

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第 22 卷 第 1 号

1989 年 6 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

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

投 稿 規 定

1. 邦文の原稿はA4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。

仙台市太白区三神峯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22巻 第1号 目次

I 原子核物理

- I-1 (e,e'n) 同時計数実験による¹²C 巨大共鳴の研究 (II) 1

(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-2 Measurements of ^{6,7}Li (γ, p) Cross Sections Using Tagged Photons 13

(核理研, 教養部*, メルボルン大**)

野村 和泉, 今野 收, 前田 和茂*, D. McLean**,

須田 利美*, 寺沢 辰生, 横川 淳

- I-3 The ⁴⁰Ca Ground-State Photoneutron Cross Section from 30 to 100 MeV 23

(メルボルン大, 核理研*, 教養部**)

J. Eden, D. McLean, M. Thompson, 野村 和泉*,

寺沢 辰生*, 横川 淳*, 前田 和茂**, 須田 利美**

II 物性物理

- II-1 LaSrFeO₄の磁気構造 29

(仙台電波高専, 金研*)

小野寺重文, 梶谷 剛*

- II-2 透過中性子法の生物物理学への応用 (II) 33

(理学部物理, 核理研*)

片瀬 拓也, 新村 信雄*, 徳永 史生

III 放射化学

- III-1 トリクロロ酢酸とトリオクチルホスフィンオキシドによるヘキサアクアロジウム
(III) の溶媒抽出 43

(理学部化学)

高橋 宏美, 井村 久則, 鈴木 信男

- III-2 標準添加内標準法による低合金鋼中の微量元素の光量子放射化分析…………… 51
 (金研, 核理研^{*})
 原 光雄, 飯野 栄一, 榎本 和義^{*}, 八木 益男
- III-3 光量子照射各種金属材料中の誘導残留放射能に関する研究 (I) …………… 62
 — 20, 30 MeV 照射における低合金鋼中の残留放射能 —
 (金研, 核理研^{*})
 三頭 聡明, 駒 義和, 八木 益男, 榎本 和義^{*}
- III-4 北上山地, 古第三紀珪長質火山岩類の地球化学的研究…………… 76
 (教養部, 理学部地学^{*})
 蟹沢 聡史, 吉田 武義, 石川 賢一, 永広 昌之,
 青木謙一郎^{*}
- III-5 足尾山地東縁地域に分布する中新世玄武岩類の微量元素組成…………… 86
 (宇都宮大, 教養部^{*}, 理学部地学^{**})
 中村 洋一, 宇賀神俊彦, 石川 賢一^{*}, 吉田 武義^{*},
 青木謙一郎^{**}
- III-6 九州南方, 大隈諸島近辺の火山岩類の光量子的放射化分析…………… 104
 (富山大, 教養部^{*}, 理学部地学^{**})
 氏家 治, 吉田 武義^{*}, 青木謙一郎^{**}
- III-7 機器光量子放射化分析法による標準岩石試料およびカーボナタイト風化土壌試料の
 分析…………… 117
 (東大)
 豊田 和弘, 床次 正安

IV 加速器・測定装置

- IV-1 Evidence of Coherent Synchrotron Radiation …………… 123
 (核理研, 理学部物理^{*}, 工学部応用物理^{**}, 科研^{***})
 中里 俊晴, 小山田正幸, 新村 信雄, 浦澤 茂一,
 今野 收, 加賀谷 聡, 加藤 龍好, 神山 崇,
 鳥塚 賀治, 難波 孝夫^{*}, 近藤 泰洋^{**}, 柴田 行男^{***},
 伊師 君弘^{***}, 大坂 俊明^{***}, 池沢 幹彦^{***}

V 加速器・データ処理装置稼働状況

V-1 昭和63年度マシン報告..... 133

(核理研マシングループ)

栗原 亮, 浦澤 茂一, 大沼 忠弘, 小山田正幸,

柴崎 義信, 高橋 重伸, 中里 俊晴, 武藤 正勝

V-2 データ処理装置報告..... 138

(核理研計測グループ)

武藤 正勝, 大沼 忠弘, 小田島明美

VI 論文リスト..... 141

Research Report of Laboratory of Nuclear Science
Volume 22, Number 1, June 1989
Content

I	Nuclear Physics	
I - 1	Study of the Giant Resonance in ^{12}C via the $(e, e' n)$ Coincidence Experiment (II)	1
	Keiji Takahisa, Teijiro Saito, Shinsuke Suzuki, Tutomu Tohei, Takemi Nakagawa, Yukinori Kobayashi and Ken Abe	
I - 2	Measurements of $^{6,7}\text{Li}$ (γ, p) Cross Sections Using Tagged Photons	13
	Izumi Nomura, Osamu Konno, Kazushige Maeda, David McLean, Toshimi Suda, Tatsuo Terasawa and Jun Yokokawa	
I - 3	The ^{40}Ca Ground-State Photoneutron Cross Section from 30 to 100 MeV ...	23
	James Eden, David McLean, Maxwell N. Thompson, Izumi Nomura, Tatsuo Terasawa, Jun Yokokawa, Kazushige Maeda and Toshimi Suda	
II	Material Science	
II - 1	Magnetic Structures of LaSrFeO_4	29
	Shigefumi Onodera and Tsuyoshi Kajitani	
II - 2	The Application of the Neutron Transmission Method to the Structure Analysis of Biological Materials	33
	Takuya Katase, Nobuo Niimura and Fumio Tokunaga	
III	Radiochemistry	
III - 1	Solvent Extraction of Hexaaquarhodium(III) with Trichloroacetic Acid and Trioctylphosphine Oxide	43
	Hiromi Takahashi, Hisanori Imura and Nobuo Suzuki	
III - 2	Photon Activation Analysis of Trace Elements in Low-alloy Steels Using the Internal Standard Method Coupled with the Standard Addition Method ...	51
	Mitsuo Hara, Eiichi Iino, Kazuyoshi Masumoto and Masuo Yagi	

III - 3	A Study on the Radioactivities Induced in Metallic Materials by Photon Irradiation (I) - Radioactivities Induced in Low-alloy Steels by Irradiating 20 and 30 MeV Bremsstrahlung	62
	Toshiki Mitsugashira, Yoshikazu Koma, Masuo Yagi and Kazuyoshi Masumoto	
III - 4	Geochemistry of the Paleogene Felsic Volcanic Rocks, Kitakami Mountains...	76
	Satoshi Kanisawa, Takeyoshi Yoshida, Ken-ichi Ishikawa and Ken-ichiro Aoki	
III - 5	Trace Element Abundances of the Miocene Basaltic Rocks from the Eastern Ashio Mountains.....	86
	Youichi Nakamura, Toshihiko Ugajin, Ken-ichi Ishikawa, Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki	
III - 6	Photon Activation Analysis of the Volcanic Rocks from the Osumi Islands, South of Kyusyu	104
	Osamu Ujike, Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki	
III - 7	Instrumental Photon Activation Analysis of Rock Reference Samples and Soil Samples of Carbonatite.....	117
	Kazuhiro Toyoda and Masayasu Tokonami	
IV Accelerator and Instrumentation		
IV - 1	Observation of Coherent Synchrotron Radiation	123
	Toshiharu Nakazato, Masayuki Oyamada, Nobuo Niimura, Sigekazu Urasawa, Osamu Konno, Akira Kagaya, Ryukou Kato, Takashi Kamiyama, Yoshiharu Torizuka, Takao Nanba, Yasuhiro Kondo, Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Toshiaki Ohsaka and Mikihiko Ikezawa	
V Status Report on Accelerator and the Data Processing Systems		
V - 1	Status of the Electron Linac	133
	Accelerator Group	
	Akira Kurihara, Sigekazu Urasawa, Masayuki Oyamada, Yoshinobu	

Shibasaki, Sigenobu Takahashi, Toshiharu Nakazato and Masakatsu

Mutoh

V - 2 Status of the Data Processing System 138

Instrumentation Group

Masakatsu Mutoh, Tadahiro Onuma and Akemi Odashima

VI List of Publications 141

I. 原 子 核 物 理

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

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*

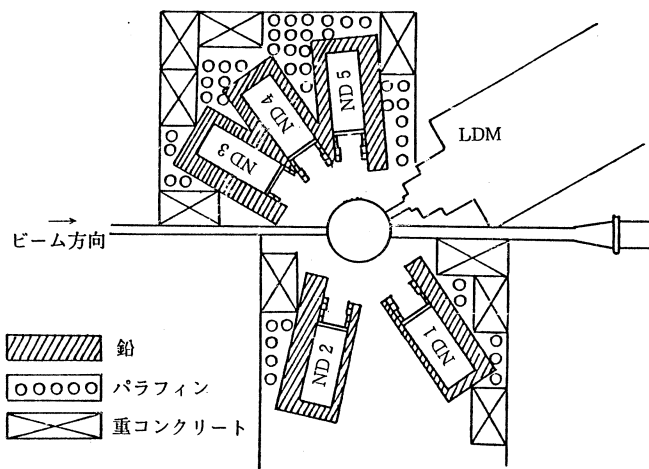
小林幸則*・阿部 健**

§1. 序

前回¹⁾シールドを強化することによって十分よいS/N比で角分布を測定できた。今回は角分布の測定点を増やし統計精度を上げるとともに, 中性子検出器の閾値を下げることを行った。また, 中性子検出器の検出効率の相対値を実験的に決定した。その結果, (e, e' n₀) 同時計数実験による ^{12}C 巨大共鳴の崩壊に伴う放出中性子について 0° から 350° までの角分布が得られた。また, Cavinato等のRPAの計算結果は, 我々の角分布の形状をよく再現することがわかった。

§2. 実験装置

実験装置, 実験方法の詳細は前回説明した通りであるが, 今回は反移行運動量方向の角分布を主に測定した。前は運動量移行方向より $\theta_n = 20^\circ, 50^\circ, 80^\circ, 350^\circ$ であったのに対し, 今回は運動量移行方向より $\theta_n = 0^\circ, 50^\circ, 156^\circ, 186^\circ, 210^\circ$ (第1図)の散乱面上の5



第1図 検出器配置図。ND 1 = 0° , ND 2 = 50° , ND 3 = 156° , ND 4 = 180° , ND 5 = 210° 。

点で測定を行った。その際の散乱電子測定角度は $\theta_s = 30^\circ$ で、 $q = 0.33 \text{fm}^{-1}$ に対応する。又、E1 励起が主な領域である巨大共鳴領域励起エネルギー $23 \text{MeV} \sim 27 \text{MeV}$ の範囲で励起関数の測定も同時に行った。中性子の飛行距離は前回と同じ 0.75m である。 ^{12}C ターゲットの厚さは $100 \text{mg}/\text{cm}^2$ のものを用いた。平均ビーム電流は 50nA で実験を行った。

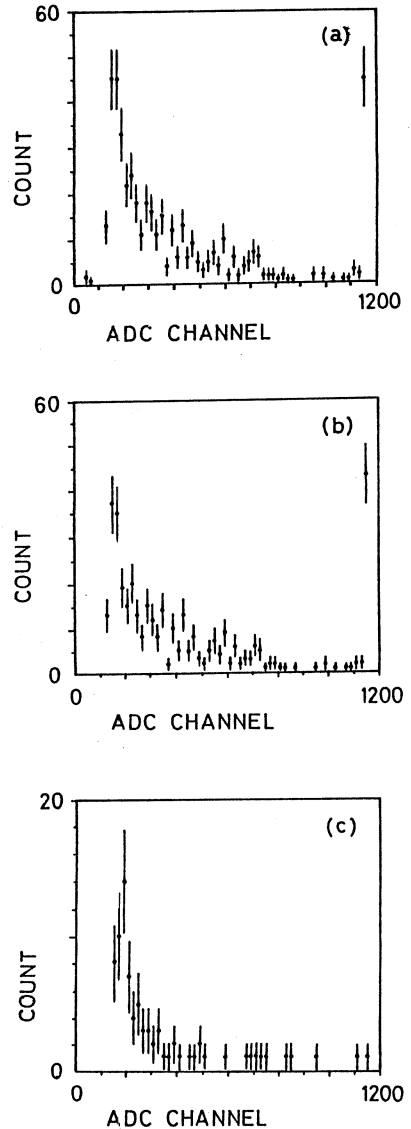
散乱電子と同時計数を取らなかった中性子検出器単体のADCスペクトルは第2図(a)のようになる。図(b)は γ 線のみで、図(c)は中性子のみのものである。このようにバックグラウンドの4分の3程度が γ 線である。このように低いエネルギー側は急激にバックグラウンドの成分が多くなっており、できるだけ中性子検出器の検出閾値を下げたいが、それだけデッドタイムが大きくなってしまう。前は検出閾値を 0.7MeVee で行ったが、今回はバックグラウンドの成分が一番多くなった $\theta_n = 0^\circ$ (ビーム方向より 41° 後方) の検出器以外は前回より検出閾値を下げ 0.3MeVee の検出閾値で行った。検出閾値を下げる事ができたのは、前回よりもシールドが強化されたためと考えられる。なお、ライブタイムは前回と今回は同じく約80%である。

§3. 解析方法

以下に述べる解析方法の詳細については参考文献2に記してある。

3.1 γ フラッシュの時間分解能

γ 線のTOFはそのエネルギーに依らないために中性子検出器からの γ 線の事象による信号と電子検出器の信号の時間差は常に一定である。よって、 γ 線事象はTOFスペクトル上にピークを形成する。
(γ フラッシュ)



第2図 散乱電子との同時計数を取っていない中性子検出器のADCスペクトル。

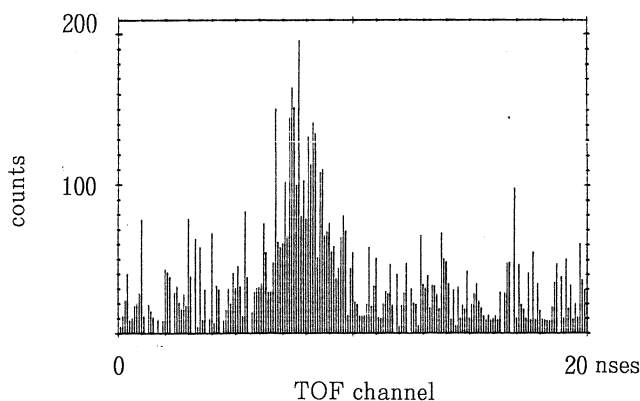
- (a) 中性子と γ 線,
- (b) γ 線,
- (c) 中性子。

γ フラッシュの時間分解能はシステムとしての中性子のエネルギー分解能の上限を与えることになるので、現システム固有の補正不可能な時間分解能を導出することになる。

まず、我々の (e, e' n) 同時計数実験による γ フラッシュの幅の原因は、主に次の4つが考えられる。

- (1) スペクトロメータ中でのフライトパスの違いによるもの。
- (2) バックアップカウンターの各点から光電子増倍管までの信号の到達距離の差によるもの。
- (3) LDMへの散乱電子の入射角度の違いによるフライトパスの違いによるもの。
- (4) 回路系によるもの。

(1)と(2)によるものはMWPCのチャンネルの情報により補正が可能である。補正の結果、現システムの補正不可能な時間分解能は1.2nsecであった。補正後の γ フラッシュのTOFスペクトルを第3図に示す。



第3図 γ フラッシュのTOFスペクトル。

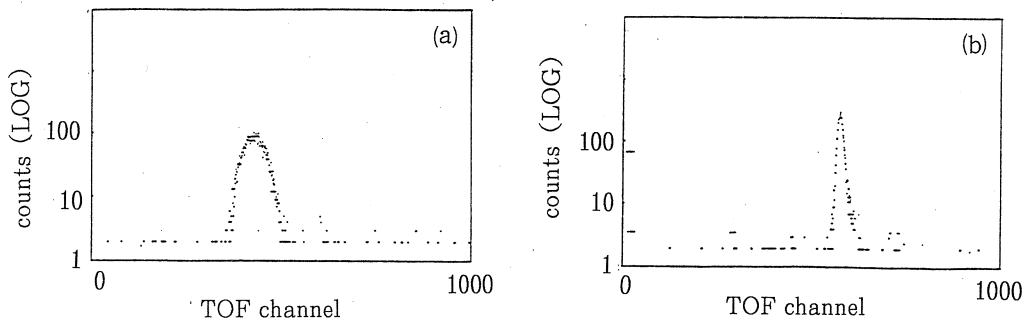
3. 2 中性子検出器の検出効率

中性子の検出にとって検出器の検出効率は断面積を決定するための最も重要な量であるが、その正確な評価は一般に難しい。中性子測定に伴う不確定さは、検出効率の評価によるところが大きい。検出器の検出効率は、その様々な条件により影響を受けるものと考えられる。したがって、測定条件と全く同じ条件でその検出効率を求める方法が最もよい方法であると思われるが、実際には難しい。特に検出閾値近傍の低いエネルギー（4 MeV以下）の中性子の検出効率は、エネルギー依存性が大きく、それを正確に求めることは困難を伴うと思われる。今回は、低いエネルギー（4 MeV以下）の中性子の検出を行っているので、検出効率の正確な決定

は一層重要である。

前回の報告では、中性子検出器の検出効率、計算コードTOTEFF³⁾で計算して求められた。またBiアブソーバによる中性子の減衰率は、東北大サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターで行った中性子のエネルギー10MeV付近の実験データを使った。しかし、より正確にエネルギー依存性を求めるために、東北大学工学部原子核工学科において、今回²⁵²Cfの自発核分裂によって生ずる中性子スペクトルを使って検出効率の相対値を決定した。²⁵²Cfの自発核分裂に伴う中性子のエネルギー分布はマックスウェル分布に従うことがよく知られている。²⁵²Cf自発核分裂の際に8:3.7の割合で γ 線と中性子を放出する。測定は線源のすぐそばに置いた小型のシンチレータと、線源と一定の距離を離して置いた中性子検出器との間でTOFをとるという方法で行われた。回路系では、PSDにより中性子と γ 線を分離し、中性子だけのTOFスペクトルを測定した。小型シンチレータは直径約5cm、厚さ約5cmのNE213である。

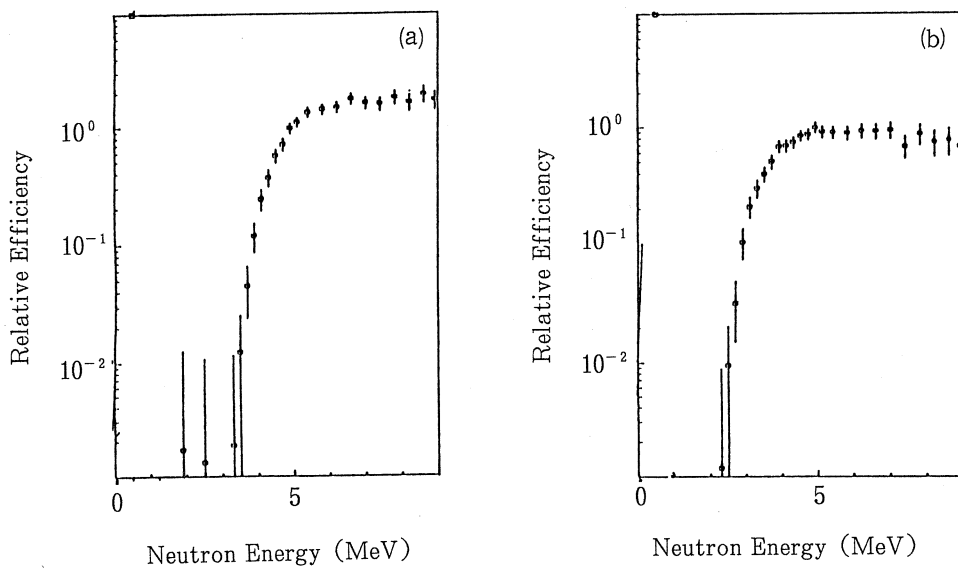
中性子の飛行距離は、エネルギー分解能をあげるための277cmと実際の実験時における75cmの2つの条件で行った。第4図にTOFスペクトルを示す。第4図(a)は距離277cmのもので、第4図(b)は距離75cmのものである。また、検出閾値は¹³⁷Csのコンプトンエッジ(0.4MeVee)と²²Naのコンプトンエッジ(1.1MeVee)で行った。さらに、アブソーバとコリメータを用いて、本実験と同じ測定条件での測定を行った。



第4図 ²⁵²Cf中性子源のTOFスペクトル。(a) TOF距離 2 m77cm, (b)TOF距離 75cm。

第5図(a), (b)は距離を277cmにしたときの検出器のみの相対効率である。(a)はその検出閾値を²²Naのコンプトンエッジ(1.1MeVee)で、(b)は¹³⁷Csのコンプトンエッジ(0.4MeVee)に得られた結果を示す。

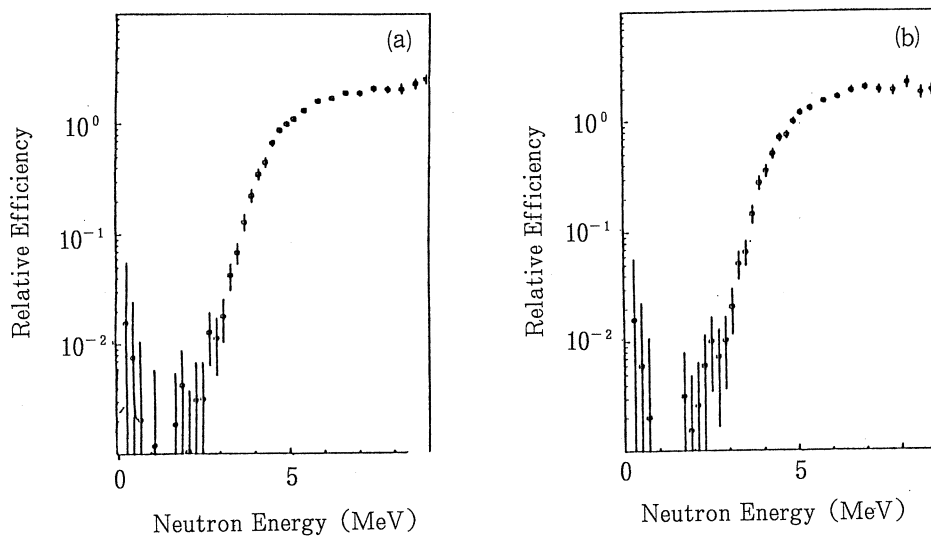
第6図は距離を75cmとし、その検出閾値を1.1MeVeeで得られた結果を示す。(a)は検出器のみの相対効率、(b)はアブソーバ及びコリメータを本実験の測定条件と同じ状態で測定した場合の



