分けて、測定を繰り返し、定量に利用する $\gamma$ 線ピークのSN比が最も良く検出できた時点でのデータを定量に利用することにした。

## 2.3 定量計算

ピーク解析および定量までの手順は第1図に示した。まず、スペクトル・データは自動的にディスクに記録される。スペクトル・データには試料名, 測定日時, 照射からの経過時間なども同時に記録される。あらかじめ、試料重量や照射位置などは実験記録ファイルとして保存しておく。また、解析に必要な核データファイルの作成は市販のソフトを使い、データは解析プログラムで読むことができるようにしてある。解析プログラムではまず、解析するスペクトルや定量する核種などを指定した解析手順ファイルを作成する。この解析用ファイルをもとにピーク面積計算, 妨害補正, 減衰補正を行い解析データファイルが作成される。定量計算では定量法として5つの定量式が準備されている。そのなかの比較法での定量計算は、照射フラックスの変化の対数を距離の1次および2次関数としてフィットできる。今回は2次関数でフィットさせた。



第1図 定量スキーム

### §3. 結果と考察

#### 3.1 比較試料の標準添加内標準法による分析

第1表にNBS SRM-1633aの30および20 MeV 照射での標準添加内標準法による定量結果をNBSの保証値と新しい集積データ<sup>8)</sup>, Korotev<sup>9)</sup>による結果とともに示した。本試料は微量元素が比較的高い濃度で含まれており、また分析例も増加してきたことから、地球化学あるいは環境試料分析のための信頼できる比較試料となりつつある。定量例の少ないZr, Nb, YおよびTlについては光量子放射化分析により精度よく定量できることがわかる。20MeVでは感度の低下に伴って、30MeVに比べて標準偏差が大きくなった。しかし、マトリックス放射能も低いことから短期間に長寿命核種まで測定でき、Cr, Mn, NbおよびScは妨害反応の補正をせずに定量できるなどの利点もあった。BaとCeではNBSの参考値は文献値や本実験結果に比べてやや高い値を示している。Zrは文献値(中性子放射化分析)と実験値に不一致がみられた。今回は、保証値のない元素は本実験の20MeVと30MeVの定量値の平均値を使うことにした。

第1表 Analytical results of trace elements in NBS SRM-1633a coal fly ash and comparison to the NBS certified and consensus values (unit =  $\mu\text{g/g}$ ).

Element	30 MeV	20 MeV	Certified	Consensus <sup>+</sup>	(n) <sup>*</sup>
As	140 $\pm$ 7	142 $\pm$ 6	145 $\pm$ 15	146 $\pm$ 4	(26)
Ba	1440 $\pm$ 70	1303 $\pm$ 48	(1500) <sup>*</sup>	1420 $\pm$ 100	(23)
Ce	170 $\pm$ 5	174 $\pm$ 9	(180) <sup>*</sup>	175 $\pm$ 7	(13)
Co	44.6 $\pm$ 0.9	45.2 $\pm$ 1.5	(46) <sup>*</sup>	43 $\pm$ 3	(21)
Cr	197 $\pm$ 9	181 $\pm$ 6	196 $\pm$ 6	194 $\pm$ 7	(21)
Cs	11.2 $\pm$ 0.2	10.3 $\pm$ 0.5	(11) <sup>*</sup>	10.5 $\pm$ 0.7	(16)
Mn		182 $\pm$ 1	179 $\pm$ 8	188 $\pm$ 15	(21)
Mo	30.1 $\pm$ 1.4	29.0 $\pm$ 3.3	(29) <sup>*</sup>	30 $\pm$ 3	(8)
Nb	30.4 $\pm$ 0.4	28.8 $\pm$ 1.1		28	(2)
Ni	128 $\pm$ 2	125 $\pm$ 3	127 $\pm$ 4	124 $\pm$ 13	(16)
Pb	64.6 $\pm$ 3.5	73.1 $\pm$ 4.2	72.4 $\pm$ 0.4	72 $\pm$ 4	(13)
Rb	130 $\pm$ 2	129 $\pm$ 2	131 $\pm$ 2	138 $\pm$ 11	(13)
Sb	6.1 $\pm$ 0.2	6.7 $\pm$ 0.6	6.8 $\pm$ 0.4	6.9 $\pm$ 0.5	(14)
Sc		41.5 $\pm$ 1.7	(40) <sup>*</sup>	39 $\pm$ 3	(14)
Sr	817 $\pm$ 17	825 $\pm$ 32	830 $\pm$ 30	810 $\pm$ 40	(20)
Tl	5.9 $\pm$ 0.5	5.7 $\pm$ 0.5	5.7 $\pm$ 0.2	5.3 $\pm$ 0.8	(3)
U	9.3 $\pm$ 0.5	10.0 $\pm$ 1.3	10.2 $\pm$ 0.1	10.3 $\pm$ 0.1	(21)
Y	81.4 $\pm$ 1.7	81.5 $\pm$ 2.3		82 $\pm$ 6	(4)
Zn	244 $\pm$ 10	244 $\pm$ 15	220 $\pm$ 10	226 $\pm$ 22	(22)
Zr	229 $\pm$ 1	222 $\pm$ 3		330 $\pm$ 80	(6)

\* : Information value, + : Compiled by Gladney *et al.*, 1987, \* : values in parentheses are the number of analytical data reported.

### 3.2 岩石標準試料の比較法による分析

つぎに、以上のようにして濃度決定した coal fly ash 試料を比較試料として GSJ 岩石標準試料を分析した。Cs では定量に利用する  $^{132}\text{Cs}$  の 667.7keV  $\gamma$  線と I からの  $^{126}\text{I}$  の 666.4keV  $\gamma$  線の重なり補正を行った。ただし、 $^{126}\text{I}$  で補正する前に  $^{126}\text{I}$  の 388.6keV  $\gamma$  線と Y からの  $^{87}\text{Y}$  の 388.6keV  $\gamma$  線の重なり補正も行った。同様に、Nb では定量に利用する  $^{92\text{m}}\text{Nb}$  の 934.5keV  $\gamma$  線と Fe からの  $^{52}\text{Mn}$  の 935.5keV  $\gamma$  線の重なり補正を施した。また、Na では Mg や Al から、また Cr では Fe からの妨害反応があり、比較試料および分析試料それぞれでその妨害の程度は異なる。このため、Na および Cr の定量計算では妨害核反応の補正も実施した。定量結果を第 2 表から第 7 表までに示した。Sb や Tl は濃度が低く定量出来ない試料が多かった。Sc, Mo および Tm については定量結果を報告できなかった。As, Cs, Rb, Sr および U ではどの試料も GSJ 値<sup>10)</sup>と良く一致しており、Y および Zr ではやや低めの傾向がみられた。

第2表 Analytical Results of GSJ rock reference samples (Granitic rock) and their 1986-GSJ values (unit =  $\mu\text{g}/\text{g}$ ).

Element	JG-1 a		JG-2		JG-3	
	This work	GSJ	This work	GSJ	This work	GSJ
(Major)						
Na	25900 $\pm$ 200	25300	26700 $\pm$ 300	26300	30600 $\pm$ 500	29900
Ca	15490 $\pm$ 220	15200	4959 $\pm$ 60	5700	27300 $\pm$ 670	26900
Ti	1448 $\pm$ 33	1500	262 $\pm$ 8	240	2731 $\pm$ 50	2900
Fe	15400 $\pm$ 150	14300	7930 $\pm$ 230	6400	26770 $\pm$ 1330	26100
(Minor)						
As	0.37 $\pm$ 0.09	0.39	1.11 $\pm$ 0.03	0.80	0.28 $\pm$ 0.1	0.37
Ba	496 $\pm$ 14	458	80 $\pm$ 10	67	483 $\pm$ 22	453
Ce	49.2 $\pm$ 1.9	47.1	49.7 $\pm$ 1.0	46	42.8 $\pm$ 1.1	42
Co	5.2 $\pm$ 0.6	5.7	2.38 $\pm$ 0.26	4.5	11.0 $\pm$ 0.4	11.4
Cr	14.0 $\pm$ 1.7	18.6	ND	7.6	20.4 $\pm$ 2.8	23.6
Cs	11.8 $\pm$ 0.4	11.4	7.6 $\pm$ 0.2	7.5	1.93 $\pm$ 0.08	1.9
Nb	12.0 $\pm$ 0.5	12	14.9 $\pm$ 0.3	15	5.2 $\pm$ 0.2	5.6
Ni	6.0 $\pm$ 0.5	6.4	1.1 $\pm$ 0.3	2.1	14.7 $\pm$ 1.2	13.0
Pb	26.8 $\pm$ 2.4	27.0	32.2 $\pm$ 1.5	32.8	13.0 $\pm$ 1.1	12.3
Rb	179 $\pm$ 3	180	300 $\pm$ 5	297	66.7 $\pm$ 0.2	66
Sb	ND	0.06	ND	0.06	ND	0.07
Sr	197 $\pm$ 3	185	18.0 $\pm$ 0.7	16	385 $\pm$ 17	372
Tl	1.2 $\pm$ 0.2	—	1.8 $\pm$ 0.2	—	0.34 $\pm$ 0.05	—
U	4.82 $\pm$ 0.18	4.7	10.4 $\pm$ 0.3	12.5	2.15 $\pm$ 0.12	2.0
Y	28.6 $\pm$ 0.2	32	78.0 $\pm$ 1.2	89	15.5 $\pm$ 0.3	19
Zn	41 $\pm$ 2	38.8	17 $\pm$ 6	12.7	42 $\pm$ 5	44.8
Zr	112 $\pm$ 5	115	98.7 $\pm$ 4.5	97	140 $\pm$ 6	137

ND : not detected, GSJ : Reported values by A. Ando *et al*<sup>10)</sup>.



第3表 Analytical Results of GSJ rock reference samples (Basalt) and their 1986-GSJ values (unit =  $\mu\text{g/g}$ ).

Element	JB-1 a		JB-2		JB-3	
	This work	GSJ	This work	GSJ	This work	GSJ
(Major)						
Na	20100±300	20300	15500±100	15100	20900±200	20900
Ca	62860±1220	66000	68040±1460	70700	65900±1340	70500
Ti	7139±126	7800	6837±280	7100	8250±90	8700
Fe	60800±590	63600	98600±4490	100300	82540±2920	83100
(Minor)						
As	2.2±0.4	2.34	3.01±0.35	2.98	1.76±0.06	1.66
Ba	510±36	497	205±22	208	211±11	251
Ce	65.6±1.7	67	6.79±0.11	6.5	21.9±0.1	20.5
Co	37.7±1.0	39.5	38.6±0.4	39.8	36.3±0.2	36.3
Cr	408±9	415	31.4±3.8	27.4	60.6±1.2	60.4
Cs	1.18±0.06	1.2	0.8±0.1	0.9	0.92±0.05	1.1
Nb	24.7±1.3	27	ND	0.8	1.8±0.5	2.3
Ni	135±6	140	12.9±1.1	14.2	35.9±2.0	38.8
Pb	8.2±1.8	7.2	ND	5.4	ND	5.5
Rb	36.5±1.3	41	6.2±0.5	6.2	14.1±1.3	13
Sb	ND	0.28	ND	0.27	ND	0.15
Sr	436±3	443	180±9	178	416±16	395
Tl	0.27±0.07	—	ND	—	ND	0.052
U	1.46±0.06	1.6	0.4±0.1	0.16	0.62±0.04	0.46
Y	21.1±1.0	25	21.9±0.2	26	23.7±0.3	28
Zn	82±10	82	119±8	110	115±13	106
Zr	110±4	144	42.5±1.1	52	77.3±3.1	99.4

ND : not detected, GSJ : Reported values by A. Ando *et al.*<sup>10)</sup>.

第4表 Analytical Results of GSJ rock reference samples (Andesite) and their 1986-GSJ values (unit =  $\mu\text{g/g}$ ).

Element	JA-2		JA-3	
	This work	GSJ	This work	GSJ
(Major)				
Na	24100 $\pm$ 300	22800	24700 $\pm$ 400	23500
Ca	44170 $\pm$ 950	46300	43980 $\pm$ 770	44900
Ti	3790 $\pm$ 160	4000	3910 $\pm$ 50	4100
Fe	41590 $\pm$ 550	42900	46230 $\pm$ 1870	46100
(Minor)				
As	0.72 $\pm$ 0.07	0.77	4.55 $\pm$ 0.15	4.5
Ba	345 $\pm$ 41	317	315 $\pm$ 7	318
Ce	32.9 $\pm$ 1.0	29	22.7 $\pm$ 0.7	23
Co	28.9 $\pm$ 0.3	30	21.6 $\pm$ 0.8	21
Cr	408 $\pm$ 11	465	67.8 $\pm$ 1.2	67.5
Cs	4.7 $\pm$ 0.2	4.2	2.2 $\pm$ 0.2	2.2
Nb	9.6 $\pm$ 0.4	9.8	3.0 $\pm$ 0.2	3.0
Ni	133 $\pm$ 4	142	33.3 $\pm$ 3.5	35.5
Pb	21 $\pm$ 6	19.3	5.7 $\pm$ 0.3	6.7
Rb	69.7 $\pm$ 2.4	68	36.3 $\pm$ 0.9	36
Sb	0.18 $\pm$ 0.05	0.13	0.46 $\pm$ 0.15	0.34
Sr	239 $\pm$ 3	252	290 $\pm$ 11	294
Tl	0.4 $\pm$ 0.1	—	ND	—
U	2.1 $\pm$ 0.2	2.4	1.1 $\pm$ 0.1	1.4
Y	16.0 $\pm$ 0.0	18	19.0 $\pm$ 0.6	22
Zn	61.6 $\pm$ 6.5	62.7	73.6 $\pm$ 9.5	67.5
Zr	102 $\pm$ 3	119	95.5 $\pm$ 5.1	123

ND : not detected, GSJ : Reported values by A. Ando *et al.*<sup>10)</sup>.

第5表 Analytical Results of GSJ rock reference samples (Rhyolite) and their 1986-GSJ values (unit =  $\mu\text{g}/\text{g}$ ).

Element	JR-1		JR-2	
	This work	GSJ	This work	GSJ
(Major)				
Na	30100 $\pm$ 300	30400	30100 $\pm$ 300	29900
Ca	5240 $\pm$ 160	4500	3720 $\pm$ 90	3200
Ti	625 $\pm$ 11	600	354 $\pm$ 13	540
Fe	7950 $\pm$ 170	6700	6840 $\pm$ 310	6000
(Minor)				
As	15.5 $\pm$ 0.2	15.9	19.0 $\pm$ 0.3	19.5
Ba	60 $\pm$ 8	40	42 $\pm$ 6	39
Ce	47.9 $\pm$ 0.1	49	38.0 $\pm$ 0.5	38
Co	0.5 $\pm$ 0.2	0.65	ND	0.4
Cr	ND	2.3	ND	2.6
Cs	20.6 $\pm$ 1.4	20.2	26.6 $\pm$ 0.3	26
Nb	15.9 $\pm$ 0.3	15.5	18.7 $\pm$ 0.4	19.2
Ni	ND	0.66	0.74 $\pm$ 0.06	0.84
Pb	25 $\pm$ 5	19.1	23.9 $\pm$ 1.6	21.9
Rb	254 $\pm$ 2	257	299 $\pm$ 4	297
Sb	1.3 $\pm$ 0.3	1.48	1.40 $\pm$ 0.06	1.83
Sr	30.5 $\pm$ 1.1	30	9.13 $\pm$ 0.15	8
Tl	1.8 $\pm$ 0.2	—	2.1 $\pm$ 0.1	—
U	9.0 $\pm$ 0.6	9.0	10.7 $\pm$ 0.2	10.5
Y	39.8 $\pm$ 0.3	46	44.7 $\pm$ 0.3	51
Zn	22.5 $\pm$ 2.9	30.0	26.1 $\pm$ 5.7	27.2
Zr	85.7 $\pm$ 5.9	102	83.2 $\pm$ 1.3	98.5

ND : not detected, GSJ : Reported values by A. Ando *et al.*<sup>10)</sup>.

第6表 Analytical Results of GSJ rock reference samples and their 1986-GSJ values (unit =  $\mu\text{g/g}$ ).

Element	JGb-1 (Gabbro)		JP-1 (Peridotite)		JF-1 (Feldspar)	
	This work	GSJ	This work	GSJ	This work	GSJ
(Major)						
Na	9200±100	9100	ND	160	24700±200	26300
Ca	83550±1440	85600	3880±123	4000	6970±50	7500
Ti	9150±120	9700	ND	—	40±4	—
Fe	104900±1500	106000	55090±1620	58300	1200±50	—
(Minor)						
As	1.0±0.2	1.11	0.33±0.08	0.34	1.4±0.5	0.96
Ba	81±18	63	ND	17	2070±20	1680
Ce	8.5±0.4	8	0.10±0.05	13	3.95±0.24	4.3
Co	62.0±0.9	61.6	139±2	116	ND	0.2
Cr	61.3±3.0	59.3	3050±70	2970	ND	5.8
Cs	0.13±0.05	0.27	ND	<0.1	2.24±0.08	2.2
Nb	2.53±0.17	2.8	ND	1.2	0.16±0.08	0.5
Ni	25.3±0.3	25.4	2442±41	2460	0.24±0.10	0.4
Pb	ND	1.9	ND	<2	40.0±1.4	33.4
Rb	6.1±0.5	4	0.25±0.05	<1	272±3	264
Sb	ND	0.11	ND	<0.04	ND	0.06
Sr	335±4	321	2.1±1.0	<1	170±1	163
Tl	ND	—	ND	—	ND	—
U	ND	0.15	ND	0.05	0.39±0.16	0.33
Y	8.5±0.1	11	ND	1	2.4±0.2	4
Zn	112±10	111	46.6±2.2	29.5	ND	3.2
Zr	24.1±0.4	33	4.3±0.5	6	35.6±3.1	41

ND : not detected, GSJ : Reported values by A. Ando *et al*<sup>(9)</sup>.

第7表 Analytical Results of GSJ rock reference samples of the  
 "Sedimentary Rock Series" (unit =  $\mu\text{g}/\text{g}$ ).

Element	JLk-1 (Lake Sediment)	JLs-1 (Lime Stone)	JDo-1 (Dolomite)
(Major)			
Na	7550 $\pm$ 160*	53 $\pm$ 7*	1280 $\pm$ 150*
Ca	4890 $\pm$ 50	391800 $\pm$ 6300	240900 $\pm$ 4000
Ti	4000 $\pm$ 40	ND	ND
Fe	49160 $\pm$ 470	608 $\pm$ 32	55090 $\pm$ 2620
(Minor)			
As	28.3 $\pm$ 0.4	0.14 $\pm$ 0.03	0.11 $\pm$ 0.04
Ba	613 $\pm$ 32	445 $\pm$ 43	ND
Ce	88.2 $\pm$ 1.9	0.16 $\pm$ 0.03	2.26 $\pm$ 0.01
Co	17.6 $\pm$ 0.8	ND	ND
Cr	67 $\pm$ 2	3.0 $\pm$ 0.4	ND
Cs	12.9 $\pm$ 0.3	ND	ND
Nb	16.2 $\pm$ 0.4	ND	ND
Ni	36.7 $\pm$ 0.3	ND	ND
Pb	50.1 $\pm$ 2.0	ND	ND
Rb	142 $\pm$ 3	0.13 $\pm$ 0.02	ND
Sb	2.0 $\pm$ 0.1	ND	ND
Sr	72.1 $\pm$ 1.7	306 $\pm$ 5	2 $\pm$ 1
Tl	1.0 $\pm$ 0.2	ND	ND
U	4.1 $\pm$ 0.2	1.6 $\pm$ 0.3	0.7 $\pm$ 0.2
Y	41.1 $\pm$ 0.2	0.24 $\pm$ 0.02	10.3 $\pm$ 0.5
Zn	150 $\pm$ 1	1.9 $\pm$ 0.2	36.7 $\pm$ 4.1
Zr	120 $\pm$ 1	ND	0.5 $\pm$ 0.2

ND : not detected, \* : no correction of nuclear interference reactions,  
 $^{24}\text{Mg}$  ( $\gamma$ , pn)  $^{22}\text{Na}$  and  $^{27}\text{Al}$  (n,  $\alpha$ )  $^{24}\text{Na}$ , was done.

第2表ではJG-2の主要元素ではCaとFe、微量元素ではCo、NiおよびZnでGSJ値との不一致がみられた。微量元素での不一致は主に濃度が低いことによっている。全体でYが低い以外はGSJ値と良く一致しているといえる。第3表と第4表では主要元素のCaとTi、微量元素のYとZrがやや低めの傾向を示した。第5表のJR-1とJR-2ではFeがやや高い値を示したが、これは共存するMnからの $^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$ 反応による妨害の存在を示唆している。また、いずれもYとZrがやや低めであった。JR-1のPbとZnでGSJとの不一致は濃度が低いためである。第6表のJGb-1ではCsが感度と同レベルの濃度であり、Pb、Sb、TlおよびUは検出できなかった。JP-1では定量できない元素はさらにNa、Ti、Ba、Cs、NbおよびYが加わり、Csが感度と同レベルの濃度であった。JF-1では遷移金属などの濃度が低く、Co、CrおよびZnが定量できず、Nb、NiやUが感度と同レベルの濃度であった。第7表のJLk-1は本法で定量するに適した試料であり、今後標準化がすすめば環境分析のための比較試料として役立つことが期待される。これにたいし、JLs-1やJDo-1はカルシウム含有量が高く、微量元素の定量の妨げとなった。これらの試料のNaの定量値は妨害の補正をしていない値である。

### 3.3 20MeVでの光量子放射化分析

20MeV照射による放射化分析の可能性については既に報告しているが<sup>6)</sup>、放射能生成量が減少するが、その減少傾向はマトリックス元素の場合に著しく、微量重金属元素の検出が容易になることや、妨害核反応がなくなり補正計算なしに定量できるなどの利点がある。ここでは、いくつかの標準岩石試料の分析を行った。第8表にその結果を示した。

20MeVでは試料の測定に時間がかかるため、多数試料の分析はむずかしく、いずれも1回の分析結果である。Cr、MnおよびScは妨害核反応の補正なしに定量し、Nbはピークの重なりの補正なしに定量できた。Crは30MeVの場合に比べ、よりGSJ値に近い値を示した。JG-2のCoは依然一致せず、GSJの値について再検討が必要であろう。多くの元素でGSJとの一致は良く、20MeVでの放射化は非常に有効であることが示された。

第8表 Analytical Results of GSJ rock reference samples by 20-MeV photon activation and their 1986-GSJ values (unit =  $\mu\text{g/g}$ ).

Element	JG-1 a		JG-2		JB-1 a		JA-2		JR-1	
	This work	GSJ	This work	GSJ	This work	GSJ	This work	GSJ	This work	GSJ
Ce	43.7	47.1	51.8	46	68.7	67	35	29	49.1	49
Co	3.3	5.7	1.4	4.5	40.4	39.5	28.7	30	0.9	0.65
Cr	17.6	18.6	10.2	7.6	413	415	453	465	2.9	2.3
Cs	11.3	11.4	8.4	7.5	1.5	1.2	5.7	4.2	21.7	20.2
Mn	409	460	131	120	1180	1160	820	850	710	770
Nb	12.2	12	17.2	15	26.4	27	10.7	9.8	16.1	15.5
Ni	6.6	6.4	1.6	2.1	138	140	135	142	0.6	0.66
Pb	26.4	27.0	36.8	32.8	4	7.2	20.9	19.3	18.9	19.1
Rb	179	180	299	297	39.8	41	73.5	68	245	257
Sc	4.6	6.6	2.3	2.0	25.8	29	17.5	19	5.3	5.2
Sr	189	185	16	16	449	443	252	252	29.2	30
U	4.4	4.7	17.7	12.5	1.4	1.6	ND	2.4	8.8	9.0
Y	28	32	82	89	24	25	16	18	38	46
Zn	40	38.8	9	12.7	104	82	53	62.7	ND	30
Zr	107	115	101	97	122	144	105	119	87	102

ND : not detected, GSJ : Reported values by A. Ando *et al.*<sup>10)</sup>.

#### §4. まとめ

以上、地質調査所配布の標準岩石試料を分析した結果、GSJ値とも良く一致し、かつ精度も良い値を得ることができた。このことから、本施設で開発した放射化分析用の自動測定・解析システムは多数の試料を分析していくうえで、大いに役立つことが実証されたということが出来るが、現在更に核データ、分析試料データ、 $\gamma$ 線スペクトルデータなど各種データのデータベース化をすすめるとともに、ローカル・エリア・ネットワークを使い、より高度で、より高速なデータ転送を実現することで、「放射化分析支援システム」に近づくよう開発を継続しているところである。

#### 参 考 文 献

- 1) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Chem. **79** (1983) 57.
- 2) M. Yagi and K. Masumoto: J. Radioanal. Nucl. Chem. **83** (1984) 319.

- 3) M. Yagi and K. Masumoto: J. Radioanal. Nucl. Chem. **84** (1984) 369.
- 4) M. Yagi and K. Masumoto: J. Radioanal. Nucl. Chem. **91** (1985) 91.
- 5) M. Yagi and K. Masumoto: J. Radioanal. Nucl. Chem. **116** (1987) 375.
- 6) 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **20** (1987) 79.
- 7) 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **20** (1987) 321.
- 8) E. S. Gladney, C. E. Burns, D. R. Perrin, I. Roelandts and T. E. Gills: NBS Spec. Publ. **260-111** (1987).
- 9) R. L. Korotev: J. Radioanal. Nucl. Chem. **110** (1987) 159.
- 10) A. Ando, N. Mita and S. Terashima: Geostandards Newsletter **11** (1987) 159.



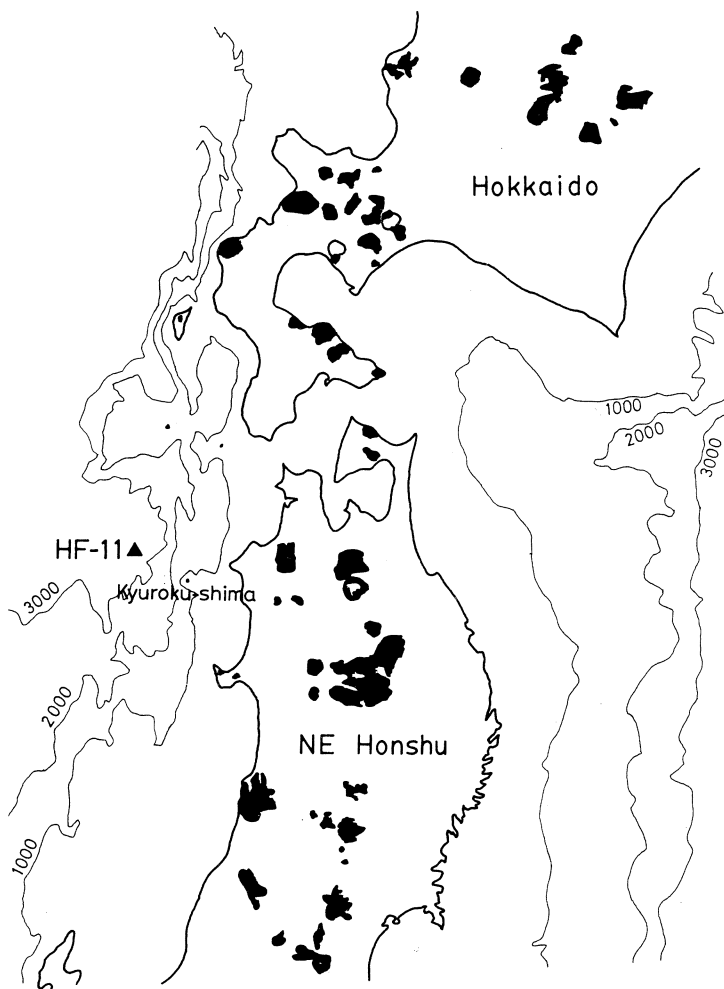
# 日本海, 久六島西方海底火山噴出物の微量元素組成

理学部地学, 広島大\*

吉田武義・佐藤博明\*・青木謙一郎

## §1. はじめに

東北日本弧は島弧のうちでも最も幅広く火山が分布する弧の一つである。ここでは火山フロントから日本海沿岸までの約100kmの幅に多数の火山が分布し, 更に, その西方にも渡島大島



第1図 久六島西方海底火山 (HF-11地点) の位置図。  
黒く塗りつぶした部分は陸上の第四紀火山である。

などの火山島が位置している。この火山弧の西側には縁海である日本海盆が続き、水深が急に深くなる。佐藤ら<sup>1)</sup>は、1985年7～8月のDELP'85日本海航海において、日本海盆南東縁、一ノ目潟の北西約100kmの深海底で、音波調査、地殻熱流量測定、および底質の分析をおこなった結果、北緯40°42'、東経139°03'の地点(第1図; HF-11地点)で第四紀火山活動が生じていた可能性を示す証拠を得た。彼らは、このHF-11地点付近に第四紀単成火山が存在し、その噴出物は、東北日本弧でも最もアルカリ質なものの一つであると結論している。

本報告では、この火山フロントから約170km背弧側に位置するHF-11地点で得られた試料についての、光量子放射化法などによる全岩主成分ならびに微量成分元素分析結果を示し、その地球化学的特徴について論じる。

## §2. 久六島西方海底火山

今回分析を行った試料(火山砂)は、DELP'85日本海航海において、日本海盆南東縁、一ノ目潟の北西約100kmの深海底で採取されたものである。このHF-11地点は1983年の日本海中部地震の震源近傍に位置する<sup>2)</sup>。桂<sup>3)</sup>は、日本海中部地震の震源付近の海底に円錐状の高まりが多数認められることを示している。佐藤ら<sup>1)</sup>はHF-11地点付近の海底に直径200m以下の浅い窪地があり、そこが周囲に対して熱流量が高く、しかも噴煙らしきものが立ち上がっていることを確認し、そこから粗粒の火山灰や軽石などの火山碎屑物質からなる底質を採取した。HF-11地点近傍での高熱流量値はその後の調査でも確認され、本地域において何らかの熱的活動が存在することは確かであると考えられている<sup>4)</sup>。これらの事実から、佐藤ら<sup>1)</sup>はHF-11地点で得られた火山砂は、その付近で生じた第四紀の単成海底火山の噴出物に由来するものであると結論している。この火山砂の性質は、近隣の単成火山である一ノ目潟火山の噴出物と共通する点が多いが、石英斑晶を含まないことで一ノ目潟火山噴出物から区別される。従って、仮に木下ら<sup>4)</sup>が述べているように、より陸側からの流入があったとしても、一ノ目潟火山よりは海盆側、すなわち日本海海底での第四紀火山活動の産物であることは間違いない。以下では、佐藤ら<sup>1)</sup>に従い、HF-11地点で採取された試料は現地性のものであると考え、この噴出物をもたらした海底火山を便宜上、久六島西方海底火山(おそらく単成火山群: 仮称)と呼ぶことにする。本火山は火山フロントから約170km背弧側に位置し、東北本州弧において最も背弧側で確認された第四紀火山である。

### §3. 分析試料の岩石学的特徴

HF-11 地点において採取された火山砂の粒径は0.1~2mmで、その構成粒子には、無色のガラス質岩片 (31.8% : ポイントカウンターにより得られた体積%, 以下同じ), 軽石 (29.0%), 褐色ガラス質岩片 (10.4%), 脱ガラス化した岩片 (4.1%), 斜長石 (14.1%), 角閃石 (5.5%) 黒雲母 (1.1%), 普通輝石 (1.6%), カンラン石 (0.0%), 不透明鉱物 (0.7%), 炭酸塩鉱物 (0.3%), 黄褐色-赤褐色物質 (1.4%)が認められている<sup>1)</sup>。これらのうち、鉱物片はいずれも新鮮で、変質は全く認められていない。これらの粒子の大部分を占める火山岩質のものについては、ほぼ一つの供給源に由来するアルカリ系列岩起源のものであると結論されている<sup>1)</sup>。各造岩鉱物の EPMA 分析結果は、それらがすべて、アルカリ系列火山岩からの一連の晶出相であることを良く示している。佐藤ら<sup>1)</sup>は HF-11 地点の火山砂中のガラス7個の EPMA による分析結果を示している (第1表)。それによれば、SiO<sub>2</sub>量は52wt.%から71wt.%にわたっており、他の成分は SiO<sub>2</sub>量の変化に対してスムーズな変化経路を描いている。本海底火山噴出

第1表 久六島西方海底火山噴出物の化学組成。

No.	1	2	3	4	5	6	7	8		8'
Name	GL-57	GL-58	GL-56	GL-33	GL-05	GL-55	GL-59			
	EPMA	EPMA	EPMA	EPMA	EPMA	EPMA	EPMA	XRF		IPAA
wt. %									ppm	
SiO <sub>2</sub>	52.29	59.02	61.13	63.57	64.27	63.98	70.87	60.40	Ba	1404
TiO <sub>2</sub>	1.60	1.30	0.60	0.60	0.40	0.40	0.20	0.53	Ce	52.1
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	17.56	18.38	19.38	17.66	17.27	17.67	16.19	18.64	Co	9.8
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.13	1.29	1.09	0.98	0.98	0.91	0.38	1.06	Cr	14.4
FeO	7.66	4.63	3.92	3.51	3.51	3.27	1.36	3.80	Cs	6.8
MnO	0.20	0.20	0.20	0.10	0.20	0.20	0.10	0.14	Nb	7.1
MgO	3.69	1.70	1.50	1.70	1.50	1.40	0.50	2.61	Ni	8.3
CaO	8.48	5.99	3.90	3.79	3.29	3.89	1.30	5.78	Rb	159
Na <sub>2</sub> O	3.79	4.29	4.30	4.19	4.19	4.29	4.30	3.90	Sc	9.2
K <sub>2</sub> O	2.59	3.20	4.00	3.89	4.39	3.99	4.80	2.89	Sr	620
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.24	Y	23.8
Total	99.99	100.00	100.02	99.99	100.00	100.00	100.00	99.99	Zn	155
									Zr	195

1-7は佐藤ら<sup>1)</sup>によるガラスについての EPMA 分析結果である。8は今回行った蛍光 X 線法 (XRF) による主成分の、8'は光量子放射化法 (IPAA) による微量成分元素についての分析結果である。なお、主成分組成は Irvine & Baragar<sup>5)</sup>の方法により鉄を補正した後、合計が100%になるように再計算した結果である。

物中には斑晶鈹物として、斜方輝石と石英が認められないが、後に述べるように、本火山が最も背弧側の火山であるという事実と、これら斑晶の欠如は調和的である。

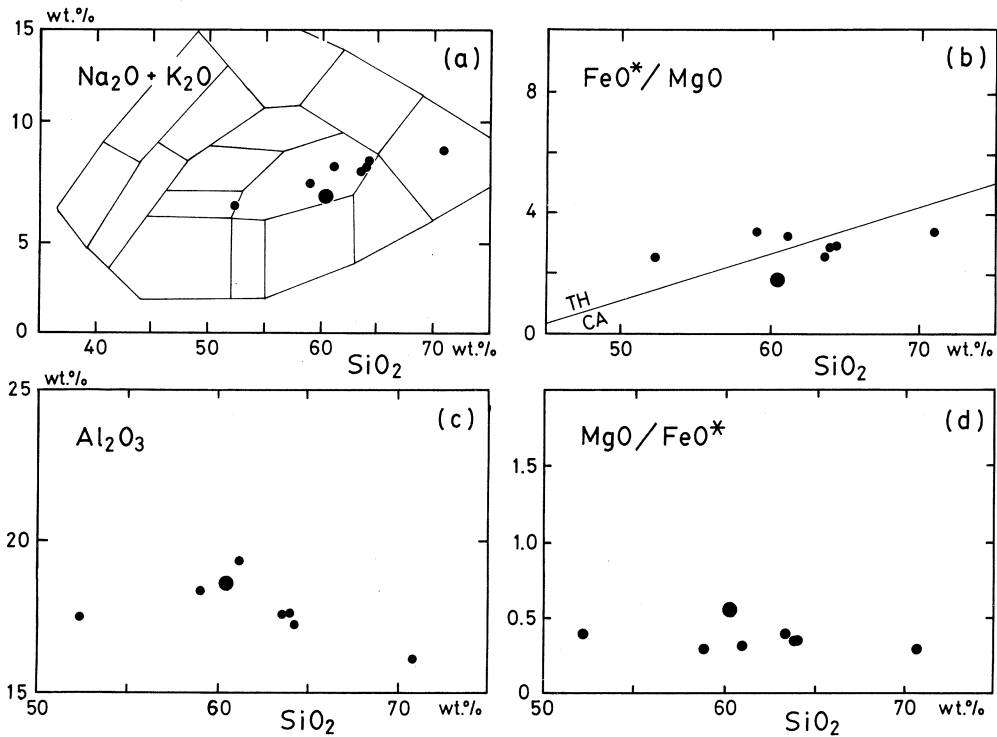
#### §4. 試料の分析方法ならびに分析結果

久六島西方海底火山噴出物について、蛍光 X 線分析法により主成分元素の分析を行った。また、光量子放射化法を用いて、Ba, Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Zn, Zr および Y の 13 微量成分元素の分析を行った。試料の放射化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、30 MeV の加速電子を用いた。分析結果を第 1 表に示す。