第5図 検出効率。TOF距離 2 m77cm。 (a) 検出閾値： ^{22}Na のコンプトンエッジ (1.061MeVee)。 (b) 検出閾値： ^{137}Cs のコンプトンエッジ (0.4MeVee)。

相対効率である。

今回の実験の解析には、0.4MeVeeの閾値の場合の相対効率を用いた。また、絶対値は8 MeVのところまで計算コードTOTEFFの結果に規格化した。



第6図 検出効率。TOFは距離75cm。検出閾値： ^{22}Na のコンプトンエッジ (1.061MeVee)。 (a) は検出器のみ、 (b) アブソーバ及びコリメータ使用。

今後、低い検出閾値でADCとTOFの情報をリストモードで取り込み、どのような検出閾値にも対応できるような状態で、さらに統計のよい検出効率のデータを取る予定である。また、実験的に絶対値を出すことも行う予定である。

3.3 中性子検出器の検出効率の補正

われわれの測定においては、 γ 線および散乱電子を減衰させるためにBiアブソーバ4cmとターゲット以外からくるバックグラウンドを防ぐために鉛のコリメータを用いている。したがってそれらによる中性子フラックスの減少及び増加の割合を評価しなければならない。

まず、Biアブソーバによる中性子減衰率はアブソーバを中性子検出器につけた状態の中性子の計数率とつけていない状態の中性子の計数率とより評価されるので、3.2で述べた実験によって決定された。実験の結果減衰率は

$$24.9 \pm 0.7\%$$

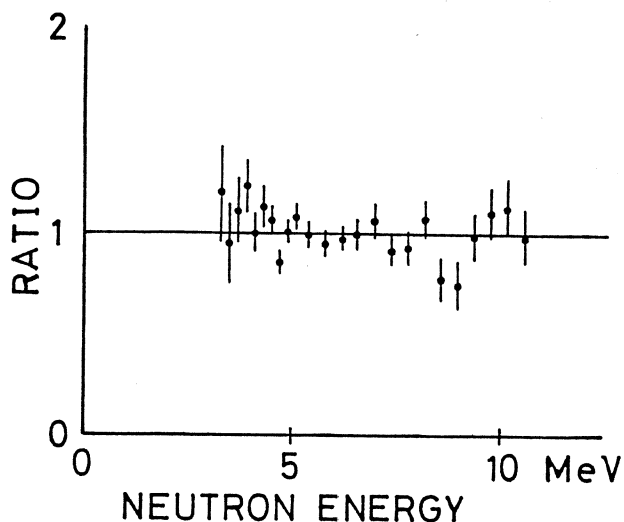
であった。

また、同様にコリメータでの反射による中性子フラックスの増加はコリメータを中性子検出器につけた状態の中性子の計数率と、つけていない状態の中性子の計数率とより評価される。その結果増加率は

$$0.8 \pm 0.15\%$$

であった。

また、Biアブソーバとコリメータを設置したために起こる中性子の検出効果のエネルギー依存性がないことは、それらを設置した場合と、何もつけない状態の検出効果の相対値の比が一定であることから明らかになった。その結果を第7図に示す。

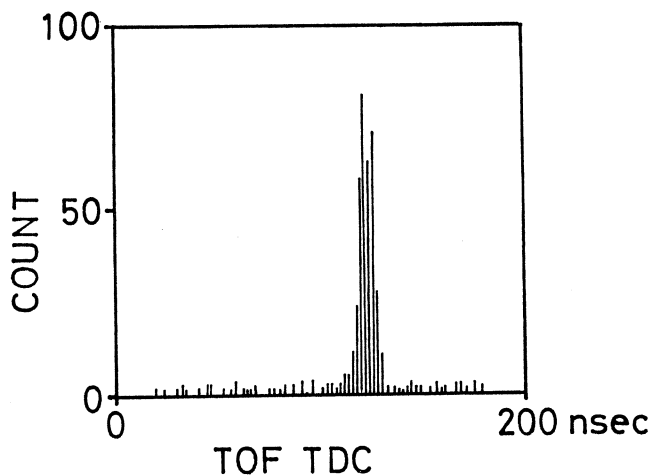


第7図 アブソーバとコリメータによる中性子の検出効率に対するエネルギー依存度。

§4. 実験結果

4.1 TOFスペクトル

前回より検出閾値を下げた0.3MeV_{ee}の検出閾値で行ったが、検出閾値を上げて前回（検出閾値0.7MeV）と同じ程度のS/N比が得られた。第8図に中性子のみTOFスペクトルを示す。



第8図 中性子TOFスペクトル。

4.2 ミッシングエネルギー・スペクトル

ミッシングエネルギー E_m は、励起エネルギー E_x 、中性子のエネルギーを E_n 、残留核の反跳エネルギーを E_r とすると

$$E_m = E_x - E_n - E_r \quad (1)$$

で定義される。

ここで、 E_r は中性子の運動量を p_n 、残留核の運動量を p_r とすると、運動量保存則

$$q = p_n + p_r$$

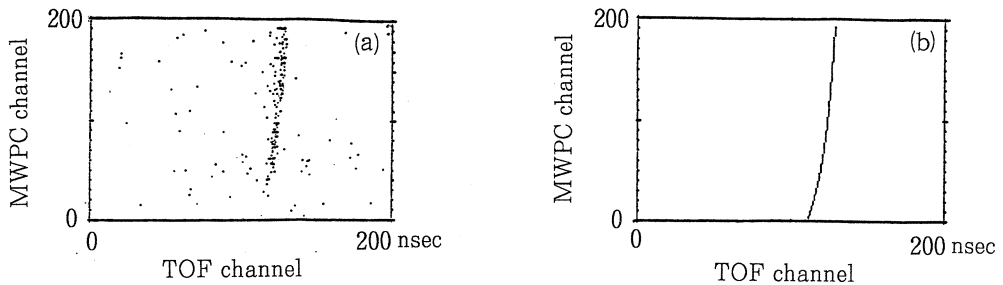
と(1)式のエネルギー保存則の関係から導入することができ、 M と m をそれぞれ残留核と中性子の質量とすると

$$\begin{aligned} E_r &= \frac{p_r^2}{2M} \\ &= \frac{1}{2M} (q^2 + 2mE_n - 2q(2mE_n)^{1/2} \cos \theta_n) \end{aligned} \quad (2)$$

となる。

したがって、MWPCとTOFの情報によりミッシングエネルギー・スペクトルを求めること

ができる。第9図(a)はMWPCとTOFによる2次元表示であり、第9図(b)はミッシングエネルギー



第9図 ミッシングエネルギー・スペクトルの導入。

- (a) MWPC-TOF (第8図において中性子のみを取り出し、横軸TOFスペクトルをとったもの。),
 (b) ミッシングエネルギー-18.7MeV (n_0) の線。

ギー-18.7MeVの線である。(a)と(b)がよく対応しているのがわかる。

これによりミッシングエネルギー・スペクトルを出したものが、第10図である。なお、横軸はミッシングエネルギーより、中性子放出の閾値(18.7MeV)を差し引いたものである。また、バックグラウンドの評価は、TOFスペクトル上で、真の同時計数事象が起こらない領域で求めた。

もし、(e, e'pn) 反応や (e, e'nn) 反応が起こらない場合 E_m は残留核 ^{11}C の励起状態に対応する量となる。励起された原子核が中性子を放出し、残留核が基底状態となるとき、つまり n_0 を放出するとき、中性子放出の閾値を E_{th} とすると、

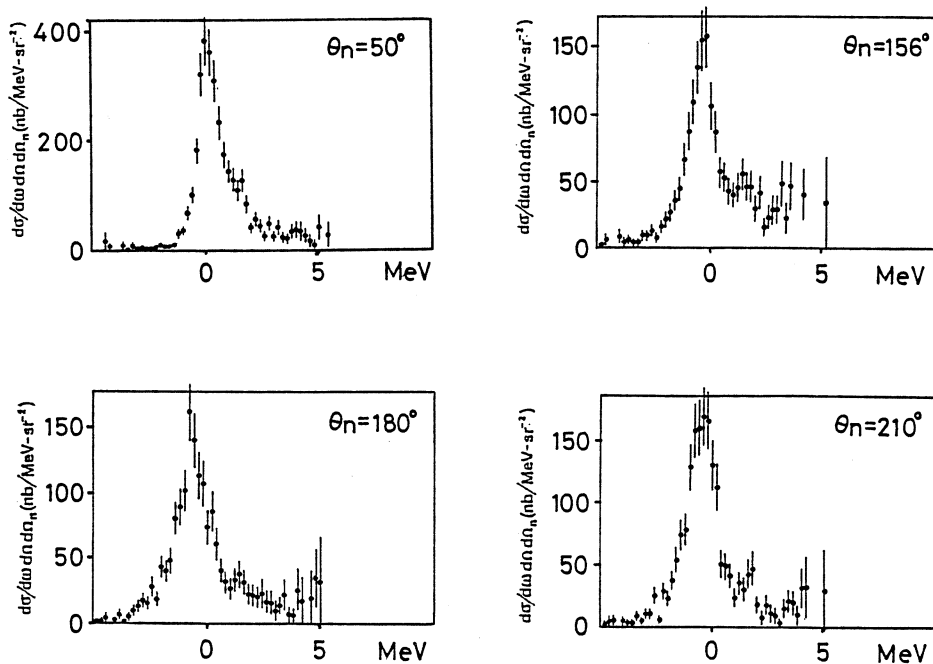
$$E_m = E_{th}$$

となる。さらに、 n_1 , n_2 等がスペクトル上のより高エネルギー側に分布する。したがって、この量を使って n_1 等を分離できる。

今回の分解能は、 n_0 の中性子に対しては半値幅で1.2MeVであった。また、飛行距離75cmにおいて2MeV離れた n_0 と、 n_1 が分離できることがわかり、 ^{12}C の巨大共鳴の崩壊に伴う放出中性子は、 ^{11}C の第一励起状態へいくものが約20%であることがわかった。一方、 $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ の実験結果では、この分岐比は17%と報告さわおり、この結果と一致する。

4.3 励起関数

励起関数はミッシングエネルギー・スペクトルより n_0 のみ取り出し、放出中性子エネルギーに対する検出効率の補正を行って得られた。(1), (2)式より E_n を励起エネルギーとミッシングエネルギーの差 C を用いて



第10図 ミッシングエネルギー・スペクトル。横軸はミッシングエネルギーより，中性子放出の閾値 (18.7MeV) を差し引いてある。

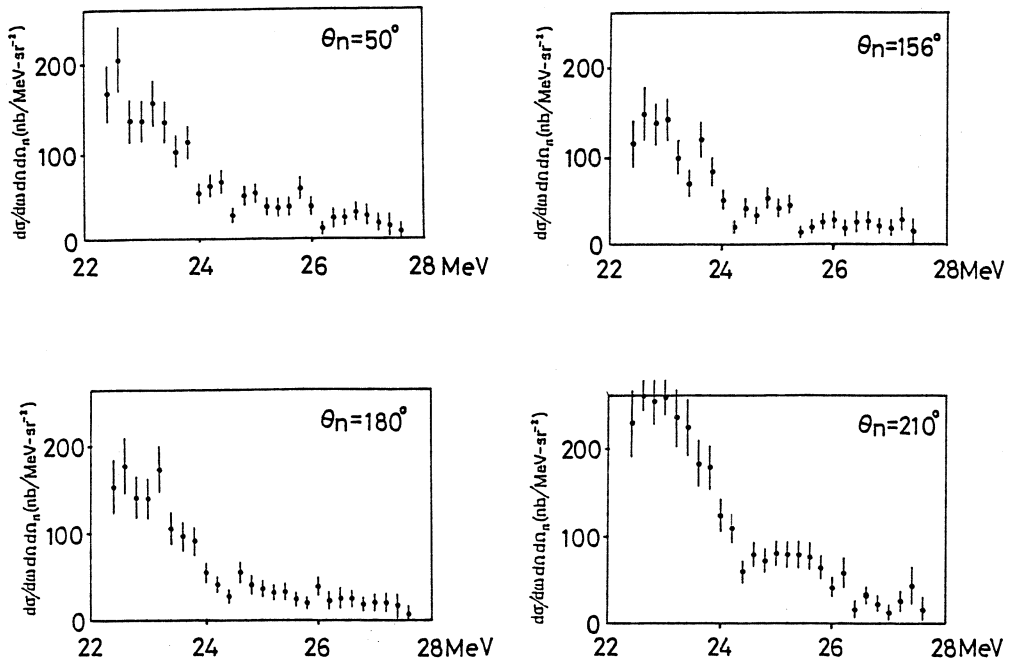
$$E_n = \frac{E1 \pm 2q (m \cos^2 \theta \cdot E2)^{1/2}}{2(M+m)^2}$$

$$E1 = 2mq^2 \cos^2 \theta - (M+m)(q^2 - 2MC) \quad (3)$$

$$E2 = mq^2 \cos^2 \theta - (M+m)(q^2 - 2MC)$$

と表すことができる。

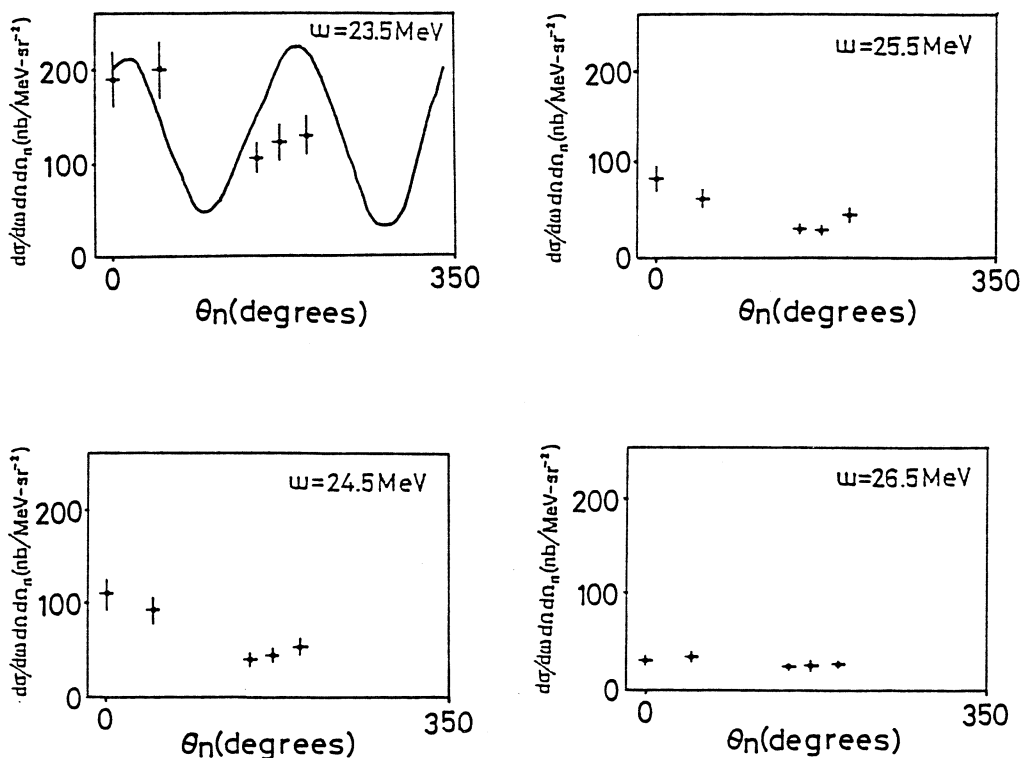
今回の測定で得られた励起関数を第11図に示す。このとき中性子の検出閾値は0.4MeVで行ったので，図には励起エネルギー22MeV付近からのデータが示されている。得られた励起関数は $^{12}\text{C}(\gamma, n)$ の励起関数⁴⁾とよく似た形である。これは今回の測定では移行運動量が小さいため，双極子以外の成分があまり励起されなかったためであると考えられる。また， $^{12}\text{C}(e, e'p)$ の励起関数⁵⁾ともほとんど同じ形である。今後は n_1 の励起関数についても解析する予定である。



第11図 励起関数（真の事象のみを取り出し， n_0 に対する0.2MeVごとの反応生成量を求めたもの）。

4. 4 角分布

励起エネルギーが23.5MeVから26.5MeVまで1 MeVのエネルギー幅での角分布を第12図に示す。図からわかるように、23.5MeVから25.5MeVにかけて移行運動量側と反移行運動量側ではその強度が違う分布を示している。また、ピークの位置が90°対称からずれている。励起エネルギー23.5MeVの実線は、 $\theta_n=20^\circ$ で規格化したCavinato等のRPA計算⁶⁾の角分布の予測値（励起エネルギー22.5MeVの $q=0.44\text{fm}^{-1}$ の値）である。Cavinato等の計算は双極子分のみを仮定した結果である。実験結果が示している移行運動量側と反移行運動量側での非対称の理由は、双極子以外の成分との干渉によるものか、あるいはcharge exchange processのためであると考えられる。また、ピークの位置が90°対称からずれているのは、縦成分以外の成分の結果、すなわち縦-横干渉項によるものであると考えられる。また、今回の結果は $^{12}\text{C}(e, e'p_0)$ 反応⁸⁾の角分布とは多少異なっており、 $(e, e'n)$ 反応は2体相関の演算子のみに関与するので、この違いは興味のあるところである。



第12図 角分布。実線はCavinato等のRPA計算の予測値。(運動量移行 q の値は、理論の設定値は $q=0.4\text{fm}^{-1}$ で、実験の設定値 $q=0.3\text{fm}^{-1}$ と多少違っている。

§5. 結論

前回に続き今回も十分よいS/N比で(e, e'n)反応の角分布を測定できた。

γ フラッシュの時間分解能は半値幅で1.2nsecであり、本測定(中性子エネルギー3~8 MeV, 中性子飛行距離0.75m)における中性子エネルギー分解能は半値幅で1.2MeVであった。

^{12}C の巨大共鳴の崩壊に伴う中性子放出は、(e, e'n)反応においては、 n_0 が約80%であることがわかった。励起関数では包括的な電子散乱や、(γ , n)反応等で明らかにされている23.8 MeV及び25.5MeVの巨大共鳴のピークが観測された。運動量移行が 0.33fm^{-1} の領域では、相対的な形は、 ^{12}C (γ , n)の励起関数や ^{12}C (e, e'p)の励起関数とほとんど変化はなかった。角分布は移行運動量側と反移行運動量側ではその強度が違い、ピークの位置が 90° 対称からずれている分布を示した。また、 ^{12}C (e, e'p₀)反応の角分布とも異なる分布を示した。

なお、現在の解析したデータは、輻射補正を行っていない。また、中性子検出器の検出効率、相対値を実験的に求めたが、より確かな断面積を得るため、実験的に検出効率の絶対値を

決めることを行いたい。今後は、それらを考慮した解析を行い、絶対値についての議論を行う予定である。

中性子検出器の検出効率測定に際して大変お世話になった東北大学原子核工学科の馬場 護講師に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 高久圭二他：核理研研究報告 **21** (1988) 145.
- 2) 高久圭二：修士論文，東北大学，1988.
- 3) R. J. Kurz：University of Colorado Computer Progrm (unpublished) .
- 4) S. C. Filtz *et al.*：Phys. Rev. **143** (1966) 790.
- 5) J. R. Calarco：Proc. 1st Symp. on Highly Excited States in Nucl. Reactions, Osaka 1980, p. 543.
- 6) M. Cavinato *et al.*：Nucl. Phys. **A444** (1985) 13.

Measurements of ${}^{6,7}\text{Li}(\gamma, p)$ Cross Sections Using Tagged Photons

I. Nomura, O. Konno, K. Maeda[†], D. McLean^{††},

T. Suda[†], T. Terasawa, and, J. Yokokawa
*Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University,
Mikamie, Sendai 982, Japan*

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

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

§ 1. Introduction

In the photon energy region above the giant dipole resonance and below the pion threshold, two photonuclear absorption mechanisms compete. Boffi *et al.* have shown that for light nuclei it is possible to account for the (γ, p) cross sections to ground states in the residual nucleus using a quasifree knockout model (QFK)¹⁾. However the near equality of (γ, p) and (γ, n) cross sections of light nuclei to low lying states has been interpreted as an initial interaction of the photon with a correlated proton-neutron pair. This quasi-deuteron (QD) model was also put forward by Schoch to explain the angular distributions of the photoproton and photoneutron cross section in ${}^{16}\text{O}$ ²⁾. Recently Sene *et al.* have noticed that if recoil terms are included in the QFK model the calculated ratio of the (γ, n_{0+1}) cross sections to that of (γ, p_0) was improved towards the ratio obtained from the data, at least for ${}^7\text{Li}$ ³⁾.

Previous (γ, p) cross section measurements in Li making use of monochromatic photons for $30 < E_\gamma < 140$ MeV are rather scarce. Using bremsstrahlung photons at 60 MeV and $\theta_p^{\text{lab}} = 45^\circ$, proton spectra were obtained by Matthews *et al.* over a range of residual nuclear excitation energy up to 30 MeV for ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$ ⁴⁾. The observed structure at higher excitation energies was taken as an indication of QFK of protons from the s-shell. However recent measurements of the energy and angle of coincident np pairs from the ${}^6\text{Li}(\gamma, pn)$ reaction with 67 MeV bremsstrahlung, have shown that most of the events interpreted as arising from an s-shell QFK process result probably from the QD mechanism⁵⁾. Moreover recent (γ, p) cross section data for light nuclei using the

tagged photon technique, strongly support the claim that photon interaction with np pairs prevails for high residual nuclear excitation energies^{6,7)}.

The first measurement of ${}^6\text{Li}(\gamma, p)$ using tagged photons was made over the energy range $40 < E_\gamma < 100$ MeV and for $\theta_p^{\text{lab}} = 90^\circ$ ⁸⁾. The comparison of the results with a quasi-deuteron calculation show that for high excitation energies in the residual nucleus photon interaction with proton-neutron pairs is dominant at least for $E_\gamma > 80$ MeV. However, for lower photon energies the narrow peaks appear on the broad structure, and the missing energies of these peaks correspond to the protons directly knocked out from s-shell on $(e, e'p)$ reaction. This fact suggests that the contribution of the QFK of s-shell protons is non-negligible.

In this paper we present experimental cross sections for inclusive photomission of protons from ${}^{6,7}\text{Li}$ at $30^\circ < \theta_p^{\text{lab}} < 110^\circ$ for $60 < E_\gamma < 100$ MeV. Our main interest in the ${}^{6,7}\text{Li}(\gamma, p)$ process is to determine whether or not the process in which single protons are emitted exists on a structure corresponding to ejection of pn pairs resulting from the QD photoabsorption mechanism. Furthermore, the variation of the (γ, p) cross sections between the isotope nuclei, ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$, is expected to give us new information about the photoabsorption process.

§ 2. Experimental Set Up

The measurements were performed by using the 150 MeV photon tagging system at Sendai. The experimental set-up is shown schematically in Fig. 1. Incident electron energy and beam duty factor were 130 MeV and 80%, respectively. The energy range of quasimonochromatic photon used here was 35 to 102 MeV. The collimated photon beam had a size of about 40 mm at the target position. 219 mg/cm² thick 99.9% enriched ${}^6\text{Li}$ and 209 mg/cm² thick natural Li were used for ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$ targets, respectively. The tagging efficiency defined as the ratio of the number of tagged photons incident on the nuclear sample to the number of electrons counted in the associated tagging scintillator was typically about 52%. The present set up enables us to obtain a photon flux of about a few 10^6 per second. The angular distribution of photoprotons was measured between 30 degrees and 150 degrees using the ΔE - E type proton detector. One ΔE (80 mm^w × 300 mm^l × 2 mm^t) and three E counters (3"φ × 80 mm^t) are set for each angle, and altogether provide 1 sr solid angular acceptance. Details are described in the recent report⁹⁾. In this condition, the S/N ratios

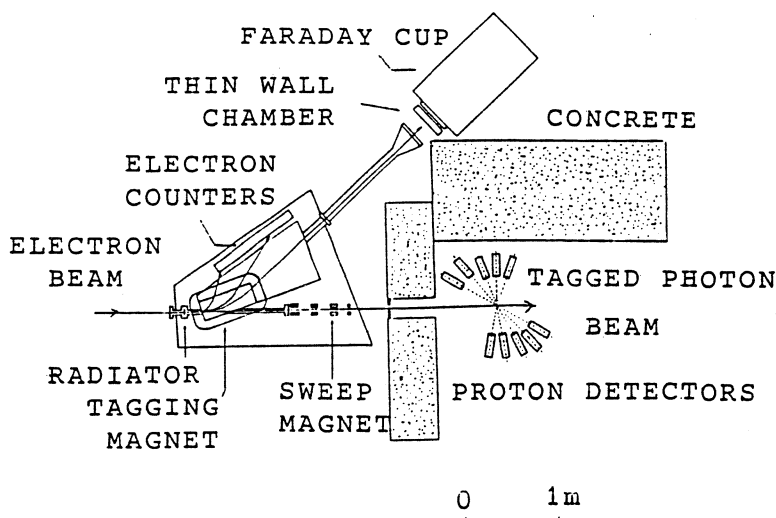


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental set-up.

derived from the electron-proton TDC spectra vary from 14 to 33 for 30 to 110 degrees.

§ 3. Results And Discussion

Typical photoproton spectra for the ${}^6\text{Li}(\gamma, p)$ inclusive reaction are shown in Fig. 2. As in the previous measurements, the present proton spectra show two narrow peaks. The first peak corresponds to the (γ, p) reaction to the ground state and first excited state (peak 1), the second one in the higher missing energy (peak 2), lies on a rise of the broad structure. Comparing with the spectra of $(e, e' p)$ reaction, these two peaks correspond to the knockouts of protons from the p-shell and s-shell, respectively. The broad structure (peak 3) corresponds the region where the QD process is expected to be dominant. The cross sections for this process are integrated over the 20–40 MeV and 25–45 MeV missing energy range for ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$, respectively, while the cross sections of peak 2 are derived by subtracting the contribution of the broad structure.

In Fig. 3, 4 the photon energy dependence of cross sections and emitted proton angular distributions are shown for peak 1, 2 and 3. With increasing the photon energy, the cross section for peak 1 and 2 decrease rapidly. On the contrary the cross section of peak 3 doesn't have such a steep energy dependence. And peak 1 and 2 show a clear forward angular peaking while peak 3 does not. These facts suggest that peak 1 and peak 2 are due to the same reaction mechanism, and that this is different from that of peak 3.

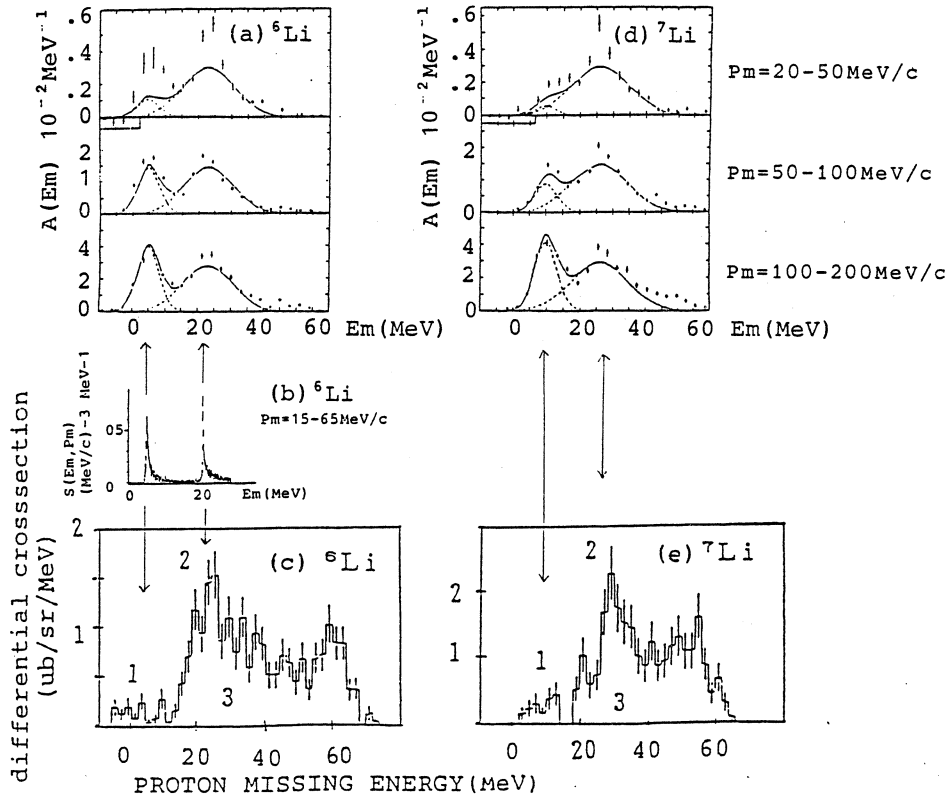


Fig. 2. Comparisons between the photoproton spectra for $E_\gamma = 90.4 \pm 2.6$ MeV, $\theta_p^{\text{lab}} = 45^\circ$ (c), (e), and the spectra on (e, e', p) reaction spectra from (a), (d) ref. 11 and (b) ref. 12: (a) - (c) ${}^6\text{Li}$ and (d), (e) ${}^7\text{Li}$.

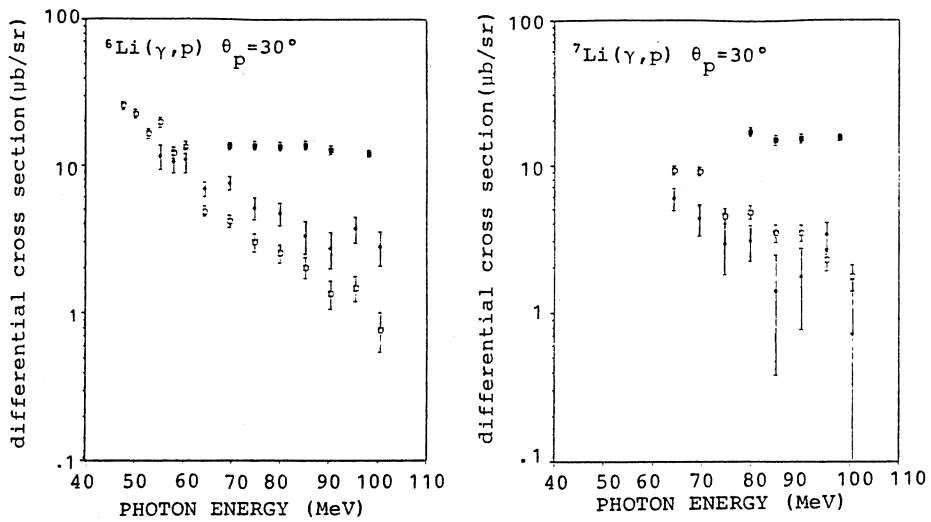


Fig. 3 The photon energy dependence of the cross sections for ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$: open square, solid circle and solid square are peak 1, peak 2 and peak 3, respectively.

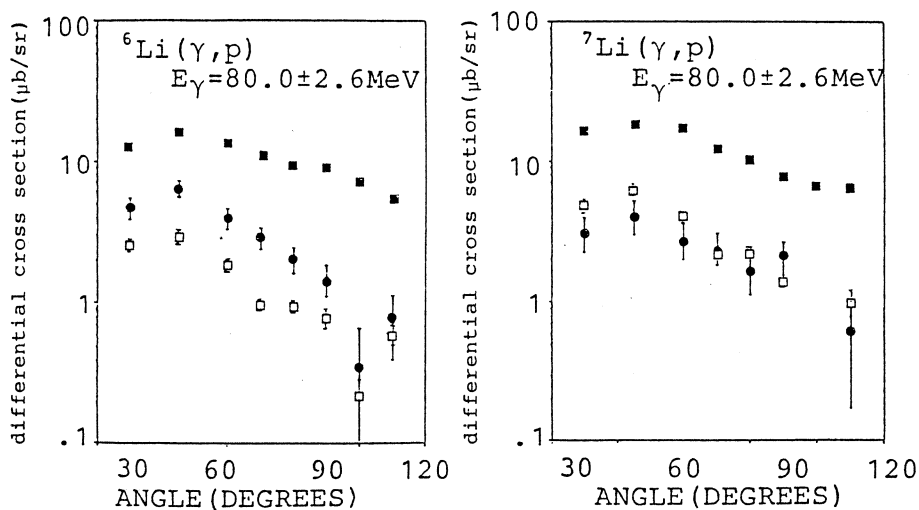


Fig. 4 Proton angular distribution of the cross sections for ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$: symbols are same as in fig. 3.

The ratios of the cross section of ${}^7\text{Li}(\gamma, p)$ to that of ${}^6\text{Li}(\gamma, p)$ for each peak are about 2, less than 1 and about 1.3 (Fig. 5-7). Comparison of the ratios derived from the

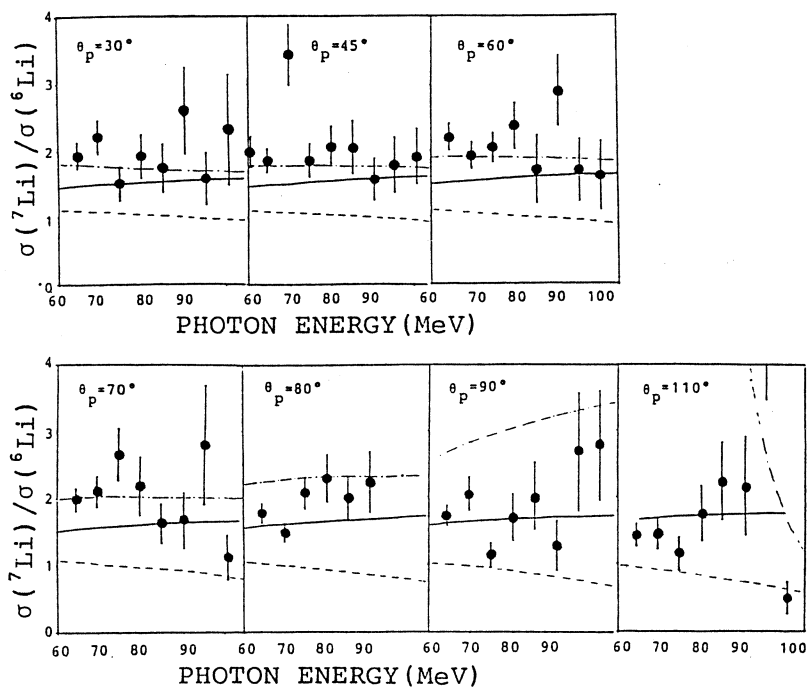


Fig. 5 The ratios of cross section of ${}^7\text{Li}(\gamma, p)$ to that of ${}^6\text{Li}(\gamma, p)$ for peak 1: QFK (solid line), QFK + recoil term (dotted and dashed line), QD (dashed line) and the present data (solid circle).

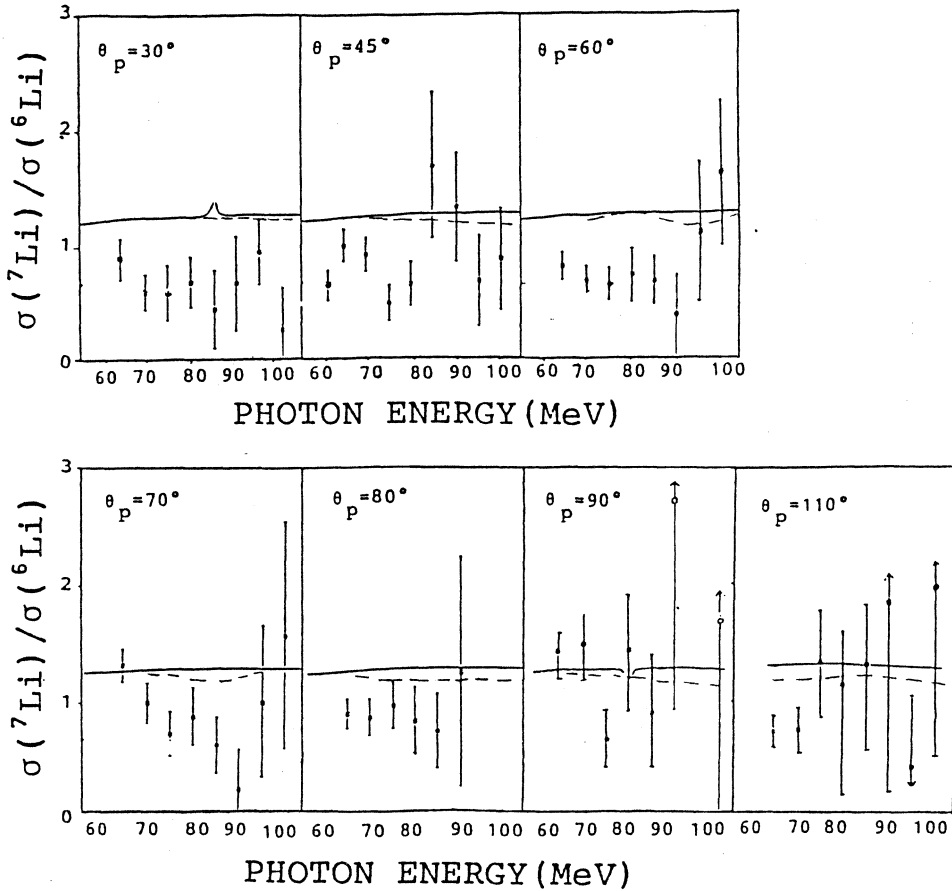


Fig. 6 The ratios of cross section of $^7\text{Li}(\gamma, p)$ to that of $^6\text{Li}(\gamma, p)$ for peak 2: symbols are same as in fig 5.

date with the calculated results show that in peak 1, the data supports the direct knockout model rather than QD (Fig. 5). Additionally including the recoil terms would make calculation increase towards the data. With respect to the peak 2 there is no significant difference between the QFK and QD model (Fig. 6). Peak 3 is the region where the QD model could be expected to explain the data. The calculated ratio can reproduce the ratio derived from the data, as expected. (Fig. 7)

The experimentally derived ratios for peaks 1 and 2 can be roughly explained by the crude QFK model. So the momentum distributions in ^6Li and ^7Li spanning the range of 200–450 MeV/ c are derived from the experimental data on the $^6\text{Li}(\gamma, p_{0+})$ reaction (peak 1) and on the reaction leading to emission of s-shell protons (peak 2) (fig. 8).

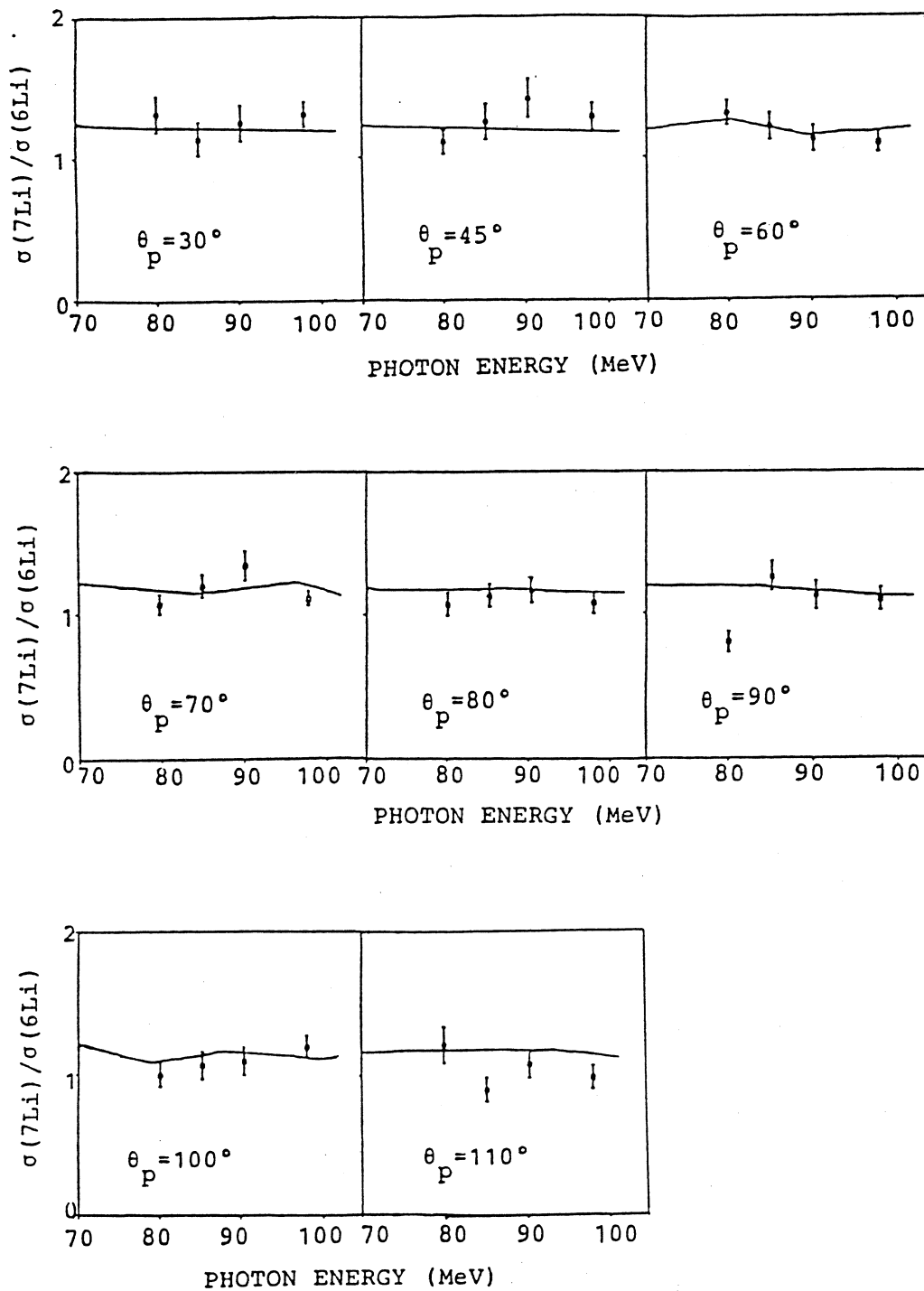


Fig. 7 The ratios of cross section of ${}^7\text{Li}(\gamma, p)$ to that of ${}^6\text{Li}(\gamma, p)$ for peak 3, compared with ratios derived from the QD calculation(solid line).