今回の分析結果と佐藤ら<sup>1)</sup>の EPMA 分析結果 (第 1 表) とは非常に良く一致しているが、一部の元素について分析誤差以上の差異が認められる。試料の分析にあたっては、火山砂からハンドピックにより分離した火山性砕屑物のうち主にガラス質岩片を用いた。佐藤ら<sup>1)</sup>が示しているように、火山性ガラス質岩片の組成は玄武岩質から流紋岩質に及び、均質ではない。また、佐藤ら<sup>1)</sup>が用いた EPMA 分析が顕微鏡下で観察される均質なガラス質部分を用いているのに対して、今回の分析は斑晶鈹物をも含んだ不均質なガラス質岩片の集合体についてのものである。今回の分析結果は、佐藤ら<sup>1)</sup>の分析値のうちの最も SiO<sub>2</sub> が近いものと比較して、アルカリが低く、MgO/FeO 比が高いが、その原因として、ガラスへの斑晶の混入、あるいは安山岩質ガラスへの玄武岩質ないし流紋岩質ガラスの混入の可能性が考えられる。今回の分析結果は、EPMA 分析結果で玄武岩から安山岩へと一旦増加しその後デイサイト～流紋岩へと減少する山型の変化経路をとる Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (第 2 図) において、この山型のトレンドの内側ではなく、ほぼトレンド上に乗り、一方で、MgO/FeO\* 比が明瞭に高い (第 2 図)。従って、今回の分析結果と佐藤ら<sup>1)</sup>の結果との差異の最大の原因は、今回の結果が、主に安山岩質なガラスと斑晶鈹物の混合物を分析したためであると考えられる。東北本州弧第四紀火山岩類は一般に非常に斑晶鈹物に富んでおり、今回の結果はむしろ実際の全岩化学分析値に近いものであると考えられることも可能である。いずれにしても今回の分析結果からあまり細かいことを議論することには問題があろう。

#### §5. 久六島西方海底火山噴出物の地球化学的特徴

久六島西方海底火山噴出物のうち、特にガラスのアルカリ量は高く、その組成は久野<sup>2)</sup>のアルカリ系列の領域に含まれ、近隣の一ノ目潟や渡島大島火山噴出物と比べてもアルカリ量が若干高い<sup>3)</sup>。今回の全岩分析結果は久野<sup>2)</sup>の高アルミナ系列の最も高アルカリ側にプロットされ、



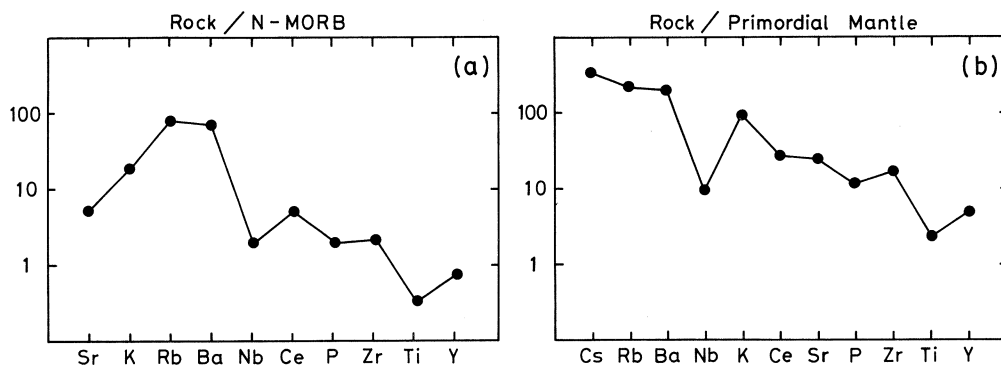
第2図 久六島西方海底火山噴出物の化学組成上の特徴。  
大きい黒丸が今回の分析結果を示す。

Cox et al.<sup>7)</sup>の分類に従えば、粗面安山岩の領域にはいっている(第2図a)。また、 $\text{K}_2\text{O}$ 量からは Gill<sup>8)</sup>の High-K andesite に分類され、 $\text{SiO}_2$ - $\text{FeO}^*/\text{MgO}$  関係図<sup>9)</sup>では CA 領域に落ちる(第2図b)。斑晶として、角閃石や黒雲母を持つことから、久六島西方海底火山噴出物のうち、少なくとも安山岩質なものについては High-K calc-alkali andesite であると言える。

ガラスについての EPMA 分析結果<sup>1)</sup>によれば、既に述べたように、 $\text{SiO}_2$ の増加にともない、玄武岩から安山岩へと  $\text{Al}_2\text{O}_3$ が増加し、その後減少している。 $\text{K}_2\text{O}$ は  $\text{SiO}_2$ の増加とともに単調に増加しているが、 $\text{Na}_2\text{O}$ は玄武岩から安山岩へと増加した後は、ほぼ一定で、あまり変化していない。 $\text{CaO}$ は比較的直線的に変化しているが、 $\text{MgO}$ と全鉄については下に凸の、 $\text{SiO}_2$ の増加に伴い減少する変化経路を描いている。このようなガラスが示す組成変化経路は、結晶分別作用によって生じた一連のマグマに典型的に認められるものと同じである。おそらく、早期にカンラン石、普通輝石といった苦鉄質鉱物が主に分別し、安山岩以降、これに斜長石が加

わった分別をおこなったのであろう。各苦鉄質鉱物が示す  $Mg/(Mg+Fe)$  比<sup>1)</sup>から判断して、カンラン石と普通輝石は早期に同時晶出したと推定されるのに対して、角閃石と黒雲母はそれらに遅れて、おそらく安山岩質～珪長質マグマに至ってから晶出したと推定される。従って、安山岩質マグマでは斜長石と共に角閃石が分別したと考えられる。このような結晶分化の様式は、安山岩において斜方輝石が出ないことを除けば、渡島大島火山<sup>10)</sup>のものに最も類似している。今回得られた分析結果は  $Al_2O_3$  が示す山形トレンドの、ピーク近傍の苦鉄質側にプロットされることから、カンラン石+普通輝石以外の、斜長石、角閃石といった鉱物の分別の影響はあまり受けていないと推定される。従って、本分析値が示すインコンパティブル元素規格化パターンは Ti や P といった元素を除けば、初生マグマのそれとほぼ平行であると考えてよい。

久六島西方海底火山噴出物組成の、始源マントル<sup>11)</sup>ならびに MORB 組成<sup>12)</sup>によるインコンパティブル元素規格化パターンを第3図に示す。これらの規格化パターンは東北本州弧背弧側の第四紀島弧火山岩に典型的に認められるもの<sup>11)</sup>であり、Nb の負異常を示し、HFS 元素に対して LIL 元素に富んでいる。SiO<sub>2</sub> が同程度の背弧側の火山岩と比較した場合、本火山噴出物は Sr、Ba と Zr に関して、渡島大島<sup>13)</sup>、一ノ目淵<sup>14)</sup>、鳥海<sup>15)</sup>といった火山に対して、より富んでいるが、それ以外のインコンパティブル元素の濃度についてはそれらと明瞭な差異はない。但し、月山火山<sup>16)</sup>以東の火山フロント側の第四紀火山噴出物と比較した場合には、Ti と Y 以外の大部分のインコンパティブル元素に関して、より濃度が高い。



第3図 久六島西方海底火山噴出物の MORB 規格化図<sup>12)</sup>ならびに始源マントル規格化図<sup>11)</sup>。

## §6. 久六島西方海底火山噴出物と東北本州弧火山岩の帯状配列

東北本州弧は島弧のうちでも最も幅広く第四紀火山が分布する弧の一つであり、島弧火山岩

の成因, 特にその帯状配列を研究するには最適のフィールドである。東北本州弧に分布する第四紀火山は地質学的, 岩石学的に4つの火山列, すなわち, 青麻一恐火山列, 脊梁火山列, 森吉火山列, 鳥海火山列に分帯されており, 各火山列を構成する火山岩類はそれぞれ特有の地質学的, 岩石学的, 地球化学的特徴を有している<sup>17,18)</sup>。

鳥海火山列に属する火山は地理的分布ならびに  $K_2O$  量から森吉火山列火山と区別される。火山体の数は青麻一恐火山列の数と同程度であり, 目瀉, 寒風, 鳥海, 月山, そして久六島西方海底火山などからなる。これらは規模が大きく, 現在も, 活動中のものから, 規模の小さい単成火山, 開析の進んだものと変化に富む。斑晶鉱物として角閃石, 黒雲母を持つ久六島西方海底火山噴出物は, 岩石記載学的, 岩石化学的にも鳥海火山列火山特有の性格を有している。従って, 本火山を東北本州弧第四紀火山のうち, 最も背弧側に位置する島弧火山であると位置づけることができる。

鳥海火山列は更にその岩石学的特徴の違いから, 寒風より火山フロント側の火山と, 目瀉より背弧側の火山に二分することが可能である<sup>18)</sup>。すなわち, 鳥海火山列の火山にはカルクアルカリ系列岩とともに, 高アルカリソレライト (高アルミナ玄武岩) 系列~アルカリ系列岩が分布し, これらは medium-K ないし high-K andesite に相当している。high-K andesite に相当する岩石は目瀉, 渡島大島<sup>19)</sup>, 久六島西方海底火山等に分布し, medium-K andesite の分布する地域に対して明らかに背弧側に位置している。従って, 鳥海火山列を寒風火山より火山フロント側の medium-K 部分と, 目瀉火山より背弧側の high-K 部分とに分帯することも可能であり, この境界がおおよそ, Miyashiro<sup>19)</sup> の2帯と3帯との境界あるいは Sakuyama and Nesbitt<sup>20)</sup> のBタイプとCタイプとの境界に相当していると見ることができる。

また, 寒風火山より陸側では斑晶斜方輝石が普遍的にみられるのに対して目瀉火山と久六島西方海底火山ではそれを欠き, 角閃石とともに黒雲母斑晶を持つ。Sakuyama<sup>21)</sup> は東北本州弧に産する火山岩における斑晶晶出順序をI型, II型, III型の3つに分類している。青麻一恐火山列と脊梁火山列火山岩はI型 (石英→普通角閃石→黒雲母) に, 森吉火山列と鳥海火山列陸側はII型 (普通角閃石→石英→黒雲母), 鳥海火山列背弧側はIII型 (普通角閃石→黒雲母→石英) にほぼ相当する。この変化は, これらの斑晶を晶出した溜りの深さがほぼ同じだと考えると  $H_2O$  量の増加に対応している。角閃石の出現しない脊梁火山列安山岩質マグマは, 背弧側の角閃石含有安山岩質マグマに対してより高温 (950°C以上) であると考えられる。鳥海火山列に属する月山火山<sup>16)</sup> では  $Hb + Bi + Qz$  の斑晶組合せがあり, この帯のマグマが黒雲母の産出しない森吉火山列に比べてより低温 (850°C以下) に達したことを示している。久六島西方海

底火山では斜方輝石も石英も認められないことから、鳥海火山列内でも縁海側へとマグマの H<sub>2</sub>O 量が増加している可能性がある。従って、地殻内で安山岩質マグマが到達した温度は島弧火山活動の軸部である脊梁火山列から背弧側へ、単調に低下していたと推定される<sup>18)</sup>。そのようなマグマ温度の低下はマグマ中のアルカリ量や推定される H<sub>2</sub>O 量の増加に良く対応している。

### §7. 背弧海盆底におけるカルクアルカリ系列岩産出の重要性

久六島西方海底火山に最も近い目瀉火山に産する安山岩質マグマについては、マントルで生成した初生安山岩であるとする考え<sup>22)</sup>、マグマ混合によるものとする考え<sup>23)</sup>、そして、玄武岩質マグマの上昇に伴う最上部マントル～下部地殻物質の部分溶融によって生成したとする考え<sup>24)</sup>などがある。久六島西方海底火山噴出物として相伴うアルカリ玄武岩とカルクアルカリ安山岩～珪長質岩類との成因的關係を現時点で特定することは難しいが、既に論じたように、安山岩質～珪長質マグマがより苦鉄質なマグマからの一連の結晶分化作用の産物である可能性は高い。

Arculus & Johnson<sup>25)</sup>は島弧玄武岩にみられる Sr 含有量が<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr 比の変化と正の相関を示さず、むしろ、負の相関が認められること、Sr, Ba, Pb 含有量異常は島弧のみならず、大陸性洪水玄武岩などにも認められ、両者の間に Sr-Nd 同位体比の差がないことを示し、島弧火山岩が示す地球化学的特徴は初生マグマが<sup>87</sup>Sr に乏しい下部地殻を取り込むことにより生じたものであると論じている。すなわち、<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr, <sup>206</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb, <sup>207</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb の低い、しかも Sr, Ba, Pb などに富んだ斜長石を含有する下部地殻物質を取り込むことにより島弧マグマの地球化学的性格が生じたと考えた。また、高橋<sup>26)</sup>は、島弧下のマントル最上部～地殻最下部に下方より玄武岩質マグマが貫入して、そこで既存物質の部分溶融を引き起こすことにより、二次的にカルクアルカリ安山岩マグマが生じるというモデルを提案している。小林<sup>27)</sup>も同様の考えを述べている。また、日本の第四紀火山岩中では、酸性火砕堆積物が SiO<sub>2</sub> = 65～75wt.% において組成頻度分布の極大を示している<sup>28)</sup>が、それらの成因として地殻下部の部分溶融が考えられてきた<sup>29,30)</sup>。これと関連してカルクアルカリ安山岩がマグマ混合で生じた際の酸性端成分に、地殻下部で生じた酸性マグマが関与する可能性も考えられている。

東北本州弧における火山帯下での地殻の厚さは約 30km でほぼ一定である<sup>31)</sup>。これは島弧の地殻としては厚い部類に属し、少なくともその一部は大陸本体から弧立した大陸性地殻からなると考えられている。また、東北本州弧火山帯下のモホ直下には 7.5km/sec の異常マントルが分布し、この層は火山帯下から離れると 8.1km/sec の上部マントルに移化している<sup>31)</sup>。



斑晶として角閃石、黒雲母を有する島海火山列を特徴づけるカルクアルカリ系列岩を噴出した久六島西方海底火山は代表的な縁海の一つである日本海盆の東端に位置する。日本海盆は水深3 kmに達し、地殻の厚さは12 kmに満たない海洋性のものであることが知られている<sup>32)</sup>。したがって、久六島西方海底火山は海洋性地殻上に形成されたカルクアルカリ岩系火山岩であると言える。その地球化学的性格は完全に東北本州弧に産する島弧火山岩に一連の性格を有しており、起源物質についても差異があるとは考えられない。このことから、次のような点を指摘できる。

1. カルクアルカリ岩の生成に大陸性地殻の存在はかならずしも必要ではない<sup>33)</sup>。
2. 島弧火山岩にみられる火山フロントからの距離とともにカリウム等の液相濃集元素が増加するという火山の帯状配列・分布に地殻の厚さの変化は必ずしも重要な意味を持たない。
3. 1. と2. から、カルクアルカリ岩が示す化学組成上の特徴はそのマグマが上部マントルで発生したときに初生的に獲得した性格であって、少なくとも、その後の上昇中に地殻と反応した結果持つに至ったものではない。すなわち、カルクアルカリ岩一般の成因として、大陸性下部地殻の再熔融といったものを考えることは不適當である。
4. 東北本州弧上の島海火山列からの火山岩と、日本海盆からの火山岩とが類似した起源物質から、おそらく、似たような条件下で生成したと考えられることから、両者を生成したマントルは均質一連であったと推定される。すなわち、東北本州弧の少なくとも背弧側と背弧海盆の島弧側下部に位置する上部マントルの間に組成に関する不連続はないと考えてよい。これらが共に Nb に乏しいといった島弧火山岩特有の性格を持つことから背弧海盆下のマントルの少なくとも一部は島弧火山岩を生成するに足る地球化学的性格を有していることが判る。
5. 久六島西方海底火山は海洋性地殻上に位置している。海洋性地殻がもし MORB 質玄武岩から成るとすると、ここでは、火山活動の性格の経時変化が存在したことになる。すなわち、日本海形成時には MORB 質玄武岩がマントルから上昇して来たのに対して、その後の島弧の発達にともなってカルクアルカリ系列岩がマントルで生成しうるようになったと考えてよい。つまり、マントルの性格が時間とともに海洋性のものから、島弧性のものに経時変化したと推定される。このような起源物質の地球化学的性格の変化は、東北本州弧からの陸上の火山岩の研究からも推定されている<sup>34)</sup>。
6. 日本海盆における、このような噴出物の性格の経時変化の成因を考える際に念頭に置いておくべきことがある。すなわち、海洋底拡大に伴う MORB 質玄武岩の噴出はマントル中でも比較的浅い部分において発生したマグマに由来すると考えられるのに対して、久六島西方海

底火山噴出物を含む島弧アルカリ岩はより深部において生成したと考えられる。従って、もし、マントル中に深さ方向の組成不均質<sup>35)</sup>が存在するならば、マントルの浅い位置から MORB 質マグマが、そしておそらく、縁海側マントル内における温度の低下にともなって溶融部分が深部に移動した結果、マントルのより深い部分から、アルカリ質ないし島弧性のマグマが少量発生ないし上昇してきたと考えることが可能である。ただし、縁海を含むプレート内部で一般に期待されるマントル深部由来アルカリ系列マグマは島弧的性格をもたない。従って、深さ方向の不均質性のみで、背弧海盆における島弧性アルカリ～カルクアルカリ系列岩の生成を説明することはできない。

7. 東北本州弧背弧側火山岩は比較的低い Sr 同位体比と、比較的高い Nd 同位体比、すなわち、MORB に近い同位体組成を有しているが、これには背弧側における海盆の形成にともなって、縁海部に供給された MORB 質起源マントルの存在が重要な役割を果たしている可能性が大きい。

いずれにしても、東北本州弧におけるカルクアルカリ系列火山岩一般の成因として、既存のハンレイ岩質下部地殻の大規模な再溶融を考えることは困難であり、それらが示す地球化学的特徴はマントルで生じた初生マグマの性格に由来していると結論される。

## §8. おわりに

東北本州弧背弧側の日本海盆底に見つかった第四紀火山、久六島西方海底火山には、アルカリ玄武岩とそれに伴うカルクアルカリ系列安山岩が産する。安山岩の岩石学的、地球化学的特徴は典型的な島弧に産するカルクアルカリ系列岩のそれである。従って、本火山は東北本州弧陸上に分布する第四紀島弧火山の背弧側延長であり、縁海中に分布するプレート内アルカリ玄武岩<sup>36)</sup>とは性格を異にする。

このような縁海底におけるカルクアルカリ安山岩の存在は、カルクアルカリ系列岩の成因論に重要な制約条件を与えるものである。すなわち、カルクアルカリ系列安山岩の生成に島弧地殻の存在は必ずしも必要ではなく、それが示す地球化学的特徴はおそらく、それらが生成したマントルの組成上の特徴を反映したものである。第三紀における、MORB 的なマグマの海洋底における活動にともなった日本海の形成後に、第四紀に至って縁海底においてカルクアルカリ安山岩が生じているということは、縁海島弧側のマントルにおける経時的な性格の変化が存在したことを示唆している。

本研究にあたり，東大地震研の山野誠博士，上田誠也教授には貴重な試料の使用を快く許可していただいた。また，光量子放射化分析にあたり，東北大学核理研の榎本和義博士，現在金研に移られた八木益男教授，ならびにライナック・マシングループの方々，東北大学サイクロトロンRIセンターの中村尚司教授，山寺亮博士をはじめ職員の方々には大変お世話になった。東北大学岩鋳教室の大沼晃助教授，藤巻宏和博士には，諸般にわたって御助力頂き，また常日頃議論して頂いている。なお，本研究の一部に文部省科学研究費補助金（Nos. 62103003, 63460048）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) 佐藤博明，山野 誠，上田誠也，徳山英一，松田高明，木村政昭，倉本真一：火山第2集 31 (1986) 193.
- 2) 田中和夫，佐藤魂夫，小菅正裕，佐藤 裕：乗富一雄編「1983年日本海中部地震による災害の総合的調査研究」文部省科研費成果報告 (1984) 39.
- 3) 桂 忠彦：地質雑 90 (1984) 687.
- 4) 木下正高，山野 誠，安井 正，李新元，蒲生俊敬，石橋純一郎，西沢純一，山本克己：地震学会 1987 年春季大会講演要旨 (1987) p. 132.
- 5) T. N. Irvine and W. R. A. Baragar : Can. J. Earth Sci. 8 (1971) 523.
- 6) H. Kuno : Bull. Volcanol. 29 (1966) 195.
- 7) K. G. Cox, J. D. Bell, and R. J. Pankhurst : *The interpretation of igneous rocks.* (George Allen, 1979) p. 450.
- 8) J. B. Gill : *Orogenic andesites and plate tectonics.* (Springer-Verlag, 1981) p. 390.
- 9) A. Miyashiro : Am. J. Sci. 274 (1974) 321.
- 10) M. Yamamoto : J. Fac. Sci. Hokkaido Univ. Ser. IV 21 (1984) 77.
- 11) T. Yoshida, K. Masumoto, and K. Aoki : J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. 81 (1986) 406.
- 12) J. A. Pearce : *Continental basalts and mantle xenoliths.* eds. C. J. Hawkesworth and M. J. Norry (Shiva, 1983) p. 230.
- 13) 吉田武義，青木謙一郎：核理研研究報告 21 (1988) 268.
- 14) T. Yoshida and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. , Ser. III 16 (1984) 1.
- 15) S. Hayashi : Sci. Rep. Tohoku Univ. , Ser. III 16 (1985) 269.

- 16) 小泉治彦, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 17 (1984) 391.
- 17) 中川光弘, 霜鳥 洋, 吉田武義 : 岩鋳 81 (1986) 471.
- 18) 吉田武義 : 地質学論集 32 (1988) (印刷中).
- 19) A. Miyashiro : Am. J. Sci. 272 (1972) 629.
- 20) M. Sakuyama, and R. W. Nesbitt : J. Volcanol. Geotherm. Res. 29 (1986) 413.
- 21) M. Sakuyama : Geodynamic Series 11 (1983) 143.
- 22) K. Aoki and H. Fujimaki : Am. Min. 67 (1982) 1.
- 23) M. Sakuyama and T. Koyaguchi : J. Volcanol. Geotherm. Res. 22 (1984) 199.
- 24) E. Takahashi : J. Volcanol. Geotherm. Res. 29 (1986) 355.
- 25) R. J. Arculus and R. W. Johnson : Geochem. J. 15 (1981) 109.
- 26) 高橋栄一 : 月刊「地球」 3 (1981) 138.
- 27) 小林哲夫 : 火山第2集 32 (1987) 237.
- 28) S. Aramaki and T. Ui : Bull. Volcanol. 41 (1978) 390.
- 29) 荒牧重雄 : 火山第2集 14 (1969) 55.
- 30) T. Ui : J. Fac. Sci. Univ. Tokyo 18 (1971) 53.
- 31) T. Yoshii : Tectonophysics 55 (1979) 349.
- 32) 村内必典 : 科学 42 (1972) 367.
- 33) G. S. Gorshkov : Intern. UMP. Proc. of the Andesite Conference (1969) p. 91.
- 34) 吉田武義, 大口健志, 千葉とき子, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 19 (1986) 163.
- 35) 青木謙一郎, 吉田武義, 石川賢一 : 岩鋳 82 (1987) 119.
- 36) 徐 紅, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 20 (1987) 179.

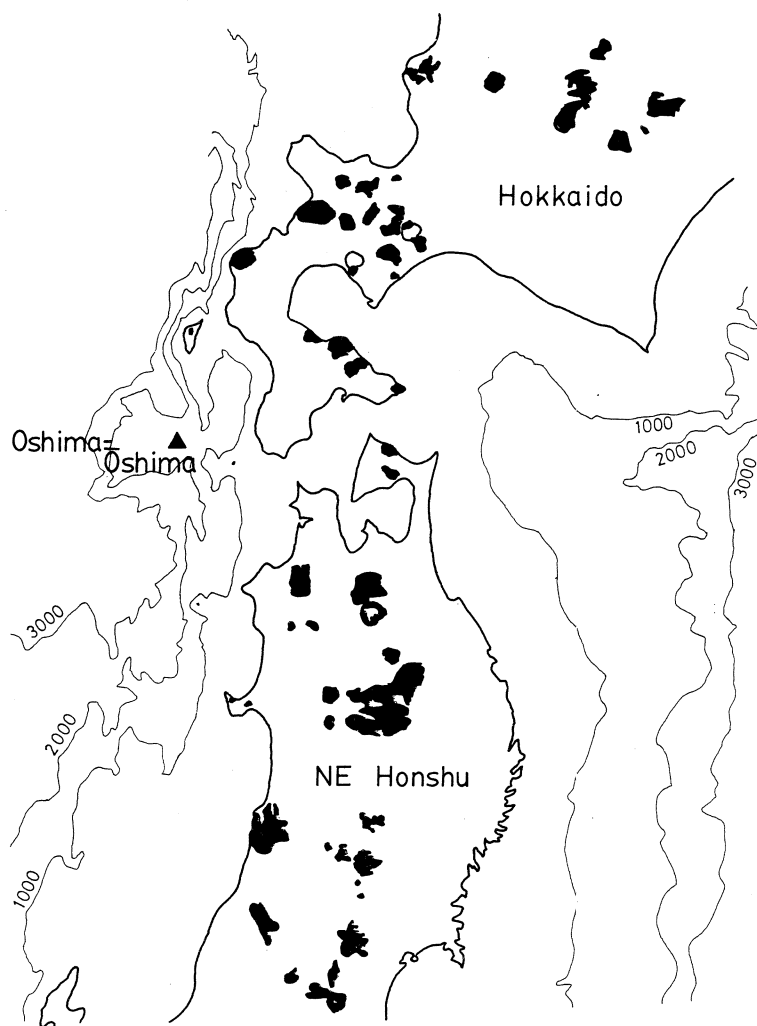
## 北海道，渡島大島火山噴出物の微量元素組成

理学部地学

吉田武義・青木謙一郎

## §1. はじめに

渡島大島は、北海道渡島半島から約50km西方の日本海海上に浮かぶ、東西約4km、南北約3.5kmの火山島であり、島海帯に属するとされている（第1図）。東北本州弧の第四紀火山は火



第1図 渡島大島火山の位置図。  
黒く塗りつぶした部分は陸上の第四紀火山である。

山フロントから日本海沿岸まで100km余りの幅で分布するが、渡島大島火山は火山フロントから約150kmの距離にあり、陸上の火山としては、東北本州弧における最も背弧側に位置する第四紀火山である。

本火山を構成する岩石はアルカリカンラン石玄武岩とカルクアルカリ系列の角閃石輝石安山岩よりなる。今回、これらの岩石について光量子放射化法による微量成分元素の分析を行ったので、ここに報告する。

## §2. 渡島大島火山

渡島半島の沖合い50km、日本海に浮かぶ渡島大島火山は、勝井ならびに山元らによって、その地質と岩石が明らかにされて来た<sup>1-11)</sup>。本火山島は、松前海台の東部に位置し久六島から奥尻島につづく奥尻海底山脈上<sup>12)</sup>にあり、海面下1,000~1,200mからそびえたつ成層火山である。その基底直径は約10×12kmにおよんでいる<sup>6)</sup>。

これまでの研究によれば、渡島大島火山は東山外輪山(737m)を最高点とし、そのかつての火口を中心として生じた西部の大火口に西山外輪山(西山カルデラ)、さらにその内部に形成された中央火口丘(寛保岳、海拔約648m)を含む三重式成層火山である<sup>3)</sup>。東山本体にはほぼ放射状に多くの岩脈が貫いている。西山外輪山のカルデラと中央火口丘の形成は、1741年およびそれ以降の活動によると推定されている。完新世に形成されたと推定される西山外輪山に対して、東山は更新世末期~完新世初期に形成されたと考えられている。また、渡島大島の基盤は、捕獲岩や外来放出物から、奥尻島や渡島半島にみられるような先第三系とこれを貫く花崗岩質深成岩からなると考えられ、モホ面までの深さは15~20kmと推定されている。

渡島大島は、おそらく鮮新世末期~完新世初期に、海面上に姿を現し、溶岩の流出や火山放出物の噴火により東山の成層火山を形成したと考えられる。海面上の山体についてみると、はじめ主に玄武岩が噴出し、つづいて安山岩、最後に玄武岩が噴出している。この活動の後期には、火山体に玄武岩岩脈が貫入し、頂上部が陥没してカルデラが形成された。その後、東山の火山体が海蝕をうけたのち、西山の成層火山が成長した。この間、はじめはおもに玄武岩が噴出し、ついで角閃石安山岩、最後にふたたび玄武岩が噴出している。後期には玄武岩岩脈の貫入もあった。この噴出順序は東山とよく似ている。最後に、一輪廻の噴火に相当する、安山岩質軽石に始まり玄武岩質スコリアの噴出で終る西山噴出物の活動(1741~1790年)があって西山カルデラが形成された。その後、カルデラ内に玄武岩質噴出物からなる新しい中央火口丘を生じている<sup>6,11)</sup>。

### §3. 渡島大島火山噴出物の岩石学的特徴

渡島大島火山噴出物は大きくカンラン石普通輝石玄武岩類と角閃石輝石安山岩類とに分けられる。玄武岩類は久野<sup>13)</sup>の  $\text{SiO}_2$ -アルカリ図において一部が高アルミナ（高アルカリ）玄武岩領域に、多くはアルカリ玄武岩系列の領域にプロットされる。一方、安山岩類は稀にアルカリ系列の領域にはいるものがあることを除くとほとんどが高アルミナ（高アルカリ）玄武岩系列の領域に落ちる。玄武岩類は  $\text{SiO}_2$  の増加に伴い、 $\text{FeO}^*/\text{MgO}$  比が増加するトレンドを描くのに対して、安山岩類はあまり増加せず、 $\text{SiO}_2$ - $\text{FeO}^*/\text{MgO}$  図<sup>14)</sup>で、その大部分が CA 領域に入る。また、 $\text{SiO}_2$ - $\text{K}_2\text{O}$  図では玄武岩～安山岩の大部分が high-K 領域<sup>15)</sup>に点示される。従って、渡島大島火山噴出物中の玄武岩類は漸移型のアルカリカンラン石玄武岩系列に、安山岩類は high-K カルクアルカリ系列に分類される。

このように渡島大島火山噴出物は、一般にややアルカリに富み、東北地方の背弧側、すなわち、鳥海火山列の諸火山の岩石と類似した性格を示すが、他の鳥海火山列火山に比べて玄武岩に富む。渡島大島火山ではアルカリカンラン石玄武岩の量比は 70% に達し、残り 30% がカルクアルカリ安山岩である<sup>6)</sup>。アルカリカンラン石玄武岩とカルクアルカリ安山岩とは密接にともない、1741～1742年に起こった噴火においては、一輪廻の噴火においても相伴っている。

噴出物の岩型は、普通輝石カンラン石玄武岩、カンラン石普通輝石玄武岩～玄武岩質安山岩、カンラン石普通輝石普通角閃石玄武岩質安山岩（以上、アルカリカンラン石玄武岩系列）、シソ輝石含有カンラン石普通輝石安山岩、カンラン石含有普通輝石シソ輝石安山岩、普通角閃石カンラン石含有普通輝石シソ輝石安山岩、普通角閃石普通輝石シソ輝石安山岩、シソ輝石含有カンラン石普通輝石普通角閃石安山岩、普通輝石普通角閃石シソ輝石安山岩、シソ輝石普通輝石普通角閃石安山岩、黒雲母含有シソ輝石普通輝石普通角閃石安山岩、そして、普通輝石シソ輝石含有黒雲母普通角閃石安山岩（以上、カルクアルカリ系列）からなる<sup>6,11)</sup>。これらの特徴は、アルカリカンラン石玄武岩系列では斑晶として必ず、カンラン石と普通輝石を持ち、極く稀に玄武岩質安山岩で普通角閃石を有すること、ならびにカルクアルカリ系列岩では、必ずシソ輝石と普通輝石を斑晶として有し、これにカンラン石、普通角閃石そして稀に黒雲母が加わることである。斜長石斑晶は玄武岩～安山岩を通じて普遍的に見られる。安山岩の一部にリン灰石斑晶が認められ、鉄鉍鉍物は玄武岩～安山岩ともにあるものと無いものがある<sup>11)</sup>。東山下部溶岩からカンラン石含有安山岩が報告されている<sup>6)</sup>がこれについてはいずれの岩系に属するか定かでないので、以下の議論には使用しない。

渡島大島においては、大部分の安山岩中に、そして、稀に玄武岩中に、超苦鉄質～苦鉄質包

有物や、花崗閃緑岩、ホルンフェルス、チャートなどの基盤岩に由来する外来捕獲岩が産する<sup>1,3)</sup>。超苦鉄質～苦鉄質包有物は、おもにカンラン石、単斜輝石、角閃石および斜長石から構成されている。これらの鉱物組合せと量比から、超苦鉄質包有物はダナイト、ウェールライト、カンラン石単斜輝岩～単斜輝岩、角閃石岩に、苦鉄質包有物はカンラン石ハンレイ岩、角閃石ハンレイ岩、斜長岩質ハンレイ岩に分類される。これらはいずれも典型的な集積岩の組織を示している。量的には、角閃石ハンレイ岩が最も多く、これに単斜輝岩とその仲間、そしてウェールライトの順である。ダンカンラン岩の出現は比較的稀である<sup>1)</sup>。

超苦鉄質～苦鉄質包有物を構成するカンラン石、斜長石、角閃石、普通輝石といった主成分鉱物は、全て渡島大島玄武岩・安山岩中に斑晶として見られるものである。ダナイト、ハンレイ岩、単斜輝石岩、角閃石岩を構成する鉱物はこの順に、カンラン石、普通輝石、角閃石などの組成が系統的に変化している。また、造岩鉱物のモードの連続的な変化がこれらの包有物には認められている。従って、包有物のマグマからの形成順序はダンカンラン岩→ウェールライト→カンラン石単斜輝岩→単斜輝岩→角閃石岩→角閃石ハンレイ岩の順である<sup>1)</sup>。

山元<sup>1)</sup>はこのような包有物を構成する鉱物の産状、組織そしてその組成から、それらが玄武岩質マグマからの晶出物であると考え、渡島大島火山における玄武岩-安山岩系列と同源であると推定している。また、渡島大島に産するこれらの超苦鉄質～苦鉄質包有物が、カルクアルカリ岩系の安山岩とともに噴出していることから、これらの包有物の多くが、アルカリカンラン石玄武岩質マグマから分別結晶したものであり、その結果、残液としてカルクアルカリ岩系の安山岩質マグマが生じ、マグマ溜りに沈積した超苦鉄質～苦鉄質岩が安山岩マグマにともなって噴出したと結論している。

#### §4. 試料の分析方法ならびに分析結果

渡島大島火山噴出物のうち、アルカリカンラン石玄武岩ならびにカルクアルカリ安山岩からそれぞれ2試料について、新たに光量子放射化法による微量成分元素の分析を行った。分析元素はBa, Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Zn, ZrおよびYの13微量元素である。試料の放射化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の加速電子を用いた。分析結果を山元による主成分分析結果<sup>1)</sup>とともに第1表に示す。