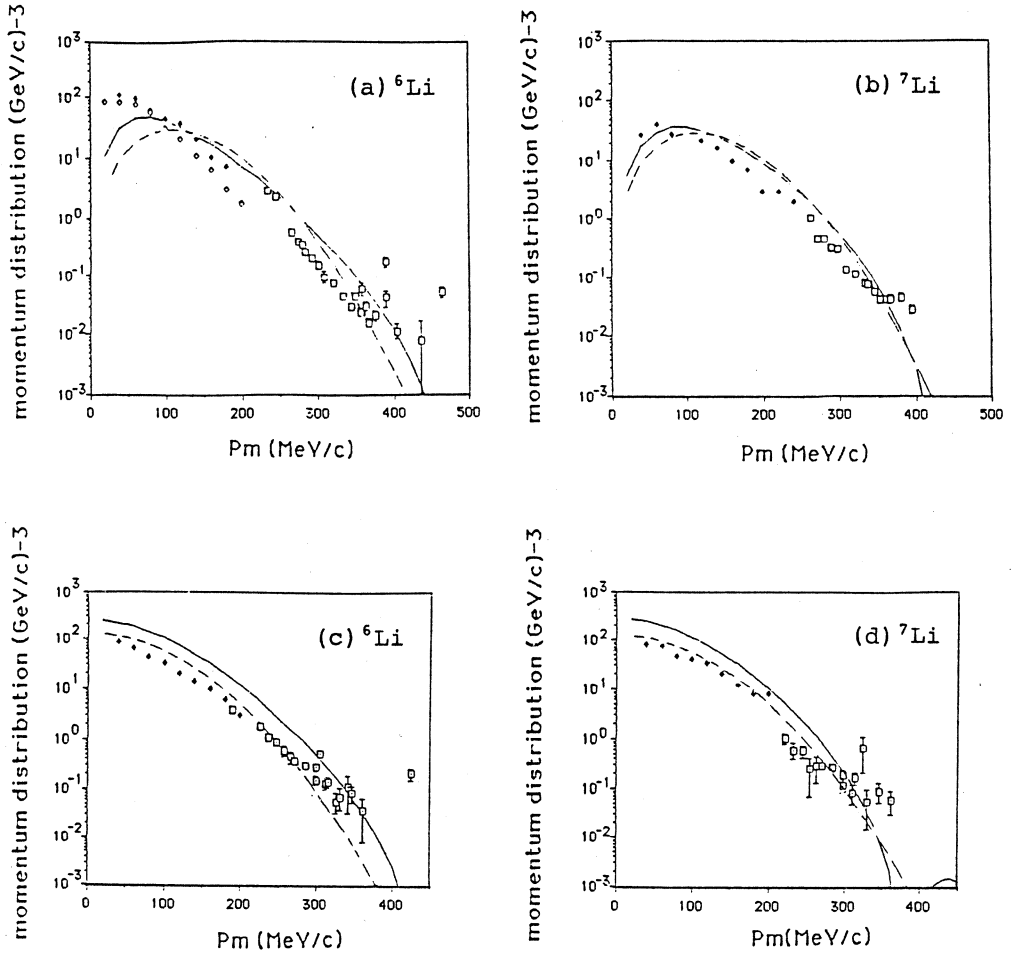


Fig. 8 Proton momentum distribution for (a), (c) ${}^6\text{Li}$ and (b), (d) ${}^7\text{Li}$ derived from the peak 1(a),(b) and peak 2(c), (d) of the present data(open squares). Solid and open diamonds are derived from the measurements on $(e, e' p)$ reaction of [NA78] and [LA88], respectively. They are compared with the calculated shell model momentum wave function using harmonic oscillators(dashed line) and a Woods Saxon potential¹³⁾ (solid line).

Both the momentum distributions deduced from the current (γ, p) data and from the $(e, e' p)$ reaction agree well. These momentum distributions are compared with the calculated shell model momentum wave function. P-shell and s-shell momentum distributions are compared to ones deduced from the (γ, p_{0+1}) region and s-shell protons region. In the s-shell region, the momentum distributions deduced from the data are compared

with the experimental ${}^4\text{He}$ momentum distribution¹⁰). Despite the fact that p-shell protons exist in Li, the s-shell momentum distributions agree well with that of ${}^4\text{He}$ up to the high momentum region (fig. 9).

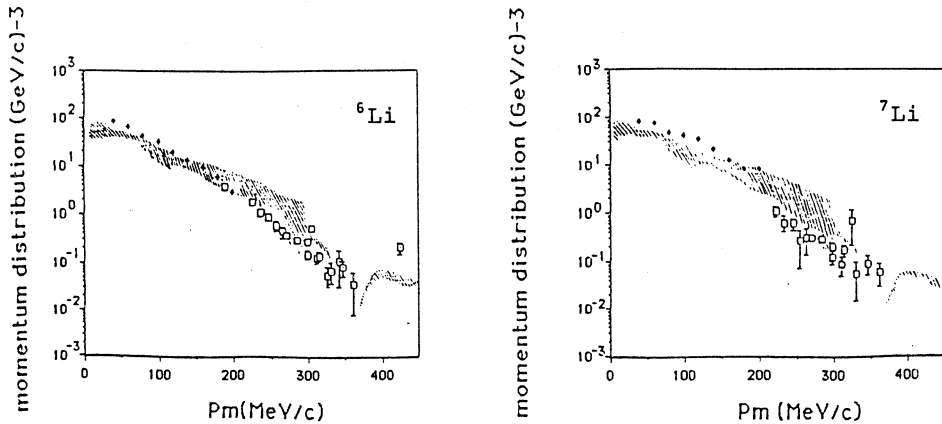


Fig.9 Proton momentum distribution derived from the data compared with that of ${}^4\text{He}$ ¹⁰ (shadow).

§ 4. Conclusion

In summary, ${}^{6,7}\text{Li}(\gamma, p)$ cross sections have been obtained over a photon energy range of 60–100 MeV and emitted proton angles of 30–110 degrees. In the higher missing energy region a structure where s-shell protons are directly knocked out exists, superimposed on the QD region. The ratio of ${}^7\text{Li}(\gamma, p)$ cross sections to that of ${}^6\text{Li}$ are about 2, 1 and 1.3 for (γ, p_{0+1}) region, s-shell region and the QD region, respectively. The cross sections trends show that (γ, p_{0+1}) and s-shell peaks correspond to direct knockout of p-shell and s-shell protons. The p-shell and s-shell momentum distributions in ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$ spanning the range 200–450 MeV/ c are derived. The s-shell momentum distribution, despite the fact that p-shell protons exist in the Li nucleus, agree well with momentum distribution of ${}^4\text{He}$ up to the high momentum region.

References

- 1) S. Boffi *et al.* : Nucl. Phys. **A420** (1984) 38.
- 2) B. Schoch : Phys. Rev. Lett. **41** (1978) 80.

- 3) M. R. Sene *et al.* : Nucl. Phys. **A442** (1985) 215.
- 4) J. L. Matthews : Nucl. Phys. **A267** (1976) 51.
- 5) M. W. Wade : Phys. Rev. Lett. **53** (1984) 2540.
- 6) K. Mori : Ph. D. Thesis, Tohoku University (1985).
- 7) T. Suda *et al.* : J. Phys. Soc. Jpn. **57** (1988) 5.
- 8) P. J. Carlos *et al.* : Phys. Lett. **B203** (1988) 33.
- 9) I. Nomura *et al.* : Reseach Report of Laboratory of Nuclear Science **21** (1988) 79.
- 10) V. A. Goldstein *et al.* : Nucl. Phys. **A355** (1981) 333.
- 11) K. Nakamura *et al.* : Nucl. Phys. **A296** (1978) 431.
- 12) J. B. J. M. Lanen : private communication.
- 13) S. Gamba, G. Ricco and G. Rottigni : Nucl. Phys. **A213** (1973) 383.

The ^{40}Ca Ground-State Photoneutron Cross Section from 30 to 100 MeV

J. A. Eden, D. J. McLean, M. N. Thompson,
I. Nomura [†], T. Terasawa [†], J. Yokokawa [†], K. Maeda ^{††} T. Suda ^{††}.

*School of Physics, The University Of Melbourne,
Parkville 3052, Australia.*

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

^{††} *College of General Education, Tohoku University,
Kawauchi, Sendai 980, Japan*

The ^{40}Ca (γ, n_0) double differential cross section has been measured at neutron emission angles of 45° , 60° , 75° , 90° and 140° , using tagged photons of energy 30 to 100 MeV. The experiment was performed at The Laboratory For Nuclear Science at Tohoku University, as part of a collaborative program carried out by the Tagged Photon Group at Tohoku University and the Photonuclear Group at The University Of Melbourne. Since most of the experimental procedures used to measure (γ, n) cross sections have become somewhat standard at the laboratory^{1,2}, this report will focus on details peculiar to the present measurement. The theoretical significance of the present measurement will be discussed in a later publication.

The inclusion of the 140° detector required a new shielding arrangement, as shown in figure 1. The essential change from earlier measurements is the removal of the shielding between the collimator and the detectors. This caused an increase in the background rate, and, more importantly, an increase in the correlated background rate. If a correlated neutron background exists, the experimental data can be irretrievably corrupted. For the 140° detector, the correlated neutron background, arising from tagged photons hitting the collimator, was kinematically separated from photoneutrons produced in the target. However, the similarity of collimator-detector and target-detector separations for

detectors at other angles made it impossible to reject the correlated photoneutrons coming from the collimator. Consequently, it was decided to remove the collimator, and this proved to be an effective way of eliminating the correlated neutron background. It carried the additional advantage that the tagging efficiency improved from about 45% to about 70%, which is equivalent to a duty factor improvement of more than 60%.

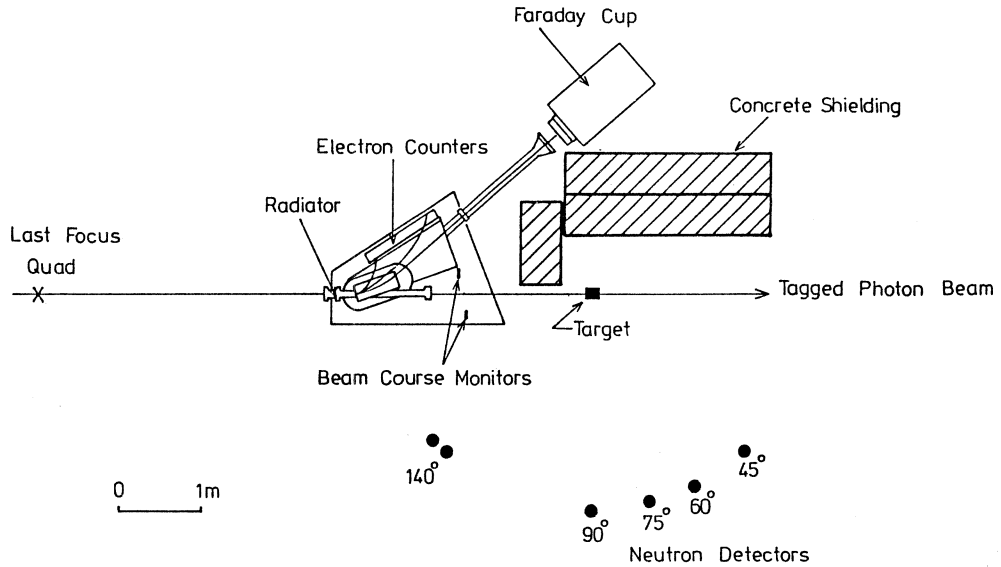


Fig. 1. The experimental arrangement for the $^{40}\text{Ca} (\gamma, n)$ experiment.

One complication in removing the collimator is, however, that the photon beam profile incident on the cylindrical target (radius 3.6 cm, length 14.8 cm) is different from that which is incident on the Cherenkov detector (square projected area 10 cm x 10 cm, length 30 cm) which was used to measure the tagging efficiency. Hence the measured tagging efficiency does not describe the true tagging efficiency for the target, and a correction must be made. This correction requires an integration of the bremsstrahlung photon angular distribution⁴⁾ over the boundaries of the faces of the target, and of the Cherenkov detector. Since the orientation of the bremsstrahlung photon axis must be known for this correction, two thin (1 cm) plastic scintillators (5 cm x 5 cm) were located about the beam and acted as beam course monitors. The ratio of the discriminated counts from the beam course monitors was intercalibrated against the tagging

efficiency and the position of the electron beam at the bremsstrahlung radiator. Since the electron beam is central at the last focus quad, this calibration is sufficient to specify the position of the beam axis at the target face. Thus, for each data run (about 20 minutes), the position of the bremsstrahlung axis was measured and the true tagging efficiency for the target dimensions was determined. The precision of this correction is estimated to be 3%.

The differential cross sections for the reaction $^{40}\text{Ca}(\gamma, n_0)$ are shown in figure 2 for neutron emission angles of 45, 90 and 135 degrees. In the absence of recognisable level structure in the missing energy spectra, the cross sections were obtained by summing the missing energy spectra between fixed limits of $E_m = -3 \text{ MeV}$ to 3 MeV . This is not regarded as ideal. The neutron energy resolution varies from about 2 MeV at $E_\gamma = 30 \text{ MeV}$, deteriorating to about 10 MeV at $E_\gamma = 100 \text{ MeV}$. As a consequence, the cross sections contain some contribution from reactions where the daughter is not left in the ground state. With this precautionary note, it is possible to make a couple of observations. The $^{40}\text{Ca}(\gamma, n_0)$ differential cross section is no larger than that of ^{16}O , and appears similar in magnitude to the $^{40}\text{Ca}(\gamma, p_0)$ differential cross section³⁾ (shown as solid squares in fig. 2). A large portion of the neutron emission strength is found in non-ground-state reaction channels, perhaps due in part to the high level density of low lying states in ^{39}Ca .

Perhaps of more immediate interest to this report are the implications for future experiments at this Laboratory. It is clear that the data presented here contain large statistical uncertainties, particularly at 135° where the cross section is extremely small, and quite structureless. Although measurement of the cross section in the high missing energy region is experimentally attractive, there are at this stage no formal microscopic calculations that are capable of predicting photoreaction cross sections where the daughter nucleus is left in excited states. In the case of cross sections to the residual ground state, for which some microscopic calculations are available, it is the angular rather than the excitation energy dependence that is highly structured, and thus more important. In order to obtain good statistics for (γ, n_0) reaction data at a range of angles, the use of bremsstrahlung beams has some advantages.

It should be noted, however, that bremsstrahlung photon data is not reliable unless

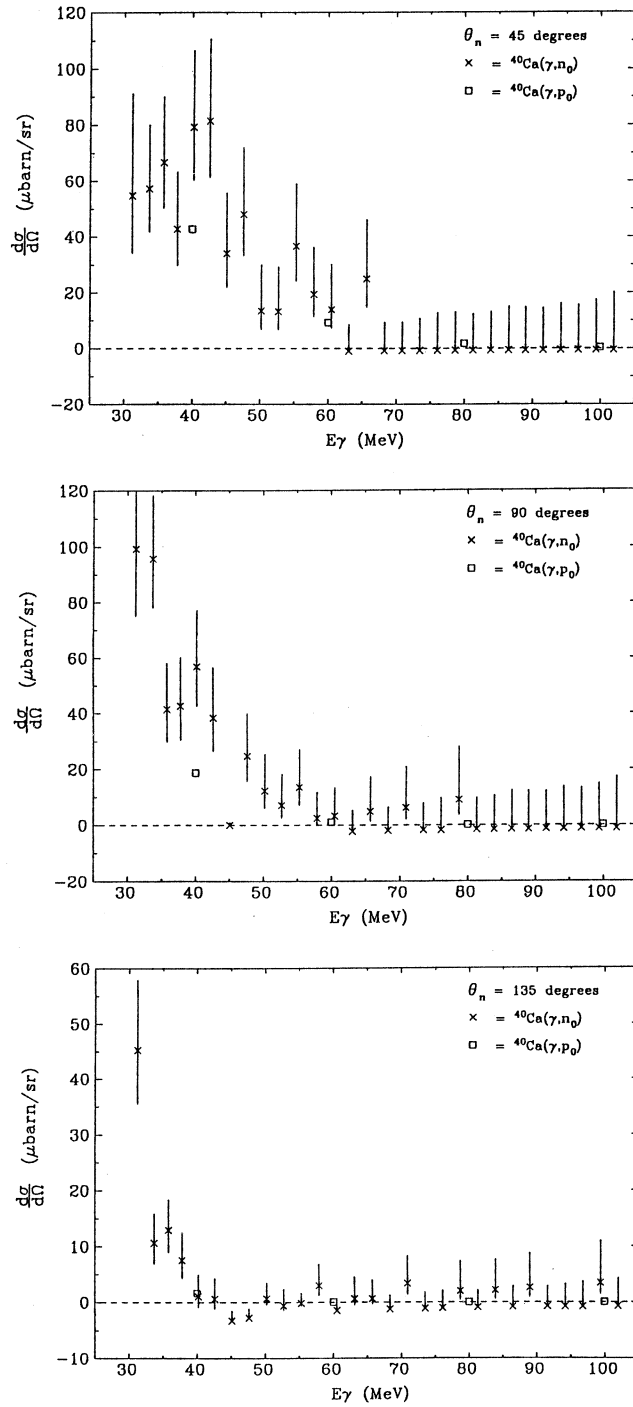


Fig. 2. The $^{40}\text{Ca}(\gamma, n_0)$ differential cross section ($\mu\text{barn/sr}$) at 45° , 90° and 135° . The data for the $^{40}\text{Ca}(\gamma, p_0)$ reaction³⁾ is shown as solid squares.

the ground and first few excited states in the daughter nucleus can be clearly separated. Moreover, recent results from M.I.T [5] suggest that the all important (γ, n_0) angular distribution remains exceeding difficult to measure accurately. In the face of this difficulty, the nucleon-nucleon correlations might better be studied via the (γ, pn) and (γ, pp) reactions, with particular emphasis on the reactions leading to population of the ground state in the daughter nuclei. If such measurements can be performed on "simple shell model nuclei" (^4He , ^{16}O , ^{40}Ca) the comparison with theory will be more straightforward.

References

- 1) P. D. Harty: Ph. D. Thesis, University of Melbourne (1986).
- 2) G. J. O'keefe *et al.* : Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University **21** (1988) 6.
- 3) R. O. Owens: private communication.
- 4) H. W. Koch and J. W. Motz: Rev. Mod. Phys. **31** (1959) 920.
- 5) E. J. Beise *et al.*: to be published in N. I. M.
J. L. Mathews: private communication.