第1表 渡島大島火山噴出物の微量成分元素組成。

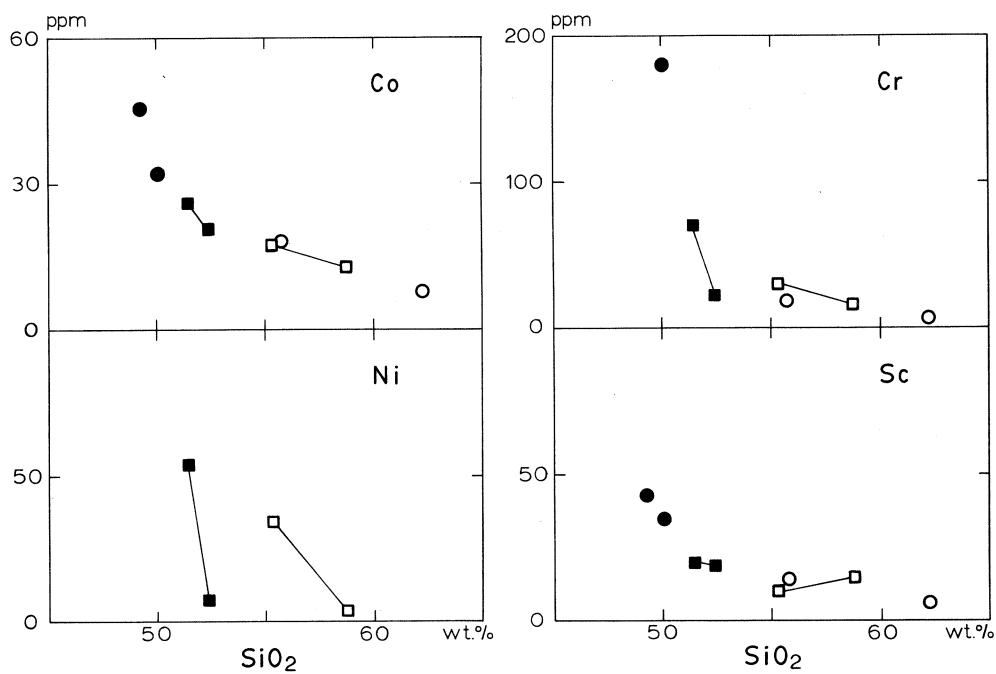
No.	1	2	3	4
Name	Cl-119	Nl-14	Nm-108	Hm-44
R.S.	AB	AB	CA	CA
wt. %				
SiO <sub>2</sub>	51.50	52.44	55.37	58.86
TiO <sub>2</sub>	0.94	0.95	0.62	0.63
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	18.47	17.58	17.78	17.51
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.91	4.84	3.22	3.58
FeO	5.86	5.03	4.58	2.91
MnO	0.12	0.10	0.18	0.10
MgO	5.59	4.04	3.97	2.69
CaO	10.09	8.44	8.46	6.67
Na <sub>2</sub> O	3.17	3.64	3.25	3.85
K <sub>2</sub> O	1.93	2.41	2.11	2.86
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.42	0.53	0.46	0.34
Total	100.00	100.00	100.00	100.00
ppm				
Ba	551	575	606	779
Ce	33.9	43.6	39.5	47.0
Co	26.2	20.7	17.3	13.1
Cr	70.5	21.4	29.7	15.5
Cs	2.96	1.97	3.32	7.97
Nb	3.7	4.8	2.4	4.2
Ni	54.0	7.5	34.4	3.9
Rb	65.6	89.7	66.0	139
Sc	19.8	19.1	9.8	14.4
Sr	585	640	766	561
Y	24.9	24.4	19.1	19.0
Zn	55	71	77	59
Zr	86.6	82.7	111	140

主成分は山元による分析値<sup>1)</sup>をH<sub>2</sub>Oを抜いた合計が100%になるように再計算した結果である。微量成分元素は今回光量子放射法により定量した結果である。

AB: アルカリカンラン石玄武岩系列, CA: カルクアルカリ系列。

### §5. アルカリカンラン石玄武岩とカルクアルカリ安山岩の微量元素組成

今回分析した13微量元素のうち、コンパティブル元素である、Co, Cr, Ni, Sc (第2図)は、一連の結晶分化作用の産物においては、通常、SiO<sub>2</sub>の増加とともに指数関数的に減少する。図からも判るようにCo, Sc, Crについては、一応、指数関数的な減少と見なすことも可能であるが、Niについては挙動が異なる。すなわち、アルカリカンラン石玄武岩とカルクアルカ

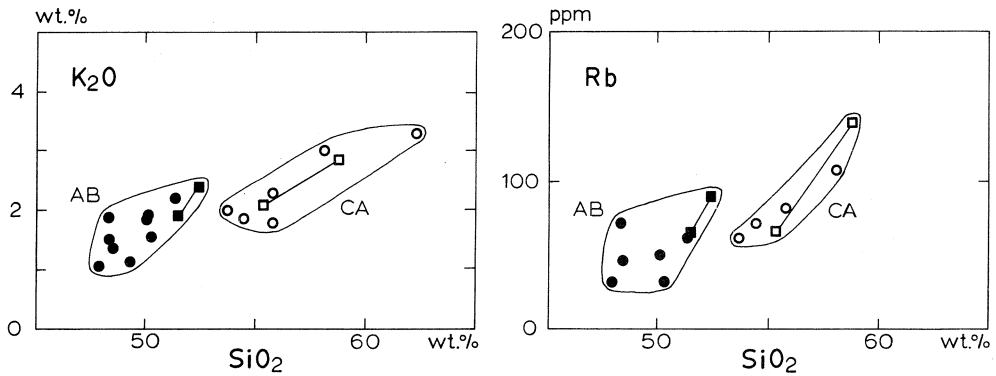


第2図 渡島大島火山噴出物のコンパティブル微量成分元素の組成変化図。

四角が今回の分析結果で、丸はこれまでに報告されている値<sup>4,8)</sup>である。記号のうち、塗りつぶしてあるのがアルカリカンラン石玄武岩系列で、白抜きがカルクアルカリ系列である。

リ安山岩とは異なる  $\text{SiO}_2$ -Ni トレンドを描いており、分化したアルカリカンラン石玄武岩系列岩の Ni 量は、苦鉄質なカルクアルカリ安山岩での Ni 量よりも乏しい。そのような目で見ると、Cr, Coそして、MnO についても、最も苦鉄質なカルクアルカリ安山岩におけるそれらの値は、アルカリ玄武岩が描くトレンドの延長上よりも、より高濃度側にプロットされていると見ることができる。このような関係は東北本州弧、脊梁火山列火山において共存するソレライトとカルクアルカリ系列岩において認められるものと同じである。すなわち、これらのコンパティブル元素、特に Ni の挙動は、アルカリカンラン石玄武岩からの斜長石+カンラン石+普通輝石±普通角閃石の分化でカルクアルカリ苦鉄質安山岩マグマを作るのが難しいことを示している。

既に山元<sup>11)</sup>が指摘しているように、渡島大島火山噴出物における、Rb,  $\text{K}_2\text{O}$  といったインコンパティブル元素濃度は独得の階段状の組成変化を示している。すなわち、これらの元素は



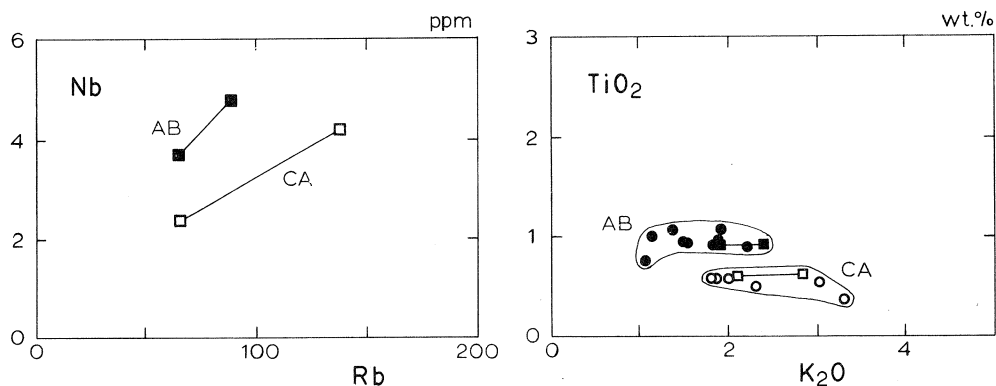
第3図 渡島大島火山噴出物の  $K_2O$  と Rb の組成変化図。

今回分析した同系列岩は実線で結んである。他の記号は第2図に同じ。

AB: アルカリカンラン石玄武岩系列, CA: カルクアルカリ系列。

アルカリカンラン石玄武岩から苦鉄質安山岩へと一旦増加したのち、アルカリ系列苦鉄質安山岩からカルクアルカリ系列安山岩へとほとんど増加せず、その後カルクアルカリ系列安山岩内で再び増加している(第3図)。山元<sup>13)</sup>はこれを、アルカリ系列苦鉄質安山岩において角閃石が晶出相に加わるために、これらのインコンパティブル元素の増加率が低下するためであると解釈している。

今回得られた分析結果によると、一部の元素、特に Nb はアルカリ玄武岩ならびにカルクアルカリ安山岩中では、 $SiO_2$  の増加に伴い、同じように増加しているにもかかわらず、アルカリ岩系の玄武岩質安山岩からカルクアルカリ系列の苦鉄質安山岩へと減少している。同様の傾向が Y においても認められる。すなわち、Y は晶出相への分配係数が大きいために、玄武岩や安山岩中ではほとんど含有量が変化せず、ほぼ一定の値を持つが、アルカリ玄武岩とカルクアルカリ安山岩を比較すると、明瞭に後者で低い値を示している。Nb や Y といった HFS 元素は角閃石への分配係数が 1 前後である。従って、角閃石が他の斑晶とともに晶出することにより、これら元素の残液での濃集率を低下させることが可能である。但し、角閃石を含む斑晶の結晶分化作用が起こったとしても、アルカリ系列に属する普通角閃石含有カンラン石普通輝石玄武岩質安山岩からカルクアルカリ系列に属する普通角閃石普通輝石シソ輝石苦鉄質安山岩へと、今回 Nb や Y といった元素に見られるような濃度の低下が起こりうるかどうかは疑問がある。つまり、アルカリカンラン石玄武岩とカルクアルカリ安山岩との間にはこれら元素の含



第4図 渡島大島火山噴出物のRb-NbとK<sub>2</sub>O-TiO<sub>2</sub>変化図。  
記号は第2, 3図と同じ。

有量に初生的な違いがあった可能性がある。アルカリカンラン石玄武岩とカルクアルカリ系列安山岩とが、それぞれ独立した初生マグマに由来すると考えると、多くのインコンパティブル元素に認められる、階段状ないし、鋸状の変化経路（第3図参照）は異なる2本の経路を無理につないだ為に生じたものであるかも知れない。

アルカリカンラン石玄武岩と、カルクアルカリ安山岩との間に初生マグマにおける組成差が存在する可能性を強く示唆するものとして、Nb-Rb関係（第4図）を挙げる事ができる。第4図によれば、アルカリ系列の玄武岩質安山岩からカルクアルカリ系列の苦鉄質安山岩へとNbばかりかRbも低下している。特にRbは角閃石への分配が0.5以下であり、仮に角閃石の分別が効果的に作用したとしても、Rb, Nbともに低いカルクアルカリ安山岩をそれより高いRb, Nb量をもつアルカリ系列玄武岩から一連の結晶分化作用で作ることは困難である。すなわち、両者は、互いに独立した異なるNb/Rb比をもった初生マグマに由来すると考えられる。同様の関係図をTiO<sub>2</sub>-K<sub>2</sub>Oについても書くことができる。この場合はNb-Rb図ほど明瞭ではないが、やはり、アルカリ系列の玄武岩質安山岩からカルクアルカリ系列の苦鉄質安山岩へとTiO<sub>2</sub>が減少するとともにK<sub>2</sub>Oも著しく減少しており、両者が一連の分別結晶作用の産物であると考え難い。

このように、今回の分析結果は、コンパティブル元素についても、インコンパティブル元素についても、アルカリカンラン石玄武岩と、カルクアルカリ系列安山岩とが、異なる初生マグマに由来したことを示唆している。北海道背弧側に位置する利尻火山噴出物は、渡島大島火山同様にアルカリ系列の玄武岩とカルクアルカリ系列の安山岩～流紋岩からなる。小林ら<sup>10)</sup>は利

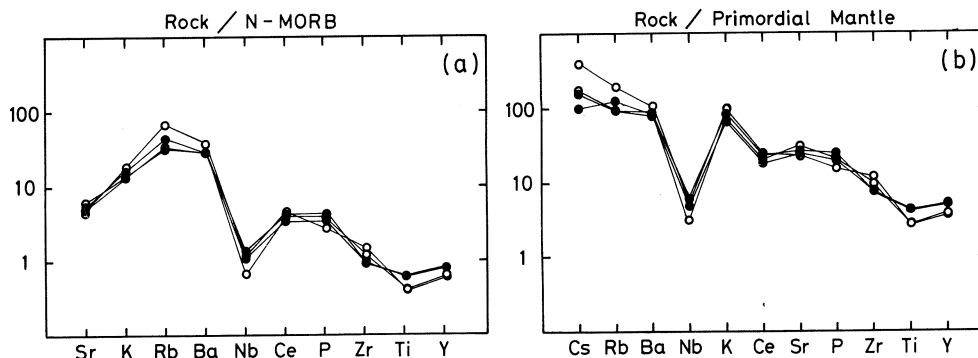
尻火山においては、アルカリ系列玄武岩とカルクアルカリ系列安山岩の間のみならず、アルカリ系列玄武岩中ならびにカルクアルカリ系列安山岩中にも互いに晶出分化作用では導き得ない組成、成因系統の異なる初生マグマに由来するものがあることを明らかにしている。すなわち、利尻火山には、2種類の玄武岩、2種類の安山岩、そしてデイサイトと流紋岩が存在し、彼らは、これらすべてが組成的、成因的に互いに独立して生成したものであると考えている。利尻火山におけるアルカリ系列玄武岩類とカルクアルカリ系列安山岩類も、渡島大島同様に、いくつかのインコンパティブル元素において、玄武岩から安山岩へと全体として階段状、ないし鋸状の変化経路を描いている。

彼らは、また、これらの岩石間でインコンパティビリティの高い元素間の比が比較的一定していることから、おそらく、利尻火山噴出物の起源物質には、それら元素に関して、なんらかの同源性があるものと推定しており、利尻火山においては、噴出期ごとのマグマの不均質性と、マグマ全体を通じての同源性が認められると述べている。

いずれにしても、北海道～東北本州弧背弧側の渡島大島、利尻火山といった火山においては、初生的に異なるマグマに由来するアルカリ系列玄武岩とカルクアルカリ系列安山岩とが密接に共存していることが明らかとなった。このように、同一火山において、異なる初生マグマに由来したと推定される玄武岩とカルクアルカリ安山岩とが、互いに密接に共存する例は、既に東北本州弧、脊梁火山列において古くから知られているが、背弧側の火山でのアルカリ玄武岩に伴うカルクアルカリ安山岩についても同様の現象が認められたことになり、カルクアルカリ安山岩の成因を考える上で重要である。アルカリ玄武岩に伴うカルクアルカリ岩においても、ソレイトに伴う場合と同様に、同じ  $\text{SiO}_2$  で比較した場合、Ni, Cr といったコンパティブル元素がカルクアルカリ系列岩でより高いという特徴がある。ただし、Rb, K といったインコンパティブル元素については、ソレイトに伴う場合とは逆に、アルカリカンラン石玄武岩系列の値に比較してより低い。

## §6. インコンパティブル元素についての規格化パターン

第5図に渡島大島火山噴出物のインコンパティブル元素についての MORB 規格化パターンを示す。渡島大島火山噴出物は、全体として非常に似通ったパターンを示している。実際、渡島大島火山噴出物はアルカリカンラン石玄武岩、カルクアルカリ安山岩を通じて、それより火山フロント側に位置するどの火山よりも  $\text{K}_2\text{O}$  に富んでおり、島弧火山岩に見られる火山フロント側から背弧側へと  $\text{K}_2\text{O}$  が増加する傾向によく従っている。また、その規格化パターンは



第5図 渡島大島火山噴出物のMORB規格化ならびに始源マントル規格化図<sup>17)</sup>。  
黒丸はアルカリカンラン石玄武岩系列で、白丸はカルクアルカリ系列安山岩である。

東北本州弧背弧側でみられる典型的なパターンであり、著しいNbの負異常と、HFS元素に対するLIL元素の濃集を示している<sup>17)</sup>。そして、Yの値に対して、CeやPが高い。倉沢<sup>18)</sup>は、渡島大島のアルカリカンラン石玄武岩とカルクアルカリ安山岩4個についての<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr比を示し、それらが0.703と低く、誤差の範囲で一定であることを示している。従って、アルカリカンラン石玄武岩とカルクアルカリ系列安山岩とが仮に異なる初生マグマから派生したとしても、ある共通した地球化学的性格を有する起源物質に由来するものであることを示している。

細かく見ると、渡島大島火山噴出物は、他の東北本州弧背弧側の第四紀火山岩と比較して、いくつかの顕著な特徴を持っている。まず、渡島大島火山噴出物では、MORBで規格化した場合にBaに対してRbが高い。一般に、目潟<sup>19)</sup>、鳥海<sup>20)</sup>、月山火山<sup>21)</sup>といった東北本州弧背弧側の火山では、Baに対して、Rbが低い傾向が認められる。渡島大島火山噴出物と同様の傾向は久六島西方海底火山<sup>22)</sup>や、利尻火山<sup>16)</sup>といった東北日本弧でも最も背弧側に位置する火山において認められる。また、久六島西方海底火山や目潟火山、そして渡島大島火山においては、インコンパティブル元素の始源マントル規格化パターンを見ると、CsがRbに対して高い傾向が認められる。つまり、Cs/Rb比が背弧側へと増加している。つまり、同じ東北本州弧背弧側の火山においても、より背弧側とより火山フロント側の火山の間には、インコンパティブル元素規格化パターンに違いがあり、より背弧側ではK、Baに対して、CsやRbに富んでいる。これはおそらく、部分溶融度の違いのみでは説明できず、マグマの起源物質における組成不均質を反映したものである可能性が大きい。

## §7. 渡島大島のアルカリカンラン石玄武岩とカルクアルカリ安山岩

既に、山元<sup>13)</sup>らによって指摘されているように、アルカリカンラン石玄武岩と、カルクアルカリ安山岩では、各々のマグマの分化に寄与した結晶分別相が異なる。即ち、前者が主に、カンラン石+普通輝石の晶出分別により分化したと推定されるのに対して、後者は斜長石+普通角閃石+普通輝石+シソ輝石の晶出分別により分化したと考えてよい。これら両マグマ系列に分化深度の差異があるかどうかはよく判らないが、安山岩類がカルクアルカリ系列の示す組成変化経路をとった原因が、普通角閃石の晶出と密接に関連している可能性は大きい。すなわち、山元<sup>13)</sup>らの、アルカリカンラン石玄武岩から、普通角閃石を主とする結晶分別により、カルクアルカリ系列安山岩を生じるという考えを受け入れることは、先に述べたような理由で難しいが、安山岩の示すカルクアルカリ系列に特徴的な組成変化経路が普通角閃石を含む結晶分別作用の結果であるとする彼らの考えは十分に説得力がある。

アルカリカンラン石玄武岩においては、SrがSiO<sub>2</sub>の増加に伴い増加しており、また、Eu異常が認められないのに対して、安山岩質マグマでは、Srの急激な減少や、Eu負異常が認められ、後者では斜長石の結晶分別の効果が大きかったと推定される。普通角閃石での1を越える分配係数が予想されるNbがRbに次ぐ液相への濃集度を示していることから、普通角閃石の役割は比較的限られたものであり、それとともに多量の斜長石やシソ輝石、普通輝石、鉄鋳などを伴った分別であったと推定される。

アルカリカンラン石玄武岩は、カルクアルカリ安山岩に比べて、よりLIL元素に富んでおり、両者が同一起源物質からの部分溶融度の違いによって形成されたものであるとするならば、アルカリカンラン石玄武岩の方がより低い部分溶融度のもとで形成されたことになる。両者の部分溶融深度に違いがあったかどうかは不明である。

山元<sup>13)</sup>らによれば、渡島大島噴出物中に包有される超苦鉄質～苦鉄質捕獲岩には、角閃石ハンレイ岩～斜長石質ハンレイ岩が最も多く、これに単斜輝岩類(単斜輝岩、カンラン石単斜輝岩～ウェールライト)が次ぎ、稀にダナイトが産する。このうち、角閃石を含むハンレイ岩類がカルクアルカリ系列安山岩からの晶出分別相を代表し、カンラン石単斜輝岩類がアルカリカンラン石玄武岩からの晶出分別相を代表していると考えられる。先に示した火山岩類における斑晶組合せから判断して、単鋳物岩、特に角閃石岩が渡島大島火山噴出物が示す組成変化経路に重要な役割を果たした可能性は小さい。おそらく、地下深部における、非常に特殊な条件下での晶出分別相であると推定される。

## §8. おわりに

渡島大島火山は東北本州弧において最も背弧側に位置する陸上の火山である。本火山噴出物について、アルカリカンラン石玄武岩 2 個、カルクアルカリ安山岩 2 個の合計 4 個について光量子放射化法により、その微量成分元素組成を分析した。その地球化学的な性格は島弧背弧側に見られる典型的な火山岩のそれに一致し、東北本州弧火山岩のうち、最も背弧側に位置するという地理上の分布と矛盾しない。アルカリカンラン石玄武岩とカルクアルカリ系列に属する安山岩が示す微量成分元素の組成変化は両者が、類似の起源マントルに由来する異なる初生マグマから派生した可能性を強く示唆している。

光量子放射化分析にあたり、東北大学核理研の榊本和義博士、現在金研に移られた八木益男教授、ならびにライナック・マシングループの方々、東北大学サイクロトロン RI センターの中村尚司教授、山寺亮博士をはじめ職員の方々には大変お世話になった。北海道大学勝井義雄教授、秋田大学山元正継博士には、本研究を始めるきっかけを作って頂き、特に山元博士からは本論を書くにあたって貴重な御意見を頂いた。東北大学岩鉱教室の大沼晃助教授、藤巻宏和博士には、諸般にわたって御助力頂き、また常日頃議論いただいている。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金 (Nos. 62103003, 63460048) 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) 久野 久 : 地質雑, 43 (1936) 392.
- 2) Y. Katsui: J. Fac. Sci., Hokkaido Univ., Ser.4 11 (1961) 1.
- 3) 勝井義雄, 佐藤博之 : 地域地質研究報告 88 (1970) 16.
- 4) Y. Masuda, S. Nishimura, T. Ikeda and Y. Katsui: Chem. Geol. 15 (1974) 251.
- 5) 山元正継, 勝井義雄, 新井田清信 : 火山第 2 集 22 (1977) 241.
- 6) 勝井義雄, 横山 泉, 江原幸雄, 山下 濟, 新井田清信, 山元正継 : 北海道における火山に関する研究報告 (北海道防災会議, 1977) p. 82.
- 7) 山元正継 : Magma 45 (1978) 3.
- 8) Y. Katsui, Y. Oba, S. Ando, S. Nishimura, Y. Masuda, H. Kurasawa and H. Fujimaki: J. Fac. Sci., Hokkaido Univ., Ser. IV 18 (1978) 449.
- 9) Y. Katsui, M. Yamamoto, S. Nemoto and K. Niida: J. Fac. Sci., Hokkaido Univ.,



Ser. IV **19** (1979) 157.

- 10) Y. Katsui and M. Yamamoto: J. Fac. Sci., Hokkaido Univ., Ser. IV **19** (1981) 527.
- 11) M. Yamamoto: J. Fac. Sci. Hokkaido Univ., Ser. IV **21** (1984) 77.
- 12) 星野通平 : 海底の世界 (東海大学出版会, 1966) p. 239.
- 13) H. Kuno: Bull. Volcanol. **29** (1966) 195.
- 14) A. Miyashiro: Am. J. Sci. **274** (1974) 321.
- 15) J. B. Gill: *Orogenic andesites and plate tectonics*. (Springer-Verlag,1981) p. 390.
- 16) 小林哲夫, 吉田武義, 福岡孝昭, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **20** (1987) 216.
- 17) T. Yoshida, K. Masumoto, and K. Aoki: J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. **81** (1986) 406.
- 18) 倉沢 一 : 火山第2集 **20** (1975) 307.
- 19) T. Yoshida and K. Aoki: Sci. Rep. Tohoku Univ., Ser. III **16** (1984) 1.
- 20) 林信太郎, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **17** (1984) 382.
- 21) 小泉治彦, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **17** (1984) 391.
- 22) 吉田武義, 佐藤博明, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **21** (1988) 256.

## 東北本州弧第四紀火山岩組成の広域的变化

理学部地学, 金沢大\*

吉田武義・酒寄淳史\*・青木謙一郎

### § 1. はじめに

東北本州弧は島弧のうちでも最も幅広く第四紀火山が分布する弧の一つであり、島弧火山岩の成因、特にその帯状配列を研究するには最適のフィールドである。例えば、現在、東北本州弧に分布する第四紀火山は地質学的、岩石学的に4つの火山列、すなわち、青麻一恐火山列、脊梁火山列、森吉火山列、鳥海火山列に分帯されている<sup>1)</sup>。これら各火山列を構成する火山岩類はそれぞれ特有の地質学的、岩石学的、地球化学的特徴を有している。東北本州弧においては、既に多数の火山について、光量子放射化法などによる噴出物の化学分析結果が公表されている。本報告では、東北本州弧における火山岩組成の広域的变化を、火山毎に計算されたSiO<sub>2</sub>で規格化した化学分析値<sup>2)</sup>を用いて示す。

### § 2. 東北本州弧第四紀火山岩類

従来、東北本州弧第四紀火山は低アルカリソレイトで特徴づけられる那須帯と高アルミナ玄武岩で特徴づけられる鳥海帯とに二分されていた<sup>3)</sup>が、各火山の地質学的ならびに岩石学的研究が進むとともに、これまで以上に詳しい火山の分帯がなされるようになってきた。Miyashiro<sup>4)</sup>は東北本州弧をソレイトとカルクアルカリ岩からなる1帯(那須帯)と、主にカルクアルカリ岩からなる2帯、そしてカルクアルカリ岩とソーダ質アルカリ岩からなる3帯とに区分した。高橋・藤縄<sup>5)</sup>は那須帯の一部および鳥海帯を地理的分布およびその主成分組成の違いに基づいて森吉帯と鳥海帯とに区分し、中川ら<sup>6)</sup>は那須帯を地理的分布、角閃石斑晶の有無およびK<sub>2</sub>O含有量から青麻一恐火山列と脊梁火山列に区分した。また、Sakuyama & Nesbitt<sup>7)</sup>は東北本州弧の火山を火山フロント側のAタイプ、背弧側のCタイプ、これらの中間に位置するBタイプに区分している。

最も海溝寄りの青麻一恐火山列火山岩は、恐山火山噴出物中にピジョン輝石質岩系が認められることを除くと、大部分、シソ輝石質岩系に属する低カリウムカルクアルカリ岩からなる。東北本州弧火山活動の軸部を成す、脊梁火山列は低アルカリソレイトの存在で特徴づけられ、しばしば、1個の火山体においてアルカリ量に違いのあるソレイトとカルクアルカリ両系列

が共存し、通常前者が low-K であるのに対して、後者は medium-K andesite に属する。これに対して、より背弧側に位置する森吉火山列を構成する岩石はすべて medium-K andesite に相当する。この火山列からの噴出物は岩石記載学的にはシソ輝石質岩系に属するが、一部に  $\text{FeO}^*/\text{MgO}$  比の高い TH 領域にはいる岩石も存在する。東北本州弧の最も背弧側に位置する鳥海火山列の火山にはカルクアルカリ系列岩とともに、高アルカリソレアイト（高アルミナ玄武岩）系列～アルカリ系列岩が分布する。これらは medium-K ないし high-K andesite に相当する。high-K andesite に相当する岩石は medium-K andesite の分布する地域に対して明らかにより背弧側に位置している。

一般に、島弧を横切る方向での火山岩の性格は沈み込み境界からの距離とともに単調に変化するとされている。しかしながら、東北本州弧においては、脊梁火山列を軸にした火山岩の性格の変化がいくつか認められる。斑晶組合せとその組成は、マグマからそれらが晶出した時の温度、含水量、そして圧力などを限定するのに役立つ。Sakuyama<sup>7)</sup>は圧力一定の場合、安山岩質マグマにおいて、 $\text{H}_2\text{O}$  量の増加に伴い石英のリキダス温度が著しく低下するのに対して角閃石のリキダス温度がマグマ中の  $\text{H}_2\text{O}$  量や化学組成の変化にはあまり影響されず、ほぼ一定であることを示している。したがって、角閃石斑晶がデイサイトにおいても認められないことが多い脊梁火山列のマグマは、角閃石斑晶が安山岩においてすでに認められる両側の火山列のマグマに比較してより高温であると結論される<sup>1)</sup>。各火山列における噴出物量も、火山フロント側から背弧側へ単調に減少するのではなく、脊梁火山列で最大となり、その海溝側および背弧側へと急減している。このような脊梁火山列を軸とする火山岩の性格の対称的な変化が、いくつかの元素、特にコンパティブル元素において認められる。つまり、脊梁火山列は東北本州弧第四紀火山活動の軸部を構成している<sup>9)</sup>。

### § 3. 東北本州弧における島弧を横切る方向でのマグマ組成の変化

ある程度の幅を持った沈み込み帯火山列に分布するマグマの最も顕著な特徴はプレート境界からの距離による、火山岩組成の変化、特に  $\text{K}_2\text{O}$  含有量で代表されるインコンパティブル元素含有量の増加である。その成因としては、従来、主に背弧側に向かって、マントル物質からマグマが分離する深度が増大し<sup>9)</sup>、かつ、部分熔融程度が低下している<sup>10,11)</sup>結果であると考えられてきた<sup>12)</sup>が、これらに加えて、東北本州弧における起源マントルそのものに組成の不均質性が存在する可能性も指摘されている<sup>13,14)</sup>。

一般に認められている沈み込み帯を横切る方向でのインコンパティブル元素含有量の変化は

次の通りである。K, Rb, Cs, La, Th, U, Pb と, La/Yb, Rb/Sr は火山フロントから離れるにつれて増加する。P, F, Sr, Ba, Zr, Hf, Nb 量や Ba/Sr, Th/U, U/Pb 比も増加するが, その変化幅は小さい, K/Rb, Ba/La, Zr/Nb 比は通常減少する<sup>15-20)</sup>。

しかしながら, 既に述べたように, 東北本州弧には脊梁火山列を軸とする記載岩石学的特徴の帯状分布が認められ, 少なくとも, マグマの温度については脊梁火山列が最も高く, その両側に減少している<sup>1)</sup>。これは低アルカリソレアイトの分布が主に脊梁火山列に限られるという事実に対応している。また, カルクアルカリ岩の, 特に SiO<sub>2</sub>によって規格化した Ni, Cr, Co といったコンパティブル元素含有量は脊梁火山列において最大値を示す<sup>20)</sup>。これは脊梁火山列カルクアルカリ岩が相対的に高いノルムカンラン石, 輝石量を持つことに対応しており, マグマが高温であったとする考えと調和的である。

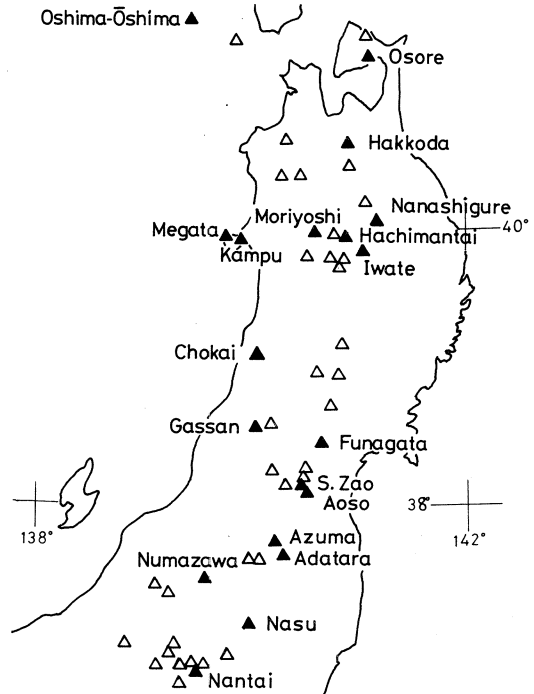
東北本州弧においては, 数多くの火山岩の主成分, 微量成分元素ならびに同位体組成の分析がなされ, それらの時空分布の詳細が明らかになりつつある。Aramaki & Ui<sup>21)</sup>は日本列島全体について各火山における K<sub>2</sub>O を計算し, その広域的な分布を示した。Yoshida & Aoki<sup>22)</sup>は, 東北本州弧において微量成分を含む全成分について曲線の当てはめを行って, SiO<sub>2</sub>規格化値を求め, 地図上にその分布を示した。Sakuyama & Nesbitt<sup>6)</sup>は各火山について SiO<sub>2</sub>=55wt.% に規格化した微量元素組成を用いて, 初生マグマの組成を推定し, 火山フロント側マントルで Rb, Th, Pb に多少富んでいるものの, これらが共通の均質なマントルから異なる部分溶融度で生じた一連のマグマに由来すると考えた。また, HFS 元素が乏しいのはチタン鉱物の存在に起因する<sup>23)</sup>のではなく, マントルそのものの組成上の特徴であることを主張している。そして, マグマの起源物質としては, Zr/Nb 比から枯渇した N-type MORB 起源マントルにスラブ由来の LIL 元素が付加したマントルを考えている。また, D<sub>m</sub>を0.001, 起源マントルの Sr 量を40-50ppm と仮定することによって得られた各元素についての分配係数は, その液が普通輝石ではなく, 主に斜方輝石の溶融によるものであることを示唆している。一方, 中川ら<sup>14)</sup>は玄武岩質岩の微量元素組成を用いて初生マグマの組成とその部分溶融度, ならびに起源マントル組成の推定を行い, 東北本州弧における火山岩組成の水平変化は部分溶融度のみでなく, 起源マントル組成の不均質性をも反映していると論じている。

東北本州弧における, 玄武岩質岩でのインコンパティブル元素濃度の水平変化は単調ではない<sup>13)</sup>。中川ら<sup>14)</sup>は, 東北本州弧に産する玄武岩は海溝に近いほど K と Rb よりも Sr に, 背弧側ほど Sr に対して K と Rb に富むことを明らかにしている。彼らはこれをマグマの発生にあたって, マントル中で分解した相が火山フロント側ではパーガス閃石, 背弧側ではフロゴパイトで

あったためであると結論している。一方、吉田ら<sup>23)</sup>は脊梁火山列におけるソレライト系列玄武岩に見られるインコンパティブル元素組成の多様性を論じ、特に東北本州弧南部に位置する火山では脊梁火山列に属するにもかかわらず、Sr 規格化値に対して、K, Rb が高い傾向があり、Sr, K, Rb が作る規格化パターンが鳥海火山列のものほとんど相似であることを示している。また、酒寄ら<sup>24)</sup>は蔵王火山からカルクアルカリ玄武岩を報告し、その規格化パターンがやはり鳥海火山列の玄武岩質岩のそれと類似していることを明らかにしている。

#### § 4. 各火山についての火山岩組成の SiO<sub>2</sub>による規格化値

鳥弧における火山岩組成の帯状変化を論じるにあたっては、組成の広域的变化の様式を十分正確に把握する必要がある。これまでの研究において、火山岩組成の広域的变化を十分正確に把握していたかどうかは疑問のあるところである。今回、東北本州弧における第四紀火山岩組成の広域的变化を検討するにあたっては、既に、微量成分元素について、光量子放射化法などにより分析値が報告されている火山について、各元素についての組成変化経路に対して曲線の当てはめを行い、特定の SiO<sub>2</sub>% における濃度を求めた<sup>2,20)</sup>。計算を行った火山は、青麻-恐火山列から恐山<sup>25)</sup>、七時雨<sup>26)</sup>、青麻火山<sup>27)</sup>、脊梁火山列から八甲田<sup>28)</sup>、八幡平<sup>2)</sup>、岩手<sup>29)</sup>、船形<sup>23)</sup>、南蔵王<sup>30)</sup>、吾妻<sup>20)</sup>、安達太良<sup>31)</sup>、那須<sup>32)</sup>、男体火山<sup>33)</sup>、森吉火山列から森吉<sup>20,34)</sup>、沼沢火山<sup>20)</sup>、鳥海火山列から渡島大島<sup>35,36)</sup>、寒風<sup>20)</sup>、目潟<sup>20)</sup>、鳥海<sup>37)</sup>、月山<sup>38)</sup>の諸火山である(第1図)。ここでは計算結果のうち、SiO<sub>2</sub>=51%ならびに55%における濃度を用いる。前者は玄武岩組成を代表するものであり、後者は苦鉄質安山岩組成を代表するものである。後者は、脊梁火山列などでソレライトとカルクアルカリ系列岩が共存する場合、両者が示す組成ギャップにあたる組成、ないし両者が重複する組成にあたり、両岩石系列を比較



第1図 東北本州弧における第四紀火山の分布。三角が各火山の位置を示す。そのうち、火山名を示し、黒く塗りつぶした三角が今回用いた火山である。

する場合に最も都合のよい組成である。但し、今回図示したのはカルクアルカリ安山岩についてのものである。第1表および第2表に各火山についての  $\text{SiO}_2=51\%$ ならびに55%における計算結果を示す。東北本州弧における第四紀火山岩組成の広域的变化を示すために、これらの値を地図上に入れたものを、第2図 a～g に示す。

## § 5. 東北本州弧第四紀火山岩組成の広域的变化

第2図に示されているように東北本州弧の第四紀火山岩組成は、多くの場合、島弧に平行な方向での組成変化をしている。但し、その様式は一様ではない。玄武岩類が示す組成の広域的变化とそれに伴うカルクアルカリ系列安山岩類の示す変化は、一般に高い相関を示しているが、元素によっては両者の間に变化挙動の違いが認められることもある。

$\text{Al}_2\text{O}_3$ については、明瞭な広域的变化があるようには見えないが、カルクアルカリ安山岩類において脊梁火山列の軸部に低い値が帯状に分布するようにも見える。いずれにしても変化幅は小さい。

$\text{CaO}$ は全域を通して比較的一定している。広域的な変化ははっきりしないが、玄武岩類において、火山フロント側で多少、値が高い傾向がある。

$\text{MgO}$ については、玄武岩類では、目瀉のように局部的に高い所があることを除くと比較的一定している。一方、カルクアルカリ安山岩類については、脊梁火山列において、その両側の火山列に対してより高い値を持つ傾向が認められる。すなわち、脊梁火山列が  $\text{MgO}$  濃度についての軸部を成している。カルクアルカリ安山岩においても、目瀉火山は周囲の火山より異常に高い値を示している。