Ⅱ. 物 性 物 理

LaSrFeO₄ の磁気構造

仙台電波高専, 金研*

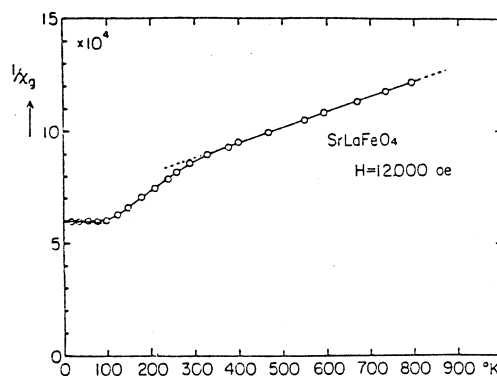
小野寺重文・梶谷 剛*

§1. 序論

結晶構造がK₂NiF₄型であるLa_{1.5}Sr_{0.5}CoO₄¹⁾, La_{0.5}Sr_{1.5}MnO₄²⁾やLaSrFeO₄の磁化率は, 液体窒素温度から4.2Kまで一定で温度変化していないことが報告されている。第1図にAso³⁾によって測定されたLaSrFeO₄の磁化率。

の温度変化を示す。330Kと100K付近に異常がみられる。330K付近の異常は, メスバウアー効果⁴⁾で求められていた内部磁界の消失温度(330K)と一致している。低温で磁化率が温度変化しない理由は明らかでない。同じK₂NiF₄型結晶構造の典型的な二次元磁性体K₂CoF₄, Rb₂CoF₄の磁化率の温度変化⁵⁾は通常の絶縁体の三次元反強磁性体のそれと似ており, LaSrFeO₄の磁化率異常に次元が直接原因しているとは

考え難い。この物質での磁気構造や結晶構造の温度変化は, 上記磁化率の異常を考える上でも重要であるが, いまだ詳しい研究がなされていない。本報告では, LaSrFeO₄の磁気構造を粉末中性子回折装置を使って調べた結果を報告する。



第1図 LaSrFeO₄の磁化率の逆数の温度変化。(Asoらの測定による。文献3)

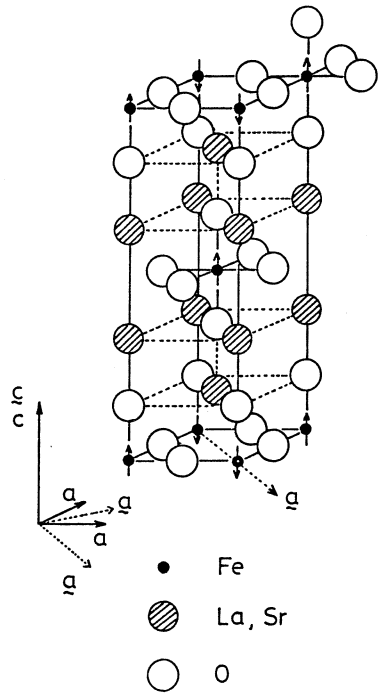
§2. 試料作製

α -Fe₂O₃, SrCO₃とLa₂O₃の所定量を混合し, 空气中1000°Cで24時間熱処理・混合を3回繰り返し, その後空气中1350°Cで6時間熱処理・混合を4回繰り返し行なった。冷却する時は, 電気炉より取り出し, 空气中で急冷した。

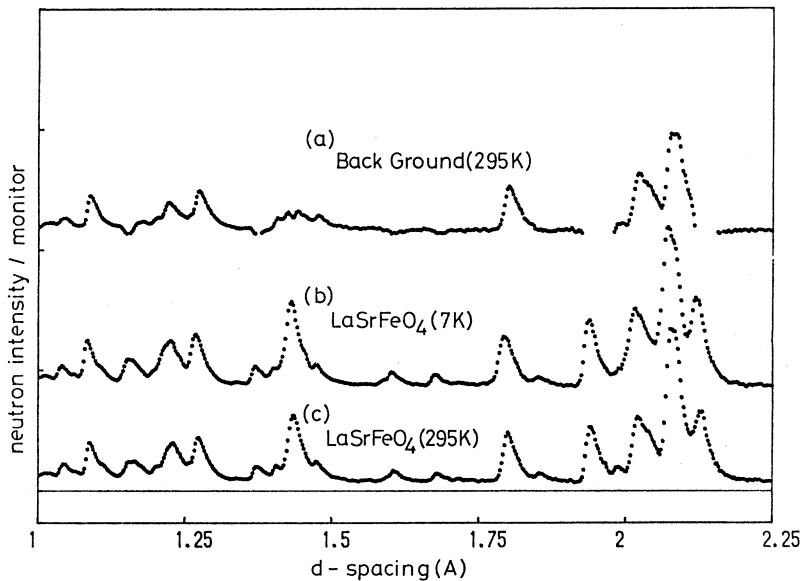
§3. 実験結果・考察

第2図にK₂NiF₄型の結晶構造と磁気構造を示す。結晶構造の基本単位格子を, 結晶軸a, a,

cで示したとり方をした。また磁気構造の基本単位格子を、結晶軸 $a (= \sqrt{2}a)$, $a (= \sqrt{2}a)$, c のようにした。第3図に散乱角150度においたカウンターバンクで収集したTOF回折スペクトルを示す。スペクトル(a)は、試料を低温に冷やす為に使用したクライオスタットからの散乱スペクトルである。このスペクトルが(b)や(c)のスペクトルでは試料からの散乱スペクトルに重畳している。スペクトル(b), (c)ではそれぞれ7K, 295Kでの LaSrFeO_4 からのものである。すべての回折線の d-spacing位置は、第2図に示した結晶構造で $a = 3.875\text{\AA}$, $c = 12.718\text{\AA}$ とすることで説明される。7Kでの回折位置が295Kでの位置より左にあり、格子定数が少し減少している。回折線強度の温度変化には、7Kのほうが295Kの場合より高い指数ほど強度が強い傾向にみられるが、デバイアーワ



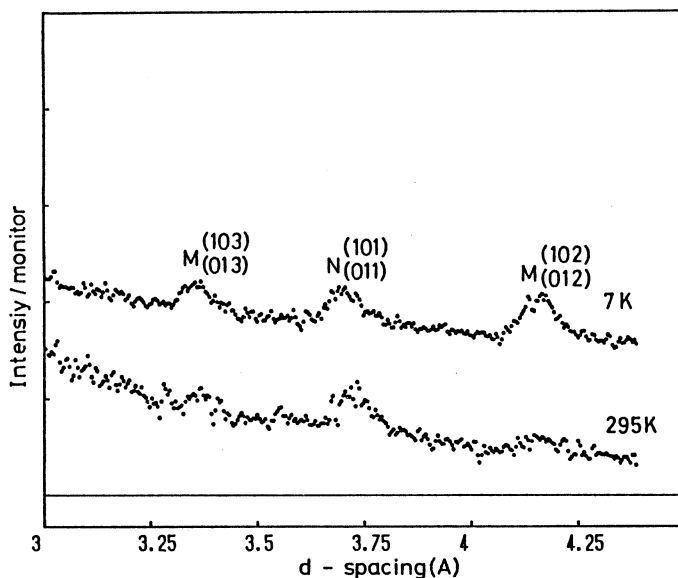
第2図 K_2NiF_4 型の結晶構造と磁気構造。



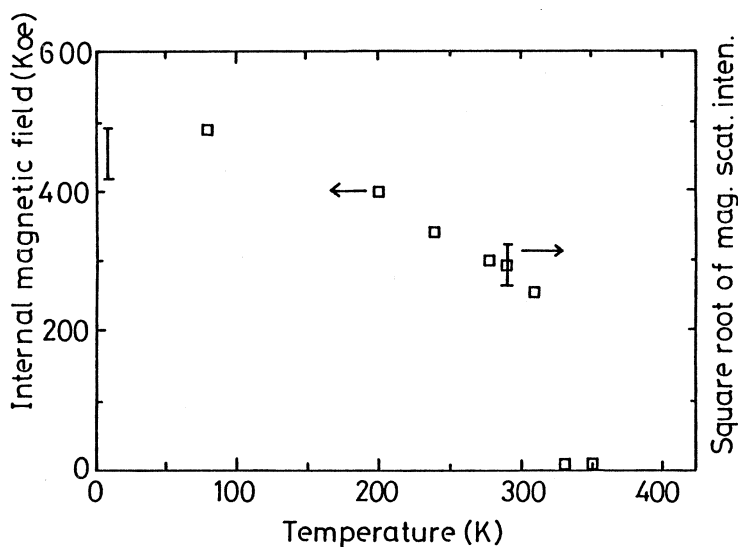
第3図 散乱角約150度に設置されたカウンターバンクで収集された LaSrFeO_4 によるTOFスペクトル。いずれも、入射中性子スペクトルで補正されている。(a)バックグラウンド, (b)7K, (c)295K

ラーの温度因子で説明されると考える。このように、概観では7 Kと295 Kとでは結晶構造には変態がないと推論される。しかし、La, SrやOの基本格子内での位置の微妙な変化については、より詳細な解析が必要である。

第4図に、散乱角60度に設置されたカウンターバンクで収集された7 Kと295 KでのTOFス



第4図 散乱角60度に設置されたカウンターバンクで収集されたTOFスペクトル。核Bragg散乱の他に磁気Bragg散乱が観測されている。



第5図 メスバウアー効果による内部磁界の温度変化 (文献5) と (102), (012) 磁気散乱強度の $\frac{1}{2}$ 乗の温度変化。

ベクトルの一部を示す。明らかに温度変化している二本の回折線がある。 K_2NiF_4 型の磁気構造を仮定して解析すると、これらの回折線は(013), (103), (012), (102)からの磁気ブラッグ散乱によるものと指数が付けられ、この物質は室温でも三次元的磁氣的秩序が実現していると結論される。残りの回折線は(101), (011)からの核ブラッグ散乱によるものである。この核散乱強度の温度変化が無視できると仮定すると、相対的な磁気散乱強度の温度変化を求められる。第5図に、磁気散乱強度の $1/2$ 乗をメースパワー効果より求められた内部磁気の温度変化を併せて示した。磁気散乱強度の $1/2$ 乗の温度変化は、内部磁界の温度変化とよく一致している。従って、内部磁界消失温度330Kは、ネール温度であるといえる。

§4. 結論

本実験により次のことが明らかになった。

- (1) $LaSrFeO_4$ はネール温度330K以下で K_2NiF_4 型の磁気構造を示す。7 Kまでこの磁気構造を保持している。
- (2) 室温以下で結晶構造の相変態は観測されなかった。
- (3) 従って、磁化率の低温での異常は構造以外の所にその原因を求めなければならない。

ここに示した報告は、予備的な解析結果によるものである。詳しい解析結果（特に結晶構造解析）については、後日報告する予定である。

参 考 文 献

- 1) D. Balz and K. Plieth : Z. Elektrochem **59** (1955) 545.
- 2) K. G. Srivastava : Phys. Lett. **4** (1963) 55.
- 3) K. Aso and S. Miyahara : J. Phys. Soc. Jan. **21** (1966) 1833.
- 4) D. J. Breed, K. Giliyamse and A. R. Miedema : Physica **45** (1969) 205.
- 5) M. Shimada and M. Koizumi : Mat. Res. Bull. **11** (1976) 1237.

透過中性子法の生物物理学への応用 (II)

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したと考えると、この板に入射する中性子線束を I とすると単位体積当たりの衝突の数は、 $I \sigma_T N dx$ と書ける。ここで、 σ_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、 dx を通過する事によって、 $I \sigma_T N dx$ の数だけ減少するので、 $dI = -I \sigma_T N dx$ が成り立ち、したがって厚さ X を通過した中性子線束は、

$$I = I_0 \exp(-N \sigma_T X)$$

となる。ここで、 I_0 は試料に入射する前の中性子線束である。又、 I/I_0 は入射中性子線束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、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用いた。^{1,2)}

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。³⁾

- 1) 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) における中性子全断面積の違いを利用するものである。
- 2) 重水中に、ある種の水性蛋白質を混合して、蛋白質が重水中にどの程度、溶解するかを定量する。

しかし、巨大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でると思われる。

1) の場合、その影響は無視できると考えられるが、重水に蛋白質分子を溶かした場合には、小角散乱の影響がでると思われる。

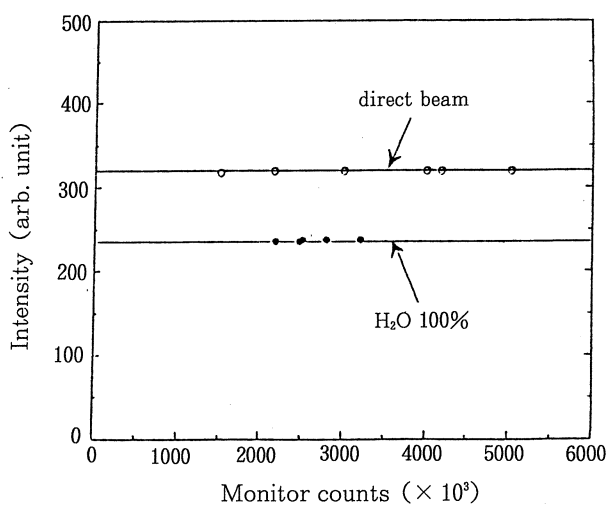
そこで、まず透過中性子法の測定を行なうためには、この小角散乱の影響を検討する必要

がある。

§2. 実 験

測定には収束型コリメーターを装備した核理研の小角散乱装置を使用した。実験は、Time-of-Flight (T.O.F) 法で行ない、検出器には不感時間の短い、Li ガラスシンチレーターを用いている。

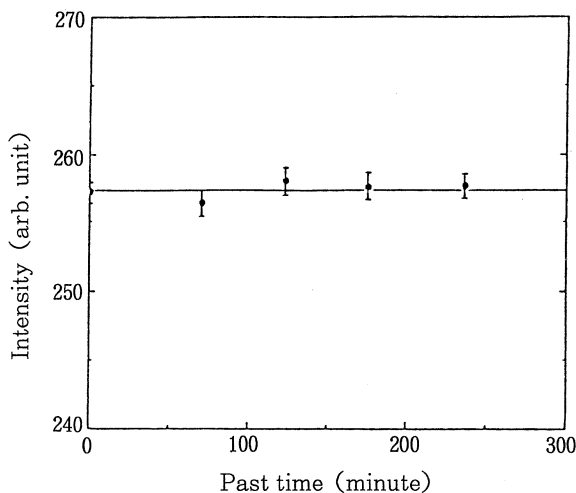
測定強度は monitor counts で正規化される。第1図で見られるように、同じ物質を測定した強度は、monitor counts に関係無く一定である。この点で測定は、統計誤差内で十分、再現性があるといえる。



第1図 同一試料の透過強度のモニター強度依存性。

次に、この実験では、 D_2O 溶液を用いるため測定中に重水素と空気中の水素の置換が起こる可能性がある。それを、検討するために D_2O 溶液の強度の時間変化を測定した。第2図で見られるように、200分以内では強度変化は統計誤差内である。よって、この時間内ならば、重水素置換は無視されるということが証明された。

なお、 D_2O 溶液に関する測定は、すべて、この時間内に終了させている。



第2図 重水試料の空気中の軽水素との置換の時間依存性。

2.1 試料

- 1) D_2O の定量を行なうために、容量 4.1 ml, 厚さ 5mm の水晶ガラス cell を用いた。実験室内の温度は、約 $20^{\circ}C$ である。
- 2) 水溶性蛋白質として、Chicken-egg white Lysozyme を用いた。(pH 6.0) 又、5mm cell に加えて容量 0.9 ml, 厚さ 1 mm cell でも実験を行なった。

2.2 方法

$$I = I_0 \exp(-\mu X) \quad \text{①}$$

ここで $\mu = \Sigma N \sigma_T$ (μ : 吸収係数 (absorption coefficient)) である。

- 1) 軽水中に重水を混合させた場合の透過中性子強度 I の変化は、①式で吸収係数の変化に依存する。

今、 X を混合液中の重水の重量比 (0~1) で表すと

$$\begin{aligned} \mu(x, \lambda) &= A_0 \cdot [\rho(x) \cdot x \cdot \sigma_0(\lambda) / M_0 + \rho(x) \cdot (1-x) \cdot \sigma_H(\lambda) / M_H] \\ &= C \cdot x^2 + (\mu_0(\lambda) - \mu_H(\lambda) - C) \cdot x + \mu_H(\lambda) \end{aligned} \quad \text{②}$$

$\rho(x) = \rho_H + K \cdot x$ (g/cm^3) [$\rho(x)$: 混合液の密度, K : 比例定数]

M_H (M_D): H_2O (D_2O) の分子量

σ_H (σ_D): H_2O (D_2O) の中性子全断面積

(熱中性子領域 (約 $1 \text{ \AA} \sim 2 \text{ \AA}$) では、全断面積は波長に比例する)

μ_H (μ_D): H_2O (D_2O) の吸収係数

A_0 : アボガドロ定数

$$C = K \cdot [\mu_D(\lambda) / \rho_D - \mu_H(\lambda) / \rho_H]$$

$$\rho_H = 1.000 \text{ g/cm}^3 \text{ (20}^\circ\text{C)}$$

$$\rho_D = 1.105 \text{ g/cm}^3 \text{ (20}^\circ\text{C)}$$

$$K = 0.105 \text{ (20}^\circ\text{C)}$$

②式で示されるように、ある波長の H_2O と D_2O の吸収係数が測定出来れば、重量比 X に対する $\mu(x, \lambda)$ が求まる。

この②式を用いて、既知の重量比の試料を実測の吸収係数から算出された重量比と比較する事によって水素の定量ができる。

- 2) 水溶性蛋白質の重水中の定量は、1) の方法と同様に、重量比 X に対して透過強度 I が水素の量と共に変化するので、可能である。しかし小角散乱の影響が透過強度に関係する場合には、その項も考慮しなければならない。

ここで、「蛋白質分子を構成している原子は、rigid に fix されており、その原子の recoil の影響はない。」と仮定すると、蛋白質分子の全断面積を計算出来る。

Lysozyme の全断面積を最新の data (第1表) を用いて計算した。

第1表 元素の断面積 (単位: barn)。

	σ_{coh}	σ_s	$\sigma_a (1.8 \text{ \AA})$	
H	1.568	81.66	0.3326	
C	5.551	5.551	0.0035	$\sigma_T = \sigma_S + \sigma_a, \sigma_a = \lambda \cdot \sigma_a (1.8 \text{ \AA}) / 1.8,$
N	11.01	11.5	1.9	σ_T : 全断面積, σ_s : 全散乱断面積,
O	4.232	4.232	0.00019	σ_a : 吸収断面積, σ_{coh} : 干渉性散乱断面積。
S	1.0186	1.026	0.530	

計算による Lysozyme の全断面積の結果を第2表に示す。

第2表 各波長でのリゾチームの全断面積 (単位: barn)。

λ	1.02 \AA	1.43 \AA	1.84 \AA
σ_T (barn)	84375.12	84531.95	84688.72

分子式 $\text{C}_{613} \text{H}_{950} \text{N}_{192} \text{O}_{186} \text{S}_{10}$, M.W. = 14306.35

この全断面積の値と実測による軽水、及び重水の値を次式に代入し、理論的な吸収係数を計算し、小角散乱の無い理論強度を算出して、それと実測の値とを比較して、小角散乱の影響が実測強度の何%を占めているかをみる。

試料としては、重比にして10.1%と20.1%のLysozymeを重水中に溶かしたものをを用いた。

$$\mu_T(\lambda) = A_0 \cdot [\rho_p \cdot \sigma_p(\lambda) / M_p + (\rho_s - \rho_p) \cdot \sigma_0(\lambda) / M_0]$$

μ_T : 理論吸収係数

ρ_p : 蛋白質の溶液中の密度 (g/cm^3)

ρ_s : 溶液の密度

M_p : 蛋白質の分子量

σ_p : 蛋白質の全断面積 (barn)

$$I_T = I_0 \exp(-\mu_T(\lambda) \cdot d)$$

I_T : 理論強度

I_0 : 入射中性子強度 (空 cell)

d : cellの厚さ

§3. 結 果

3.1 重水素の定量

第3図は、実測スペクトルに、スプライン関数で近似補間したものである。多少の実測値とのずれもあるが、強度変化の傾向を見ることができる。

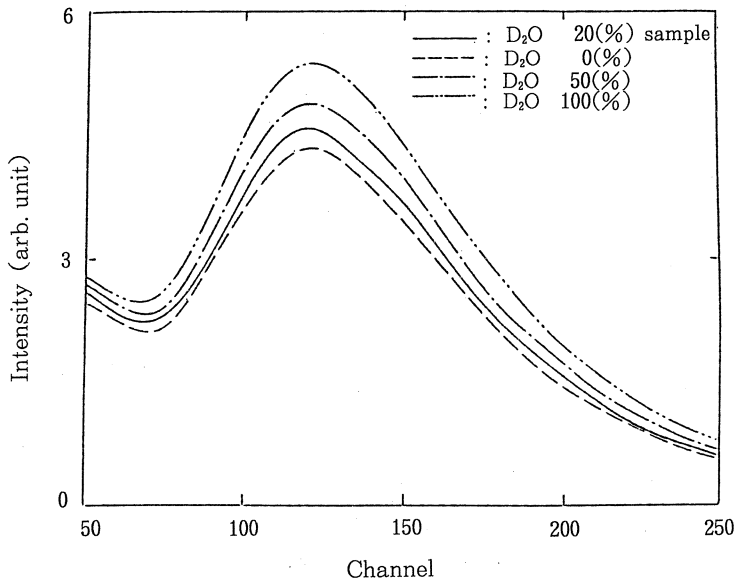
これらのdataを用いて解析したものが第3表のようになる。

両試料とも、②式の2次関数に当てはめて定量すると本来の値よりも、4%程、低い値を示している。又、波長による多少のばらつきも見られる。(第4図)

第3表の波長は、T.O.F channelにおいて、それぞれ100~150, 150~200, 200~250の中

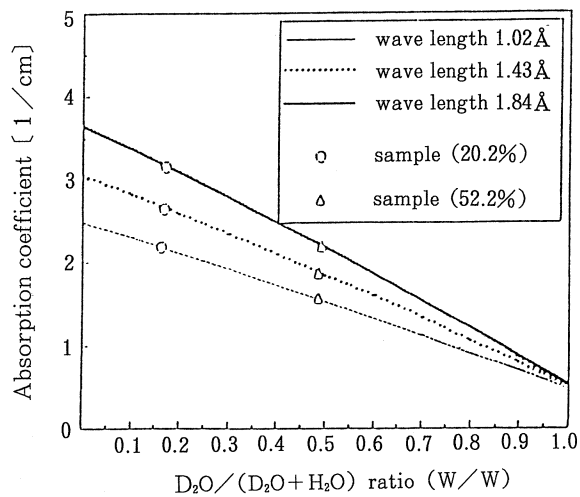
第3表 重水の定量結果の波長依存性。

λ	1.02Å	1.43Å	1.84Å
重量比 20.2%	16.2±0.3%	16.8±0.3%	17.0±0.3%
重量比 52.2%	48.6±0.3%	48.6±0.3%	49.2±0.3%



第3図 各種 $\text{H}_2\text{O}/\text{D}_2\text{O}$ 比での透過強度スペクトル。

点をとったもので、これは解析に使用した強度が、その Time-channel 間を積分したものである。この方法は、統計変動による強度の変化を出来るだけ押さえ込むため、積分による影響は、熱中性子領域の全断面積が波長に比例しているため、その透過強度も波長に比例するので問題はない。



第4図 各波長での吸収係数の $\text{H}_2\text{O}/\text{D}_2\text{O}$ 比依存性。

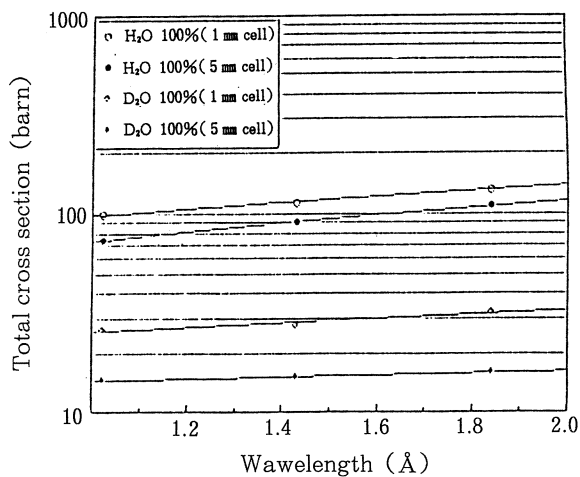
もっと詳しい波長依存性を見ることもできるが、時間分解能を良くすれば、それだけ統計精度も下がり、どちらの方法が良いかは今後、検討の余地が残る。

3.2 透過強度に及ぼす小角散乱の影響

第4表、及び第5図に見られるように、理論どおり全断面積は、波長に比例した結果を得ている。1 mm cell, 5 mm cell での全断面積の違いは、主に多重散乱によると思われる。

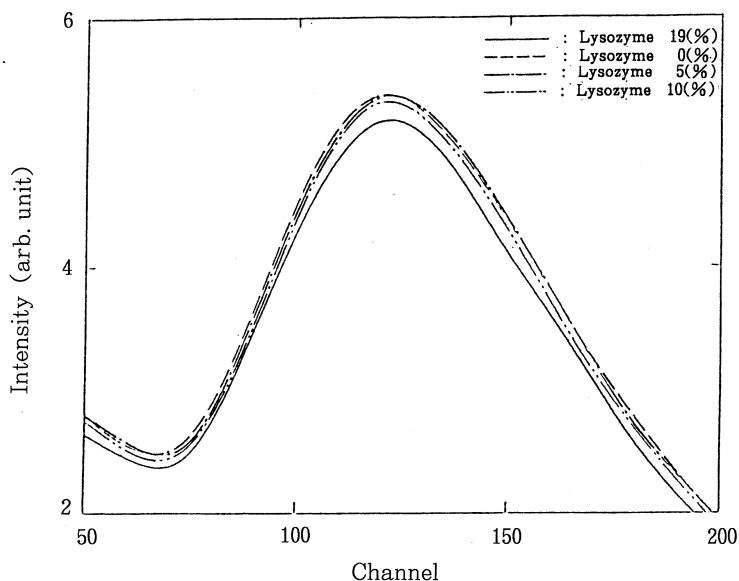
第4表 実測された H₂O, D₂O の全断面積 (単位 : barn)。

λ	1.02 Å	1.43 Å	1.84 Å
H ₂ O (1mm)	98.74	112.92	132.33
D ₂ O (1mm)	25.88	27.74	31.90
H ₂ O (5mm)	14.30	15.04	15.70
D ₂ O (5mm)	74.23	90.57	108.58



第5図 H₂O, D₂O の全断面積の波長依存性。

第6図は、Lysozyme を重水中に溶かした試料の実測スペクトルを第3図同様にスプライン関数で近似補間したものである。この data をもちいて小角散乱の影響が無いと仮定した時の、蛋白質重量比の定量を試みたが、その結果は、一定の定量性を示さなかった。



第6図 各種濃度のリゾチーム重水溶液の透過強度スペクトル。

第5表に、それぞれ1 mm cell, 5 mm cellでの実測強度に対する小角散乱の寄与を示す。2種類の重量比の試料に対するの結果が示されているが、両試料とも何らかの波長依存性を持ち、1 mm cellの10.1%の場合を除いては、一貫した傾向を示している。さらに、5 mm cellの20.1%の小角散乱の寄与は10%を越えており、真の透過強度を得るためには、この影響は無視できないものとなっている。

第5表 透過強度への小角散乱の影響(%)。

λ	1.02 Å	1.43 Å	1.84 Å
Lysozyme 10.1% (1mm cell)	0.6%	0.8%	1.1%
Lysozyme 20.1% (1mm cell)	3.5%	2.5%	1.9%
Lysozyme 10.1% (5mm cell)	8.2%	5.4%	3.4%
Lysozyme 20.1% (5mm cell)	17.2%	13.1%	10.0%

§4. 議 論

蛋白質の重水中での定量は、結果から得られたように小角散乱の寄与があると考えられるの

で、今の所、不可能である。しかし、小角散乱の寄与が精度良く見積れば、その項を加えることによって可能になるかもしれない。結果から得られた最も興味深い知見は、小角散乱の強度が波長依存性をもっていることである。これは、本来、透過中性子というものが、入射中性子の内、散乱されずに残ったものであるから、小角散乱が起これば、 Q の小さい、つまり波長の大きいもの程散乱を受け透過してこなくなる。波長依存性があるということは、この事実を裏付ける。また、透過中性子法で、 $I(0)$ を見積もれる可能性があるという意味では、十分意義がある。

参 考 文 献

- 1) 新村信雄, 山田和芳, 杉崎康明, 三沢正勝, 石田明: 核理研研究報告 16 (1983) 241.
- 2) 新村信雄, 山田和芳, 杉崎康明, 三沢正勝, 石田明: 核理研研究報告 17 (1984) 66.
- 3) 片瀬拓弥, 新村信雄, 徳永史生: 核理研研究報告 21 (1988) 213.

Ⅲ. 放 射 化 学

トリクロロ酢酸とトリオクチルホスフィンオキシド によるヘキサアクアロジウム(Ⅲ)の溶媒抽出

理学部化学

高橋宏美・井村久則・鈴木信男

§1. 緒言

近年、白金族元素の分離、精製に関して多大の関心が寄せられており、溶媒抽出についても多くの研究が行われ、総説等にもまとめられている^{1,2)}。ロジウム(Ⅲ)は配位子交換反応が非常に遅いため、溶媒抽出においても一般に抽出剤との長時間の加熱が必要であり、白金族の中でも最も抽出しにくい元素とされている。しかしながら、著者らは、ヘキサアクアロジウム(Ⅲ)が、含ハロゲンカルボン酸と中性配位子、トリオクチルホスフィンオキシドによって、室温でも迅速に抽出されることを見出した³⁾。

本研究では、トリクロロ酢酸 (HTCA) とトリオクチルホスフィンオキシド (TOPO) を用いて、ヘキサアクアロジウム(Ⅲ) ($\text{Rh}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$) のヘプタンへの抽出挙動を詳細に調べ、更に、その抽出平衡について考察を行った。

§2. 実験

2.1 試薬

放射性 $\text{Rh}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$ 溶液；高純度金属ロジウムに、東北大学電子ライナックからの 50MeV 制動放射線を照射して、 $^{103}\text{Rh}(\gamma, n)^{102m}\text{Rh}$ 、 $^{103}\text{Rh}(\gamma, 2n)^{101m}\text{Rh}$ の反応により、 ^{102m}Rh 、 ^{101m}Rh を製造した。ターゲットを濃硫酸に加熱溶解後、水酸化ナトリウム水溶液で中和、生成した水酸化物沈殿を 60% 過塩素酸に加熱溶解し、最後に十分に加熱処理を行い、水で希釈して、0.2M 過塩素酸水溶液とした。また紫外・可視吸収スペクトルにより、ロジウム(Ⅲ)のヘキサアクア錯体であることを確認した⁴⁾。

TOPO；市販の試薬 (同仁化学研究所製) を前報³⁾と同様に精製した。

トリクロロ酢酸水溶液；市販の試薬 (和光純薬, 特級) を水に溶解し、水酸化ナトリウム標準溶液によって標定した。

その他の試薬；ヘプタンは通常の方法で精製を行い、他は分析級もしくは特級試薬をそのまま用いた。水は再蒸留水を脱イオン化して用いた。

2.2 抽出操作

a) ロジウム(III)の正逆抽出

$4.0 \times 10^{-3} - 1.0 \times 10^{-1} \text{M}$ の $(\text{H}^+, \text{Na}^+)\text{TCA}^-$ と $8.1 \times 10^{-6} - 8.1 \times 10^{-4} \text{M}$ の放射性ロジウム(III)を含む水相 (pH1-5)と、 $5.0 \times 10^{-3} - 1.0 \times 10^{-1} \text{M}$ の TOPO を含む有機相を遠心管に取り、 25°C で1分から3時間振とうした。遠心分離後、両相から一定量取り出して、NaI(Tl) 井戸型シンチレーション検出器により γ -放射能を測定し、ロジウム(III)の分配比 (D_M)を求めた。また、ガラス電極を用いて、振とう後直ちに水相のpHを測定した。水相のイオン強度は、必要な場合硝酸ナトリウムにより0.10Mに整えた。

逆抽出は、前述のようにして得られた正抽出後の有機相を、ロジウム(III)を含まない水相(ロジウム(III)を加えずに同じ条件で正抽出を行い、得られたもの)と振とうし、同様にロジウム(III)の分配比を求めた。

b) トリクロロ酢酸の抽出

水酸化ナトリウムによりpHを調整した0.10Mの $(\text{H}^+, \text{Na}^+)\text{TCA}^-$ 水溶液 (pH1-5)と、 $2.5 \times 10^{-3} - 1.0 \times 10^{-1} \text{M}$ の TOPO ヘプタン溶液を 25°C で5分間振とうした。遠心分離後、有機相から一定量取り出し、少量の水を加えて、激しく攪拌しながら、0.10M水酸化ナトリウム標準溶液を用いて滴定を行った。得られた有機相中のトリクロロ酢酸濃度と、初めの水相のトリクロロ酢酸イオン濃度から分配比 (D_{HA})を求めた。

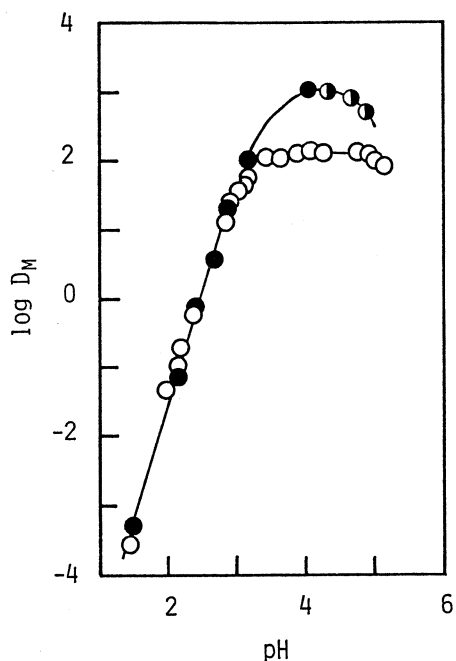
§3. 結果と考察

3.1 TCA-TOPO-ヘプタン系におけるヘキサアクアロジウム(III)の抽出挙動

0.10M TCA-0.10M TOPOを用いて室温でのロジウム(III)のヘプタンへの抽出を調べた。第1図に示すように、ロジウム(III)の抽出はpHの上昇とともに増加し、わずか5分の振とうにより、pH3-5で99%以上のロジウム(III)が有機相に抽出されている。

ところで、抽出平衡の達成は、金属イオンの水相から有機相への抽出(正抽出)と有機相から水相への抽出(逆抽出)を比べることによって確認することができる。第1図より、pH1.5-3では、正・逆抽出から得られた分配比は良く一致しており、振とう5分以内に完全に抽出平衡に達していることがわかる。更に、pH2.4において正・逆抽出の分配比に対する振とう時間の影響について調べたところ、振とう1分から180分まで一定の分配比が得られ、この系が1分以内に抽出平衡に達することがわかった。

一方、第1図より、pH4付近では正・逆抽出の分配比に差がみられる。そこで、pH4付近



第1図 Extraction and back extraction of Rh(III) in the HTCA-TOPO-heptane system.

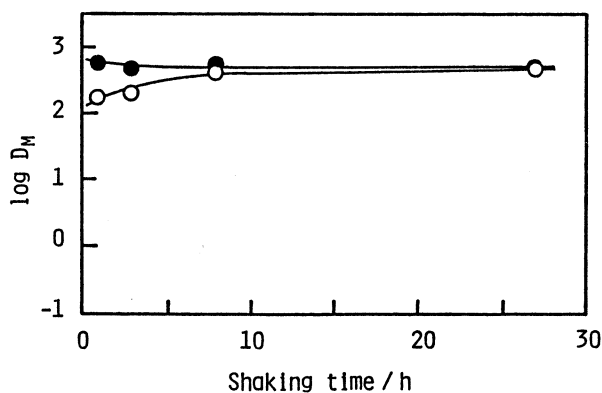
$8.1 \times 10^{-6} \text{ M Rh(III)}$; 0.10 M TCA; 0.10 M TOPO,

○ forward extraction, shaking time: 5 min;

●, ⊙ back extraction, shaking time: 5 min (●), 30 min (⊙).

で正・逆抽出の分配比に対する振とう時間の影響を調べた。結果を第2図に示す。逆抽出の分配比は振とう1時間から一定であるが、正抽出の分配比は振とう10時間以上で一定となり、また、逆抽出の分配比ともほぼ一致し、平衡に達することがわかる。これは、高いpH領域では水相中でヘキサアクアロジウム(III)が速やかに加水分解を起して、その重合種を生成し⁵⁾、これが徐々に解重合されて抽出されるものと考えられる。

第3図に、酸性領域(pH 2.90)におけるロジウム(III)の分配比に対するロジウム(III)濃度の依存性を示す。水相中のロジウム(III)の初濃度が 8.1×10^{-6} から $8.1 \times 10^{-4} \text{ M}$ まで100倍変化しても、一定の分配比が得られており、酸性領域では有機相及び水相中でロジウム(III)化学種が重合を起していないことがわかる。

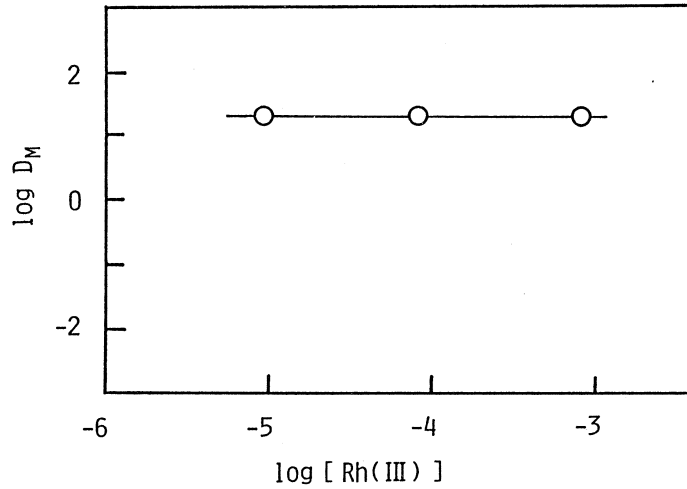


第2図 Effect of the shaking time on the extraction and the back extraction of Rh(III).

$8.1 \times 10^{-5} \text{ M Rh(III)}$; 0.10 M TCA; 0.10 M TOPO,

○ forward extraction, pH 3.92–3.98;

● back extraction, pH 3.88–3.94.



第3図 Effect of the Rh(III) concentration in the HTCA-TOPO-heptane system.
0.10 M TCA; 0.10 M TOPO; shaking time: 5min; pH 2.90.

3.2 TCA-TOPO-ヘプタン系におけるヘキサアクアロジウム(Ⅲ)の抽出平衡

トリクロロ酢酸イオンと TOPO によるロジウム(Ⅲ)の抽出挙動より、その平衡は次のように考えることができる。



$$K_{\text{ex}, M} = \frac{[\text{Rh}^{3+} \cdot m\text{TCA}^{-} \cdot n\text{TOPO}]_{\text{org}}}{[\text{Rh}^{3+}] [\text{TCA}^{-}]^m [\text{TOPO}]_{\text{org}}^n} \quad (2)$$

ここで、添字の org は有機相を、添字のないものは水相を表す。また、 $K_{\text{ex}, M}$ は(1)式の平衡定数で、ロジウム(Ⅲ)の抽出定数である。また、ロジウム(Ⅲ)の分配比 D_M は、水相中でのロジウム(Ⅲ)とトリクロロ酢酸イオンとの錯形成や、ロジウム(Ⅲ)の加水分解が無視できる場合には次のように書くことができる。

$$D_M = \frac{[\text{Rh}^{3+} \cdot m\text{TCA}^{-} \cdot n\text{TOPO}]_{\text{org}}}{[\text{Rh}^{3+}]} \quad (3)$$

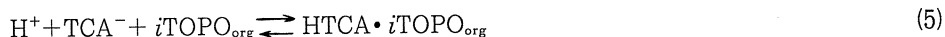
(2)式に(3)式を代入すると、(4)式が得られる。

$$\log D_M = m \log [\text{TCA}^{-}] + n \log [\text{TOPO}]_{\text{org}} + \log K_{\text{ex}, M} \quad (4)$$

(4)式において、ロジウム(Ⅲ)の分配比に対して水相中の TCA の平衡濃度及び、有機相中の TOPO の平衡濃度をプロットすれば、その傾きから m , n が得られ、抽出種の組成が求められる。

れることになる。

ところで、TCA及びTOPOの平衡濃度を求めるためには、有機相中のTOPOによるトリクロ酢酸の抽出を考慮する必要がある⁶⁾。その抽出平衡は、次のように表すことができる。



$$K_{\text{ex, HA}} = \frac{[\text{HTCA} \cdot i\text{TOPO}]_{\text{org}}}{[\text{H}^+] [\text{TCA}^-] [\text{TOPO}]_{\text{org}}^i} \quad (6)$$

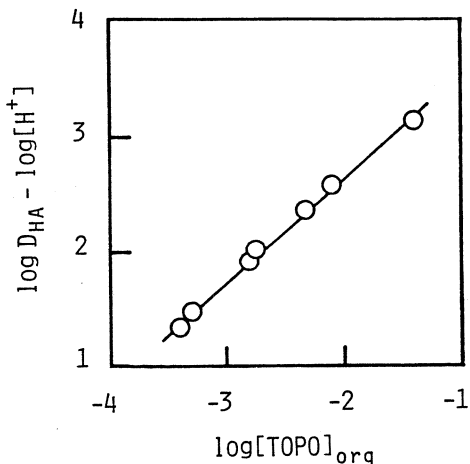
$K_{\text{ex, HA}}$ は(5)式の平衡定数でトリクロ酢酸の抽出定数を表す。また、トリクロ酢酸の酸解離定数は $10^{0.467}$ であり、本実験条件下ではトリクロ酢酸は完全に解離しているの、その分配比 D_{HA} は次のように表せる。

$$D_{\text{HA}} = \frac{[\text{HTCA} \cdot i\text{TOPO}]_{\text{org}}}{[\text{TCA}^-]} \quad (7)$$

(6)式に(7)式を代入すると(8)式が得られる。

$$\log D_{\text{HA}} = i \log [\text{TOPO}]_{\text{org}} + \log [\text{H}^+] + \log K_{\text{ex, HA}} \quad (8)$$

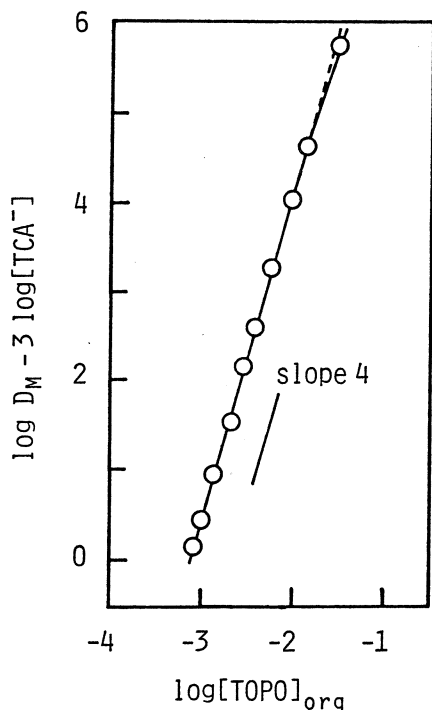
(8)式において、 $\log D_{\text{HA}} - \log [\text{H}^+]$ 対 $\log [\text{TOPO}]_{\text{org}}$ のプロットをとれば、その傾き i からトリクロ酢酸1分子と会合するTOPOの数が求まる。第4図に(8)式に基づくプロットを示すが、傾き1.0の直線となっている。これより、トリクロ酢酸はTOPOと1対1の会合体を形成し、 $\text{HTCA} \cdot \text{TOPO}$ という形で有機相に抽出されていることがわかった。このように有機相中でTOPOと1対1で会合する酸としては、カルボン酸の他にも、硝酸、チオシアン酸等が報告されている⁸⁻¹⁰⁾。また、トリクロ酢酸の抽出定数として、 $\log K_{\text{ex, HA}} = 4.93 \pm 0.03$ という値が得られた。この値を用いれば、有機相中のTOPO及び、水相中のTCAの平衡濃度が計算できる。



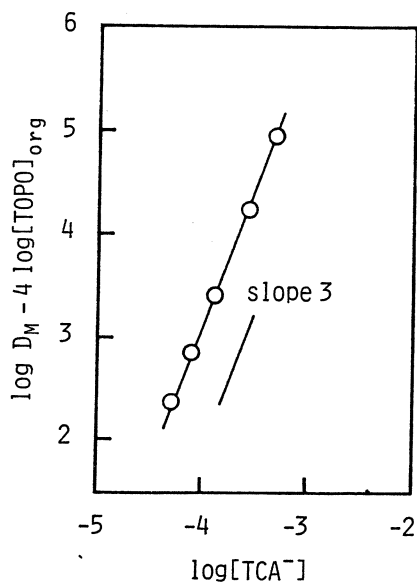
前述の(4)式において、抽出種についての電気的
 中性の原理から、ロジウム(Ⅲ)と会合するTCA
 の数 m を3と仮定して、有機相中のTOPOの平衡

第4図 Extraction of HTCA with TOPO in heptane. 0.10 M TCA; shaking time: 5 min.

濃度に対して $\log D_M - 3 \log [\text{TCA}^-]$ をプロットした。第5図にその結果を示す。TOPO濃度の低い領域では、TOPOによるトリクロロ酢酸の抽出が無視できるようになり、水相のイオン強度も一定となる。その領域では傾き3.8の直線となっており、ロジウム(III)とTOPOは1対4で会合しているものと考えられる。



第5図 Effect of TOPO concentration on the extraction of Rh(III).
 $8.1 \times 10^{-5} \text{ M Rh(III)}$; 0.10 M TCA ; shaking time: 5 min; pH 2.90.