全鉄 ( $\text{FeO}^*$ ) についても、脊梁火山列火山岩は玄武岩～安山岩を通して背弧側に対して、また、青麻-恐火山列に対してより高い値を示している。

以上のコンパティブル主成分元素に関しては、その濃度コンターは島弧の延びにほぼ沿っており、Ti, P, Naなどにみられる、蔵王火山以南における濃度コンターの火山フロント側へのシフトは認められない。また、これと関連して島弧に沿った方向での明瞭な濃度変化といったものも認めることができない。

$\text{MnO}$ は比較的一定した組成幅を示し、玄武岩類、カルクアルカリ安山岩類ともにあまり明瞭な傾向を示さない。但し、玄武岩類では、脊梁火山列と鳥海火山列背弧側で、両帯の間より少し値が高いように見える。

$\text{TiO}_2$ はカルクアルカリ安山岩類では明瞭な広域的变化が認められないが、玄武岩類では、

第1表 東北本州弧第四紀火山のSiO<sub>2</sub> (51.00%)で規格化した組成(玄武岩)。

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
R.S.	TH	TH	TH	TH	TH	HAB	HAB	TH	TH	HAB	HAB	TH	AB
wt. %	51.81	51.00	51.99	51.00	50.83	51.00	51.00	51.00	51.00	51.00	51.00	51.21	51.00
SiO <sub>2</sub>	0.86	0.78	1.02	0.92	0.68	1.18	0.99	0.80	0.91	0.94	0.99	0.88	0.98
TiO <sub>2</sub>	19.30	19.00	20.37	16.77	18.66	19.94	18.08	19.24	19.57	20.20	17.13	17.75	17.64
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.48	3.04	4.02	5.10	2.14	2.68	2.49	2.18	2.88	1.68	2.42	3.39	3.61
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6.97	6.93	5.07	5.01	7.09	8.96	6.12	7.15	6.73	6.54	5.75	7.12	5.30
FeO	0.18	0.11	0.15	0.17	0.16	0.12	0.18	0.16	0.16	0.10	0.19	0.18	0.14
MnO	4.42	8.75	3.77	5.78	5.17	5.33	6.85	5.82	5.51	5.53	7.48	6.24	5.64
CaO	10.16	10.84	9.79	9.80	11.80	7.32	9.03	10.93	10.49	9.00	9.36	10.30	10.10
Na <sub>2</sub> O	2.39	1.88	2.39	2.64	2.19	2.69	3.18	2.09	2.30	2.37	2.58	2.39	2.88
K <sub>2</sub> O	0.56	0.35	0.28	0.29	0.15	1.20	1.26	0.19	0.21	0.63	1.41	0.20	1.78
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.13	0.08	0.21	0.16	0.05	0.04	0.33	0.06	0.11	0.08	0.22	0.09	0.41
Total	99.26	102.76	99.06	97.64	98.92	100.46	99.51	99.62	99.87	98.07	98.53	99.75	99.48
Na <sub>2</sub> O+K <sub>2</sub> O	2.95	2.23	2.67	2.93	2.34	3.89	4.44	2.28	2.51	3.00	3.99	2.59	4.66
K <sub>2</sub> O/Na <sub>2</sub> O	0.23	0.19	0.12	0.11	0.07	0.45	0.40	0.09	0.09	0.27	0.55	0.08	0.62
FeO*	9.20	9.67	8.69	9.60	9.02	11.37	8.36	9.11	9.32	8.05	7.93	10.17	8.55
MgO/FeO*	0.48	0.90	0.43	0.60	0.57	0.47	0.82	0.64	0.59	0.69	0.94	0.61	0.66
ppm													
Sc	22.2	24.1	29.2	22.8	27.6	23.4	18.1	24.6	30.9	28.6	26.9	28.1	26.1
Cr	52.9	68.9	107	-	56.4	97.6	123	203	84.2	106	257	75.6	80.3
Co	28.7	34.6	24.4	34.9	37.4	37.8	31.2	30.0	35.0	34.8	32.5	37.4	30.2
Ni	23.6	33.4	55.0	-	17.3	27.4	84.1	80.1	48.7	73.8	123	44.1	34.8
Rb	12.2	6.92	3.2	-	2.7	29.4	30.3	4.1	1.82	11.6	46.4	3.5	61.1
Cs	0.14	0.10	0.16	-	-	-	-	0.51	0.09	0.58	1.84	0.06	1.48
Sr	373	283	301	189	177	346	573	301	274	428	522	318	550
Ba	182	218	99	-	109	399	404	54	374	512	945	141	514
Ce	14.8	9.8	9.9	10.2	4.9	26.9	30.0	5.8	6.7	23.4	31.3	6.7	38.5
Y	17.5	12.9	22.0	21.6	17.8	8.5	27.3	13.1	17.9	13.6	21.2	16.8	25.0
Nb	2.3	1.6	4.9	2.5	1.3	1.5	3.4	2.2	1.7	2.3	2.7	2.4	3.9
Zr	55.3	33.3	52.3	44.0	30.5	88.1	98.2	26.9	36.7	84.9	65.7	37.8	77.3
(Nb/Zr) <sub>n</sub>	1.08	1.22	2.41	1.47	1.09	0.44	0.89	2.10	1.15	0.69	1.04	1.64	1.30
(Ce/Y) <sub>n</sub>	2.55	2.28	1.36	1.42	0.83	9.61	3.30	1.32	1.12	5.20	4.41	1.20	4.64
[2xK/(Nb+Ce)] <sub>n</sub>	3.49	3.26	1.56	2.22	2.33	5.13	4.23	2.10	2.46	2.81	4.83	1.96	4.78
[2xSr/(Ce+Zr)] <sub>n</sub>	2.98	3.50	3.20	2.09	3.57	1.57	2.34	5.70	4.22	2.18	2.25	4.86	1.94

R.S.: 岩石系列; TH: ソレアイト系列, HAB: 高アルミナ玄武岩系列, AB: アルカリランタン石玄武岩系列。1. 男体, 2. 那須, 3. 安達太良, 4. 南蔵王, 5. 船形, 6. 月山, 7. 鳥海, 8. 岩手, 9. 八幡平, 10. 森吉, 11. 目黒, 12. 八甲田, 13. 渡島大島。元業比に添え字 n は始源マントル組成により規格化した値を示す。なお, 1. 3. 5. 12についてはSiO<sub>2</sub>が最も51.00%に近い分析値をそのまま用いた。

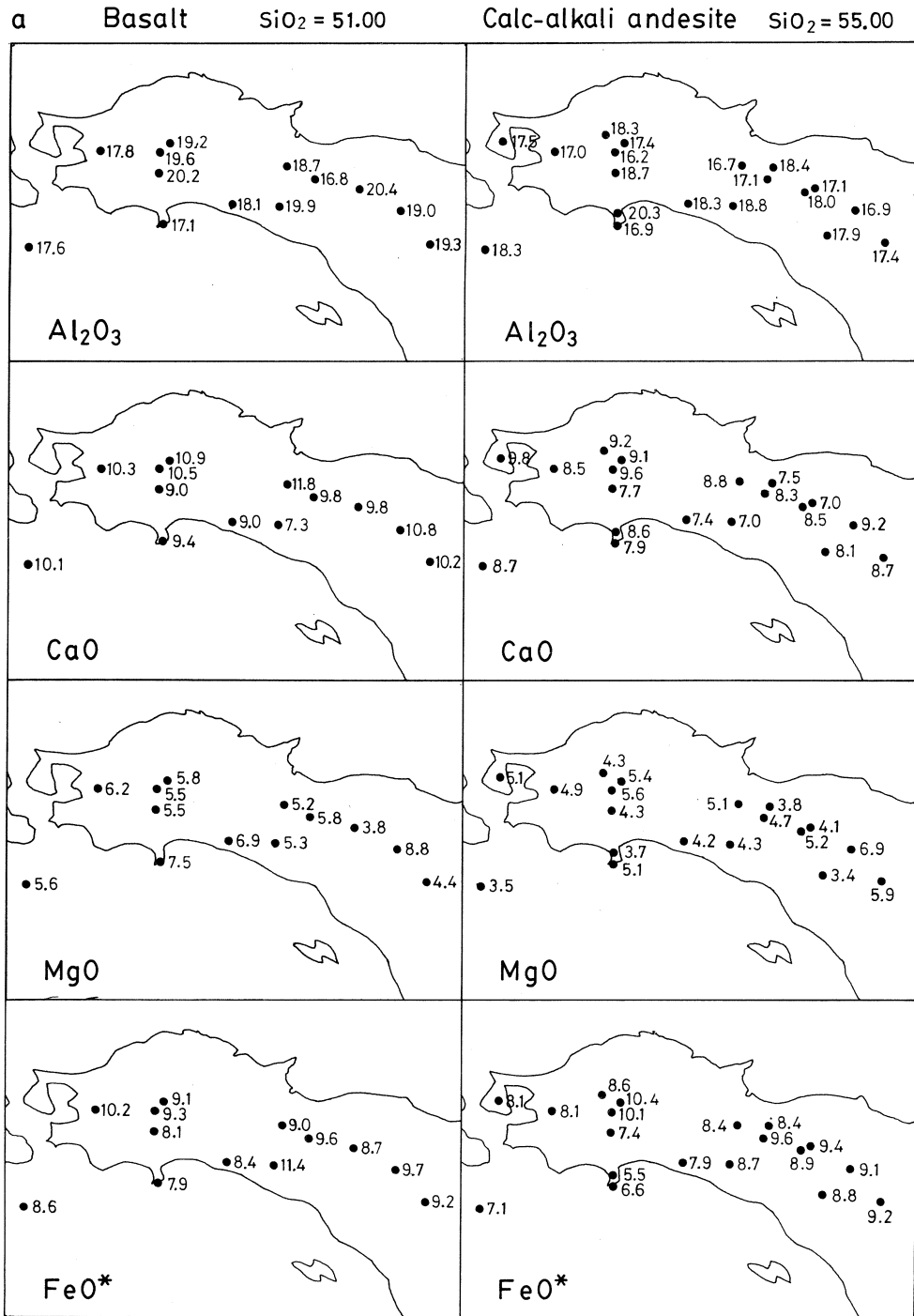
第2表 東北本州弧第四紀火山岩のSiO<sub>2</sub> (55.00%)で規格化した組成(安山岩)。

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19
R.S.	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA	CA
wt. %	55.00	55.00	55.00	55.92	55.13	55.00	55.00	55.76	55.00	55.00	55.00	55.00	55.00	55.00	55.00	55.00	55.00	55.00	55.00
SiO <sub>2</sub>	0.70	0.79	1.23	0.97	0.84	0.86	0.94	0.66	0.77	0.50	0.80	1.07	0.52	0.99	1.03	0.85	0.67	0.83	0.60
TiO <sub>2</sub>	17.38	16.86	17.87	17.13	16.02	18.36	17.13	16.71	17.37	16.18	18.33	16.97	17.54	18.33	18.72	20.25	16.93	18.26	18.20
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6.44	2.35	3.70	4.27	2.90	4.36	4.84	1.87	0.79	2.26	4.24	2.47	3.32	2.53	1.96	3.29	2.35	2.95	2.95
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.43	6.93	5.47	5.53	6.30	4.47	5.19	6.72	9.71	8.05	4.82	5.86	6.11	6.47	5.62	2.58	4.46	4.47	4.47
FeO	0.17	0.15	0.23	0.14	0.15	0.15	0.16	0.17	0.15	0.15	0.20	0.11	0.12	0.15	0.16	0.10	0.15	0.17	0.14
MnO	5.94	6.85	3.37	4.06	5.16	3.81	4.71	5.08	5.37	5.64	4.34	4.87	5.12	4.29	4.28	3.69	5.08	3.48	3.48
MgO	8.69	9.15	8.06	7.04	8.55	7.53	8.26	8.80	9.11	9.60	9.16	8.49	9.75	6.98	7.39	7.72	8.57	7.85	8.51
CaO	2.43	2.22	3.42	2.42	2.45	2.74	2.83	2.63	2.21	2.03	2.82	1.98	3.04	3.51	2.80	2.79	2.84	3.32	3.32
Na <sub>2</sub> O	0.67	0.46	1.32	1.17	1.00	0.50	0.70	0.55	0.70	0.53	0.19	0.82	1.56	1.66	0.97	1.14	2.05	2.28	2.28
K <sub>2</sub> O	0.09	0.12	0.30	0.16	0.20	0.15	0.16	0.06	0.06	0.08	0.10	0.12	0.03	0.14	0.36	0.14	0.46	0.22	0.43
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	99.47	100.88	99.97	98.81	98.70	97.93	99.92	99.01	101.66	100.20	99.21	98.00	99.91	99.94	98.83	98.16	98.59	97.78	99.44
Total	3.10	2.68	4.74	3.59	3.45	3.24	3.53	3.18	3.33	2.74	2.22	3.04	2.40	4.60	5.17	3.77	3.93	4.89	5.60
Na <sub>2</sub> O+K <sub>2</sub> O	0.28	0.21	0.39	0.48	0.41	0.18	0.25	0.21	0.27	0.24	0.09	0.37	0.21	0.47	0.35	0.41	0.72	0.69	0.69
K <sub>2</sub> O/Na <sub>2</sub> O	9.23	9.05	8.80	9.37	8.91	8.39	9.55	8.40	10.42	10.08	8.64	8.08	9.10	8.71	7.90	7.38	5.54	6.58	7.13
FeO*	0.64	0.76	0.38	0.43	0.58	0.45	0.49	0.60	0.52	0.56	0.50	0.60	0.56	0.49	0.54	0.58	0.67	0.77	0.49
ppm																			
Sc	23.6	24.5	16.5	28.0	20.5	24.8	21.4	26.0	22.0	25.4	24.8	18.0	32.2	19.3	19.4	24.7	10.3	27.0	12.5
Cr	108	229	12.6	21.2	30.5	60.2	-	70.8	270	126	7.0	61.4	26.7	30.3	40.6	79.8	35.2	179	17.7
Co	33.1	33.6	9.4	25.7	33.0	25.2	29.1	27.8	31.8	32.2	20.2	32.8	51.5	25.0	20.9	26.1	15.6	27.3	16.1
Cu	49.3	62.9	1.4	11.4	36.7	28.3	-	19.0	62.9	48.5	3.3	45.4	25.5	17.0	20.8	34.5	21.6	67.1	13.5
Ni	16.2	22.1	-	32.1	27.7	8.3	15.9	13.6	21.6	12.6	4.1	17.2	4.3	39.0	42.0	20.3	53.9	65.5	74.5
Rb	-	-	-	0.41	0.62	0.65	0.41	0.25	1.61	0.42	-	-	0.11	0.57	0.74	0.84	1.37	3.89	4.39
Cs	282	240	574	238	272	280	290	204	228	236	329	279	223	416	522	392	895	472	724
Sr	187	233	254	277	55	316	-	92	142	206	201	156	158	492	506	492	699	1135	663
Ba	11.6	11.9	20.8	17.3	18.0	11.3	15.2	8.8	16.1	10.6	9.3	11.9	10.3	28.6	34.5	24.7	41.2	45.1	47.6
Ce	13.8	20.4	31.1	25.9	25.6	18.0	24.1	21.2	22.7	16.9	15.9	24.0	25.8	20.0	28.7	25.0	25.7	25.2	21.4
Y	1.8	2.9	2.5	4.0	3.4	2.9	3.1	3.3	3.2	2.7	3.7	2.0	0.9	2.7	4.1	3.7	3.7	6.2	3.8
Nb	53.7	55.4	82.6	94.1	91.7	61.3	70.2	52.6	86.2	70.2	27.8	83.5	45.3	92.7	126	103	105	86.8	109
Zr	0.85	1.34	0.78	1.09	0.95	1.22	1.14	1.62	0.96	0.99	3.39	0.60	0.54	0.75	0.84	0.93	0.91	1.84	0.88
(Nb/Zr)*	2.52	1.75	2.00	2.01	2.12	1.88	1.90	1.24	2.12	1.89	1.75	1.49	1.20	4.27	3.59	2.98	4.79	5.37	6.70
(Ce/Y)	5.35	3.04	6.29	5.44	4.82	3.40	3.88	4.03	3.69	3.86	1.28	6.25	4.31	5.73	4.79	3.67	2.93	4.35	5.21
[2xK/(Nb+Ce)]	2.67	2.21	3.19	1.42	1.61	2.57	2.10	2.33	1.48	2.14	4.42	2.20	2.43	1.78	1.79	1.81	2.82	1.44	2.02
[2xSr/(Ce+Zr)]																			

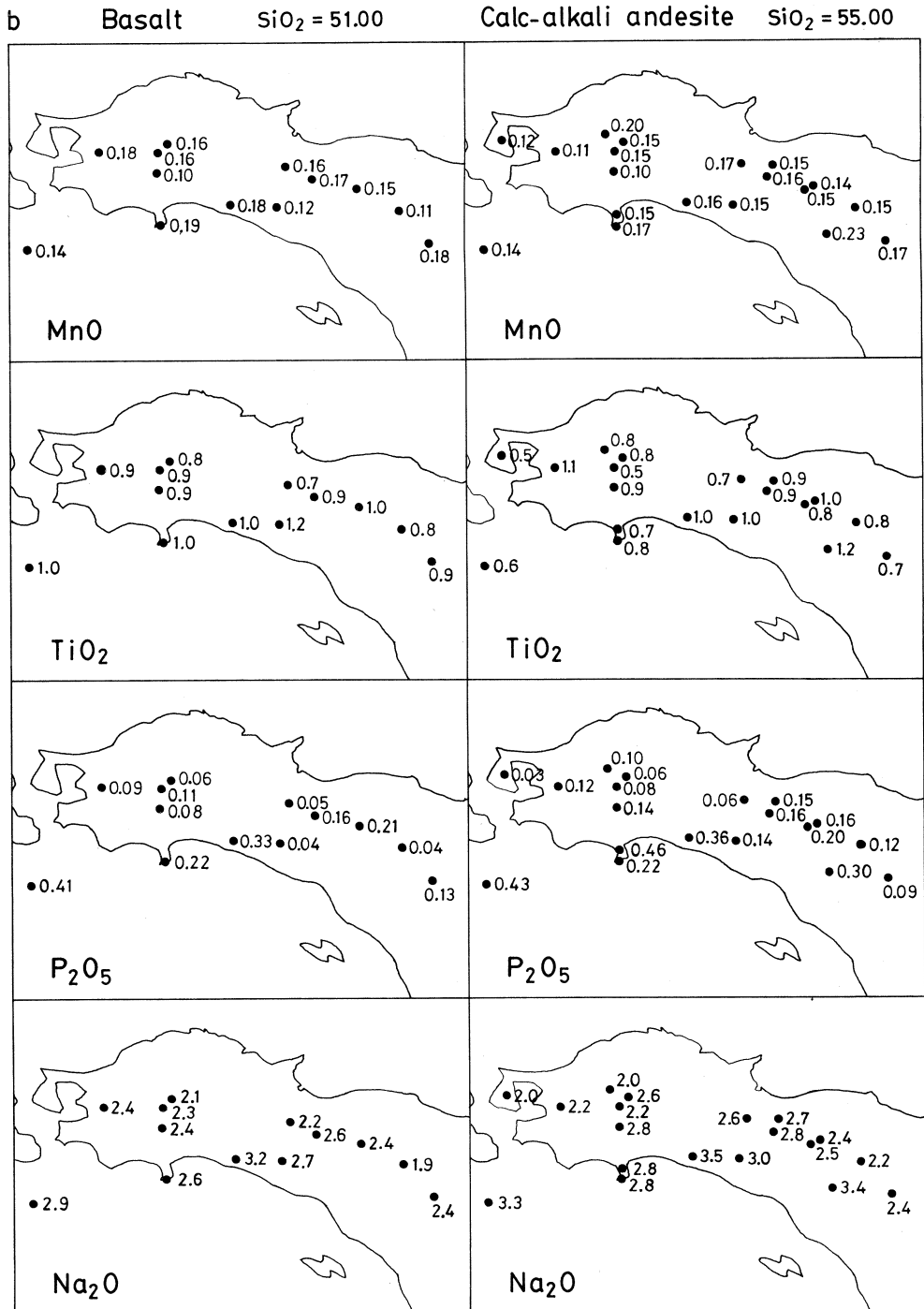
R. S. : 岩石系列, CA, カルクアルカリ系列。

1. 男体, 2. 那須, 3. 沼沢, 4. 安達太良, 5. 吾妻, 6. 青麻, 7. 南蔵王,
  8. 船形, 9. 岩手, 10. 八幡平, 11. 七時雨, 12. 八甲田, 13. 恐山, 14. 月山,
  15. 鳥海, 16. 森吉, 17. 寒風, 18. 目瀧, 19. 渡島大島。
- 元素比についての添え字nは始源マンタル組成により規格化した値であることを示す、なお、1. 4. 5. 8についてはSiO<sub>2</sub>が最も55.00%に近い分析値をそのまま用いた。

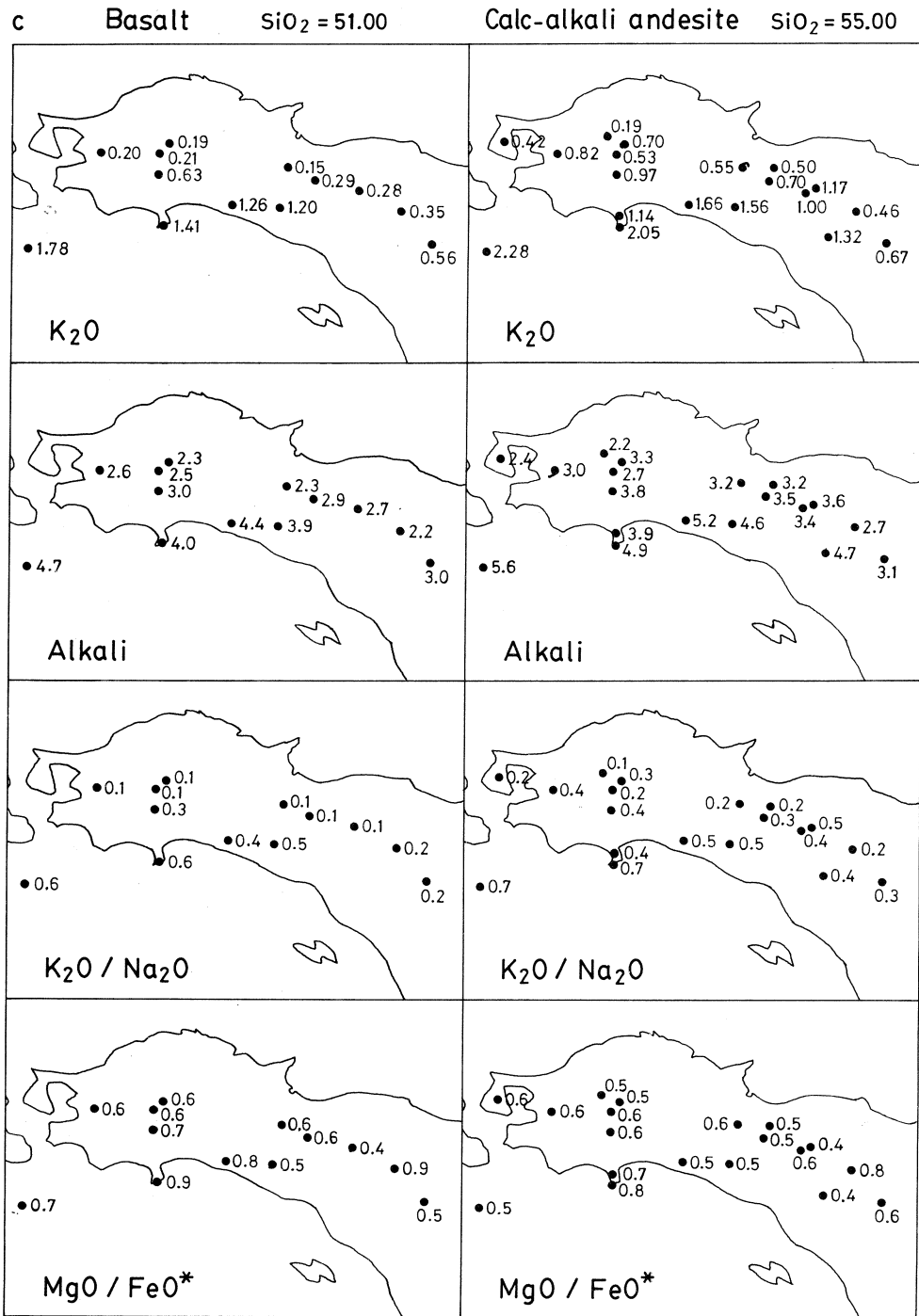




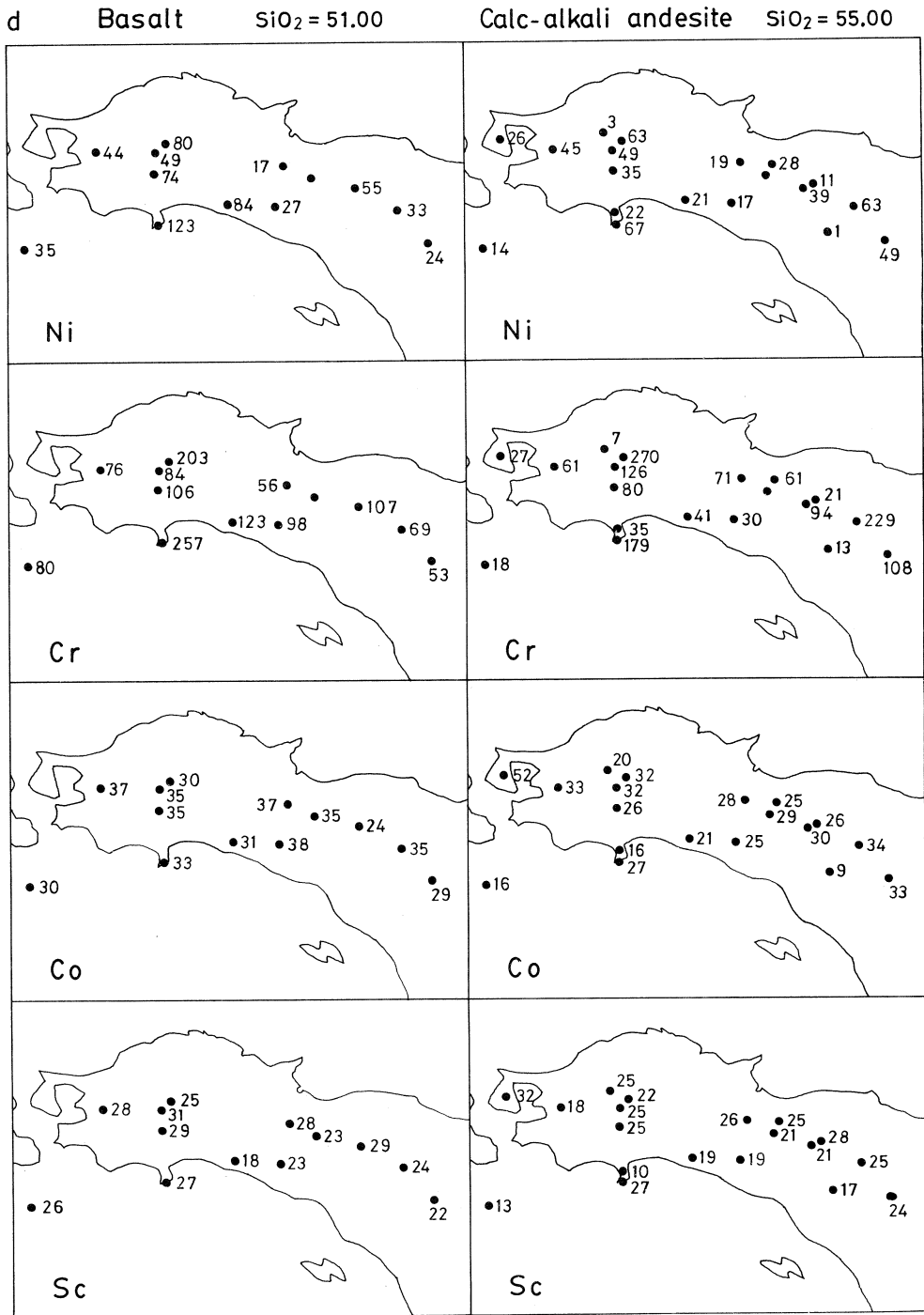
第2図 東北本州弧における第四紀火山岩組成の広域的变化。  
 左側が玄武岩類 ( $\text{SiO}_2 = 51.00$ ) についてのもので、右側がカルクアルカリ安山岩類 ( $\text{SiO}_2 = 55.00$ ) についてのものである。黒丸が各火山の位置を示す。火山毎に記された数字の一部は表の値から四捨五入してある。



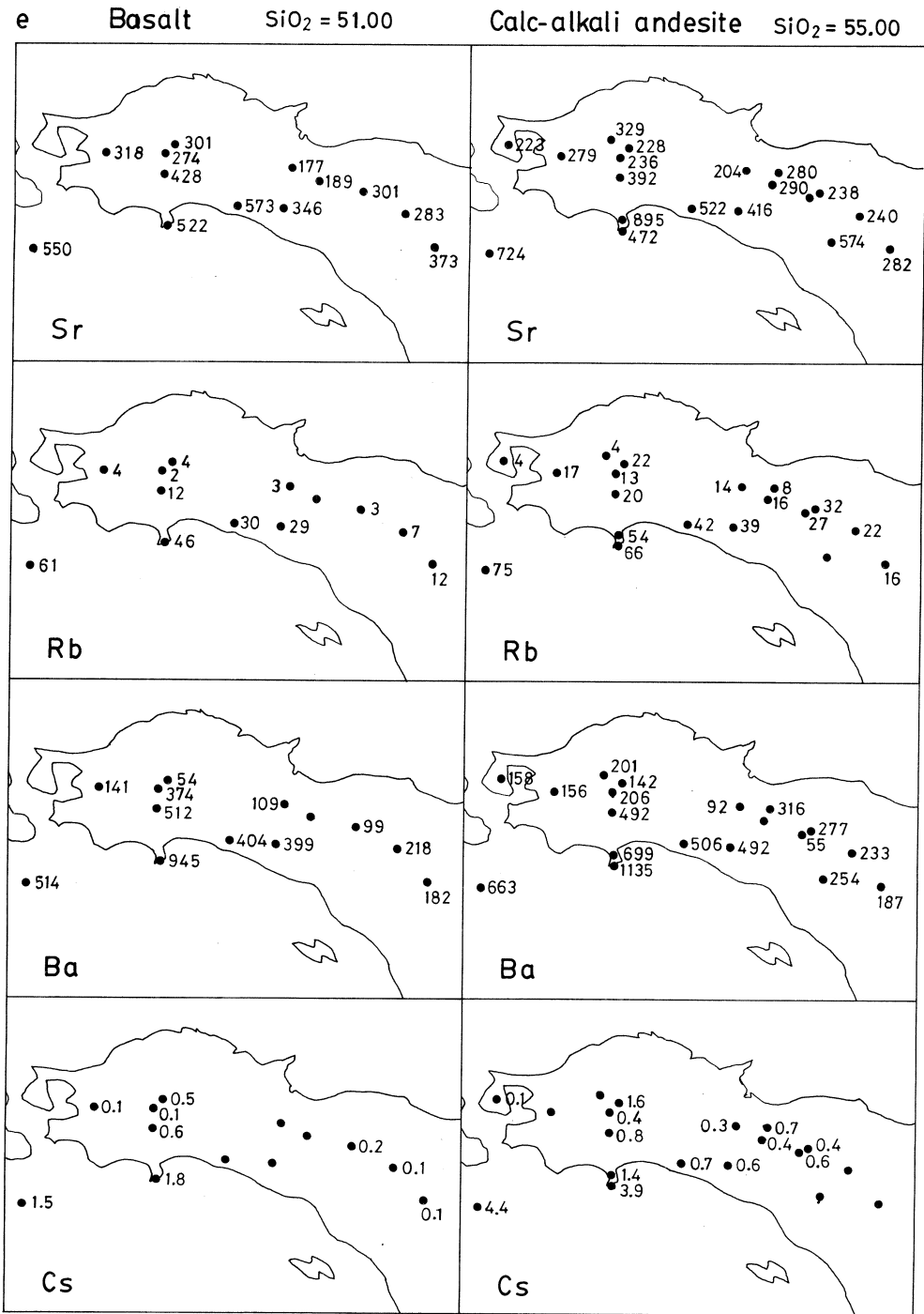
第2図 東北本州弧における第四紀火山岩組成の広域的变化(続き)。



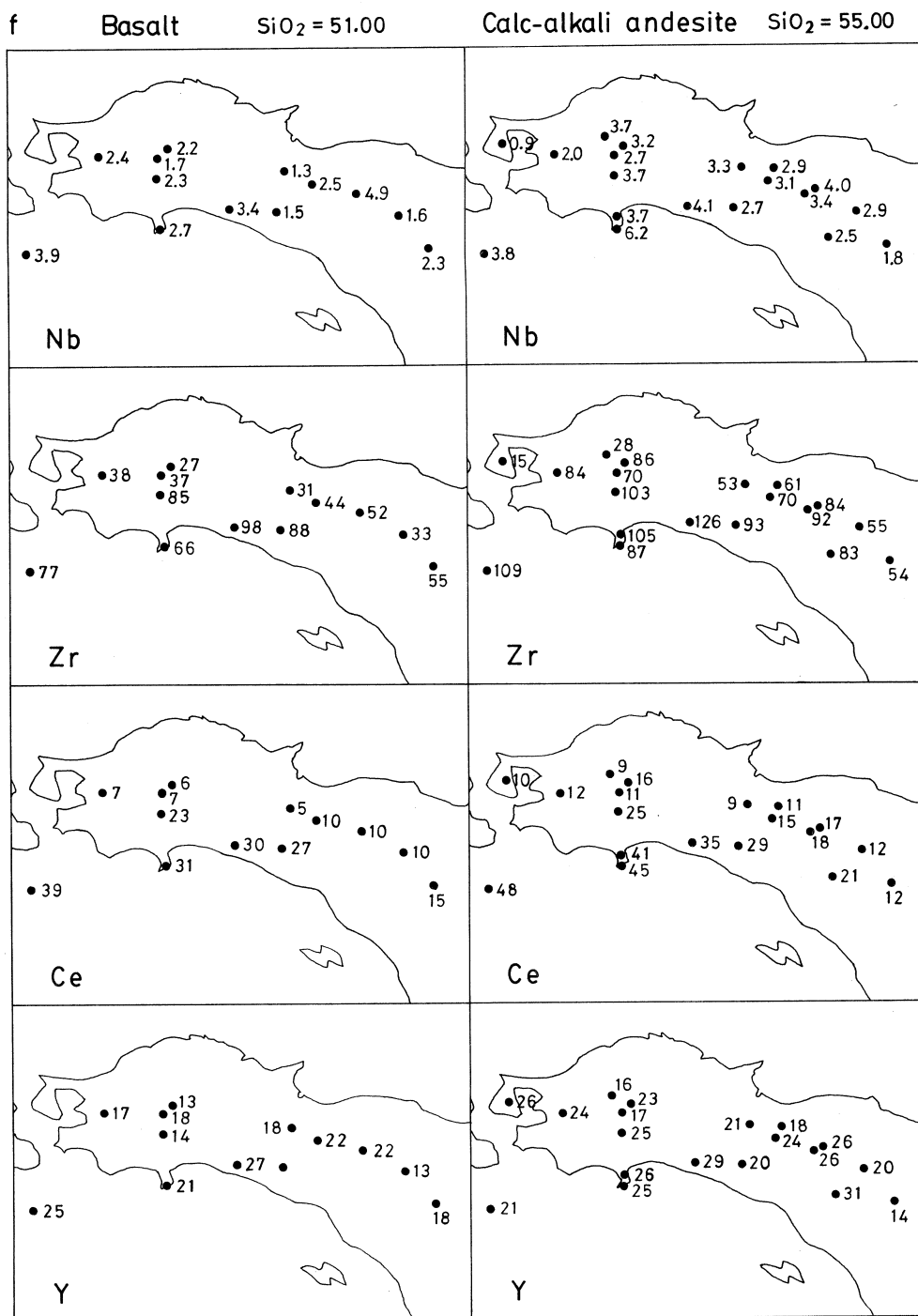
第2図 東北本州弧における第四紀火山岩組成の広域的变化(続き)。



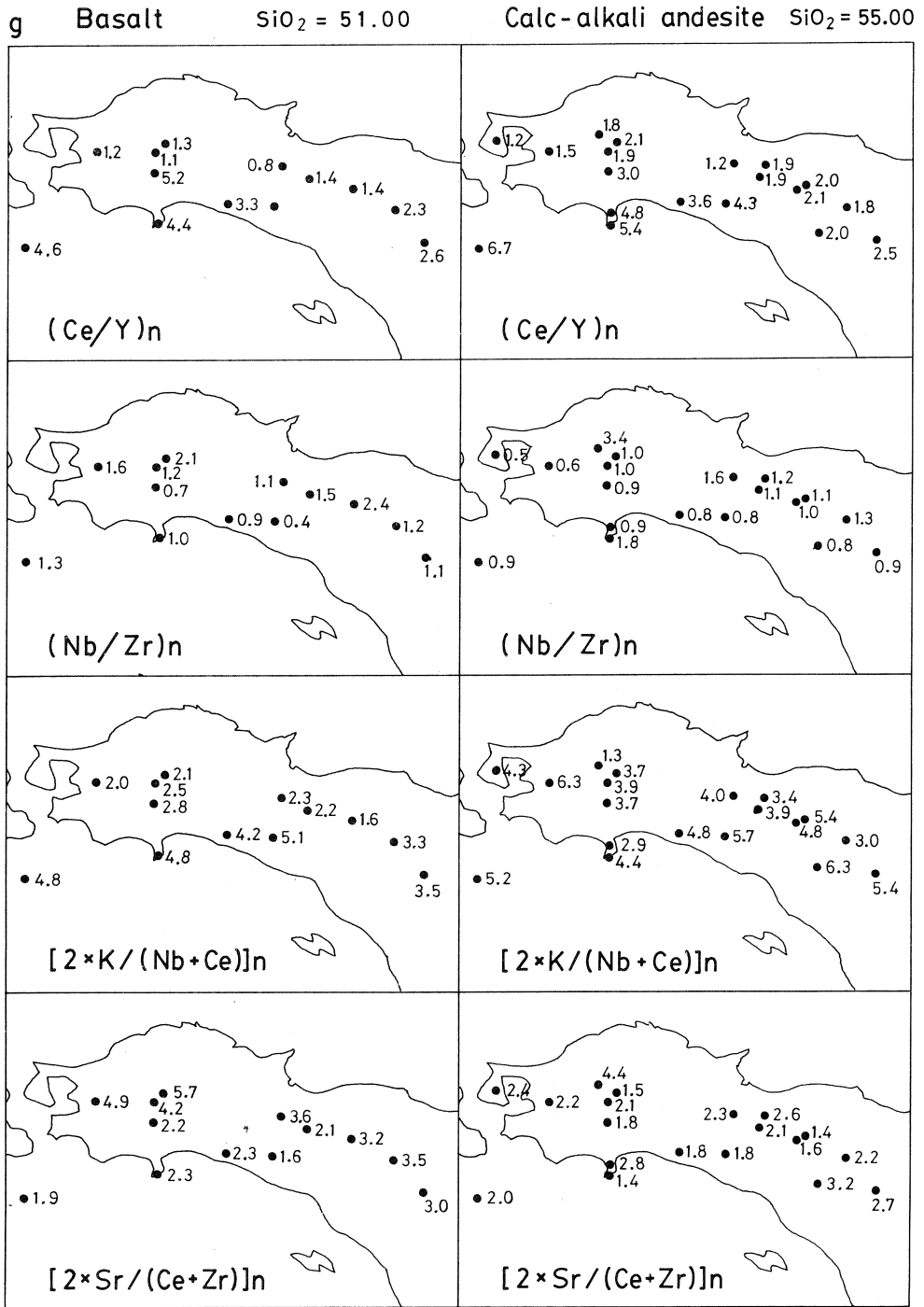
第2図 東北本州弧における第四紀火山岩組成の広域的变化(続き)。



第2図 東北本州弧における第四紀火山岩組成の広域的变化(続き)。



第2図 東北本州弧における第四紀火山岩組成の広域的变化(続き)。



第2図 東北本州弧における第四紀火山岩組成の広域的变化(続き)。

背弧側へとわずかながら、増加傾向を示している。また、東北地方南部背弧側で少し高い傾向がある。

$P_2O_5$ は玄武岩類においても、カルクアルカリ安山岩類においても背弧側へと増加する傾向が認められる。玄武岩類では、脊梁火山列において北側から東北地方南部へと増加の傾向が見られる。カルクアルカリ安山岩類でも類似の傾向が認められるが、顕著なことは吾妻、安達太良火山を中心とする部分が背弧側からの高濃度部の張り出し部を構成し、この結果、濃度のコンターが蔵王火山の北側で火山フロント側にシフトしていることである。これに類似の現象は他のいくつかのインコンパティブル元素においても認められる。