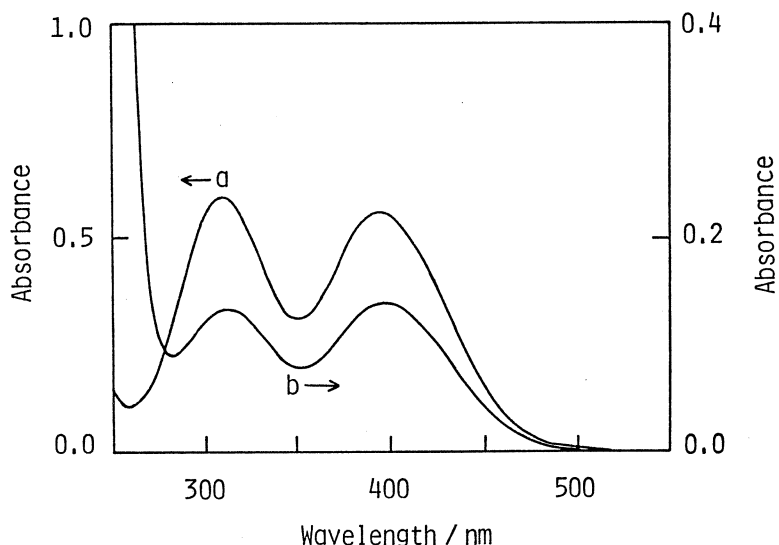
第6図 Effect of TCA concentration on the extraction of Rh(III).
 $8.1 \times 10^{-5} \text{ M Rh(III)}$; 0.10 M TOPO ; $I = 0.1 \text{ M (NaNO}_3)$; shaking time: 5 min; pH 2.90.

次に、(4)式において、ロジウム(III)と会合するTOPOの数 n を4と置いて、水相中のTCAの平衡濃度に対して $\log D_M - 4 \log [\text{TOPO}]_{\text{org}}$ をプロットした。第6図に示すように、傾き2.7の直線が得られ、予想されたように、ロジウム(III)とTCAが1対3で会合していることが確かめられた。また、 $m = 3$ 、 $n = 4$ 以外には平衡式を満足する組み合わせがないことも計算により確認した。

以上の結果より、ロジウム(III)の抽出種は、 $\text{Rh}^{3+} \cdot 3 \text{ TCA}^- \cdot 4 \text{ TOPO}$ であることがわかった。また、その抽出定数として $\log K_{\text{ex}, \text{M}} = 12.29 \pm 0.06$ が得られた。

次に、ロジウム(III)の抽出種について調べるために、その紫外・可視吸収スペクトルを測

定した。ロジウム(III)の初濃度を $2.2 \times 10^{-3} \text{ M}$ とし、0.10 M TCAと0.10 M TOPOを用いてpH 3.18でヘプタンに抽出した。第7図に、水溶液中のヘキサアクアロジウム(III)の吸収スペ



第7図 Absorption spectra of $\text{Rh}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$ and the $\text{Rh}(\text{III})$ species extracted into the heptane phase.

- a: $1.1 \times 10^{-2} \text{ M}$ $\text{Rh}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$ in 0.8 M perchloric acid;
 b: $2.2 \times 10^{-3} \text{ M}$ $\text{Rh}(\text{III})$ extracted with 0.10 M TOPO from 0.10 M TCA solution at pH 3.18.

クトルとともに示すが、抽出種のスペクトルは、ヘキサアクアロジウム(III)のスペクトルと非常に類似している。このことは、ロジウム(III)の第1配位圏が抽出によっても大きく変わらないことを示唆している。また、このHTCA-TOPO系では、ロジウム(III)の抽出は1分以内に平衡に達するが、ロジウム(III)の第1配位圏の配位水の交換速度は極めて低く、他の配位子との間で1分以内に平衡に達するとは考えにくい。以上のことを考え合わせると、ロジウム(III)は配位水を保持したままTOPOによって溶媒和され、そしてトリクロロ酢酸とイオン会合体を形成し、ヘプタン相に抽出されるものと考えられる。

§4. まとめ

本研究では、HTCAとTOPOによってヘキサアクアロジウム(III)が室温でも極めて迅速に、また定量的にヘプタンに抽出されることを見出した。更に、抽出平衡の検討より、抽出種の組成と抽出定数を決定することができた。本系は、置換不活性金属イオンの優れた抽出系になるものと期待される。

本研究を行うにあたり，御協力を賜った東北大学理学部原子核理学研究施設の榎本和義助手ならびにマシングループの皆様に深く感謝する。

参 考 文 献

- 1) L. M. Gindin : *Ion Exchange and Solvent Extraction*, eds. J. M. Marinsky and Y. Marcus. (Marcel Dekker Inc., New York, 1981) Vol. 8, Chap. 4, p.311.
- 2) S. J. Al-Bazi and A. Chow : *Talanta* **31** (1984) 815.
- 3) 鈴木信男, 高橋宏美, 井村久則 : 核理研研究報告 **21** (1988) 57.
- 4) Wayne C. Wolsey, C. A. Reynolds and J. Kleinberg : *Inorg. Chem.* **2** (1963) 463.
- 5) I. P. Alimarin, V. I. Shlenskaya, A. A. Biryukov, O. A. Efremenko and V. P. Khvostova : *Zh. Anal. Khim.* **25** (1970) 1965.
- 6) H. Imura, T. Kiba and T. Honjo: *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **52** (1979) 2563.
- 7) D. D. Ensor and G. R. Choppin : *J. Inorg. Nucl. Chem.* **42** (1980) 1477.
- 8) M. Niitsu and T. Sekine : *J. Inorg. Nucl. Chem.* **37** (1975) 1054.
- 9) M. Niitsu and T. Sekine : *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **50** (1977) 1015.
- 10) M. Niitsu, N. Iritani and T. Sekine : *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **52** (1979) 1799.

標準添加内標準法による低合金鋼中の 微量元素の光量子放射化分析

金研, 核理研*

原 光雄・飯野 栄一

榎本 和義*・八木 益男

In order to examine an effective application of the internal standard method coupled with the standard addition method, determination of Ti, Cr, Co, Ni, Cu, As, Zr, Nb, Mo, Sn, Sb and Pb in a low-alloy steel (NBS SRM-464) has been studied fundamentally by instrumental photon activation analysis irradiating 20 and 30 MeV bremsstrahlung. As a result, it was demonstrated that the reasonable multielement determination can be achieved by irradiating 20 MeV bremsstrahlung without any interference reactions. Using the above sample as an optimum working standard, concentrations of 12 elements in several low-alloy steels were determined by an ordinary photon activation analysis. In consequence, it was confirmed that highly accurate and precise multielement determination were performed easily and favourably.

§ 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¹⁾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ど除去されてしまうという特色を合わせ持っている。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²⁻¹⁰⁾, 従来の放射化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, 今回は初めて低合金鋼中の主要合金元素の定量に適用し, 比較試料の濃度決定を行った。その結果をもとに, 比較法を用いた光量子放射化分析法によって低合金鋼中の微量成分の同時定量を行ったので報告する。

§ 2. 実 験

2. 1 試料および試薬

試料として低合金鋼 (JSSの 150-6, 151-6, 152-6, 153-6, 154-5, 155-6), 標準化用炭素鋼 (JSSの 163-3, 164-3), 低合金鋼 (NBSの SRM-461, SRM-464, SRM-466) を選んだ。試料は丸棒状のものを適宜切断するか, または化学処理や照射試料を作りやすくするために厚さ約0.3mmの薄板に圧延加工した。一方, 標準添加内標準法での各定量目的元素の標準添加用の標準溶液としては, 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

丸棒状試料, あるいは薄板試料の約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 5 mlを加え, さらにこれに定量目的元素の混合溶液の一定量を添加した。ルツボは分解容器 (ユニシール) に入れた後100°Cで1時間放置し, 試料の完全溶解を行った。ついで一旦硝酸を蒸発させ, 再び4 M硝酸およびテトラエチルシリケート各 3 ml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。

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. 2. 3 比較法用の試料調製

薄板試料を直径10mmの石英管に入るように切り抜き, 正確に重さを測ってから高純度アルミニウム箔に包んで照射試料とした。また比較試料 (NBS SRM-464) も同様に調製した。

2. 3 照射および放射能測定

照射は加速エネルギー20MeVおよび30MeV, 平均電流はそれぞれ70 μA および120 μA の電子線を厚さ 2 mmの白金板で制動放射線に転換して行った。この際, 標準添加内標準法では試料および比較標準は, 高純度アルミニウム箔で包んだ鉄 (Fe_2O_3), クロム (Cr_2O_3), マンガン (MnO_2), ニッケル (NiO), コバルト (金属) の粉末およびフラックスモニターとしてのニッケル箔とともに同じ石英管に封入した。一方, 比較法では試料 3 個毎に比較試料を 1 個な

らべ、同じ石英管に封入した。これら石英管を、水冷式照射ホルダー内の白金コンバーターの後方約5 cmの位置に固定し、3時間照射した。照射終了後各試料は新しいアルミニウム箔で再包装し、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^{4,11)}を用いて行った。照射後から15日後にわたって繰り返し測定し、定量に利用するガンマ線の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. 結果および考察

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を添加して比較試料とし、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、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をもとに、分析試料NBS SRM-464の定量目的元素としては、加速エネルギー30MeVでの照射では8元素(クロム、コバルト、ニッケル、ヒ素、ジルコニウム、ニオブ、モリブデンおよびアンチモン)を選び、また内標準元素としてはマトリックスである鉄を選んだ。さらに、加速エネルギー20MeVでの照射では12元素(チタン、クロム、コバルト、ニッケル、銅、ヒ素、ジルコニウム、ニオブ、モリブデン、スズ、アンチモンおよび鉛)を選び、また内標準元素としては試料に含まれるマンガンと試料に添加したセリウムを選んだ。一方、加速エネルギー30MeVで照射したJSS 155-6試料では7元素(コバルト、ニッケル、銅、ヒ素、ニオブ、モリブデンおよびアンチモン)を定量目的元素に選び、また内標準元素としてクロムを選んだ。これら関係元素の核データは第1表に示す。この実験においてはいず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にした。

3. 3 標準添加内標準法における定量法と妨害反応

内標準元素として鉄を選んだ場合、第1表に示した核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⁵²Mn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

第1表 Available photon induced nuclear reactions for the determined elements and two internal standards.

Element	Target nuclide (abundance, %)	Reaction	Product nuclide	Half-life	Principal γ -ray energy, MeV
Ti	⁴⁸ Ti (73.7)	(γ , p)	⁴⁷ Sc	3.341 d	0.159
	⁴⁹ Ti (5.4)	(γ , pn)	⁴⁷ Sc		
Cr	⁵² Cr (83.789)	(γ , n)	⁵¹ Cr	27.704 d	0.320
Mn	⁵⁵ Mn (100)	(γ , n)	⁵⁴ Mn	312.2 d	0.834
Co	⁵⁹ Co (100)	(γ , n)	⁵⁸ Co	70.916 d	0.811
Ni	⁵⁸ Ni (68.27)	(γ , n)	⁵⁷ Ni	1.503 d	1.378
Cu	⁶⁵ Cu (30.8)	(γ , n)	⁶⁴ Cu	12.701 h	1.345
As	⁷⁵ As (100)	(γ , n)	⁷⁴ As	17.78 d	0.596
Zr	⁹⁰ Zr (51.45)	(γ , n)	⁸⁹ Zr	3.268 d	0.909
Nb	⁹³ Nb (100)	(γ , n)	^{92m} Nb	10.15 d	0.935
Mo	¹⁰⁰ Mo (9.63)	(γ , n)	⁹⁹ Mo	2.7477d	0.140
Sn	¹¹² Sn (1.01)	(γ , p)	¹¹¹ In	2.807 d	0.171
Sb	¹²³ Sb (42.7)	(γ , n)	¹²² Sb	2.70 d	0.564
Pb	²⁰⁴ Pb (1.42)	(γ , n)	²⁰³ Pb	2.169 d	0.279
Fe	⁵⁴ Fe (5.8)	(γ , pn)	⁵² Mn	5.591 d	0.744, 0.936, 1.434
Ce	¹⁴⁰ Ce (88.5)	(γ , n)	¹³⁹ Ce	137.7 d	0.166

験では0.744MeVおよび1.434MeVガンマ線を測定することにした。また、マンガンとセリウムを内標準元素として選んだ場合には、それぞれ⁵⁴Mnの0.834MeVガンマ線と¹³⁹Ceの0.166 MeVガンマ線を内標準ガンマ線とした。なお、マンガンとセリウムを内標準元素として選んだ試料の照射は加速エネルギー20MeVで行われたため、⁵⁶Fe(γ , pn) ⁵⁴Mn反応による妨害は無視しうるとして今回の実験では補正は行わなかった。一方、クロムを内標準元素として選んだ場合には、⁵¹Crが放出する0.320MeVガンマ線を内標準ガンマ線とした。クロムを⁵¹Crの生成量から定量する際には、⁵⁶Fe(γ , an) ⁵¹Cr反応によっても⁵¹Crが生成されこれが妨害することになる。従って、この妨害の程度は予め測定しておき、それによる妨害を補正する必要がある。この実験では、⁵⁴Fe(γ , pn) ⁵²Mn反応で試料中の鉄の濃度を求め、さらに⁵⁶Fe(γ , an) ⁵¹Cr反応による⁵¹Cr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。

分析目的元素から生成した核種の測定ガンマ線は第1表に示したものを利用することにした。測定ガンマ線の重なりによる妨害としてはコバルトとニオブの定量の場合に注意しなければ

らない。コバルトの定量に ^{58}Co (70.9日) の0.811MeVガンマ線を利用すると、成分元素に基づく ^{60}Ni (γ , pn) ^{58}Co 反応で ^{58}Co が生成するばかりでなく、 ^{58}Ni (γ , 2n) ^{56}Ni 反応による ^{56}Ni (6.1日) の0.812MeVガンマ線と重なってしまい、定量値に誤差が導かれる。そこでニッケル中に生成する ^{58}Co と ^{56}Ni を測定してそれらによる寄与を差し引く方法で補正することにした。一方、ニオブの定量に用いる $^{92\text{m}}\text{Nb}$ (10.15日) の0.934MeVガンマ線は内標準としている ^{52}Mn (5.6日) の0.936MeVガンマ線と重なってしまい、これが妨害となる。しかし、 ^{52}Mn には他に大きな分岐比のガンマ線が2本あるため、予め鉄を照射して生成する ^{52}Mn が放出する0.936, 0.744および1.434MeVのガンマ線ピーク面積比を使用する検出器ごとに求めておき、0.936MeVガンマ線の寄与分を知ることができる。それ故、ニオブの定量では ^{52}Mn の寄与を差し引く方法で補正することにした。

3. 4 比較法における定量方法

制動輻射はコンバーターからの距離に対し指数関数的に減衰するので比較法で定量する場合には各試料に照射された線量を補正しなければならない。そこで、まず比較試料中に含まれる定量目的元素から生成した核種の比放射能の対数が照射位置に対して一次式で表すことができるして、最小自乗法により減衰の式を求めた。次に、分析試料中の定量目的元素から生成した核種の比放射能を、式から求めたその分析試料の照射位置での比放射能で割って定量値を得ることとした。

3. 5 比較試料の標準添加内標準法による分析

第2表にNBS SRM-464の30MeVおよび20MeV照射での、またJSS 155-6の30MeV照射での標準添加内標準法による定量結果をNBSおよびJSSの公定値とともに示した。定量値は1種類の試料につき3回分析し、その平均値を採った。SRM-464の30MeV照射では各定量値の相対標準偏差は最大でも8%以下であり、コバルト、ジルコニウムおよびアンチモンのそれらは4%以下であった。またアンチモン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。アンチモン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。SRM-464の20MeV照射ではマトリックス放射能が低いことから12元素を定量でき、各定量値の相対標準偏差はSnを除いて6.2%以下であった。定量結果はクロム、コバルト、ニッケル、ヒ素、ニオブおよびスズでは誤差の範囲内で公定値と一致した。チタンについては公定値が0.004%とあるだけなので、これも一致したといえるであろう。銅、ジルコニウム、モリブデンおよび鉛では定量値と公定値の差は大きかったが、定量値の相対標準偏差は小さかった。また、公定値が与え

第2表 Analytical results of trace elements in NBS SRM-464 and JSS 155-6 low alloy steels and those certified values (unit=ppm).

Standard	Element	30 MeV	20 MeV	Certified
NBS SRM-464	Ti		<u>43.7±2.3</u>	40
	Cr	818±50	<u>760±29</u>	780
	Co	277±7	<u>294±13</u>	280
	Ni	<u>1390±90</u>	1290±80	1350
	Cu		<u>1120±30</u>	940
	As	<u>190±14</u>	184±5	180
	Zr	<u>93±3.6</u>	74.2±2.7	100
	Nb	410±29	<u>366±11</u>	370
	Mo	<u>277±19</u>	257±9	290
	Sn		<u>449±41</u>	430
	Sb	<u>17.7±0.7</u>	16.1±0.4	
	Pb		<u>239±13</u>	200
JSS 155-6	Co	116±4.3		
	Ni	1040±10		1100
	Cu	3530±10		3600
	As	27.6±1.5		
	Nb	14.2±0.9		
	Mo	7000±160		7000
	Sb	6.6±0.9		

Values underlined were used for the comparative method.

えられていないアンチモンの定量値は30MeV照射での定量値と一致した。

JSS 155-6の30MeV照射では、銅とモリブデンの定量値は公定値と極めてよく一致した。ニッケルの定量値は公定値とは一致しなかったが、定量値の相対標準偏差は1%と小さかった。各測定値の相対標準偏差はアンチモンを除いて6.3%以下であり、公定値が与えられていない元素についても信頼のおける定量値が得られたものといえる。

3.6 低合金鋼の比較法による分析

比較法では標準添加標準法で定量したNBSのSRM-464を比較試料として用いたが、SRM-464中の定量目的元素の濃度は公定値を用いずに第2表の下線を付けた定量値を採用した。その際妨害のない核種についてはSN比のよい値を採り(30MeV照射)、SN比がよくても妨害があるものについては20MeV照射の場合の値を採った。但し、マンガンの場合には標準添加内標準法でそれを内標準元素としたため定量しなかったため公定値をそのまま用いた。

JSS 150-1～155-6の定量結果を第3表および第4表に、またNBS SRM-461, SRM-466, JSS 163-1 および163-3の定量結果を第5表に示した。ここでも1種類の試料につき3回分析して、その平均値を定量値とした。

第3表 Analytical results of JSS low alloy steels and those certified values (unit=ppm).

Sample	Element	30 MeV	20 MeV	Certified
JSS 150-6	Cr	2980±350	3090±120	3000
	Mn		1200±60	1100
	Co		337±19	
	Ni	37400±1900	41800±1700	40000
	Cu		ND	670
	As	151±16	167±5	
	Mo	2020±110	2230±90	2000
	Sb	20.0±1.7	19.6±1.4	
JSS 151-6	Cr	931±21	1070±90	1100
	Mn		14600±1100	14800
	Co		241±23	
	Ni	25800±1300	30000±2900	29900
	Cu		ND	1100
	As	187±36	204±23	
	Zr	7.8±1.7		
	Mo	478±36	494±57	460
JSS 152-6	Ti		21.4±0.3	
	Cr	5060±160	4730±430	5000
	Mn		3960±390	4200
	Co		196±17	
	Ni	19000±1100	20500±800	20600
	Cu		5420±870	4700
	As	228±20	228±14	
	Zr	6.4±0.9		
	Nb	7.2±1.2	1.5±0.5	
	Mo	10400±1000	10800±400	9700
	Sn		256±12	
Sb	49.7±3.9	47.8±5.4		

ND : not detected.

第4表 Analytical results of JSS low alloy steels and those certified values (unit=ppm).

Sample	Element	30 MeV	20 MeV	Certified
JSS 153-6	Ti		15.7±0.4	
	Cr	10500±300	10600±400	10400
	Mn		7900±370	7700
	Co		316±8	
	Ni	9740±5660	10400±500	10200
	Cu		4390±810	2900
	As	120±2	129±3	
	Nb	10.7±1.2	3.1±0.1	
	Mo	12700±100	13100±400	(12300)
	Sn		134±27	
	Sb	24.2±3.2	23.5±1.9	
JSS 154-6	Ti		17.2±0.5	
	Cr	22000±1000	20300±500	20300
	Mn		12500±300	12600
	Co		151±9	
	Ni	5250±320	5210±70	5100
	Cu		2390±200	1700
	As	184±9	186±6	
	Zr	3.3±0.3		
	Nb	6.8±1.1	4.7±0.6	
	Mo	4650±70	4610±40	4000
	Sn		83.7±16	
Sb	26.4±2.2	27.4±0.5		
JSS 155-6	Ti		4.7±0.6	
	Cr	34200±2100	31400±1600	30800
	Mn		2730±160	2700
	Co		123±6	
	Ni	1080±60	1120±50	1100
	Cu		4570±370	3600
	As	32.5±1.7	32.1±3.1	
	Zr	1.1±0.1		
	Nb	15.8±0.6	11.4±1.1	
	Mo	7740±390	7920±390	7000
	Sb	5.4±0.6	5.1±0.4	

第5表 Analytical results of NBS and JSS low alloy steels and those certified values (unit=ppm).