$Na_2O$ は背弧側へと増加する傾向が認められる。但し、その濃度コンターは島弧に平行ではなく、脊梁火山列について見ると蔵王火山付近で最も高い値を示し、特に玄武岩類においては、この地域の南北へと値が減少する傾向が認められる。つまり、この場合も濃度コンターが鳥海～蔵王火山以南において、火山フロント側に著しくシフトしており、火山フロントでの値が南側では北側に比較してより高い。

$K_2O$ は玄武岩類、カルクアルカリ安山岩類ともに背弧側へと単調に増加する傾向が認められる。玄武岩類については、脊梁火山列における値は、北から南へと系統的に増加する傾向が認められる。カルクアルカリ安山岩類においては、 $K_2O$ の高い部分が、安達太良、吾妻火山地域において火山フロント側に張り出している。

アルカリ ( $Na_2O + K_2O$ ) 量も背弧側へと増加している。玄武岩類における脊梁火山列に沿った方向での組成変化があるかどうか明瞭ではないが、多少、南側において、値が高い傾向が見られるようだ。カルクアルカリ安山岩類においては、蔵王～安達太良火山付近でその南北の脊梁火山列に対してより高い傾向が認められる。つまり、アルカリ量の変化が示す濃度コンターについても鳥海～蔵王火山の位置で、火山フロント側にシフトしていると見ることができる。

$K_2O/Na_2O$ 比は背弧側へと増加する傾向がある。玄武岩類において、脊梁火山列沿いに北側から南側へと次第に値が大きくなる傾向が見られる。カルクアルカリ安山岩類では、脊梁火山列に沿った濃度の変化傾向は明瞭でないが、吾妻、安達太良火山における高異常がやはり認められ、この南北へと値は減少する傾向が見られる。

$MgO/FeO^*$ についてはあまり確かなことは言えないが、多少、背弧側へと値が増加する傾向があるようだ。目瀉火山は非常に高い値を示している。

$Ni$ は玄武岩類では傾向があまりはっきりしないけれども、カルクアルカリ安山岩類においては、脊梁火山列で相対的に高い傾向が認められる。目瀉火山は周囲の火山に対して異常に高



い値を示している。

Crについては、玄武岩類では明瞭な系統的な変化を認めることは出来ない。カルクアルカリ安山岩類については、Ni同様に脊梁火山列において高い傾向を認めることが出来る。目瀉火山はCrに関しても異常に高い値を示している。

Coは、玄武岩類における傾向があまりはっきりしない。その濃度は比較的狭い範囲に落ちる。カルクアルカリ安山岩類については、やはり脊梁火山列に濃度の極大がある。目瀉火山はCoについても、Ni、Cr同様に、周囲の値より高い値を持つ。

ScもCo同様に、玄武岩類においては明瞭な傾向が認められない。但し、脊梁火山列の一部において高い値を認めることが出来る。カルクアルカリ安山岩類においては、脊梁火山列において高い傾向が見られる。目瀉火山噴出物はScについても高い値を持っている。

Srは玄武岩類において、船形～蔵王火山近傍で非常に低い値を示す。そして、脊梁火山列内において、これより北および南側へと増加してゆき、背弧側へも増加する傾向が見られる。カルクアルカリ安山岩類においても、やはり、脊梁火山列において最も値が低い傾向がある。Srはここから背弧側へと増加するとともに、青麻一恐火山列に属する七時雨火山側へも値が増加している。目瀉火山の安山岩は周囲の背弧側カルクアルカリ安山岩類に比較して、Sr濃度は低い傾向がある。

Rbは $K_2O$ と同様に背弧側へと単調に増加している。玄武岩～安山岩において、脊梁火山列に沿って南側に濃度が上がっている。

Baも、特に玄武岩類においては背弧側に単調に増加しているが、カルクアルカリ安山岩類では脊梁火山列が最も低い傾向が認められ、次のCsに近い挙動を示している可能性がある。

Csは一般的傾向としては背弧側に増加し、特に鳥海火山列海側においては非常に高い値が認められる。但し、特にカルクアルカリ安山岩類について細かくみるとCsはKやRbと異なる挙動を示している。すなわち、背弧側へと単調に増加しているのではなく、脊梁火山列において最も低く、背弧側に増加するとともに、青麻一恐火山列側にも増加しており、一部のコンパティブル元素に認められた挙動とは逆に、脊梁火山列に軸を持ちしかもそこで最も値が低いという特徴を示している。

Nbは東北本州弧においては濃度が非常に低く、明瞭な広域的变化が認められないが、単調に背弧側に濃度が上がっている訳ではないようだ。玄武岩類においても、カルクアルカリ安山岩類においても背弧側へとわずかに増加する傾向とともに、脊梁火山列軸部に対して、青麻一恐火山列側にも増える傾向が認められ、Csなどととも脊梁火山列に軸を持ち、しかもそこ

で最も濃度が低いという傾向を持つ可能性が最も高い。脊梁火山列に注目すると、火山列に沿った方向での濃度変化が認められ、玄武岩類においてもカルクアルカリ安山岩類においても安達太良近傍で最も濃度が高く、これより北側ならびに南側へと濃度が低下している。

Zr は K や Rb ほど顕著ではないけれども、背弧側へと単調に増加する傾向を示している。Nb と異なり、脊梁火山列における弧に沿った明瞭な変化傾向は認められない。

Ce は K や Rb といった元素とほとんど同様の挙動を示し、背弧側へと単調に増加している。特に玄武岩類においては、脊梁火山列において弧に沿った変化が認められ、北から南へと濃度が上がっている。蔵王以南とその北側には濃度のギャップが認められ、ここで急激に濃度が上がっている。カルクアルカリ安山岩類では、背弧側へと単調に増加する傾向とともに、脊梁火山列においては、吾妻、安達太良近傍で最も高く、その南北へと減少する傾向が認められ、ここでも濃度コンターの火山フロント側へのシフトが存在する。

Y についての変化はあまり明瞭ではないが、わずかに背弧側へと増加しているようにも見える。玄武岩類においては、やはり蔵王、安達太良近傍で高く、南北へ低下しているようだ。

始源マントル組成<sup>13)</sup>で規格化した Ce/Y 比は背弧側へと単調に増加している。その値は火山フロント側では 1 に近く、背弧側へと 5 に近づく。カルクアルカリ安山岩類においては脊梁火山列で、より南側ほど値が高い傾向が認められる。濃度コンターの火山フロント側へのシフトが存在する。Ce/Y 比の変化は K<sub>2</sub>O といった他の代表的なインコンパティブル元素の挙動と良い相関を示しており、その変化は、おそらく、背弧側への部分溶融度の低下に対応したものである。

玄武岩類における、始源マントル組成で規格化した Nb/Zr 比は、火山フロント側で最も高く、2 を越えており、背弧側へと一旦 1 以下の値まで減少した後に鳥海火山列海側において、再び、1 を越える値を持つに至っている。すなわち、Ce/Y の挙動とは異なり、東北本州弧での起源マントルの複雑さを良く示している。玄武岩類に見られる傾向はカルクアルカリ安山岩類においても同様に認められ、火山フロント側にやはり最も高い値が見られる。そして、脊梁火山列においては蔵王付近に極大値がみられ、特に北側へは明瞭に減少している。Nb/Zr 比の変化は Sr 同位体組成の広域的变化<sup>39)</sup>と良い対応を示しており、起源マントルの性格が火山フロント側、そのなかでも東北本州弧南側で最もエンリッチしたものであることを示唆している。

島弧火山岩は始源マントル組成による規格化パターンにおいて K ならびに Sr の正異常を示すのが特徴である。そのような異常の広域的变化を見るために、始源マントル組成による規格

化図において、通常これらの両側に配置する元素の値に対する正異常の程度を  $2 \times K / (Nb + Ce)$  あるいは  $2 \times Sr / (Ce + Zr)$  によって表すことができる。玄武岩類における  $2 \times K / (Nb + Ce)$  比は背弧側で多少高いようにも見えるが広域的变化の存在はあまりはっきりしない。ただし、カルクアルカリ安山岩類においては、明らかに、この値は背弧側へと増加している。同時に脊梁火山列においては弧の南側へと増加する傾向も認められる。

一方、 $2 \times Sr / (Ce + Zr)$  比は火山フロント側で最も高く、背弧側へと減少する傾向が認められる。但し、減少の傾向はカルクアルカリ安山岩類でははっきりしているが、玄武岩類ではあまり明瞭ではなく、火山フロント部で最も高く、後の部分は同じ比を持つと見られることも出来るかもしれない。

## § 6. おわりに

今回の検討によって、東北本州弧第四紀火山岩組成の広域的变化はこれまで考えられていた以上に複雑であることが明らかになった。主な点は、1. 広域的变化を示す元素には単調に背弧側に増加するものの他に、脊梁火山列で極値をもち、その両側へと減少あるいは増加する元素があること、2. 脊梁火山列においてはしばしば火山列に沿った濃度変化が認められ、蔵王～安達太良近傍ないし以南において高くなる元素が多くみられる。その結果、濃度のコンターはこの部分において、火山フロント側にシフトしていることが多いこと、3. 玄武岩類が示す広域的变化とそれに伴うカルクアルカリ安山岩類が示す変化との間には高い相関が認められる。4. 火山の中には、一ノ目瀉火山のように、いくつかの元素において一般的傾向から大きくはずれる値をもつものが存在すること、などである。今後、島弧マグマの帯状配列を議論する際には、このような広域的变化の微細構造についても十分考慮に入れる必要がある。予察的な検討によれば、各元素ないし元素濃度比が示す広域的变化は、それぞれ、結晶分別作用、部分熔融度、そして起源マンタルの不均質性の広域的变化、あるいはこれらが複合した結果を反映したものである。

本報告を作製するのに基礎となった、多くのデータを出すにあたって、東北大学核理研の榎本和義博士、現在金研に移られた八木益男教授、ならびにライナック・マシングループの方々、東北大学サイクロトロン RI センターの中村尚司教授、山寺亮博士をはじめ職員の方々には大変お世話になった。東北大学岩鉱教室の大沼晃助教授、藤巻宏和博士には、諸般にわたって御助力頂き、また常日頃議論いただいている。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金

(Nos. 62103003, 63460048) 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) 中川光弘, 霜鳥洋, 吉田武義 : 岩鉱 **81** (1986) 471.
- 2) 吉田武義, 渡部均, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **16** (1983) 309.
- 3) Y. Kawano, K. Yagi and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ., Ser. III **7** (1961) 1.
- 4) A. Miyashiro : Am. J. Sci. **272** (1972) 629.
- 5) 高橋正樹, 藤縄明彦 : 三鉱学会 (弘前) 講演要旨集 (1983) p.30.
- 6) M. Sakuyama, and R. W. Nesbitt : J. Volcanol. Geotherm. Res. **29** (1986) 413.
- 7) M. Sakuyama : Earth Planet. Sci. Lett. **43** (1979) 103.
- 8) 吉田武義 : 地質学論集 **32** (1988) (印刷中).
- 9) H. Kuno : Bull. Volcanol. **20** (1959) 37.
- 10) A. Miyashiro : Am. J. Sci. **274** (1974) 321.
- 11) N. Onuma, M. Hirano and N. Isshiki : J. Volcanol. Geotherm. Res. **18** (1983) 511.
- 12) 巽好幸 : 火山第2集 **30** (1986) S153.
- 13) T. Yoshida, K. Masumoto, and K. Aoki : J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. **81** (1986) 406.
- 14) 中川光弘, 霜鳥洋, 吉田武義 : 岩鉱 **83** (1988) 9.
- 15) H. Fujimaki and H. Kurasawa : J. Japan. Assoc. Mineral. Petr. Econ. Geol. **75** (1980) 313.
- 16) J. B. Gill : *Orogenic andesites and plate tectonics*. (Springer-Verlag, 1981) p.390.
- 17) T. Fujitani and A. Masuda : Geochem. J. **15** (1981) 269.
- 18) S. Aramaki and T. Ui : *Andesites*, R. S. Thorpe (John Wiley & Sons, 1982) p.259.
- 19) T. Yoshida, K. Aoki, M. W. Lee, K. Ishikawa and N. Kaneko : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ. **15** (1982) 239.
- 20) T. Yoshida and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **16** (1984) 1.
- 21) S. Aramaki and T. Ui : J. Volcanol. Geotherm. Res. **18** (1983) 549.
- 22) J. D. Morris and S. R. Hart : Geochim, Cosmochim, Acta **47** (1983) 2015.
- 23) 吉田武義, 阿部智彦, 谷口政碩, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **20** (1987) 131.
- 24) 酒寄淳史, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **20** (1987) 153.

- 25) 富樫茂子, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 19 (1986) 139.
- 26) 石川賢一, 吉田武義, 北川嘉彦, 青木謙一郎, 大上和良: 核理研研究報告 18 (1985) 366.
- 27) 霜島洋, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 16 (1983) 30.
- 28) 佐々木寧仁, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 18 (1985) 175.
- 29) 石川賢一, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 17 (1984) 330.
- 30) 酒寄淳史, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 17 (1984) 346.
- 31) 藤縄明彦, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 17 (1984) 356.
- 32) 伴雅雄, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 20 (1987) 165.
- 33) 佐々木実, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 19 (1986) 307.
- 34) 中川光弘, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 17 (1984) 375.
- 35) M. Yamamoto : J. Fac. Sci. Hokkaido Univ., Ser. IV 21 (1984) 77.
- 36) 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 21 (1988) 268.
- 37) 林信太郎, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 17 (1984) 382.
- 38) 小泉治彦, 吉田武義, 青木謙一郎: 核理研研究報告 17 (1984) 391.
- 39) K. Notsu : J. Volcanol. Geotherm. Res. 18 (1983) 531.

## 東北本州弧第四紀火山岩類へのプロセス判定図の適用

理学部地学

吉田武義・青木謙一郎

### § 1. はじめに

成因的に関連のある火山岩類が示す化学組成上の特徴を検討するいくつかの方法がある。Gill<sup>1)</sup>が明快に示しているように、ある種の微量元素組成を組合せて使用することにより、一連の火山岩類が示す組成変化トレンドが、結晶分化作用によるものか、均質な起源物質から生成した際の部分溶融度の変化によるものか、あるいはマグマの混合によるものかを識別することが可能である。この場合に有効な図は最もコンパティブルな元素と最もインコンパティブルな元素を組合せた図である。これに対して、インコンパティブル元素同志を組み合わせることにより、起源物質における元素含有量比の違いを識別したり、部分溶融度の大小を論じることが可能であり、異なる起源物質から派生したマグマを識別することが可能となる。各種のインコンパティブル元素規格化パターンはその代表的なものである。

Allégre とその共同研究者<sup>2,3)</sup>はそれまで試行錯誤的に行っていたマグマ起源物質の化学組成と鉱物組成の推定を、マグマの組成から直接、逆算する方法 (inverse method) を案出した。彼らの方法はプロセス判定法 (process identification) と呼ばれ、その後、いくつかの改良が加えられた<sup>4)</sup>。本論では、この解析法を光量子放射化法などによって分析した東北本州弧第四紀火山岩類に適用した結果を報告する。

### § 2. 東北本州弧第四紀火山岩類

東北本州弧は代表的な島弧海溝系であり、古くから地質学的、地球物理学的特徴の帯状配列が認められている。第四紀火山岩組成の帯状配列はその一つである。Kuno<sup>5)</sup>による3玄武岩帯への分帯後、しばらくその帯状配列についての詳しい研究はなされなかったが、高橋・藤縄<sup>6)</sup>や中川ら<sup>7)</sup>が東北本州弧火山岩類の広域的な再分帯を試みた頃から、新しい観点とデータにもとづく火山岩類の帯状配列の再検討が始まった。中川ら<sup>7)</sup>はこれまで脊梁山脈に位置すると考えられていた火山フロントがより海溝側の青麻-恐火山列にあることを示し、この新しく認識された火山フロントにおいては、従来の脊梁火山列に比較して、よりKに乏しいマグマが活動していることを明らかにした。Sakuyama & Nesbitt<sup>8)</sup>は東北日本弧第四紀火山岩類の微量元素

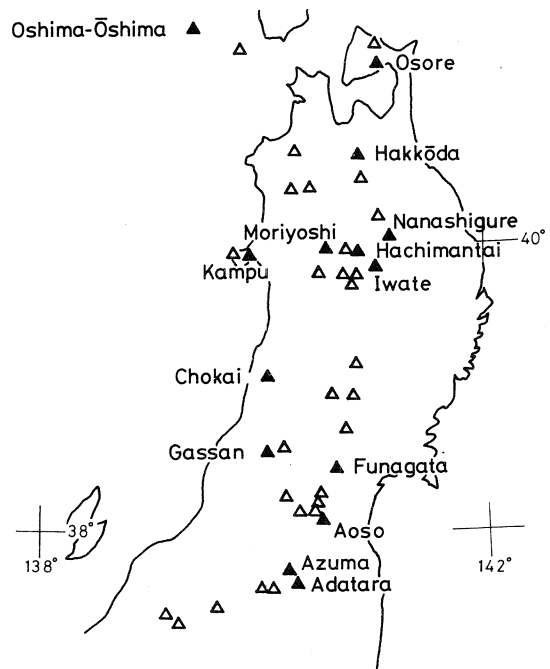
組成を示し、それらが最も火山フロント寄りの火山を除いて、均質なウェッジマントルからの部分溶融の産物であると論じた。これに対して中川ら<sup>9)</sup>は地質学的、岩石学的データに基づいた東北本州弧の新しい分帯にのっとり、各列の代表的な玄武岩を比較することにより、東北本州弧火山岩類を生成したウェッジマントルには組成の不均質性が存在することを主張した。

東北大学岩鉱教室岩石学研究室では1981年以来、核理研の共同利用研究として、東北本州弧に分布する第四紀火山岩類の系統的な記載、分析を進め、各火山の岩石学的・地球化学的特徴を明らかにする作業を進めている。ここではそれらの研究から得られたデータについて、プロセス判定法を適用する。具体的には、各火山において得られた分析データを用いて、各元素の組成変化経路に曲線の当てはめを行い、各火山における  $\text{SiO}_2$  で規格化した組成を計算する。各火山における初生マグマの計算には、便宜的に  $\text{SiO}_2=55\%$  における値を用いる、この値はソレライトならびにカルクアルカリ系列岩についても相互の比較をするために、いずれの岩系についても最も外挿の程度が小さい値であり、しかもマグマの結晶分化作用の影響も比較的小さい組成である。今回解析に用いた各火山の位置を第1図に示す。第1表は本論で用いた  $\text{SiO}_2$  規格化値である。

### § 3. プロセス判定法

Hofmann とその共同研究者<sup>9)</sup>はある一連のマグマの化学組成から、そのマグマを生じた初生マグマと起源物質の化学組成ならびに鉱物組成を定量的に推定する方法を詳しく論じている。以下に彼らの方法を紹介する。この方法は Allégre and Minster らの方法<sup>2,3,23)</sup>を簡略化、逐次化したものである。

- (1) 選ばれた火山岩の組成から結晶分化作用の効果を除去して、初生マグマの組成を求める。
- (2) 得られた一連の初生マグマについて、均質な起源物質からの



第1図 東北本州弧第四紀火山岩の分布。  
塗りつぶした三角は、本論で用いた火山を示す。





部分溶融モデルで説明可能かどうか、すなわち同源性を検討する。

- (3) 初生マグマの形成に関与した鉱物相の比率を求める。
- (4) ある参照元素の濃度を規準にして、起源物質における各元素濃度ならびにバルクの分配係数を計算する。
- (5) 得られた分配係数から起源物質の鉱物組成を推定する。

結晶分化作用の効果を除去する場合以外は、これらの計算は元素毎に、直接的に計算する。ここでは一般に同源のマグマが用いられるが同源 (cogenetic) とは、均質な組成を持った起源物質から種々の部分溶融度のもとで形成された一連のマグマを指す。そのような前提が常に実証できるという訳ではないが、同源のマグマにおいては同位体組成や高いインコンパティビリティを持つ元素間の比が一定である。

まず最初に、初生マグマの主成分化学組成を仮定し、分析データにある鉱物を加えたり、差し引いたりすることによって結晶分化作用の影響を取り除く。加えたり、差し引いたりする鉱物の量から、レーリー分化作用を仮定し、初生マグマにおける微量元素組成を計算する。そして、Allégre and Minster<sup>3)</sup>のプロセス判定図 (process identification diagram) を用いることにより、一連の初生マグマが均質な起源物質から異なる部分溶融度のもとで生じたものであることを確認する。このプロセス判定図上で同源の初生マグマが描く直線についてのパラメータから、ある高いインコンパティビリティをもつ元素の濃度を規準にしたときのソースの微量元素成分組成や全岩分配係数を知ることができる。最後に、得られたバルクの分配係数から起源物質における鉱物組成を推定することが可能となる。類似の逐次計算を Sakuyama and Nesbitt<sup>8)</sup>が行っているが、彼らはインコンパティブル元素の逆数をプロットし、パラメータを計算している。

#### § 4. 計算の手順

- (1) 結晶分化作用による効果の除去

晶出した鉱物相の組合せと量の推定：この操作は問題のマグマが生成した場所から上昇して噴火するまでに分別した鉱物相をそのマグマの組成に加えることによって初生のマグマ組成を算出する作業からなる。加える鉱物相の組合せと組成は実在の斑晶鉱物の組成を用いたり、高圧下で晶出したと推定される高圧相を用いたりする。本論では、Sakuyama & Nesbitt<sup>8)</sup>が使用した値 (第2表) を用いる。初生マグマの組成は何等かの独立した情報から仮定する必要がある。本論においては、各火山列の初生マグマの組成として、Tatsumi et al.<sup>24)</sup>の値を用いる。

第2表 結晶分化作用の効果を除去するために用いた分別相の組成とそれらの分配係数<sup>8)</sup>ならびに初生マグマの組成<sup>24)</sup>。

Name	O1	Opx	Cpx	Pl	Mt	AOB	HAB	OTB
SiO <sub>2</sub>	40.0	55.7	51.9	48.3	0.0	49.11	49.39	49.71
TiO <sub>2</sub>	0.0	0.2	0.6	0.0	20.4	1.01	0.85	0.74
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.0	0.7	2.3	33.2	0.5	15.45	15.70	14.97
FeO	14.1	13.6	9.5	0.0	78.6	9.42	9.76	10.57
MgO	45.8	28.1	14.5	0.0	0.5	11.59	12.05	13.03
CaO	0.0	1.4	18.9	16.1	0.0	9.66	9.43	9.00
Na <sub>2</sub> O	0.0	0.1	0.2	2.4	0.0	2.54	2.33	1.56
K <sub>2</sub> O	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	1.09	0.34	0.28
Total	99.9	99.8	97.9	100.1	100.0	99.9	99.9	99.9

D values								
Sr	0.01	0.03	0.08	1.80	0.01			
K	0.01	0.01	0.02	0.11	0.01			
Rb	0.01	0.02	0.02	0.07	0.01			
Ba	0.01	0.02	0.02	0.16	0.01			
Nb	0.01	0.35	0.30	0.03	1.00			
Ce	0.01	0.05	0.25	0.13	0.20			
Zr	0.01	0.03	0.10	0.01	0.10			
Y	0.01	0.20	0.50	0.03	0.20			

分別相：O1. カンラン石、Opx. 斜方輝石、Cpx. 単斜輝石、Pl. 斜長石、Mt. 磁鉄鉱。

初生マグマ：AOB. アルカリカンラン石玄武岩、HAB. 高アルミナ玄武岩、OTB. ソレライト玄武岩。

D values. 分配係数。

その際、青麻-恐火山列火山岩と脊梁火山列のソレライトについては、彼らのソレライト質初生マグマ組成を用いる。脊梁火山列のカルクアルカリ系列岩と森吉火山列火山岩については高アルミナ玄武岩質初生マグマの組成を用いる。そして、鳥海火山列についてはアルカリカンラン石玄武岩質初生マグマの組成を用いた。

これらの推定された初生マグマ組成と実在するマグマの組成とを用いて、各元素について、次のような線形方程式を書く。

$$C_i(i) \times F_1 + C_a(i) \times F_a + C_b(i) \times F_b + \dots = C_{i,0}(i) \quad (1)$$

ここで  $C_i(i)$  が実際のマグマ中での成分  $i$  の濃度で  $C_{i,0}(i)$  が初生マグマの濃度、 $C_a(i)$  は鉱物  $a$  中での  $i$  成分の濃度である。そして  $F_a$  は鉱物  $a$  の重量％、 $F_1$  は残液の重量％である。一般に成分の数が鉱物相の数よりも多い場合には式の数は未知数の数を越えることになる。その

場合は Wright & Doherty<sup>25)</sup>の最小自乗法を用いる。この計算においては、結晶分化作用の効果から部分溶融の効果を分離する場合の不確定さを避けるために、通常、主成分元素のみを用いる。

初生マグマにおける微量元素組成の計算：実在するマグマの組成を生じるために初生マグマから取り去られた鉱物の量、 $F_a$ ,  $F_b$ , などが求まると、これから個々の初生マグマにおける微量元素組成を計算することが可能となる。この計算は実在するマグマの組成から次のレーリー分別作用を仮定することにより行う。

$$C_i/C_{i,0} = F_i^{(D-1)} \quad (2)$$

ここで、 $D=F_a \times D_a(i) + F_b \times D_b(i) + \dots$  であり、 $D_a(i)$  は鉱物 a についての鉱物/マグマ間の元素  $i$  の分配係数 (第 2 表) である。 $F_i$  は残液の量である。得られた東北本州弧第四紀各火山についての初生マグマにおける微量元素組成を第 3 表に示す。

## (2) プロセス判定図と同源性のテスト

Minster and Allégre<sup>23)</sup>の方法を用いて、部分溶融の式 (次式<sup>26)</sup>) を以下のように展開できる。

$$C(i) = C_0(i) / [D_0(i) + F \times (1 - P(i))] \quad (3)$$

ここで  $C_0(i)$  は起源物質における元素  $i$  の濃度であり、 $P(i)$  は

$F_a \times D_a(i) + F_b \times D_b(i) + \dots$  である。非常にインコンパティブルな元素 (H) では  $D(H) = P(H) = 0$  とおける。その結果

$$C(H) = C_0(H) / F \quad (4)$$

となる。 $F = C_0(H) / C(H)$  を用いて、(3)式から  $F$  を消すと、

$$C(H) / C(i) = S(i) \times C(H) + I(i) \quad (5)$$

が得られる。この式において

$$S(i) = D_0(i) / C_0(i) \quad (6)$$

$$I(i) = [C_0(H) / C_0(i)] \times [1 - P(i)] \quad (7)$$

第 3 表 計算された初生マグマのインコンパティブル元素組成。

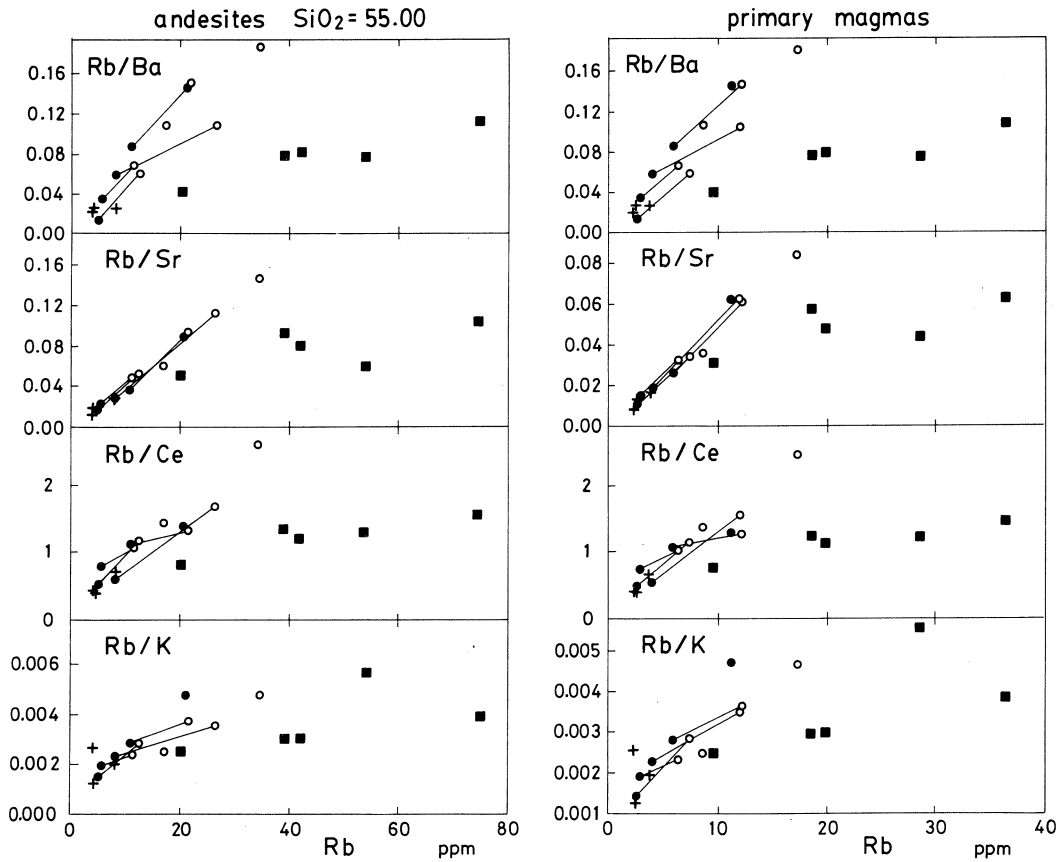
No.	1	2	3	4	5	5	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19
	CA-55	CA-55	CA-55	TH-55	TH-E55	TH-L55	TH-55	TH-55	CA-55	CA-55	CA-55	CA-55	CA-55	CA-55	CA-55	CA-55	CA-55	CA-55	CA-55
Sr	181	253	208	214	179	222	187	208	236	214	198	194	204	191	307	648	410	321	572
K	2072	875	1922	1785	2372	2095	1527	1771	3458	2595	3316	2709	3674	3410	3866	5064	6602	6249	9353
Rb	2.5	2.3	3.8	2.6	11.2	5.9	2.9	4.0	8.6	7.4	12.2	6.4	17.3	12.0	9.6	28.7	19.9	18.6	36.4
Ba	95	113	148	177	77	68	83	68	90	123	82	93	95	113	240	377	246	241	332
Nb	0.6	2.1	1.5	1.6	2.8	1.5	0.8	2.8	1.1	1.6	1.9	1.6	1.1	2.0	1.9	2.2	2.1	1.4	2.0
Ce	6.3	5.4	5.6	5.2	8.5	5.5	3.9	7.2	6.3	6.4	9.5	6.1	7.0	7.7	12.6	23.4	17.6	14.8	24.8
Zr	26.7	15.3	28.2	31.2	33.8	28.1	21.6	32.2	41.7	40.6	48.5	31.6	39.6	39.4	49.0	56.4	59.9	44.5	53.4
Y	15.7	9.3	9.0	12.1	9.6	11.5	11.8	13.4	12.7	10.0	13.4	12.3	11.0	12.9	13.0	15.1	15.1	10.7	11.4

番号は第 1 表に対応している。

であり、 $S$ と $I$ は式(5)が示す直線の傾斜と切片である。もし、一連の試料が均質な起源物質から生じた部分溶融度の異なるマグマである（特に、部分溶融が不変点で起こるような場合で、すべてのマグマにおいて $D_0(i)$ が等しく、しかも $P(i)$ も等しい条件下）場合には、そのようなデータセットは(5)式で表される直線を描く。

このように(5)式を用いることによって、ある一群のマグマの起源物質が同源であるかどうかをテストすることができる。すなわち、上の条件にかなうマグマ群の微量元素組成は $C(H)/C(i) - C(H)$  図（ここでは、プロセス判定図と呼ぶことにする）上で直線を描くはずである。また、すべての高いインコンパティビリティを示す元素（Hタイプ元素）は起源物質が同じならばその系列内では一定の濃度比を持っていると期待される。

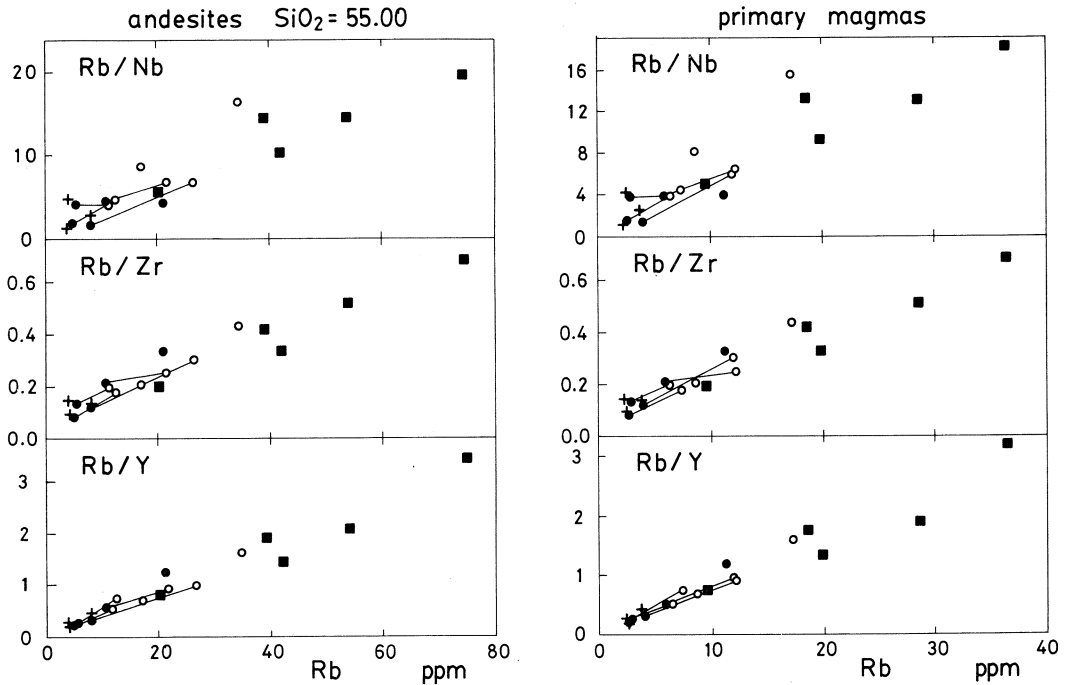
先に計算された東北本州弧第四紀各火山についての初生マグマの組成を用い、H元素としてRbを用いた図を第2図に示す。第2図には実在の火山岩組成から計算して得られた初生マグマについての図とともに、オリジナルの組成を用いた図も示してある。初生マグマの推定には多くの問題があり、必ずしも一般に認められた方法が確立している訳ではない。また、オリジナルの化学組成に対して多くの処理をする結果、処理の内容に初生マグマの組成が大きく左右されることも起こりうる。逆に、Sakuyama & Nesbitt<sup>8)</sup>の結果からもわかるように、結晶分作用の効果を除去して得られた初生マグマのインコンパティブル元素規格化パターンが処理を施す前の組成（ $SiO_2=55\%$ ）を用いたものと本質的には異ならないという事実もある。今回の結果も、オリジナルのデータが示す傾向がそのまま、計算により得られた初生マグマ組成に表れていることを示している。このことから、初生マグマの同源性を検討する際に、 $SiO_2$ による規格化などの適当な処理を施した苦鉄質組成についてのデータならば、十分に使用に耐えることがわかる。



第2図 プロセス判定図

左側はオリジナルなデータを用いて作製し、右側は計算された初生マグマについてのものである。プラスは青麻-恐火山列火山、黒丸は脊梁火山列ソレイト系列、白丸は脊梁火山列カルクアルカリ系列、そして黒四角が森吉~鳥海火山列についてのデータである。タイラインは脊梁火山列において共存するソレイトとカルクアルカリ系列岩を結んでいる。

第2図から、東北本州弧からの第四紀火山について得られた初生マグマは大きく、火山フロント側の青麻-恐火山列ならびに脊梁火山列に属するものと、背弧側の森吉ならびに鳥海火山列に属するものとに分けられ、両者が図上で異なる2本の直線を描くことが明らかとなった。代表的なインコンパティブル元素についての、初生マグマ組成を用いて描かれたプロセス判定図から計算された、火山フロント側火山ならびに背弧側火山についての傾斜 ( $S$ ) と切片 ( $I$ ) の値を第4表に示す。



第2図 プロセス判定図(続き)。

## (3) 初生マグマの形成に関与した鉱物相の比率

先の(3)式と(7)式にてでくる分配係数  $P(i)$  は起源物質の部分溶融による初生マグマの形成にあたって、消費された鉱物についての分配係数を重量比によって加算した値である。 $P$ が一定の最も簡単な例が不変点(すなわち、共融点あるいは包晶点)における溶融である。この場合、もし、マグマの生成に際して消費される固相の組合せとその組成が判っている場合、あるいは推定できる場合には、 $P(i)$  を初生マグマの主成分化学組成から直接見積ることができる。実際には、取り得るいくつかの場合について、初生マグマの組成を作るのに必要なそれら鉱物の比率を計算する。簡単な為に、この場合もさきほどと同様に主成分組成のみを用いて、初生マグマと鉱物相の組成を用いた線形方程式を書く。この線形方程式を解くことによって、我々は各微量元素についての部分溶融液中での全岩分配係数  $P(i)$  を計算することができる。

$$P(i) = P_a \times D_a(i) + P_b \times D_b(i) + \quad (8)$$

ここで、 $P_a, P_b$ が初生マグマを形成した液のなかに入った鉱物相の重量比である。

第4表 プロセス判定図から得られた因子とそれから計算されたマントル組成ならびにバルクの分配係数

Elements		Sr	K	Ba	Nb	Ce	Zr
Volcanic front side	I	-0.001	0.0013	-0.001	0.127	0.221	0.058
	S	0.005	0.0002	0.011	0.667	0.116	0.021
Rb* = 0.61	+SE	175	332	38	0.2	1.5	6.5
	Co(i)	-	462	-	3.3	2.6	10.0
	-SE	-	761	-	-	12.2	21.7
	+SE	0.892	0.069	0.420	0.123	0.169	0.133
	Do(i)	-	0.096	-	2.183	0.302	0.205
	-SE	-	0.158	-	-	1.415	0.445
Back-arc side	I	0.029	0.0017	0.028	1.794	0.662	0.033
	S	0.0009	0.0001	0.002	0.445	0.022	0.017
Rb* = 0.35	+SE	5.8	122	8.4	0.06	0.41	4.1
	Co(i)	7.8	197	12.2	0.13	0.50	10.0
	-SE	11.9	513	22.1	-	0.62	-
	+SE	0.005	0.010	0.018	0.025	0.009	0.071
	Do(i)	0.007	0.016	0.026	0.057	0.011	0.174
	-SE	0.010	0.043	0.048	-	0.014	-

I : プロセス判定図上の直線の切片, S : 同じく, 直線の傾斜,  $C_0(i)$ : 初生マグマ起源物質における濃度,  $D_0(i)$ : 初生マグマ起源物質における分配係数, +SE, -SE: 濃度ならびに分配係数におよぼす, データの持つ標準偏差の効果,  $Rb^*$ : 起源物質中のZrが10ppmとなる時のRbの値, この値を用いて, 初生濃度ならびに分配係数を求めた。  
- : 値が負であることを示す。

#### (4) 起源物質における微量元素組成の見積り

式(7)を用いることによって, 次の式を得る。

$$C_0(i) / C_0(H) = [1 - P(i)] / I(i) \quad (7')$$

この式から分かるように,  $I(i)$  の値と  $P(i)$  の値とから, 起源物質における元素Hの濃度に対する元素*i*の濃度を計算することが可能となる。(7') 式からすぐ, もし,  $I(i) > 0$  ならば  $P(i) < 1$ ,  $I(i) < 0$  ならば  $P(i) > 1$ , そして  $I(i) \rightarrow 0$  の時は  $P(i) \rightarrow 1$  であることが判る。これらの条件からステップ(3)における不適当なモデルを排除することが出来る。

式(7)から直接, 起源物質における元素濃度を得ることは出来ないけれども, もし部分熔融度が与えられれば, 式(4)から任意の常数に対する規格化パターンを描いたりすることが可能である。また, 起源物質におけるH元素の含有量のある値に仮定することにより, その他の元素

の濃度を計算することが可能となる。

(5) 起源物質におけるバルクの分配係数

式(6)と(7) から次の式が得られる。

$$D_0(i) / C_0(H) = [S(i) \times (1 - P(i))] / I(i) \quad (9)$$

この式から起源物質における、元素Hの初生濃度に対する、各元素についてのバルクの分配係数を計算することが出来る。起源物質は初生マグマの生成によって消費してしまうような鉱物を含有していると考えられるが、当然、計算される  $D_0(i)$  の示すパターンは選ばれた  $P(i)$  のパターンに密接に関連してくる。

(6) 起源物質の鉱物組成

起源物質のバルクの分配係数の定義から、

$$D_0(i) = D_a(i) \times X_a + D_b(i) \times X_b + \dots \quad (10)$$

$$1 = X_a + X_b + \dots \quad (11)$$

が得られる。これらの式を用いて、起源物質を構成する鉱物の重量%,  $X_a$ ,  $X_b$  を算出することが出来る。しかしながら、式(9)から知り得るのは  $D_0(i)/C_0(H)$  であって、 $D_0(i)$  ではないために、これらの式を直接に解くことは出来ない。ただし、もし、 $C_0(H)$  の値を仮定すれば、式(10)から  $D_0(i)$  を計算することが可能である。

## § 5. 東北本州弧火山岩類についての計算結果

以上に示した手続きに従って、東北本州弧火山岩類について行った計算の結果を第3表と第4表に示す。既に述べたように、東北本州弧火山岩類についての結果は、東北本州弧火山岩類を生じた初生マグマが、プロセス判定図上において、2列の直線上にのることを示している。各々が別個の起源物質に由来するとして、それぞれの直線について得られた  $S$  と  $I$  の値と、それらを用いて計算した起源物質における微量元素組成ならびに、起源物質における分配係数の値を第4表に示してある。これらの値の計算にあたっては、起源マントルにおける Zr 濃度が 10ppm となるような、Rb の濃度を計算し、この値を用いて各元素についての初生濃度 ( $C_0(i)$ ) ならびに分配係数 ( $D_0(i)$ ) を計算した。これらについては、標準偏差の幅の影響についても示してある。以下にこれらの結果に基づいた議論を行う。



## § 6. 東北本州弧第四紀火山岩起源マントルにおける組成不均質の存在

ある程度の幅を持った沈み込み帯火山列に分布するマグマの最も顕著な特徴はプレート境界からの距離による、火山岩組成の変化、特に  $K_2O$  含有量で代表されるインコンパティブル元素含有量の増加である。Tomita<sup>27)</sup>が日本列島を横切る方向での玄武岩における構成鉱物とアルカリ量の変化を初めて指摘して以来、そのような島弧を横切る方向での組成変化については、多くの議論がなされてきた。その成因としては、従来、主に背弧側に向かって、マントル物質からマグマが分離する深度が増大し、かつ、部分溶融度が低下している結果であると考えられてきたが、中川ら<sup>9)</sup>は、これらに加えて、東北本州弧における起源マントルそのものに組成の不均質性が存在する可能性を示している。

Sakuyama & Nesbitt<sup>9)</sup>は東北本州弧を構成する代表的な諸火山について  $SiO_2=55wt. \%$  に規格化した微量元素組成を用いて、初生マグマの組成を推定し、火山フロント側マントルで Rb, Th, Pb に多少富んでいるものの、これらが共通の均質なマントルから異なる部分溶融度で生じた一連のマグマに由来すると考えた。また、HFS 元素が乏しいのはチタン鉱物の存在に起因するのではなく、マントルそのものの組成上の特徴であることを主張している。そして、マグマの起源物質としては、Zr/Nb 比から枯渇した N-type MORB 起源マントルにスラブ由来の LIL 元素が付加したマントルを考えている。また、 $D_m$  を 0.001、起源マントルの Sr 量を 40-50ppm と仮定することによって得られた各元素についての分配係数は、その液が普通輝石ではなく、主に斜方輝石の溶融によるものであることを示唆している。一方、中川ら<sup>9)</sup>は玄武岩質岩の微量元素組成を用いて初生マグマの組成とその部分溶融度、ならびに起源マントル組成の推定を行い、東北本州弧における火山岩組成の水平変化は部分溶融度のみでなく、起源マントル組成の不均質性をも反映していると論じている。

東北本州弧における、玄武岩質岩でのインコンパティブル元素濃度の水平変化は単調ではない<sup>28,29)</sup>。中川ら<sup>9)</sup>は、東北本州弧に産する玄武岩は海溝に近いほど K と Rb よりも Sr に、背弧側ほど Sr に対して K と Rb に富むことを明らかにしている。彼らはこれをマグマの発生にあたって、マントル中で分解した相が火山フロント側ではパーガス閃石、背弧側ではフロゴパイトであったためであると結論している。一方、吉田ら<sup>15)</sup>は脊梁火山列におけるソレアイト系列玄武岩に見られるインコンパティブル元素組成の多様性を論じ、特に東北本州弧南部に位置する火山では脊梁火山列に属するにもかかわらず、Sr 規格化値に対して、K, Rb が高い傾向があり、Sr, K, Rb が作る規格化パターンが鳥海火山列のものほとんど相似であることを示している。また、酒寄ら<sup>30)</sup>は蔵王火山からカルクアルカリ玄武岩を報告し、その規格化パター

ンがやはり鳥海火山列の玄武岩質岩のそれと類似していることを明らかにしている。

これらの事実、火山フロント側と背弧側においては、マグマの Rb/Sr 比に差があり、一般に、火山フロント側でこの比が小さく、一方、背弧側ではこの比が大きいことを示している。さらに、火山フロント側では、背弧側同様にこの比が大きいマグマが、火山フロント特有の Rb/Sr 比が小さいマグマと共存していることが判る。このことから、酒寄・吉田<sup>30)</sup>は火山フロント側においては、火山フロント特有の性格を有したマグマに伴って、背弧側と同様の地球化学的特徴を持ったマグマが活動したと考えた。

今回の結果は、同じような Rb/Sr 比を持った火山フロント側火山岩と背弧側火山岩とが、Rb/Sr-Rb 図上において明瞭に異なる 2 本の直線上にのることを示しており、両者は異なる起源物質から生じたものであることが判る。プロセス判定図上でのトレンドの分離は、Sr のみでなく、Ba や Ce においても明瞭に認められ、K についても、不明瞭ながら確認できる。従って、東北本州弧火山岩類を生じた起源マントルは少なくとも、Sr, Ba や Ce といった LIL 元素に関して、明らかに、不均質性を有している。一方、その他の元素、例えば、Y, Zr や Nb といった HFS 元素に関しては、トレンドの分離があまり明瞭ではない。

火山フロント側火山岩、すなわち、青麻-恐火山列カルクアルカリ系列岩、脊梁火山列ソレイトならびにカルクアルカリ系列岩は、多くのインコンパティブル元素についてのプロセス判定図上で、全体として一本のトレンドを描いている。このトレンド上で脊梁火山列ソレイトはより高い部分溶融度を示す（すなわち、低 Rb）側に、脊梁火山列カルクアルカリ岩は低い部分溶融度を示す（高 Rb）側に点示される。青麻-恐火山列火山岩は脊梁火山列ソレイトとともに最も高い部分溶融度を示す領域にプロットされている。脊梁火山列火山において相伴うカルクアルカリ岩とソレイトが一連の直線上にプロットされることから、両者は共通の起源マントルに由来するものであり、カルクアルカリ系列岩が、玄武岩を生じたマントルとは異なる、下部地殻などの溶融により 2 次的に生じたものであるとは考えがたい。一方、背弧側火山が作る直線上で森吉火山は最も部分溶融度の高い（低 Rb）側に、鳥海火山列火山岩は低い（高 Rb）側にプロットされ、背弧側へとマグマの部分溶融度が低下しているとする考えと調和的である。

## § 7. 東北本州弧第四紀火山岩起源マントルにおける組成不均質性の成因

既に述べたようにプロセス判定図上で、直線上の連の初生マグマは、それらが共通の始源物質からの一連の部分溶融の産物であることを強く示唆している。プロセス判定図において

は、ある元素の分配係数が十分に小さい場合には、起源物質の組成  $C_0(i)$  は、主に、プロットされた直線の切片値に関連し、一方、傾斜値が部分溶融にあたって溶融する鉱物相のバルクの分配係数に左右される。火山フロント側火山と背弧側火山との間にみられる、プロセス判定図上でのトレンドの差は、切片値と傾斜値の両方で見られるが、特に、Sr, Ba, Ceについては、傾斜値が両者で著しく異なる。このことは、火山フロント側と背弧側とでは、バルクの分配係数が、これらの元素について大きく異なる可能性、すなわち、部分溶融にあたり消費された鉱物相が異なっていた可能性が最も大きい。

火山フロント側火山列起源マンツルの示す分配係数の大きな特徴は、Rb や K に比較して、Sr と Ba に関する分配係数が非常に大きいことである。分配係数の大きさは、Sr, Ba, K, Rb の順であり、そのような分配係数を持つ単独の相としては斜長石が挙げられる。角閃石についても比較的大きな、Sr, Ba, Rb に関する分配係数を有するが、この場合には、Zr, Y といった元素についても、高い分配係数を持つ必要がある<sup>1)</sup>。脊梁火山列起源マンツルにおける Zr, Y といった元素に関する分配係数が Sr, Ba 同様に高い値を示す証拠は今のところない。従って、推定された脊梁火山列起源マンツルが示す分配係数は、一連の部分溶融にあたって溶融相として斜長石が存在していたことを強く示唆している。

これらの脊梁火山列起源マンツルに対して、背弧側の森吉火山列ならびに鳥海火山列火山岩類を生成した起源マンツルが示す分配係数は、LIL 側で低く、Zr, Y と言った HFS 元素側で高い通常のスピネルレゾライトの部分溶融に際して期待される値をもっており、そのような起源マンツルから背弧側火山列火山岩類が形成されたことを示唆している。

東北本州弧火山フロント側と背弧側では、このように、初生マグマが生じるにあたって、起源マンツルにおける部分溶融相の違いが存在したと推定されるが、両者の間には起源マンツル組成そのものにも差が認められる。起源マンツル組成の絶対値は、本法では直接は決まらないが、H 元素 (Rb) の濃度を仮定することにより、絶対値を計算することが可能である。第 4 表では、起源マンツルにおける Zr 組成が 10ppm になるように Rb の値を決め、これを用いて起源マンツル濃度を計算している。第 4 表に示された結果からも、これまでに言われていた、火山フロント側で、Rb に対して Sr に富み、一方、背弧側で、Rb に対して Sr に乏しい傾向が読み取れる。また、鳥弧火山岩が一般的に持つと言われる、HFS に乏しく、LIL に富む傾向は火山フロント側でも背弧側でも認められるが、両者ではその内容が少し異なるようである。火山フロント側では、起源マンツルそのものが Sr や Ba に富んでいるのに対して、背弧側では、そのような傾向はなく、全体に LIL が HFS に対して高い。そして、Sr はむしろ K や Rb

に対して低い傾向がある。Nbの値に関しては分散が大きいために、Nbの負異常が起源マントルにおいても有るかどうかを明言することは難しい。特に火山フロント側起源マントルにおいて、Nbの負異常が存在することを明瞭に示す証拠はいまのところない。一方、背弧側においては、Nbが他のHFS元素に対して低い傾向は読み取れる。火山フロント側起源マントルにおける高いSrやBa含有量は、起源マントル中に斜長石そのものが存在している、あるいはかつて存在していたことを強く示唆している。

東北本州弧においては、このように、火山フロント側と背弧側マントルの組成不均質性が推定されると同時に、第四紀火山活動の軸部をなす脊梁火山列の火山岩中で同位体組成の多様性が認められ、それらの形成に多様な起源物質が関与した可能性が指摘されている<sup>32)</sup>。また、相伴うソレアイトとカルクアルカリ系列岩の間にも明瞭な同位体組成の差異が認められることがある<sup>32)</sup>。

Togashi et al.<sup>33)</sup>は東北本州弧火山フロント側火山に産する玄武岩類の微量元素組成ならびにSr-Nd同位体組成を示し、それらが微量元素組成上からも同位体組成上からも、より枯渇したものと、よりエンリッチしたものからなることを示している。さらに、彼女らは、これら両者が同じ始源マントルから20~10億年前以降における部分溶融作用の過程で生じたものであると論じている。既に述べたように、火山フロント側初生マグマが示す微量元素上の特徴は、これらの初生マグマが、斜長石を含有した均質なカンラン岩からの一連の部分溶融により派生した可能性を強く示唆している。しかも、これらは同位体的には不均質性を示し、枯渇したものから、エンリッチしたものまで、広い変化幅を示していることになる。

Togashi et al.<sup>33)</sup>は東北本州弧火山フロント側火山において見られる、起源物質における枯渇したものから、エンリッチしたものまでの多様な同位体組成幅を説明するモデルを示している。それによれば、これらはもともとは同位体組成的にエンリッチした共通の始源マントルに由来するものであり、それが20~10億年以降に起こった部分溶融作用によって、一部の起源物質について、同位体組成の枯渇化が進行したと考えている。すなわち、現在同位体組成的に見られる不均質性は、均質な始源マントルにおいて起こった多様な部分溶融作用により生じた、一連の残留マントル内におけるその後の年代効果に起因していると考えた。

つまり、東北本州弧火山フロント側火山岩は、東北本州弧火山フロント下に存在した、斜長石を含む均質な起源マントルにおいて、数10億年前以降に起こった部分溶融作用によって、現在、プロセス判定図上で見られるような一連の起源物質が生じ、その後、第四紀に至って、この起源マントルから様々な程度の部分溶融度（但し、ある程度以上の部分溶融度）のもとで、

マグマを形成することによって一本の直線上に乗り、しかも同位体的に不均質な一連の初生マグマが形成された結果であると結論される。

## § 8. おわりに

本論においては、東北本州弧における火山岩についてプロセス判定法を用いた解析を行った。その結果、東北本州弧においては、火山フロント側と背弧側とで、起源マントル組成ならびに部分溶融作用に関与した鉱物相の違いが存在することが明らかとなった。その原因としては、火山フロント側では斜長石を含むカンラン岩が部分溶融したのに対して、背弧側では、通常のスピネルカンラン岩が部分溶融した結果、プロセス判定図上で明瞭に異なるトレンドを描くにいたった可能性が考えられる。

但し、一方で、脊梁火山列の起源マントルにおいては同位体組成上の不均質性が存在する。従って、プロセス判定図上で、東北本州弧火山フロント側初生マグマが描く一本の直線は、これらのマグマを形成した起源マントルの直接の同源性を示すのではなく、20~10億年前<sup>30)</sup>と推定される一段前の段階における、斜長石を含有するマントルからの部分溶融の一連の産物から、再びマグマが生成するという重複した過程の結果であると結論される。

本報告を作製するのに基礎となった多くのデータを出すにあたって、東北大学核理研の榎本和義博士、現在金研に移られた八木益男教授、ならびにライナック・マシングループの方々、東北大学サイクロトロンRIセンターの中村尚司教授、山寺亮博士をはじめ職員の方々には大変お世話になった。東北大学岩鉱教室の大沼晃助教授、藤巻宏和博士には、諸般にわたって御助力頂き、また常日頃議論いただいている。本論をまとめるにあたっては、地質調査所、富樫茂子博士に貴重な御意見を頂いた。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金 (Nos. 62103003, 63460048) 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) J. B. Gill : *Orogenic andesites and plate tectonics*. (Springer-Verlag, 1981) p. 390.
- 2) C. J. Allégre, M. Treuil, J-F. Minster, B. Minster and F. Albarede : *Contrib. Mineral. Petrol.* **60** (1977) 57.
- 3) C. J. Allégre, J-F. Minster : *Earth Planet. Sci. Lett.* **38** (1978) 1.
- 4) A. W. Hofmann and M. D. Feigenson : *Contrib. Mineral. Petrol.* **84** (1983) 382.

- 5) H. Kuno : Bull. Volcanol. **20** (1959) 37.
- 6) 高橋正樹, 藤縄明彦 : 三鈹学会 (弘前) 講演要旨集 (1983) p. 30.
- 7) 中川光弘, 霜鳥洋, 吉田武義 : 岩鈹 **81** (1986) 471.
- 8) M. Sakuyama, and R. W. Nesbitt : J. Volcanol. Geotherm. Res. **29** (1986) 413.
- 9) 中川光弘, 霜鳥洋, 吉田武義 : 岩鈹 **83** (1988) 9.
- 10) 富樫茂子, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **19** (1986) 139.
- 11) 石川賢一, 吉田武義, 北川嘉彦, 青木謙一郎, 大上和良 : 核理研研究報告 **18** (1985) 366.
- 12) 霜鳥洋, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **16** (1983) 30.
- 13) 吉田武義, 渡部均, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **16** (1983) 309.
- 14) 石川賢一, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **17** (1984) 330.
- 15) 吉田武義, 阿部智彦, 谷口政碩, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **20** (1987) 131.
- 16) 藤縄明彦, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **17** (1984) 356.
- 17) 佐々木寧仁, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **18** (1985) 175.
- 18) T. Yoshida and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III **16** (1984) 1.
- 19) 中川光弘, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **17** (1984) 375.
- 20) 林信太郎, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **17** (1984) 382.
- 21) 小泉治彦, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **17** (1984) 391.
- 22) 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **21** (1988) 268.
- 23) J-F. Minster and C. J. Allégre : Contrib. Mineral. Petrol. **68** (1978) 37.
- 24) Y. Tatsumi, M. Sakuyama, H. Fukuyama and I. Kushiro : J. Geophys. Res. **88** (1983) 5815.
- 25) T. L. Wright and P. C. Doherty : Bull. Geol. Soc. Am. **81** (1970) 1995.
- 26) D. M. Shaw : Geochim. Cosmochim. Acta **34** (1970) 237.
- 27) T. Tomita : J. Shanghai Sci. Inst. Sect. II **1** (1935) 227.
- 28) T. Yoshida, K. Masumoto, and K. Aoki : J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. **81** (1986) 406.
- 29) O. Ujike : J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. **82** (1987) 245.
- 30) 酒寄淳史, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **20** (1987) 153.
- 31) 酒寄淳史, 吉田武義 : 日本火山学会1988年度春季大会予稿集 (1988) p. 25.
- 32) 倉沢一, 藤縄明彦, W. P. Leeman : 地質雜 **92** (1986) 255.

- 33) S. Togashi, T. Tanaka, T. Yoshida, K. Ishikawa, A. Fujinawa and H. Kurasawa :  
(投稿中) .



## IV. 加 速 器 · 測 定 器



## プラスチック・シンチレーターを用いた (e, e' p) 実験装置

核理研, 教養部\*, 情教センター\*\*

松山日出人・田所孝広・野村昌弘

菅原真澄・玉江忠明・宮瀬晴久\*

坪田博明\*・川添良幸\*\*

### § 1. 序

現在, 核理研においてパルスビーム・ストレッチャー (SSTR) より得られる連続電子線を用い, (e, e' p) 同時計数実験が行われている。この実験では, 陽子検出器としてエネルギー分解能が良い表面障壁型シリコン半導体 (SSD) を用いているが, 厚い検出器を得ることが難しく, 高い励起状態から放出される比較的エネルギーの大きな陽子を検出するには不向きである。また, この検出器は比較的高価なので, 一度に使用できる検出器の個数が制限され, 多くの位置における角度分布の測定に対し不利である。

そこで, 現在我々は, 陽子検出器としてプラスチック・シンチレーターを用いた (e, e' p) 同時計数実験の整備を進めている。プラスチック・シンチレーターは, エネルギー分解能はSSDより劣るが, 安価に厚い検出器を作ることができるため, 既設のSSDよりも高いエネルギーの陽子の測定が可能である。今回, 陽子検出器にプラスチック・シンチレーターを用いた (e, e' p) 実験装置を製作し, 巨大共鳴領域で $^{16}\text{O}$  (e, e' p $_0$ ) 反応の実験を行い, オフ・プレーンを含む11点で放出陽子の角度分布を測定した。オフ・プレーンを含む角度分布を測定することにより, 従来の電子散乱からは求められなかった, 縦成分のマトリックスと横成分のマトリックスとの干渉項が測定できる。現在, データは解析中であり, 今回は装置と結果の簡単な報告に留める。

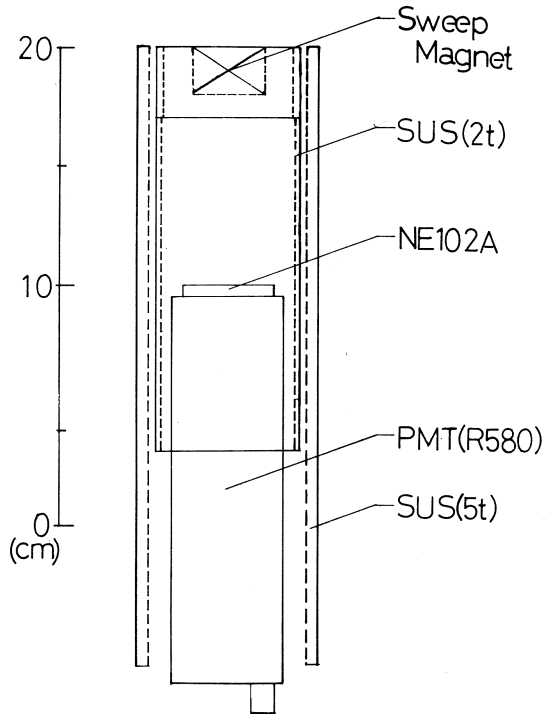
### § 2. 装置の概要

ここでは主に陽子検出器について述べる。多線比例計数管 (MWPC) とプラスチック・シンチレーターを用いた散乱電子検出系, データ収集系等の詳細は, 以前の核理研研究報告<sup>1-2)</sup>を参照されたい。

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標的に照射される。散乱電子は大型磁気スペクトロメーター (LDM) によって運動量分析された後, 3層の

MWPCとバックアップ用の2層のプラスチック・シンチレーターにより検出される。

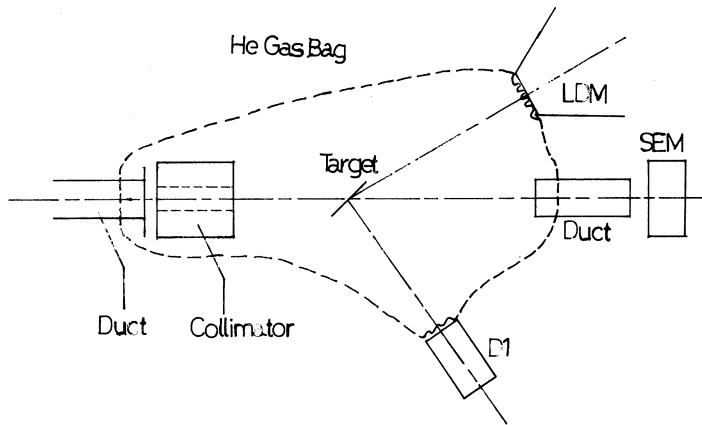
標的核からの放出陽子は $1.5'' \phi \times 5 \text{ mm}^1$ のNE102Aプラスチック・シンチレーターにより検出される。使用した光電子増倍管は、 $1.5'' \phi$ のR580（浜松ホトニクス製）である。陽子検出器の構造を第1図に示す。プラスチック・シンチレーターは周囲からのバックグラウンドを避けるため、ステンレス $5 \text{ mm}^1$ 、 $2 \text{ mm}^1$ の2つの円筒によりシールドされ、さらに、標的方向から来る低いエネルギーの電子を除くように、中心磁場にして $2.5 \text{ kGauss}$ のスweep・マグネットが前方に配置されている。このスweep・マグネットにより、標的方向から入射する約 $1 \text{ MeV}$ 以下の電子は完全に除かれる。この陽子検出器が、標的からプラスチック・シンチレーターまでの距離にして $30 \text{ cm}$ の場所に11点設置されている。検出器の立体角は各々 $12.6 \text{ msr}$ であり、プラスチック・シンチレーターの厚さから計算される、陽子の測定可能な最大エネルギーは約 $22 \text{ MeV}$ である。



第1図 陽子検出器。検出器の前方には低エネルギー電子を除くための永久磁石がある。

今回の実験は、陽子検出器の大きさの問題から通常使用している真空散乱槽が使用できず、ヘリウムガスを入れたガスバック中に標的を設置し行った。ヘリウムガスバックの配置の概略を第2図に示す。ビームラインである真空ダクトとヘリウムガスの間は $50 \mu\text{m}$ のチタン箔を置き、真空を保っている。ヘリウムガスを使用した理由は、i) バックグラウンドをおさえる、ii) 放出陽子のガス中でのエネルギー損失をおさえることである。ガスバックとしてポリエチレンの袋を用い、標的から陽子検出器のスweep・マグネット前面までの間 $20 \text{ cm}$ がヘリウムガスで満たされている。なお、今回の測定の中心となる、エネルギーにして $10 \text{ MeV}$ 前後の陽子のヘリウムガス $20 \text{ cm}$ 中でのエネルギー損失は $0.1 \text{ MeV}$ 程度である。

同時計数は、電子検出系のバックアップ用プラスチック・シンチレーターの信号と放出陽子検出用のプラスチック・シンチレーターの間で行われ、各事象毎にMWPCのチャンネル、陽子



第2図 ヘリウムガスバックの概略。陽子検出器は簡単のためD1のみを示した。左側の真空ダクトは $50\ \mu\text{m}$ のチタン箔で真空が保たれている。

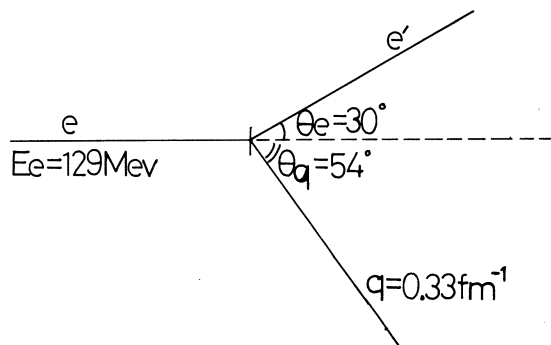
検出用プラスチックシンチレーターの出力波高、散乱電子と放出陽子との間の時間差がリストデータとして取り込まれる。

### § 3. 実験結果

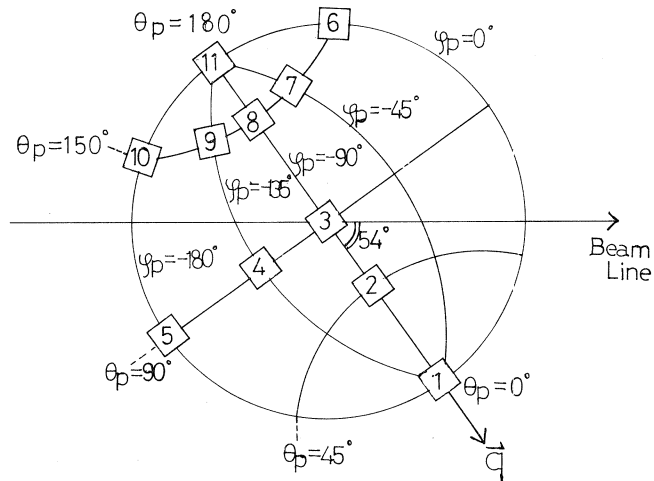
実験は励起エネルギーにして $21.8\sim 26.8\text{MeV}$ の $^{16}\text{O}$ 巨大共鳴領域において、共鳴状態から陽子を放出し、残留核 $^{15}\text{N}$ を基底状態に残す反応におけるいわゆる $p_0$ を捕え、励起関数及び、オフプレーンを含む角度分布を測定した。

$^{16}\text{O}$ 核を標的核として選択した理由は、i) 他の実験から比較的良く知られている核であり、ii)  $(e, e'p)$  反応のRPAなどの理論計算があることから、実験結果との比較が容易であることである。

実験条件を第3図に、陽子検出器の配置を第4図に示す。標的は $\text{BeO}$ を使用し、厚さは $90\text{mg}/\text{cm}^2$ 、入射電子に対して水平方向に $45^\circ$ 、垂直方向に $45^\circ$ 傾けてある。 $\text{Be}$ 核からの放出陽子は $Q$ 値との関係から $^{16}\text{O}$ 核から放出される $p_0$ と十分分離可能である。入射電子のエネルギーは $129\text{MeV}$ 、平均電流は約 $100\text{nA}$ で行った。現在、このデータは解析中であり、励起関数、角度分布等は次号に示す。



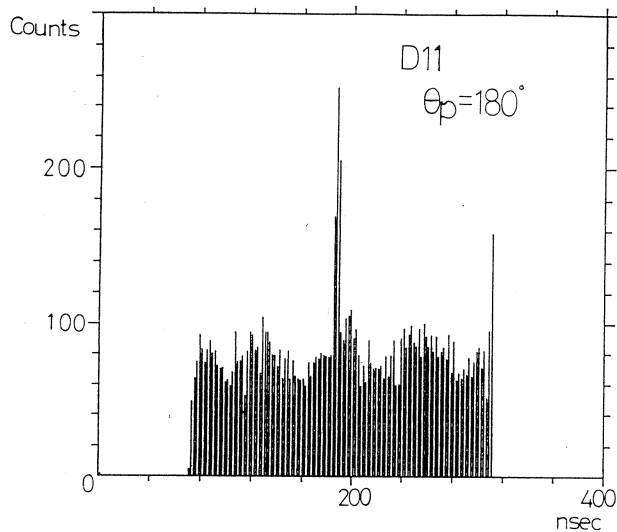
第3図 実験条件。



第4図 陽子検出器の配置。1～11は検出器の位置を示す。

### 3.1 同時計数時間差スペクトル

TDC (Time to Digital Converter) で測定した散乱電子と放出陽子の同時計数時間差スペクトル第5図に示す。中央のピーク部分が真の事象、全体に広がっている平らな成分が偶然事



第5図 散乱電子と放出陽子の時間差スペクトル。検出器No.11のデータ。

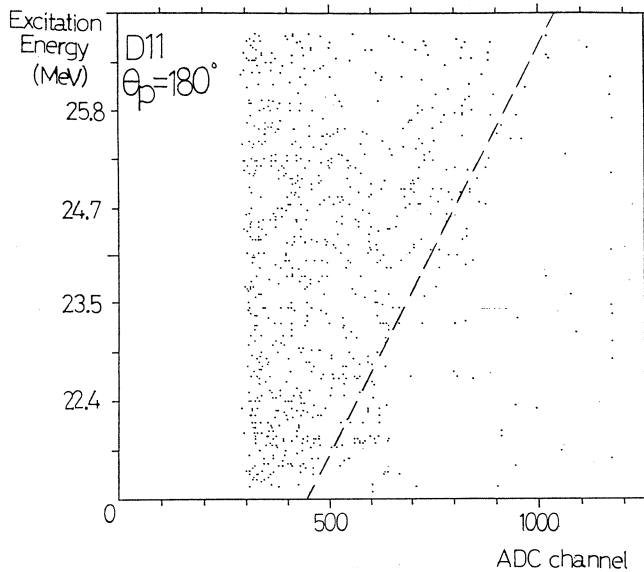
象である。S/N比を真の事象と偶然事象との比と定義すれば、11台の陽子検出器 (D.1～D.11) のS/N比は1/2～5程度である。D.2, D.5のS/N比が特に悪く、1/2程度であるが、これは標的の傾きと検出器との位置関係から、標的の有効な厚さが厚く、放出陽子が標的の中

止ってしまう割合が高いためと考えられる。

ピークの半値幅から求めた時間分解能は約 5 nsecである。

### 3.2 粒子識別

同時計数時間差スペクトルに依って真の事象を取り出し，横軸に陽子検出器の出力波高に対応するADC (Analog to Digital Converter) チャンネル，縦軸に励起エネルギーをとり，2次元表示したものを第6図に示す。図の点線に沿った周辺が  $p_0$  の事象であり，励起エネルギー



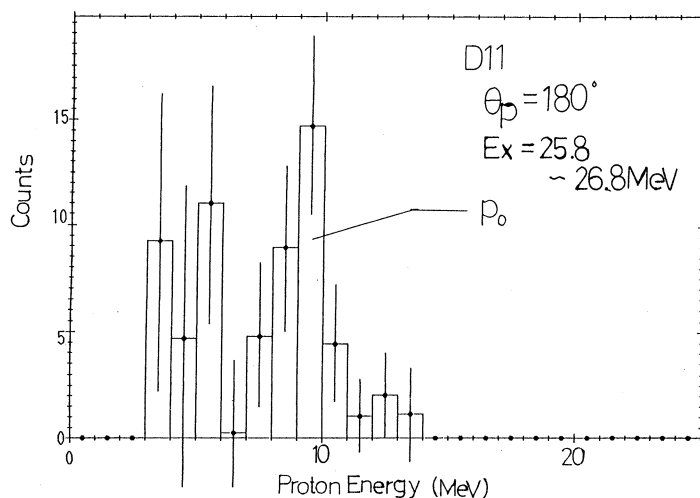
第6図 横軸ADCチャンネル，縦軸励起エネルギーの2次元表示。点線は  $p_0$  事象の存在を示す目安である。

に対応してADCチャンネルが高くなり，放出陽子エネルギーが大きくなっているのがわかる。

しかし，検出器はプラスチック・シンチレーター一層のE型検出法であるため， $\gamma$ 線，電子等のバックグラウンドを除くことができず，また，標的の厚さに原因する放出陽子のエネルギーの広がりやプラスチック・シンチレーター本来のエネルギー分解能の問題から， $p_0$ のみの事象の範囲を決定するにはかなりの解析が必要である。

### 3.3 陽子エネルギースペクトル

上記のデータから励起エネルギー  $E_x = 25.8 \sim 26.5 \text{ MeV}$  の部分を取り出し，得られた陽子エネルギースペクトルを第7図に示す。これはバックグラウンドの統計的差し引きを行った後のものである。6 MeV以下にあるバックグラウンドに対し， $p_0$ が分離できていることがわかる。ピークの半値幅から求められるエネルギー分解能は2 MeV程度である。



第7図 第6図のデータから励起エネルギー $E_x=25.8\sim 26.8\text{MeV}$ の部分を取り出した陽子エネルギースペクトル。

しかし、前述の標的の有効な厚さが厚く見えている検出器のデータは、陽子エネルギーの広がりが大きく、 $p_0$ を分離する解析を進めている。

#### § 4. まとめ

以上に述べてきたように、陽子検出器にプラスチック・シンチレーターを用いた( $e, e'p$ )実験が可能であることが明らかとなった。今後実際に、明らかとなった問題点を以下に述べる。

現在の測定方法ではバックグラウンドの影響が大きく、十分な $S/N$ 比を得ることができない。バックグラウンドの源として、真空を保っているチタン箔及び標的自体からの $\gamma$ 線、電子等が考えられ、前者は専用の真空散乱槽を製作することにより解決されるであろう。また、後者に対しては、低圧MWPCや薄いプラスチック・シンチレーターなどを使った $\Delta E$ 型検出器を製作し、 $\Delta E-E$ 型検出器とすることにより、標的自体からのバックグラウンドと真の事象を分離できるであろう。なお、この( $e, e'p$ )実験用低圧MWPCは現在開発中であり、文献3), 4)を参照されたい。

次に標的の厚さ等による陽子のエネルギー失損に原因するエネルギー分解能の悪化の問題がある。今回は $^{16}\text{O}$ 核を探るために容易に標的に利用できる $\text{BeO}$ を使用したか、厚さが $90\text{mg}/\text{cm}^2$ と比較的厚く、結果として放出陽子のエネルギーが拡ってしまい、エネルギー分解能を悪化させている。今後は薄い標的( $10\text{mg}/\text{cm}^2$ 以下)を使用することが必要である。また、ヘリウムガスバック中でのエネルギー失損は比較的小さいとはいえ、エネルギー分解能を良くす

る必要がある場合には専用の真空散乱槽が必要である。

### 参 考 文 献

- 1) 日野 威, 他: 核理研研究報告 17 (1984) 228.
- 2) 川原英明, 他: 核理研研究報告 17 (1984) 427.
- 3) 生井克正: 修士論文 (1987) 東北大学.
- 4) 生井克正, 他: 核理研研究報告 21 (1988) 101.

## Development of a Liquid Helium Target System for the ${}^4\text{He}(\gamma_{\text{tagged}}, X)$ Experiment

O. Konno, A. D. Bates <sup>††</sup>, K. Maeda <sup>†</sup>, D. J. McLean <sup>††</sup>,

I. Nomura, Y. Sugawara, and T. Terasawa

*Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University*

<sup>†</sup> *College of General Education, Tohoku University*

<sup>††</sup> *School of Physics, University of Melbourne*

### §1. Introduction

The comparison of  ${}^4\text{He}(\gamma, n)$  and  ${}^4\text{He}(\gamma, p)$  cross section is one of the most sensitive tests of the isospin and charge symmetry nature of the  ${}^4\text{He}$  nucleus. As  ${}^4\text{He}$  is the simplest self conjugate nucleus, it was thought that a complete study of these subjects had been made. However in the last 10 years, measurements of these reactions have shown a cross section ratio  $R_\gamma = \sigma(\gamma, p) / \sigma(\gamma, n)$  of between 1.5 and 1.9 at excitation energies  $E_x$  below 30 MeV<sup>1)</sup>. As photo-nuclear reactions proceed predominantly by electric dipole ( $E1$ ) radiation, the large  $R_\gamma$  value is thought to be due to isospin mixing between the  $T=0$  and  $T=1$ ,  $J^\pi = 1^-$  states. However, Coulomb effects can explain about 90% of the  $R_\gamma$  value. These results suggest the presence of a charge-symmetry-breaking nuclear force in the  ${}^4\text{He}$  nucleus<sup>2)</sup>.

A liquid helium target system has been manufactured for the  ${}^4\text{He}(\gamma_{\text{tagged}}, X)$  experiment of about mentioned physics motivation. The purpose of this experiment is the simultaneous detection of outgoing protons and neutrons in the paasideuteron region, and the measurement of the photo-neutron cross section of the Giant Resonance region. To provide a target of adequate thickness for this experiment, a liquid helium target system is necessary. The system should meet these requirements: the sample walls and beam entrance/exit windows should be thin to minimize their background contribution, the boiling rate of the sample should be as low as possible to minimize uncertainty in the sample thickness, the lifetime of the liquid helium reserve within the cryostat should be long to minimize refilling and consequent interruption to data taking, and the system must be reliable.



## LIQUID HELIUM TARGET SYSTEM

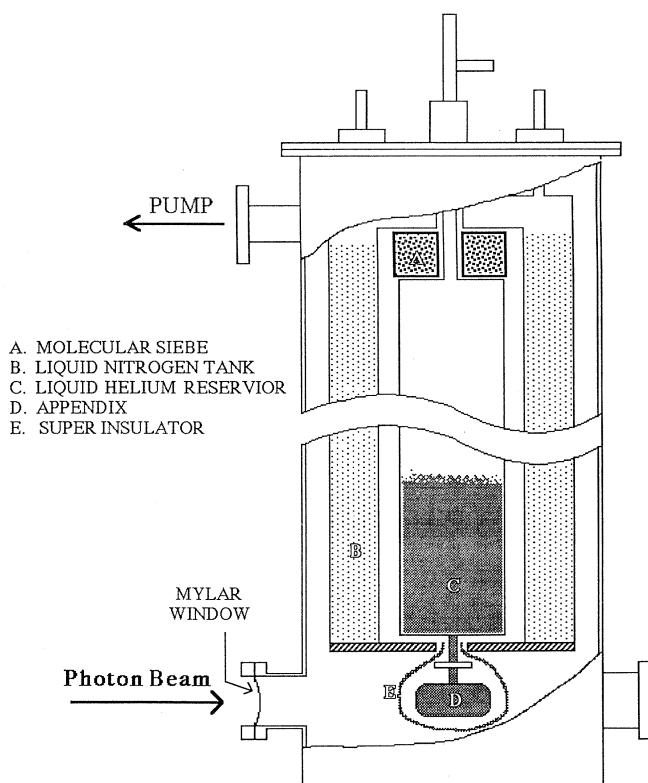


Fig. 1. The liquid helium target system.

## §2. Liquid helium target system

The liquid helium target system is shown in Fig. 1. The system consists of an outermost vacuum shield, inside this an annular liquid nitrogen reservoir, shielding an innermost 10 ℓ liquid helium reservoir. There is a pipe projecting from the underside of the helium reservoir. A suitable sample container, located centrally on the beam line which passes through the lower part of the cryostat, can be attached to this pipe.

All components are surrounded by a high vacuum, typically of the order of  $10^{-4}$  Pa. The reservoir supports are designed to minimize heat conduction into the reservoirs. The reservoirs are each wrapped in approximately 40 layers of ultra-thin aluminized "super insulation." This reduces radiative heat transfer from warmer to cooler components by several orders of magnitude.

The entrance and exit windows for the tagged photon beam are made from 200  $\mu\text{m}$

Mylar film. The sample can be viewed by proton detectors on one side through a  $100\ \mu\text{m}$  Mylar window.

The liquid helium sample container (or appendix) is a cylinder 150 mm long and of 50 mm diameter, giving a helium target thickness of  $0.47\ \text{mol}/\text{cm}^2$ . It is made of  $200\ \mu\text{m}$  Mylar film, to minimize its contribution to background, and glued with *STYCAST 1266*, an epoxy-type contact adhesive. The appendix is glued to the tube from the liquid helium reservoir with *STYCAST 2450GT*, an epoxy-type moulding glue with high heat conductivity. The appendix is illustrated in Fig. 2.

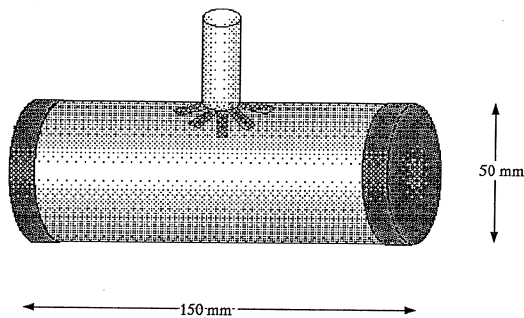


Fig. 2. Mylar appendix.

Radiative heat transfer from the outer wall of the cryostat (at room temperature) into the sample (at 4.3 K) causes the sample to boil. The resultant bubbles of helium gas

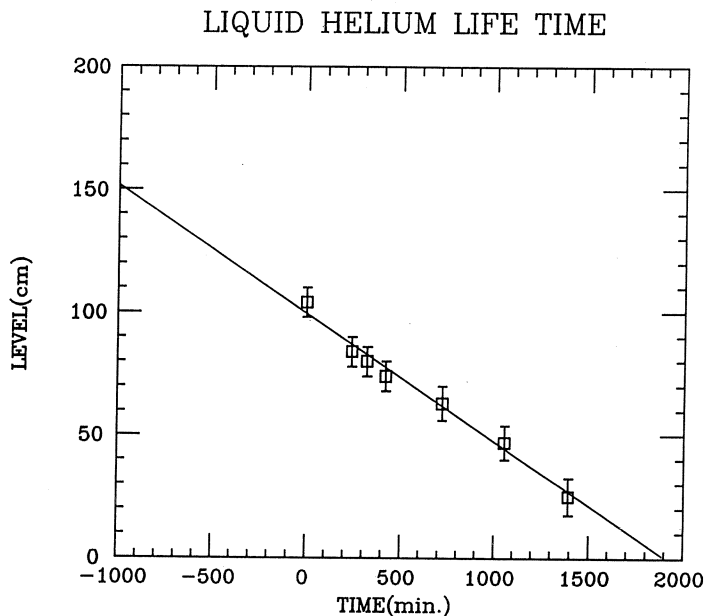


Fig. 3. Lifetime of the liquid helium reseve.

reduce the effective target thickness. To minimize this, the apperdex is surrounded by ten layers of super insulation. This reduction in thickness, estimated from the halium

evaporation rate, is less than 1 %.

### § 3. Results

The lifetime of the liquid helium reservoir was estimated from measurements of the rate of helium gas outflow and of the rate of decrease in the liquid helium level. In normal operation, the lifetime was up to 60 h, as shown in Fig. 3. During the experiment, the liquid helium reservoir was refilled once daily from a 60  $\ell$  external Dewar.

This target system has been used for the  ${}^4\text{He}(\gamma_{\text{tagged}}, X)$  experiment, which lasted a total of 22 shifts over five weeks. The target system was cycled between room and liquid helium temperature three times during the experiment. Operation of the cryostat was completely trouble-free.

### References

- 1) J. R. Calarco *et al.* : Phys. Rev. C **22** (1983) 1866.
- 2) Lei Ge and J. P. Svenne : Phys. Rev. C **33** (1986) 417.

## $\pi$ — 中間子測定用広帯域電磁石

理学部物理, 核理研\*, 教養部\*\*, 富士通\*\*\*  
 山屋 堯・庄田勝房\*・佐藤 理\*\*\*  
 小林毅範\*・加賀谷聡\*・竹下邦和\*  
 島田太平\*・山崎寛仁\*・坪田博明\*\*

### § 1. はじめに

核理研において反応粒子分析用電磁石として実用化されている電磁石には電子散乱用スペクトロメーターがあり、このスペクトロメーターで電子散乱、光生成荷電中間子が測定されている。この大型電磁石 (LDM) は種々の性能の面で優れているが、非常に生成断面積の小さい光生成荷電中間子を測定するような場合は、運動量分解能よりも、むしろ立体角のより大きい事を必要とする実験が少なくない。幸いにも、かつてビーム輸送用に使用された電磁石が転用可能となり、Engel型広帯域スペクトロメーターとして荷電粒子測定用に提供された。電子散乱用大型スペクトロメーター (LDM) との性能の比較を第1表に示してある。

第1表 電子散乱用大型電磁石スペクトロメーター (LDM) と大立体角中間子測定用広帯域磁気スペクトログラフの性能の比較。

	Present LDM Spectrometer	Pion Spectrometer (tentative specifications)
Magnetic Configuration	double focussing (169.8° deflection)	dipole (Engel type)
Solid angle	6 msr.	5~10 msr.
Angular Acceptance:		
(in horizontal plane)	±20 mr.	±30 mr.
(in vertical plane)	±57 mr.	±70 mr.
Path length (central ray, target to central detector)	4.6 m.	1.3 m.
Radius	1.0 m.	~0.2-0.4 m.
Maximum B (*)	10 kilogauss	10 kilogauss
Dynamic Range $\frac{\Delta p}{p}$	3.3%	~50%
Maximum momentum	300 MeV/c	150 MeV/c
Maximum pion-energy	200 MeV	65 MeV
Momentum resolution	$5 \times 10^{-4}$	$2 \times 10^{-3}$
Angular range	Variable (25° -155°)	Variable (40° -140°)

\* Available up to ~ 13 Kilogauss

LDMと荷電中間子用スペクトロメーターの主な相違点は、Dynamic Range, Momentum resolution, ターゲットから検出面までの central ray と Maximum momentum である。ここで測定効率に直接関与するのは、central ray と dynamic range の性能の違いであり、20-40 MeVのエネルギーの中間子ではLDMの約30倍の効率を得られる筈になる。しかしながらLDMと比較しての弱点は、Maximum moment が小さいため、陽子の場合はせいぜい13MeVが測定可能な最高エネルギーとなる。又、外部バックグラウンドに対する遮蔽の点である。以上の点を考慮しながら当面、中間子の測定を実用化するために開発整備が行われた。

## § 2. 広帯域磁気スペクトログラフ

### 2. 1 電磁石

電磁石のポールピース部分の設計はEnge型であるが、直線焦点面のすべての点で、2次の項による収差が非常によりよい近似で考慮されている。曲率半径は20~40cm, 入射角度は $35.4^\circ$ , セクター角度は $109^\circ$  である。我々が知り得たパラメーターを用いて計算された結果が、第2表に示されている。

第2表 広帯域磁気スペクトログラフの最小及び、最大曲率半径における倍率及び運動量分解の計算値。

	曲 率 半 径	
	$\rho = 20\text{cm}$	$\rho = 40\text{cm}$
倍率 (垂直)	0.70	0.65
(水平)	0.05	0.20
運動量分解能	$1 \times 10^{-3}$	$5 \times 10^{-3}$

分散に関しては、この型の電磁石の特徴として、有効曲率半径領域ではほぼ一定である。したがって、運動量分解能が曲率半径に依存しているのは、水平方向（運動量分解方向）の倍率が曲率半径に強く依存しているためである。ここで磁石のポールピース間隙は4.5cm, 磁石のもれ磁場の形はShort cut off の型でそのパラメーターは0.414をとっている。

### 2. 2 検出器システム

粒子の検出器システムは焦点面の最前面に128本からなる多重芯線ガス比例計数箱と64本の多重芯線ガス比例計箱2ヶからなる3層の位置検出ガス比例計数装置が設置されている。ガスとしては市販のP-ガスが用いられ、電圧は-3000Vが印加された。しかし今回のテスト実験

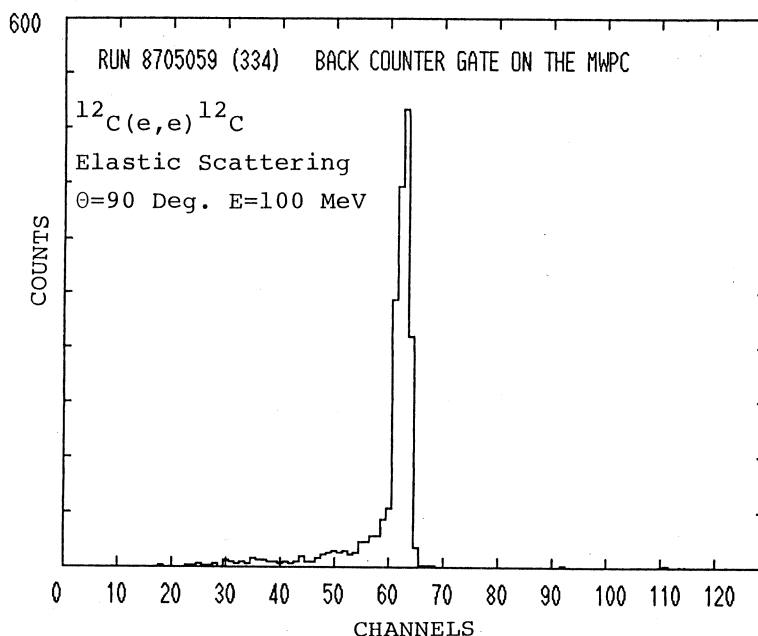
では第一層の2 mm間隔に張られた多重芯線比例計数箱のみが使用された。この位置カウンターによって電磁石の焦点面に収束される粒子の位置の情報が得られ、測定粒子の運動量の情報が得られる。ガスカウンターの後面には2 mmと5 mmからなる2枚のプラスチックシンチレータが固定され、通過する際に失われる粒子のエネルギー損失の差異から電子と中間子の弁別をする一つの因子とする。さらにプラスチックカウンターの後面には、4分割されたチェレンコフカウンターが設置され、電子と中間子の速度の差から中間子を弁別する他の一つの因子とする。今回は中間子のエネルギーが50 MeV以下であるために、中間子に対して、チェレンコフ・カウンターは光を発しない。従って、チェレンコフカウンターからの信号をプラスチック及びガスカウンターの信号に対して拒絶信号として使用することによって、他の検出器からの中間子による信号のみを弁別することが可能になる。

### 2. 3 データ転送システム

多重芯線ガスカウンター (MWPC) から合計256の信号が得られる。これらをLDMと全く同様の転送システムでデータ転送するため、PCOSシステムが改良された。即ち測定室側にあるOKIミニタックヘデータを転送するインターフェースに整合するように、電磁石側のインターフェースが新たに製作された。このインターフェースは当時、博士課程に存学していた佐藤理加賀谷聡両氏によって全面的に製作された。他方バックカウンター (プラスチックシンチレーション・カウンター及びチェレンコフ・カウンター系) システムからの信号はエレクトロニクス回路系で高速処理を施した後、CAMACシステムを経て計算機へ収納され、MWPCからのデータと共にリストデータとして磁気テープに収録される。これらのデータ収集系のソフトウェアは、すべてLDMの現存のものを使用出来るようにされている。

### § 3. 弾性散乱の測定

現実に電磁石を実験に提供するには、弾性散乱による総合的なテスト及び、電磁石の性能のデータが必要である。データとしてはスペクトルの運動量分解能 (磁石の焦点面上の各点での分散、倍率等をも含む)、焦点面での位置と運動量の関係を較正する運動量較正曲線の導出、そして焦点面での位置に関する検出効率の測定 (磁石の運動量分解能軸に垂直な方向の倍率をも含む) 等である。しかし現在の時点で電磁石に使用可能な磁場測定装置NMRの磁場測定限界の上限が10 KGauss であるため、これらの正確な値は得られなかった。最近、新たに、エコー電子社製EFM-3000Aを購入したことにより詳細な性能は次回の機会に測定をする。ここでは典型的な弾性散乱スペクトルとして $^{12}\text{C}$  ( $e, e$ ) の結果を第1図に示す。



第1図  $^{12}\text{C}$ ターゲットからの100MeV電子の弾性散乱スペクトル。エネルギー分解能は半値巾で約650keV。

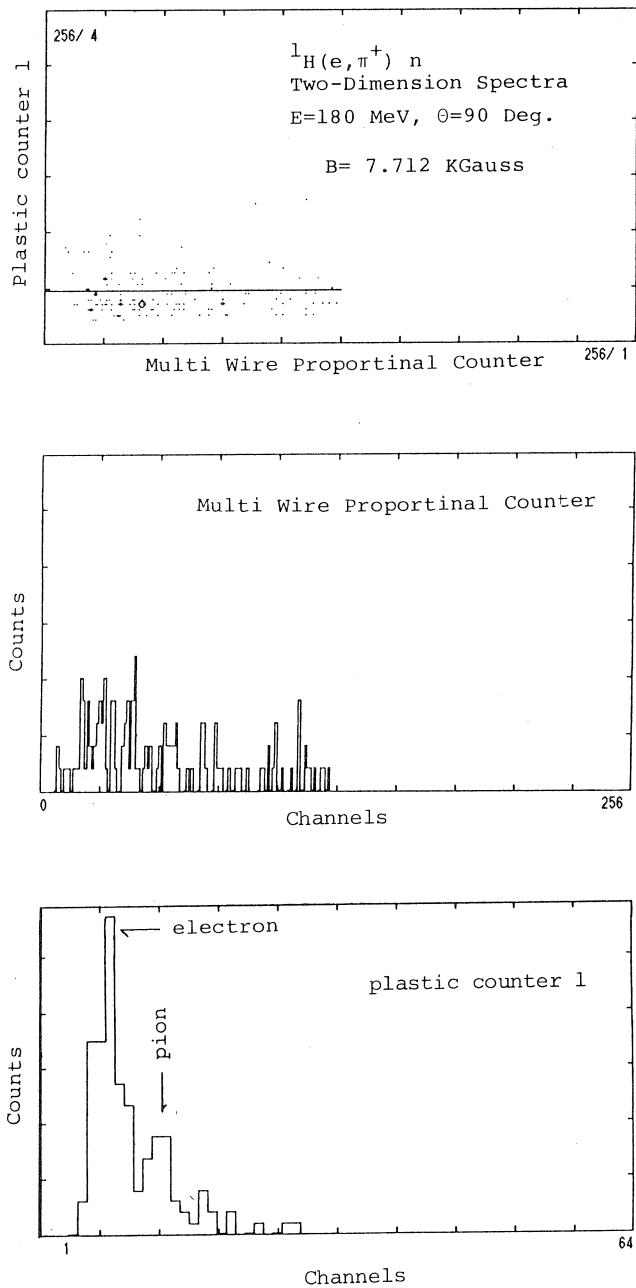
弾性散乱から得られたエネルギー分解能は約650keVであり、これは入口スリットの大きさとターゲット内でのエネルギー損失を考慮すれば、ほぼ妥当の値と思われる。又弾性散乱に関しては、外部からのバックグラウンドの影響は問題なかった。

#### § 4. $\pi^+$ 中間子の測定

ガンマ線による $\pi$ 中間子の発生は、多くても $10^{-30}\text{cm}^2$ 程度の断面積であり、非常に小さい。そのため周辺のバックグラウンド、陽・陰電子との弁別等、多くの困難な点が多い。中間子以外の粒子を除外する因子として $10^\circ$ 程度の値が必要である。現テスト実験では、180MeVの入射エネルギーで水素をターゲット(L;H)として、 $\pi^+$ 中間子を発生させた。 $^1\text{H}(\gamma, \pi^+)$ の断面積は比較的大きく、約 $7\mu\text{b}/\text{sr}$ である。

第2図に $^1\text{H}(e, \pi^+)$ 反応で得られた2次元スペクトルを示す。MWPCと2つのプラスチックカウンターのテレスコープから得られた信号にチェレンコフ検出器からの信号を拒絶信号として用いたスペクトルである。第2図の真中の図はMWPCに射影したスペクトルであり、運動量スペクトルを示す。下部の図は2次元スペクトルのプラスチック側に射影したスペクトルであり、プラスチック検出器による電子と中間子のエネルギー損失スペクトルである。このス

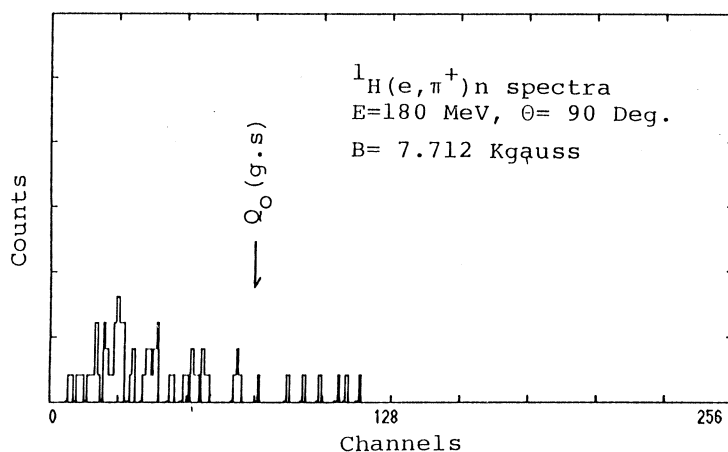
ペクトルから電子と中間子のエネルギー損失の差異が明確に示されている。



第2図 水素ターゲットからの光吸収中間子の2次元スペクトル(上)と磁石の焦点面への射影スペクトル(中)及び第一段プラスチック・シンチレーション検出器への射影スペクトル(下)。プラスチック検出器によるエネルギー損失スペクトルでは電子と中間子がよく分離されているのがわかる。



2次元スペクトルとプラスチックスペクトルに見られるように、バックグラウンドとしての電子（この場合は陽電子）がチェレンコフ検出器からの拒絶信号にもかかわらず残っている事がわかる。これはチェレンコフ検出器が十分に働いていない事を示すものである。第3図にプラスチック1, 2検出器によって弁別された信号を使用してMWPCからの信号にゲートを開いた結果を示す。予測された位置から中間子のチャンネルが開けている事がわかる。しかし電子等のバックグラウンドが未だ残っていて、まだ他の粒子との弁別が充分でない事を示している。



第3図  ${}^1\text{H}(e, \pi^+)n$  反応からの中間子スペクトル。チェレンコフ検出器からの拒絶同時計数及びプラスチック検出器による中間子弁別法で中間子が弁別された。

## § 5. 考 察

広帯域電磁石で、とにかくも中間子が測定された。しかしながら、実用化に対しては、未だいくつかの問題点が残っている。これらの問題点は、中間子が測定された時点で新たに見出されたものである。問題点として、

- 1) 電磁石のポールの境界面に対する入射粒子の入射角度が正しいか。これは重要な因子で電磁石の性能を変える心配がある。
- 2) バックカウンタに使用している光電子増倍管に、電磁石からのもれ磁場が作用している。  
したがってチェレンコフ検出器等、光の弱い検出器は充分性能を出していない。
- 3) MWPCの第2, 第3層のガスカウンターの利用方法, これは電磁石の性能が異なるのでLDMとは大幅に異なる。
- 4) 検出効率の向上に関しては、今回の実験結果はLDMと同様な結果であった。これに関し

てはいくつかの原因が考えられるが、10～30倍、効率を向上させる事によってこの電磁石の開発の意義が出て来る。

5) 現在この電磁石の電源はLDMと共用している。LDMと同時計数の実験を計画する場合には、60V, 150A,  $10^{-5}$ の安定度の電源が必要となる。

等が今後の開発の主な課題になるが、非常に少ないマシンタイム、(2日/年)又はマシンの故障等でなかなか予定通りに進まないのが実情であった。にもかかわらずこのテスト実験の遂行のために努力を惜しなかった核理研のスタッフの方々に感謝する次第である。

## Renewal of the KAKURIKEN On-line Data Taking System

K. Maeda, D. McLean<sup>†</sup>, M. Mutoh<sup>††</sup> and Y. Sugawara<sup>††</sup>

*College of General Education, Tohoku University*

<sup>†</sup>*School of Physics, University of Melbourne*

<sup>††</sup>*Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University*

A new on-line data acquisition system, based on CAMAC and Micro VAX II hardware, has been installed to meet the medium-scale data taking requirements of coincidence

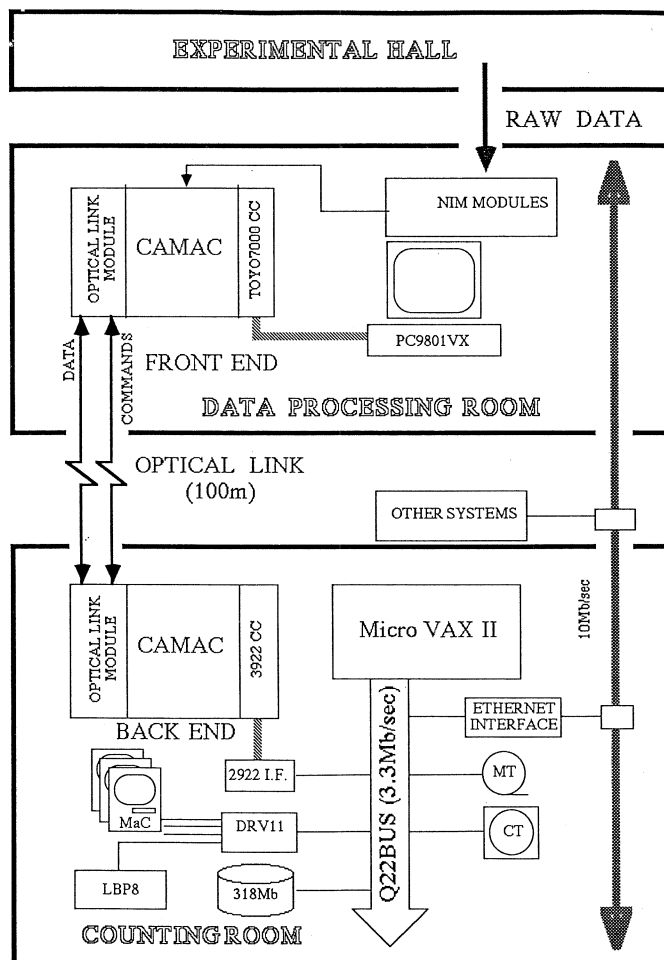


Fig. 1. Outline of the new data acquisition system.

experiments. This combination of hardware is commonly used for on-line data acquisition systems in intermediate and high energy nuclear physics. Consequently, the real time programming techniques are well established and a number of useful program libraries are available.

The system is divided into three parts. In the first stage, data acquisition and front-end processing, are controlled by an NEC PC9801VX personal computer. Raw data from the detectors in the second experimental hall are processed by NIM-standard electronics and passed to front-end CAMAC modules. Raw data are collected event-by-event and stored in a memory buffer. The second stage is the transfer of the data via an optical link from the front-end to the back-end processor. The data link passes through the Klystron gallery, where there is a large amount of electromagnetic noise. This would interfere with the operation of an electronic link but an optical link is immune to this noise. Finally the data are received by the Micro VAX II through a back-end CAMAC crate. The event by event data are stored on magnetic tape and simultaneously analyzed for on-line monitoring. An outline of this system is shown in Fig. 1. This system is about ten times faster than the previously used system. Its components are described below.

### **Front-End Processing**

The raw data from the detectors are firstly processed by NIM-standard modules. When the appropriate coincidence conditions are met, the hardware generates one or more LAM ("Look-At-Me") signals, and initiates conversion of the data by the CAMAC modules. Typically each detector group generates its own LAM signal, so the processor can determine which groups of detectors to look at for a particular event. The task of the front-end processor is to wait for LAMs (signaling valid events), then determine the event read path (which depends on a user-supplied configuration table, and on the LAM pattern), and read data from the appropriate CAMAC modules. The front-end processor sorts and buffers the raw data, and transfers it to the back-end computer.

The front-end processor, a PC9801VX personal computer, controls and reads the CAMAC crate through a TOYO7000 Crate Controller. There is a library of assembly language routines which perform CAMAC single actions and simulated block data actions. These

routines are callable from C and FORTRAN. The CAMAC data read/write takes at minimum about  $14 \mu\text{s}$ /word; however the overhead of a routine call is relatively high, about  $45 \mu\text{s}$  for Lattice C and more for MS Fortran, so the assembler routines should be tailored to perform multiple actions. To handle the larger experiments planned in the near future, we will need to replace the current processor and crate controller with more intelligent and faster hardware, such as a J11 based auxiliary crate controller.

### **Optical Link**

The front-end processor accumulates raw data in a series of buffers in memory. After a buffer becomes full, it is transferred to the back-end CAMAC crate via an optical link. This consists of optical link modules located in both the front-and back-end CAMAC crates, joined by a pair of optical fibers of about 100 m length. The system is by design a medium speed data transfer from CAMAC to CAMAC immune to electromagnetic interference. It is suitable for use in the present environment where during accelerator operation the pulsed beam stretcher and linac generate a great amount of electromagnetic noise.

The optical link module is a standard single-width CAMAC module capable of full duplex serial data transfer at up to 48kbits/s. The pair of optical link modules communicate via two lines of optical fiber; one for data and the other for control signals. Two 512 word FIFO memories within each module are used for buffering the transmitted and received data. The modules' functions and specifications are outlined in appendix.

### **Back-End Processing**

The back-end system is a MicroVAX II, connected to a CAMAC crate by a Kinetic Systems 2922 Q-bus adapter and Kinetic Systems 3922 crate controller. These support both single-action and DMA modes of operation. The other peripherals installed on the MicroVAX are a magnetic tape drive and cartridge tape unit for mass data storage and backup, a 318 Mb disk drive, an Ethernet interface which allows networking with other computers (in particular the Linac control MicroVAX), a color graphic console display,

and a DRV11 serial terminal interface. Three Apple Macintosh computers are used as intelligent terminals, and there is a Canon LBP 8 laser printer for text and graphics printouts.

The MicroVAX receives data from the front-end processor through the optical link module in its CAMAC crate. Data is read from the link, and stored temporarily in a shared buffer. This buffer is installed in Vax memory independently of any process, and can be accessed by several processes at once. Three types of data taking process run simultaneously. The first are the processes that read data from the link and store it on magnetic tape (standard magnetic tapes or the 91 Mb TK50 cartridges can be used). These processes necessarily have the highest priority. The second is the on-line analysis routine. This analyses part or all of the raw data as it passes through the shared buffer, and makes gated one and two dimensional histograms in shared memory. The third is the on-line display routine which interactively plots these histograms on terminal screens or the laser beam printer.

The first experiment using this system, the  ${}^4\text{He}(\gamma_{\text{tagged}} X)$  cross section measurement, has been completed successfully. The on-line and off-line analysis programs are still being developed to revise some features and add further flexibility. The data taking rate of this system is adequate for the present experiments. But if more detectors become available or a new type of detector is introduced (for example, a MWDC) it will be necessary to increase the data taking speed further. At present the data taking rate is limited by the optical link. We will eventually need to design a link which is about ten times faster than the present one. Also, higher data rates would lead to significant processing dead time if the PC9801 were used, so it may also be necessary to upgrade the front-end processor and crate controller.

## APPENDIX                      Specification of CAMAC Optical Link Module.

### GENERAL DESCRIPTION

The optical link system is a medium speed data transfer link, immune to electrical noise, from CAMAC to CAMAC at KAKURIKEN. The module is a standard single-width CAMAC module capable of full duplex serial data transfer at up to 48 kbits/s. Two 512 word FIFO memories within the module are used to independently buffer the transmitted and received data. Data flow control may be possible using the receive enable/disable function.

### COMMANDS

FUNCTIONS	Action
F16 A0	Write data to transmitter buffer
F20 A0	Reset transmitter buffer
F25 A0	Start data transmission
F0 A1	Read data from receiver buffer
F20 A1	Reset receiver buffer
F24 A1	Data receive disable
F26 A1	Data receive enable
F2 A15	* Read status register and clear LAM
F8 A15	* Test LAM
F24 A15	LAM disable
F26 A15	LAM enable

\* A LAM (if enabled) is generated, and Test LAM" returns a Q response if any of the following occur: transmitter buffer becomes full, transmission completes, parity error, frame error, receiver buffer becomes empty, and new data is received. The status register indicates which of these conditions are true.

## Rearrangement of the TOF Neutron Diffractometer for the Special Environment Experiments

Kazuo Kamigaki

*Institute for Materials Research, Tohoku University,  
Katahira, Sendai 980*

### § 1. Introduction

The spectrometer for TOF neutron diffraction<sup>1)</sup>, originally designed to investigate the instantaneous structure of liquid and amorphous materials was rearranged to use for the investigation of materials under the special environment conditions such as high pressure, high or low temperatures.

The rearrangement was performed in two ways: the shielding housings for the neutron detectors were set to cover the new diffraction angle, and the neutron detectors were exchanged. The results were satisfactory and the high pressure works are proceeding now.

### § 2. Shielding housings

In the original setting<sup>1)</sup>, two similar shielding houses for the detector tubes were set to cover the diffraction angles: 60, 90 and 150°. In the present modification, possibilities are searched to set other diffraction angles and to change the flight distance of the neutron beam.

The new arrangement of the housing is illustrated in Fig. 1. The original 150° housing was diverted to the 120° position, and the sample to detector distance was extended to 70 cm, twice of the original value. And the space for the control of the environment of specimen was enlarged considerably. However, the further extension of the distance is difficult because the area of base plate is limited as shown in the figure.

### § 3. Detector tubes

Detector tubes used originally<sup>1)</sup> were <sup>3</sup>He-gas filled ones with a half inch diameter, but one inch tubes were used for the present time. The inside area of the shielding house was limited



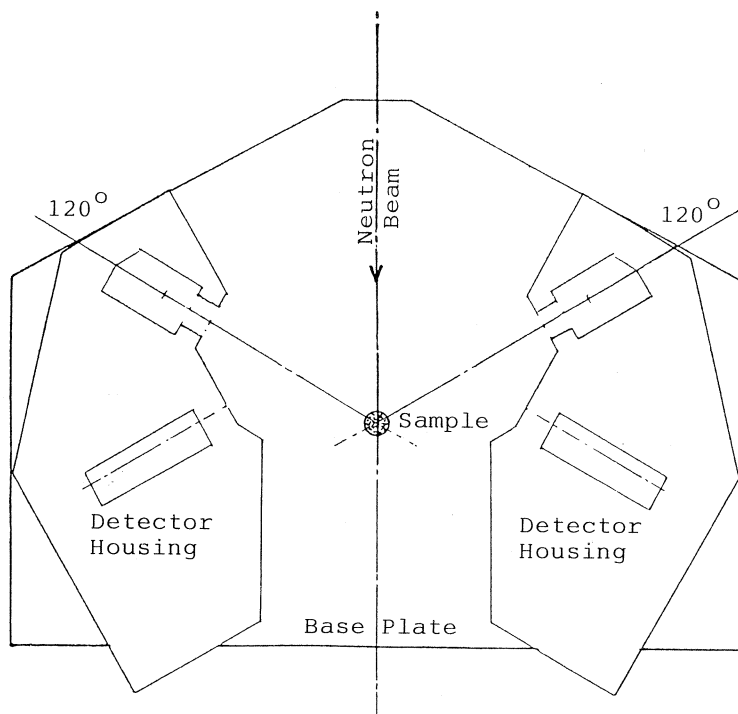


Fig. 1. Rearrangement of the detector housings to the diffraction angle  $120^\circ$ .

and three tubes were arranged at the time-focus position. Because the thick diameter tubes were used, the focussing arrangement was not so critical in comparison with thinner tubes. However, the length of tubes used here was 15 cm, a half of the former ones, and the reduction in resolution will not be so serious. The counting rates dropped slightly but the precise comparison was not made because the situation was somewhat complicated.

#### § 4. Experimental results

Some of experimental results are presented in Figs. 2 and 3. The diffraction pattern for the vanadium rod is shown in Fig. 2, the signal to noise ratio is satisfactorily good but some background counts are superimposed. The pattern for  $\text{MnF}_2$  at room temperature is shown in Fig. 3. The separation of two nuclear peaks (200) and (111) is satisfactory. In combination with the pattern in the magnetically ordered state, magnetic contribution to the (111) scattering was evaluated with a considerable accuracy. This fact will support

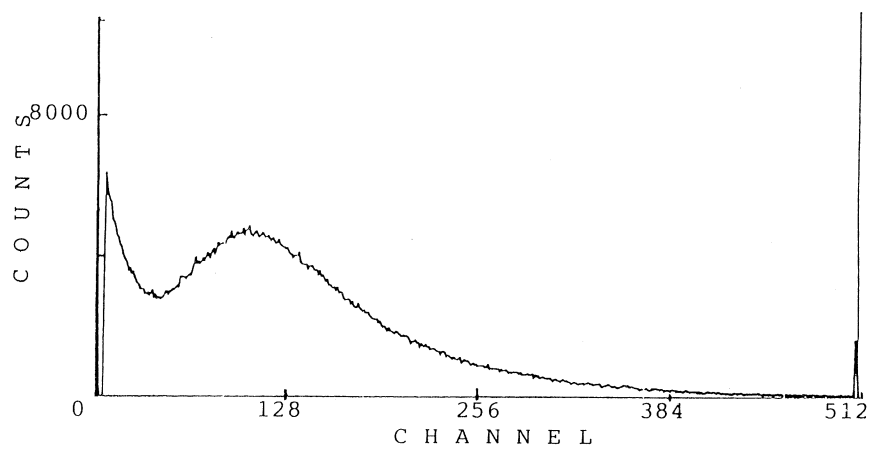


Fig. 2. Diffraction pattern for a polycrystalline vanadium rod. Signals were delayed 500 microseconds. Channel width was 8 microseconds.

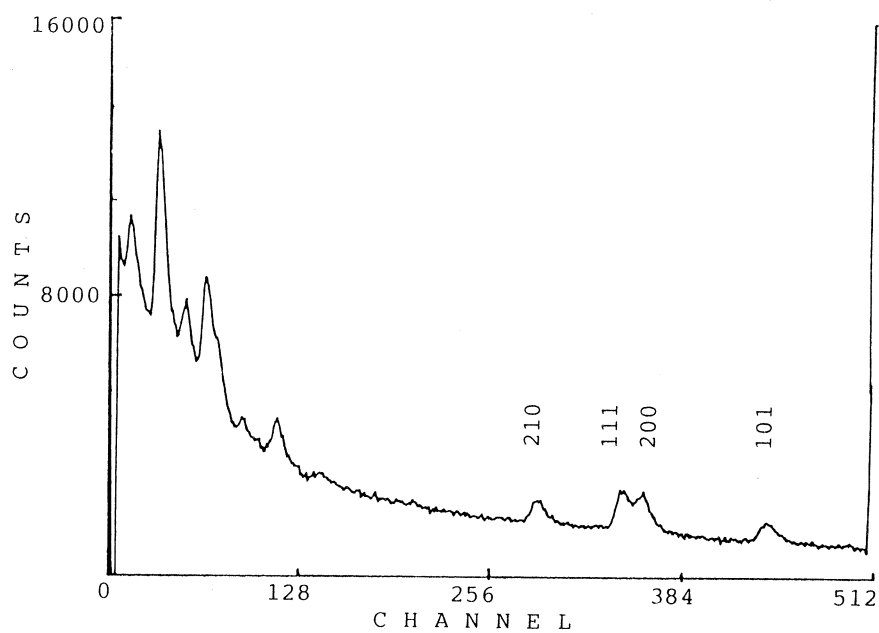


Fig. 3. Diffraction pattern for  $\text{MnF}_2$  powder at room temperature. Signals were delayed 2500 microseconds. Channel width was 8 microseconds.

that the rearranged diffractometer will be applicable for the magnetic structure analysis.

### § 5. Further problem

The thickness of the shielding houses was about 12 cm at the thinnest position. The neutron source now used was based on the 300 MeV electron-photon reaction at the tungsten target, and the radiation shield must be designed for gamma-rays, in addition to the fast neutrons. In the recently designed diffractometers installed in this laboratory were surrounded with thick water tank, and remarkable improvement was attained in the reduction of background signal. The heavier shielding will be a future problem.

### Acknowledgement

The author is indebted to Prof. K. Suzuki for his permission of rearrangement and support, thanks are due to him and to his staff. He also thanks to Prof. N. Niimura for his valuable suggestions.

### Reference

- 1) M. Ueno, M. Misawa and K. Suzuki: Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. **13** (1980) 254.

## ストリークカメラによるバンチ構造の研究

核理研, KEK \*

加藤龍好・小山田正幸・中里俊晴

浦沢茂一・加賀谷聡・栗原 亮

高橋重伸・柴崎義信・佐藤 勇\*・中原和夫\*

### § 1. はじめに

ライナックで高エネルギーに加速された電子は、その加速原理からバンチ構造をしていることが知られている。核理研ライナックの場合、バンチの空間分布は長さにして数mm、光速での通過時間にして数psと考えられている。その構造を直接観測するにはピコ秒単位の時間分解能が必要とされるため、これまでの技術では困難とされてきた。ところが最近になってKEK<sup>1)</sup>や阪大産研<sup>2)</sup>でバンチの観測が行なわれるようになった。ビームが出すチェレンコフ光をストリークカメラ<sup>3)</sup>で観測することにより、ピコ秒領域での測定が可能になったからである。

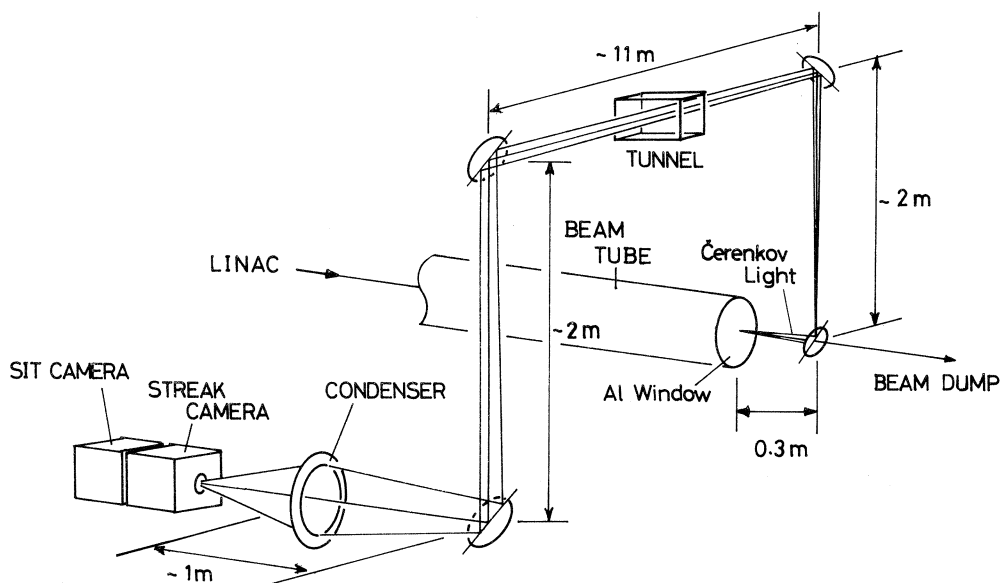
パルス運転のライナックのビームは各バンチ毎の平均エネルギー、及び同一バンチ中での個々の電子のエネルギーが異なる。前者はライナックの加速電圧の時間変化に、後者は各電子毎の加速位相の違いとウェーク・フィールドの影響による。これらについて定性的な議論は行なわれていたが、定量的に実験された例は未だかつてない。核理研ライナックのⅡ系は原子核実験用の高分解能のエネルギー分析器があり、上記のようなバンチ毎またはバンチ内のエネルギー分布を測定するのに適した条件を備えた数少ない研究施設である。

バンチの構造と其中的電子のエネルギー分布を研究することはビーム加速時にライナック内で起きている現象の定量的な解明に役立ち、ビーム性能の向上につながる。また、東北大共用リング計画におけるコヒーレント放射光<sup>4)</sup>の重要なパラメータであるバンチ長を測定できるという意義をもつ。

### § 2. 実験の方法

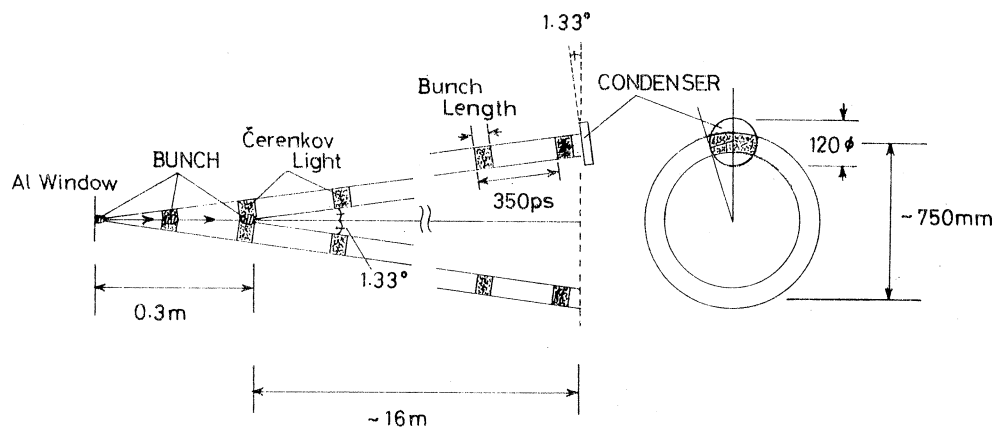
#### 2.1 実験装置

第1図に測定系の構成をしめす。核理研Ⅱ系のビーム軸上にガラスの表面鏡をおき、真空ダクトから大気中にでたビームの出すチェレンコフ光を実験室外に導きストリークカメラで観測



第1図 測定系の構成。

核理研Ⅱ系のビームライン上に表面鏡をおき、真空ダクトから大気中でた電子ビームのチェレンコフ光を実験室外へ導き、ストリークカメラで観測する。光軸経路が約16mあるため、カメラの前に集光レンズをおき光量を確保する。こうして得られた光を時間分解することにより、光源となる電子ビームのバンチ長を測定することが可能となる。



第2図 チェレンコフ放射と光学系の立体角。

200MeVの電子ビームは大気中でビーム軸に対して $1.33^\circ$ の角度にチェレンコフ光を出す。光の放出角が一定であることから、チェレンコフ光の間隔はバンチ間の距離を、光の継続時間はバンチの長さを再現する。

ストリークカメラまでの距離が約16mあるため、集められ得る光子数は光学系の立体角で定まる。ストリークカメラに集められる光子数は電子が0.3mの大気中を通過する際に放出されるチェレンコフ光全体の約5%となる。

する。空気の屈折率  $n=1.000275$ ，ビームのエネルギーを  $200\text{MeV}$  ( $\beta=0.999997$ ) とすると，アルミ窓からでた電子は進行方向に対し

$$\theta = \cos^{-1}(1/n\beta) = 23.3\text{mrad} = 1.33^\circ$$

の角度（チェレンコフ角）に光子を放出する。（第2図）この光は発光点からストリークカメラまでの約  $16\text{m}$  の経路をへると直径約  $750\text{mm}$  のドーナツ状にひろがる。そこでビームライン上の表面鏡を  $1.33^\circ$  傾けて設置することにより，ドーナツ状の光の一部を切りとってストリークカメラまで導くことにした。この立体角内の光子数は電子ビームが大気中を  $0.3\text{m}$  進むあいだに出すチェレンコフ光全体の  $5\%$  程度となる。

## 2.2 チェレンコフ光

チェレンコフ放射で1個の電子が単位長さ当たりに放出する光子数は

$$dN/dl = 2\pi\alpha(1/\lambda_1 - 1/\lambda_2)\sin^2\theta$$

で与えられる<sup>5)</sup>。ここで  $\alpha = 1/137$ ， $\lambda_1, \lambda_2$  は光の波長範囲， $\theta$  はチェレンコフ角である。波長範囲をストリークカメラの光学特性にあわせて，

$$\lambda_1 = 400\text{nm}, \lambda_2 = 800\text{nm}$$

とすると， $\theta = 1.33^\circ$  より

$$dN/dl = 30.9 \text{ (光子/m)}$$

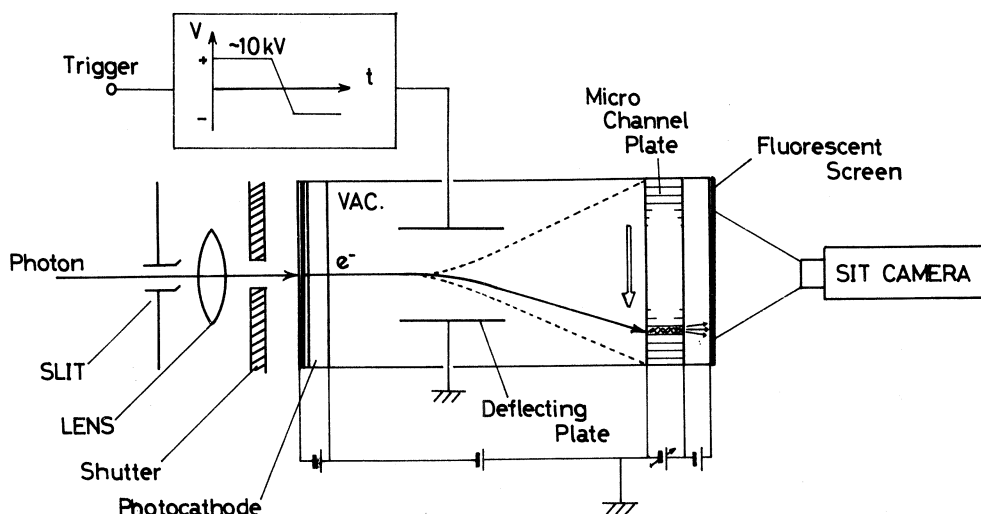
が得られる。1バンチ当たりの電子数は，ピーク電流を  $10\text{mA}$ ，デューティファクターを  $0.1\%$  とするととき約  $2.2 \times 10^7$  個となる。実際の測定では  $dl = 0.3\text{m}$  としたので，1バンチ当たりに放出される光子数は  $2.0 \times 10^8$  個と考えられる。

したがって最終的にストリークカメラまで導かれる光子数は  $1.0 \times 10^7$  個。この値はストリークカメラの検出限界であるスリット面で約  $5000$  光子/ $\text{mm}^2$  をこえているので実際に観測することが可能である。

## 2.3 ストリークカメラの動作原理

ストリークカメラの動作原理<sup>6)</sup>を第3図に示す。まずチェレンコフ光をスリットに集光し，リレーレンズによりストリーク管の光電面にスリット像を結ばせる。この像は電子像に変換され，加速電極で加速されて偏向場をとおる。その瞬間に偏向板に高速掃引電圧を印加して，電子像を上から下へ掃引する。掃引された電子像はマイクロ・チャンネル・プレートにはいり，ここで約  $10^4$  倍に電子増幅され蛍光面でふたたび光学像に変換される。

こうして得られるストリーク像は縦方向が時間，横方向が入射光子の水平分布，像の濃淡が強度をあらわす。実際にはこのストリーク像  $15\text{mm} \times 15\text{mm}$  のうち中心の  $10\text{mm} \times 10\text{mm}$  をSIT



第3図 ストリークカメラの動作原理。

入射光子によるスリット像は光電陰極で電子像に変換・加速され、偏向場に入る。その瞬間に高速掃引電圧を印加して、電子像を上から下へ掃引する。掃引された電子像はマイクロ・チャンネル・プレートで約 $10^4$ 倍に増幅され、蛍光面で再び光学像に変換される。このストリーク像は縦方向が時間、横方向がスリット上での入射光子の水平分布、像の濃淡が光の強度をあらわす。この蛍光面上のストリーク像 $15\text{mm} \times 15\text{mm}$ のうち $10\text{mm} \times 10\text{mm}$ をSITカメラで撮影しコンピュータで画像処理することにより、ストリークカメラへ入射する光のピコ秒単位の時間変化のグラフを描くことができる。

カメラでとり、その画像を縦256チャンネルに分割し、それぞれのチャンネル毎に横方向に光の強度を積分して256段階であらわす。(第4図)

ストリークカメラとSITカメラを合わせた測定系全体の時間分解能は、ストリーク時間 $1\text{ns}$ で $6.5\text{ps}$ 、 $2\text{ns}$ では $13.0\text{ps}$ 、空間分解能にしてそれぞれ $1.95\text{mm}$ 、 $3.90\text{mm}$ である。またストリークカメラの掃引速度の較正は、バンチ間の間隔をライナックの加速RFの周期 $350\text{ps}$ として行なった。

#### 2.4 トリガ系

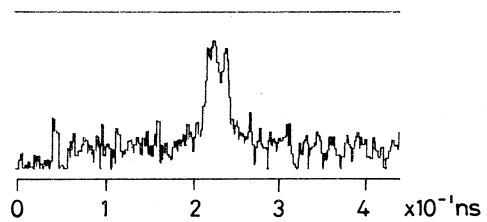
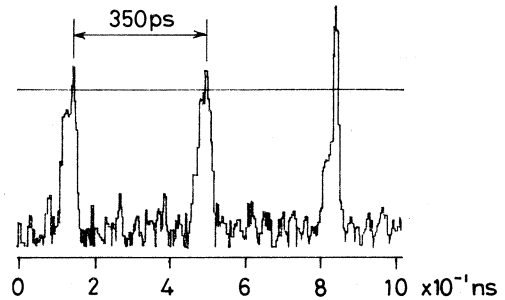
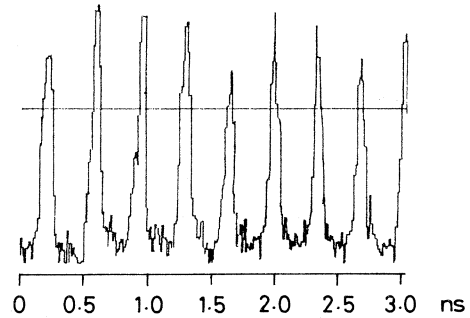
偏向板の掃引電圧の印加と電子像の通過を同期させるためのトリガ信号として、本実験ではライナックのビームトリガを遅延してもちいた。トリガジッタのためSITカメラの画像は静止させられないが、バンチ長の観測上は問題とはならない。

### § 3. 実験結果

第5図(a), (b)にそれぞれストリーク時間が1 nsと2 nsの測定結果をしめす。これらは第4図のかたちで得られた像からバンチの半値幅を読みとり、その平均値を示したものである。誤差棒はデータとして得られたバンチ長の最大値と最小値の範囲をあらわし、統計的意味はもたない。

バンチ長はいずれも予想された値よりも広がって観測されている。エネルギー分析電磁石のスリット (SA II) の幅を変化させてエネルギー幅を変えたことによる平均バンチ長の変化や、ECS<sup>2)</sup>を通したことによる平均バンチ長の変化はほとんど分解能の範囲内での差しか見られず、ライナックの運転条件によるバンチ長の変化よりも、個々のバンチ毎のばらつきのほうが大きいことがわかる。またトリガデレイを変えてバースト中での位置の違いによる変化も観測したが、それによって変わるのは第4図でいうとピークの高さ、つまりバンチ中の電子の個数であり、バンチ長の顕著な変化は見られなかった。

しかしこの際にバーストの形状をモニターしていて興味深いことが観測されたので、そのことについて触れてみたい。まず実験中に得られた2枚の写真をしめす。(第6図(a), (b)) これは電子ビームの出すチェレンコフ光を高速のフォトダイオードで捕らえてオシロスコープに写したもので、バーストに構造があることを示している。バーストは大まかに

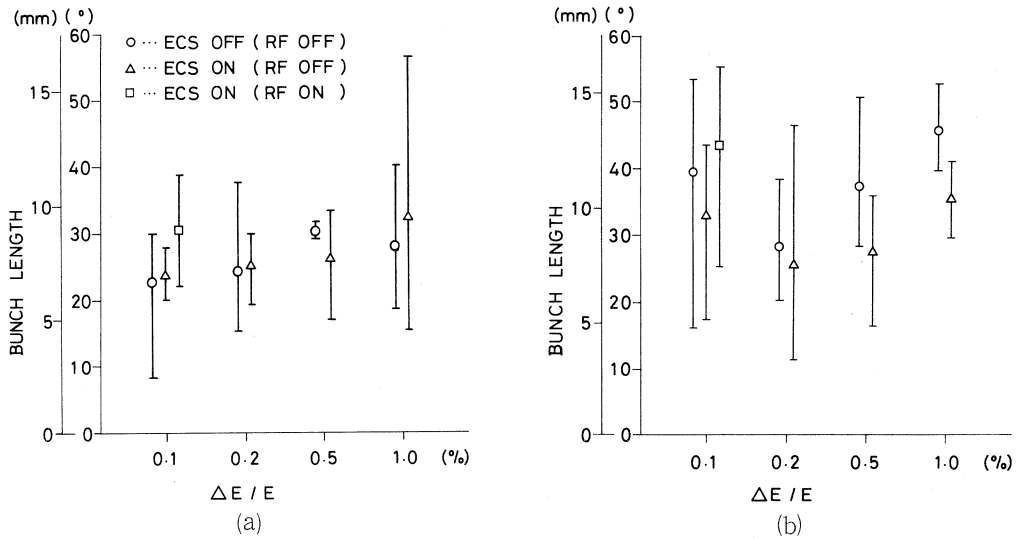


第4図 画像処理された後のストリーク像。

SITカメラでとった像を計算機で画像処理し、縦方向に256チャンネルに分割して、チャンネル毎に光の強度を横方向に積分して256段階で表わしたものであり、ひとつのピークが1個のバンチに相当する。

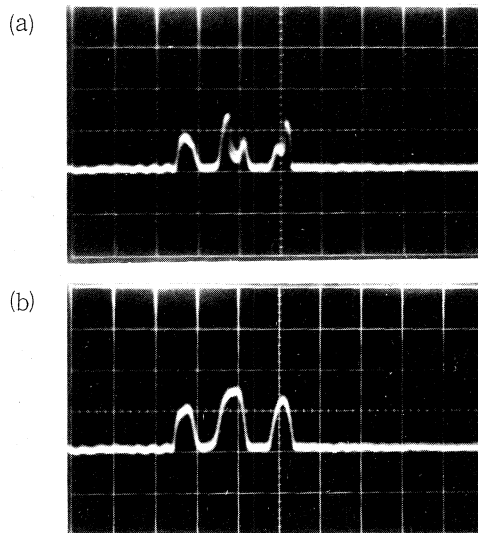
ストリーク時間は上から順に5 ns/15mm, 2 ns/15mm, 1 ns/15mmである。





第5図 (a), (b) ストリーク時間 1 ns(a), 2 ns(b)で測定したバンチ長。

誤差棒は測定値の最大値と最小値の範囲を表わし、統計的意味を持たない。空間分解能はそれぞれ1.95mm, 3.90mm。



第6図 (a), (b) ビームのバースト構造。

ビームのエネルギー幅0.5%(a), 2.0%(b)のときのバーストの構造を現わす。バーストは大まかに3つの部分に分かれ、それぞれの間には電子が存在しないのは、エネルギー分析器のスリットで削られたためと考えられる。しかしスリットを開いてエネルギー分析電磁石の磁場をスイープしても、電子の現われない部分があることから、バーストにはもともと電子の欠損した部分が存在することが明らかになった。(0.5  $\mu$ s/div)

3つの部分からなり、エネルギー分析電磁石の磁場の变化や、スリットの幅の変化でその構造を変える。しかしこの実験で、バーストにはエネルギー分析電磁石の磁場をスィープしても電子の現われない、もともと電子の欠落した部分が存在することが明らかになった。バーストの構造に関してはデータをビデオテープに収録してあるので、今後の検討材料となる。

## § 4. 考 察

以下ビームのバンチ幅が広がって観測される原因について考察を行なう。

### 4.1 ビームのデバンチ

核理研ライナック内では電子が加速位相に対して $5.5^\circ$ （長さにして1.6mm）にバンチされている。これはECSの設計とその性能から導かれる値<sup>7)</sup>である。それゆえ加速管内でのバンチ長が第5図(a), (b)に示されるほど広がっていると考えがたい。したがってビームのデバンチはトランスポート系以降でおけると推定される。

II系ビームトランスポート系には2台のエネルギー分析電磁石があり、その電磁石を通過する際の電子の軌道はそのエネルギーできまる。バンチの中の電子がエネルギー幅 $\Delta E/E$ （ $\sim \Delta P/P$ ）をもっている時の偏向系全体での経路差とそれによるバンチ長の変化を第1表に示す。

第1表 ビームトランスポート系での経路差によるビームのデバンチ。

$\Delta P/P$ (%)	BUNCH LENGTH in LINAC (mm)	DIFFERENCE of PATH(mm)	BUNCH LENGTH in EXP. ROOM II (mm)
1.0	1.60	2.14	2.67
0.5		1.04	1.91
0.2		0.41	1.65
0.1		0.20	1.61

### 4.2 多重散乱によるバンチの進行方向への拡がり

次にビームチューブのアルミ窓と空気による多重散乱について考える。アルミ窓と空気によるエネルギーロスが無視できるとすると電子の多重散乱角 $\Theta$ は

$$\langle \Theta^2 \rangle = (E_s/E)^2 \cdot \rho \cdot t / X_0 \quad (\text{rad}^2)$$

で与えられる<sup>8)</sup>。ここで $E_s$ は散乱の特性エネルギー（21.2MeV）、 $E$ は入射電子のエネルギー

(MeV),  $\rho$ は物質の密度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ),  $t$ は物質の厚さ (cm),  $X_0$ は輻射長 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) である。200MeVの電子ビームが厚さ 2 mmのアルミ窓と厚さ30cmの空気を通過する場合, 多重散乱角はそれぞれ15.7mrad, 3.57mradとなる。したがって多重散乱によるバンチの進行方向への拡がり

$$300 \text{ (mm)} \times \{(15.7 \text{ (mrad)})^2 + (3.57 \text{ (mrad)})^2\} / 2 \approx 0.04 \text{ (mm)}$$

となり, 測定されたバンチ長に対しては無視しえる値である。

#### 4.3 波長の違いによる光路差

屈折率が波長によって変化しないとき、チェレンコフ放射の光の持続時間は無限に短い。しかし空気中では屈折率が波長によって変わるため、チェレンコフ光も有限の持続時間をもつ。波長  $\lambda$  (nm) の光の標準空気にたいする屈折率  $n$  は次の式であたえられる。<sup>9)</sup>

$$\begin{aligned} (n-1) \times 10^8 &= 6432.8 \\ &+ 294910 / (146 - 10^6 / \lambda^2) \\ &+ 25540 / (41 - 10^6 / \lambda^2) \end{aligned}$$

したがってストリークカメラの特性範囲  $\lambda_1=400\text{nm}$ ,  $\lambda_2=800\text{nm}$  では  $n_1=1.0002828$ ,  $n_2=1.0002750$  となる。このときチェレンコフ角は  $\theta_1=23.6\text{mrad}$ ,  $\theta_2=23.3\text{mrad}$  となる。光の持続時間  $\Delta t$  は次式であたえられる。<sup>9)</sup>

$$\begin{aligned} \Delta t &= \{(\beta^2 n_1^2 - 1)^{1/2} - (\beta^2 n_2^2 - 1)^{1/2}\} \cdot r / \beta c \\ &= (\tan \theta_1 - \tan \theta_2) \cdot r / \beta c \end{aligned}$$

ただし  $r$  は外側の光円錐の半径である。ここで最初のミラーを23.3mrad傾けて設置したことを考慮すると、チェレンコフ光の進行方向への拡がり

$$\begin{aligned} c \cdot \Delta t \cdot \cos \theta_2 &= (\tan \theta_1 \times \cos \theta_2 - \sin \theta_2) \cdot r / \beta \\ &\approx 0.12 \text{ (mm)} \end{aligned}$$

となる。

つぎに光の波長の違いによるレンズ内での光の速度差について考える。集光レンズの厚さを20mm, その屈折率としてBK7とLaF2の屈折率の平均値(768.2nmで1.6225, 404.7nmで1.6515)を考えるとレンズ内での通過時間差による光の進行方向への拡がり

$$20 \text{ (mm)} \times (1.6515 - 1.6225) / 1.6515 \approx 0.35 \text{ (mm)}$$

となる。

したがって光学系での波長の違いによる光の到着時間の差は、バンチ長に対して無視しえる程度であり、理論的に計算されたバンチ長とこの実験の測定値との隔たりを説明するには至ら

なかった。

## § 5. ま と め

今回の実験ではバンチ長をチェレンコフ光という間接的な手段をもちいて観測した。バンチ長は本来考えられていた長さの数倍に拡がって観測されており、その直接の原因を同定するには至らなかった。実際のバンチの長さが理論どおりだとすると、光学系でのより複雑な補正について考えなければならない。他方、もしバンチ長が実際に計算値の数倍の値をもつとすると、バンチの長さをパラメータとして用いるコヒーレント放射光などは可干渉な成分の強度が予想されるものよりも小さくなる可能性がある。また、もし本当に個々のバンチ長のばらつきがライナックの運転条件による変化よりも大きいということになると、放射光強度の安定性も問題にしなければならないことになる。いずれにしろ実際にバンチの長さを測定することの意義は大きく、もっと多角的な面からの検討が必要とされる。

また実験の本論からは外れるが、バーストの構造と、その中にもともと電子の欠損した部分が存在することが観測されたことは、光を用いた測定法がとくにS/N比にすぐれ、今後このようなモニターによる加速器制御の可能性を示すものといえるだろう。さらにバースト中の電子欠損の原因を追究することはライナックの基本的な性能の向上において大きな意味をもつと思われる。

## 参 考 文 献

- 1) I. Sato *et al.*: *Proc. of the 12th Linear Accel. Meeting in Japan* (1987) p. 57.
- 2) T. Hori *et al.*: *ibid.* p. 54.
- 3) 土屋裕: ピコ秒ストリークカメラとその応用 (浜松ホトニクス).
- 4) 中里俊晴, 他: 核理研研究報告 21 (1988) 94.
- 5) 三浦功, 他: 放射線計測学 第5章.
- 6) C1370-01 テンポラルディスペーサ取扱説明書 (浜松ホトニクス).
- 7) M. Sugawara *et al.*: *Nucl. Instr. and Meth.* **153** (1978) 343.
- 8) Rossi: *High Energy Particles* (Prentice-Hall, Inc. New York, 1952).
- 9) 理科年表 昭和58年 物96 (512).



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 究 報 告   第 21 卷   第 2 号

1988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 21 Number 2 December 1988

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