Sample	Element	20 MeV	Certified
NBS SRM-461	Cr	1360±100	1300
	Ni	17600±900	17300
	As	282±12	280
	Zr	22.0±3.0	(<50)
	Nb	107±7	110
	Mo	3330±200	3000
	Sb	7.0±0.5	
	Pb	42.4±4.3	(30)
NBS SRM-466	Cr	49±22	100
	Ni	543±32	510
	As	161±8	140
	Zr	8.8±0.5	(<50)
	Nb	49.7±1.8	50
	Mo	112±6	110
	Sb	6.9±0.3	
	Pb	22.6±4.3	(13)
JSS 163-3	Cr	1050±100	1000
	Ni	1170±40	1100
JSS 164-3	Cr	78±49	140
	Ni	321±20	280

3. 6. 1 30 MeV 照射での結果

クロムについては JSS 150-6 で相対標準偏差が大きかった。また、濃度が2%を越えている JSS 154-6 と JSS 155-6 で公定値を上回り、濃度の低い NBS SRM-466 と JSS 164-3 では公定値を大きく下回り、相対標準偏差も大きかった。100 ppm 程度のクロムの定量はむずかしいようである。JSS 151-6 でも公定値を下回ったが精度はよかった。他の試料については誤差範囲内で一致した。ニッケルについては、濃度2%以上の JSS 150-6, JSS 151-6, JSS 152-6 で公定値を下回った。また濃度の低い JSS 164-3 では上回った。他の試料では公定値と誤差範囲内で一致しており、相対標準偏差も5%前後であった。ヒ素、アンチモンに

については公定値が与えられていないが、相対標準偏差が大きかった場合を除けば、精度はよかったので定量値は信頼できると考えられる。ジルコニウム、ニオブについてはそれぞれ濃度が低いためと妨害のため相対標準偏差が大きくなった。ニオブはNBS SRM-461とNBS SRM-466で公定値と一致したので他の試料での定量値は信頼できる値であろう。モリブデンについてはJSS 150-6, JSS 151-6, JSS 152-6, NBS SRM-466の定量値は誤差範囲内で公定値と一致したものの他の試料では上回った。ニッケルの濃度の高い(1%以上)試料については照射終了後の数日間は ^{57}Ni が多量にあるため特に小さなピークについて十分測定できなかった。そのため、例えばジルコニウムが含まれていたとしても検出できなかったり、検出できても誤差が多くなったりした。コバルトについては補正が複雑であるため解析・定量しなかった。

3. 6. 2 20 MeV 照射での結果

ジルコニウムは検出できなかった。チタンについては公定値は与えられていないが相対標準偏差は最大でも2.9%であり、定量結果は信頼できるであろう。クロム、マンガン、コバルト、ニッケルについては多少誤差範囲を外れたものもあるがほとんど公定値と一致し、相対標準偏差も10%以下であった。ヒ素、アンチモンについては相対標準偏差が大きい場合もあったが30 MeV 照射の場合の結果ともおよそ一致したので定量結果は信頼できるであろう。ニオブの定量結果は検出限界などを考えると10ppm以下の定量結果については信頼できないかもしれない。モリブデンでは相対標準偏差は小さかったものの、公定値をいずれも上回った。スズは比べるものがないので定量結果の信頼性を議論することができない。

3. 6. 3 JSS 155-6 の分析結果

JSS 155-6については標準添加内標準法と比較法の両方で定量を行った。標準添加内標準法での結果は、公定値の与えられているニッケル、銅、モリブデンのうち、銅とモリブデンで公定値とよい一致を示した。ニッケルについては公定値との一致はみられなかったが、相対標準偏差は1%と非常に精度はよかった。比較法の結果では、ニッケルについては30 MeV, 20 MeV 照射ともに公定値と一致し、20 MeV 照射ではクロム、マンガンが一致した。しかしモリブデンと銅では公定値からの偏差が大きかった。両者は今回の実験では定量のむずかしい元素であったが、その両元素について標準添加内標準法ではよい結果が得られた。このことから、標準添加内標準法が目的とする核種の定量では、より多くの誤差の導入を伴う比較法にまさっているといえる。標準添加内標準法は精度と正確さを必要とする標準試料についての分析に有効な方法であり、今回のように比較法の比較試料作りには最適である。また、比較法には同時に多数の試料についての定量が可能なことや、試料の調製が簡便であることなどの利点もある。

§ 4. ま と め

標準添加内標準法を用いて低合金鋼の光量子放射化分析を行い、公定値とのよい一致をみた。このことから、低合金鋼のような鉄鋼試料の分析においても標準添加内標準法による光量子放射化分析は有効であることが実証できた。

日本鉄鋼協会の低合金鋼について分析した結果、分析表に公定値が与えられていない元素が多数検出され、精度よく定量できた。これは鉄鋼試料の光量子放射化分析ではマトリックスの鉄から生成する放射能が低く抑えられるために、それに含まれる微量元素についての定量が容易にできるという特長の現れである。

本研究によりこれまで報告されていない鉄鋼中の微量成分についての貴重なデータを提供することができ、今後材料開発や誘導放射能の研究にも大いに役立つことが期待される。

なお、本研究の一部は文部省科学研究費によったことを記し、厚く感謝の意を表わします。

参 考 文 献

- 1) M. Yagi and K. Masumoto: J. Radioanal. Chem. **83** (1984) 319.
- 2) M. Yagi and K. Masumoto: J. Radioanal. Chem. **91** (1985) 379.
- 3) K. Masumoto and M. Yagi: J. Radioanal. Chem. **100** (1986) 287.
- 4) M. Yagi and K. Masumoto: J. Radioanal. Chem. **109** (1987) 237.
- 5) K. Masumoto and M. Yagi: J. Radioanal. Chem. **109** (1987) 449.
- 6) M. Yagi and K. Masumoto: J. Radioanal. 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. Chem. **116** (1987) 375.
- 9) K. Masumoto and M. Yagi: J. Radioanal. Chem. **121** (1988) 131.
- 10) K. Masumoto and M. Yagi: J. Radioanal. Chem. (in press).
- 11) M. Yagi, K. Masumoto and M. Muto: J. Radioanal. Nucl. Chem. **98** (1986) 31.

光量子照射各種金属材料中の誘導残留放射能に関する研究(I) —20, 30MeV照射における 低合金鋼中の残留放射能—

金研, 核理研*

三頭聡明・駒 義和・八木益男・

榎本和義*

§ 1. はじめに

核融合炉実用化に向けての重要な研究課題の一つとして、低放射化構造材料の開発が挙げられている¹⁻³⁾。核融合炉の運転、保守管理、廃棄処分等に伴う被曝を低く抑えるためには、構造材料中の残留放射能を少なくすることが必要である。しかし、各種の材料について残留放射能強度を、適切に評価するための基礎的なデータは圧倒的に不足しており、構造材料の主構成元素からの残留放射能についてさえも、モデル計算によって各種の実用化条件に即して定量的に検討することは不可能な状態にある。

一方、軽水炉燃料サイクルにおいては、長寿命の放射化生成物、核分裂生成物及び超ウラン元素 (TRU) の処理処分問題が、緊急に解決されなければならない重要課題となっている。そのための一つの方法として、加速器を用いた核破碎反応による消滅処分が提案され、光子照射も有力な候補とされている。このような消滅処分法を実用化するためには、加速器構造材料の放射化の影響をも考慮した総合的な安全技術評価が必要であることは言うまでもない。

核分裂エネルギーの利用においてはその実用化後に、また、核融合炉開発においてもその開発研究の骨組みが決定された後に、被曝低減化あるいは残留放射能の影響評価の問題が取り上げられたという歴史的背景がある。

我々は上記の状況を批判的に捉え、核融合炉の実用化に向けての基礎研究としてだけでなく、新たに提案された消滅処分についても、実用化可能な構造材料に関する残留放射能の生成と、その影響を実証的に検討することを目的として本研究を開始した。

§ 2. 目 的

本研究は、核融合炉、加速器構造材料の放射化量を計算によって求めることが困難な主たる原因が、微量成分を含めた構造材料の構成元素の影響の評価の方法が確立していないことにあ

る，という観点に立ち実施する。

試料としては鉄鋼標準試料を用い，放射化手段としては光量子反応に注目して，それによる誘導残留放射能を測定する。その結果を基に，構成成分の含有量と，誘導残留放射能成分との関係を実証的に検討，標準試料の元素組成の公定値によって，誘導残留放射能の実態がどこまで説明できるかを検討することを第一の研究目的とした。

さらに，上記の測定結果を利用して，長時間照射を想定したモデル計算を行い，加速器の保守管理，および構造材料廃棄処分時に問題となる残留放射能の影響についても考察した。

§ 3. 実験方法

3. 1 照射試料

日本鉄鋼協会の鉄鋼標準試料の中から，2種類の高純度鉄（002-2，003-1）と，3種類の低合金鋼（150-8，152-9，153-8）を選び照射試料とした。標準試料の元素組成を第1表に示す。

第1表 Composition of the reference materials (weight%).

Series	Pure Iron		Low-alloy Steel		
	002-2	003-1	150-8	152-9	153-8
JSS No.					
C	0.0010	0.0011	0.49	0.31	0.11
Si	0.0008	0.0034	0.20	0.35	0.30
Mn	0.0003	0.0018	0.12	0.42	0.79
P	0.0002	0.0011	0.038	0.020	0.012
S	<0.0001	0.0004	0.03	0.041	0.0087
Ni	0.0005	0.0033	4.10	2.00	1.00
Cr	(0.0002)	0.0013	0.30	0.40	1.00
Mo	(0.0001)	0.0004	0.20	0.96	1.25
Cu	0.0014	0.0018	0.056	0.48	0.30
V	(0.0001)	(0.0001)	0.0160	0.097	0.21
Co	0.0029	0.0025			
Ti	<0.0001	<0.0001			
Al	0.0004	(0.0003)	(0.006)	0.012	(0.011)
As	<0.0001	<0.0001			
Sn	<0.0001	<0.0001			
B	0.0001	<0.00003			
N	0.0006	0.0031	0.0102	0.0140	(0.0117)

3種類の低合金鋼は、Ni, Mn, Moの含有量の違いが大きいという観点から選んだ。

試料は一粒が1～5 mgのチップ状であった。それぞれ約500mgを秤取し、厚さ一定の照射試料とするために7 kg/cm²の圧力で直径1 cmの円板状に加圧成形した。各々の試料は厚さ10 μmのアルミ箔で包んで照射した。

ビームモニターとして、厚さ40 μm、純度99.99%のNi箔を直径1 cmに打ち抜いて用いた。

このNi箔3枚を成型した鉄鋼試料中に等間隔に配置し、石英管に常圧封入し照射ターゲットとした。

3.2 照射

照射は、20, 30 MeVの2種類のエネルギーについて行った。それらの照射条件は第2表に示す。

第2表 Irradiating condition.

Energy(MeV)	Date	Time	Current
20	1988 7/6	11:00-18:00	~80 μA
30	1988 7/6	14:27-17:27	~90 μA

3.3 測定

照射後の試料は非破壊のまま、Ge半導体検出器を用いて、γ線スペクトルを測定した。

§ 4. 結果

4.1 核種の同定

核種の同定は、γ線エネルギーと半減期を基にして行った。複数のγ線を放出する核種の場合は、十分な強度で観測された全てγ線について、その放出率も考慮し同定に利用した。同定に用いたγ線のエネルギーと放出率を核種別に表3に示す⁴⁾。

4.2 生成量の評価

4.1の結果を基に、照射エネルギー、試料、核種別に照射終了時の壊変率を計算した。ここでは、照射試料の幾何学的配置が同じでないことによるビーム強度の違いについての補正は行わず、照射位置における照射試料単位重量当りの壊変率を求めた。

4.3 ビーム強度に対する補正

照射ターゲット中の試料の幾何学的配置によって、試料に照射される光量子ビームの強度は

第3表 γ -ray energy and abundance used for determination.

Nuclide	$T_{1/2}$	E/keV	Abundance	Nuclide	$T_{1/2}$	E/keV	Abundance
Cr -51	27.70d	320.1	9.8	Cu -61	3.408h	283.0	12.5
Mn-52	5.591d	346.1	1.0			656.0	10.7
		744.2	90.0	Cu -64	12.70h	1345.8	0.5
		848.1	3.3	As -74	17.78d	595.7	59.5
		935.5	94.5			634.8	15.0
		1247.0	4.7	Zr -89	3.268d	909.2	99.9
		1333.7	5.1	Nb -95	34.97d	765.8	99.8
		1434.1	100.0	Nb -95m	3.61 d	235.4	26.1
Mn-54	312.2d	834.8	100.0	Nb -96	23.35h	350.3	1.1
Mn-56	2.579h	846.8	98.9			460.0	28.5
		1811.2	27.2			480.7	6.2
Fe -52	8.275h	168.7	99.2			569.0	59.0
		377.7	1.7			778.4	97.0
Co -56	77.7 d	846.8	100.0			810.3	10.0
		1238.3	67.6			849.9	20.6
		1771.5	15.5			1091.3	48.5
Co -57	271.8d	122.1	85.6			1200.2	19.8
		136.4	10.6			1497.7	2.9
Co -58	70.92d	810.8	99.5	Nb -97	1.202h	658.2	98.3
Ni -56	6.10 d	158.4	98.9	Mo-90	5.67 h	122.9	64.1
		269.5	36.5			257.9	78.0
		480.5	36.5			942.1	5.5
		750.0	49.5			1271.8	4.1
		811.9	86.0	Mo-99	2.748d	140.5	90.9
		1561.8	14.0			181.1	6.0
Ni -57	1.503d	127.2	12.9			366.4	1.2
		379.9	0.1			739.5	13.0
		673.4	0.1			777.9	4.4
		907.0	0.1	In -111	2.807d	171.3	91.0
		1223.5	0.1			245.4	94.0
		1377.6	77.9	Sb-122	2.70 d	564.1	71.0
		1730.6	0.1			692.8	3.9
		1757.6	6.3				
		1919.5	14.7				

異なる。異なった位置で照射された試料間の残留放射能強度を比較するためには、光量子の強度を規格化する必要がある。

本実験では、ビームモニターとしてNi箔を鉄鋼試料をはさんで同時に照射した。後に述べるように、本実験においては、 ^{57}Ni はいずれの試料においてもNiから生成するものと結論で

きたので、各々のモニターに生成した⁵⁷Niの量を基準にして上記の規格化を行った。いずれの照射エネルギーにおいても、各々の試料と同じ位置に置かれたNiモニター1gから生成する⁵⁷Niの照射終了時の壊変率が、100MBqとなる条件で規格化した。

4.4 照射終了時の核種の壊変率

今までに述べてきた手順に従って求めた壊変率を照射エネルギー別に第4, 5表に示す。

第4表 Radioactivity at the end of 20MeV irradiation (Bq/g).

Nuclide	002-2	003-1	150-8	152-9	153-8
Cr-51		7.6E+02 ± 6.1E+02	6.9E+04 ± 1.2E+04	8.1E+04 ± 1.8E+03	1.5E+05 ± 3.1E+03
Mn-52				4.4E+03	4.8E+02 ± 1.3E+02
Mn-54	8.2E+02 ± 1.0E+02	7.6E+02 ± 3.4E+02	3.9E+03 ± 6.9E+02	1.1E+04 ± 3.3E+02	1.9E+04 ± 1.4E+03
Mn-56	5.0E+06 ± 8.2E+04	4.9E+06 ± 7.2E+04	4.3E+06 ± 1.5E+05	4.4E+06 ± 3.5E+05	4.2E+06 ± 6.7E+04
Co-56			6.5E+02 ± 4.7E+01		
Co-57			4.7E+04 ± 3.7E+03	2.5E+04 ± 8.1E+03	8.1E+03 ± 1.3E+03
Co-58	6.0E+02 ± 3.5E+02	5.7E+02 ± 3.8E+02			?
Ni-57		6.9E+03 ± 2.9E+03	4.3E+06 ± 2.5E+05	1.9E+06 ± 1.1E+05	8.6E+05 ± 7.6E+04
Cu-64				2.8E+06 ± 3.3E+05	1.8E+06 ± 1.6E+05
As-74			7.3E+03 ± 3.5E+02	1.4E+04 ± 1.1E+03	7.2E+03 ± 6.7E+02
Nb-95			2.4E+02		
Nb-95m			4.2E+03	?	?
Nb-96			7.8E+03 ± 2.8E+02	1.1E+04 ± 2.2E+03	1.7E+04 ± 1.3E+03
Mo-99	5.7E+02 ± 3.2E+02	1.3E+05 ± 8.6E+04	5.9E+05 ± 3.4E+03	6.7E+05 ± 3.4E+04	
In-111			5.2E+03	?	9.1E+03 ± 1.7E+03
Sb-122			6.9E+03 ± 1.3E+02	1.1E+04 ± 5.0E+02	6.2E+03 ± 8.6E+01

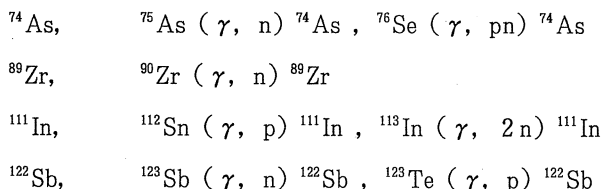
第5表 Radioactivity at the end of 30MeV irradiation (Bq/g).

Nuclide	002-2	003-1	150-8	152-9	153-8
Cr-51	5.8E+03 ± 1.1E+02	5.4E+03 ± 3.2E+01	7.6E+04 ± 1.0E+03	9.4E+04 ± 2.7E+03	1.9E+05 ± 7.2E+03
Mn-52	8.3E+03 ± 2.4E+02	8.0E+03 ± 3.8E+02	8.3E+03 ± 8.3E+02	7.6E+03 ± 4.4E+02	7.6E+03 ± 1.1E+03
Mn-54	2.9E+04 ± 8.3E+02	3.0E+04 ± 2.8E+03	3.0E+04 ± 2.2E+03	3.3E+04 ± 2.1E+03	4.2E+04 ± 1.1E+03
Mn-56	1.9E+07 ± 2.3E+06	1.9E+07 ± 4.1E+06	1.4E+07 ± 1.8E+06	1.3E+07 ± 2.2E+06	1.6E+07 ± 4.6E+06
Fe-52	9.2E+04 ± 1.5E+04	9.9E+04 ± 1.1E+04	7.6E+04 ± 8.7E+03	6.9E+04 ± 1.2E+04	8.0E+04 ± 1.3E+04
Co-56	3.4E+02 ± 7.7E+01	3.5E+02 ± 9.6E+01	5.9E+03 ± 7.3E+02	3.6E+03 ± 1.8E+02	1.7E+03 ± 3.4E+02
Co-57		6.7E+01	5.2E+04 ± 4.2E+03	2.2E+04 ± 9.8E+02	1.1E+04 ± 5.7E+02
Co-58	3.7E+02 ± 5.2E+01	3.2E+02 ± 1.0E+01		3.1E+03 ± 2.7E+02	1.4E+03 ± 7.6E+01
Ni-56			9.4E+03 ± 1.6E+03	4.4E+03 ± 4.4E+02	2.9E+03 ± 6.8E+02
Ni-57	1.4E+03 ± 2.9E+02	4.5E+03 ± 8.6E+02	4.5E+06 ± 8.0E+05	1.9E+06 ± 2.0E+05	9.9E+05 ± 8.7E+04
Cu-61				3.2E+05	2.8E+05
Cu-64				2.1E+06 ± 1.0E+05	1.8E+06 ± 5.3E+05
As-74			5.2E+03 ± 7.3E+02	9.8E+03 ± 1.8E+03	5.7E+03 ± 9.5E+02
Zr-89					5.7E+03
Nb-95m			1.1E+04 ± 5.2E+03	1.8E+04 ± 1.3E+03	2.3E+04 ± 9.5E+02
Nb-96			8.3E+03	4.4E+04 ± 1.3E+04	5.3E+04 ± 1.2E+04
Nb-97				3.2E+05	6.5E+05
Mo-99	2.6E+02 ± 2.9E+01	6.6E+04 ± 1.0E+04	2.8E+05 ± 2.6E+04	3.7E+05 ± 2.8E+03	
In-111			4.2E+03 ± 8.0E+01	1.7E+03 ± 8.3E+02	
Sb-122				6.2E+03 ± 1.4E+03	3.7E+03 ± 3.3E+02

§ 5. 考 察

5. 1 不純物から生成する放射性核種

分析表に示されている元素からは生成されないが、今回の実験で検出された核種と、推定される生成反応をまとめて以下に記す。いずれも純鉄では観測されなかったが、低合金では20, 30 MeVのいずれの照射エネルギーでも観測された。



上記に示した反応はいずれも20MeV以下でも十分に起こるものであり、これらの反応のターゲットとなる元素が不純物として含まれていたと結論できる。

同様の知見はNBS標準試料を用いた光量子放射化分析においても報告されている⁵⁾。

5. 2 構成元素から生成する放射性核種

標準試料の公定値から生成量が説明できるものとしては、 ${}^{57}\text{Co}$, ${}^{56}\text{Co}$, ${}^{57}\text{Ni}$, ${}^{56}\text{Ni}$, ${}^{99}\text{Mo}$, ${}^{90}\text{Mo}$, ${}^{96}\text{Nb}$ 等、原子番号が26よりも大きいもののほとんどが挙げられる。

Niの放射性同位元素はCuからも生成するが、今回照射した試料はCuの含有量が少ないため、Niの放射性核種の生成にはその影響は殆ど認められなかった。全ての試料および照射エネルギーで、 ${}^{57}\text{Ni}$ と ${}^{56}\text{Ni}$ の生成量はNiの公定値から説明できる。

Coは低合金鋼では組成表に公定値が示されていない微量元素である。しかし、 ${}^{57}\text{Co}$, ${}^{56}\text{Co}$ はNiの放射化によっても生成し、さらにそれぞれ ${}^{57}\text{Ni}$ と ${}^{56}\text{Ni}$ の娘核であるため照射終了後にも生長する。今回の実験において、低合金鋼中に見いだされた ${}^{57}\text{Co}$ と ${}^{56}\text{Co}$ の生成量はNiの含有量に依存している。しかし、純鉄では ${}^{56}\text{Co}$ の生成量とNiの含有量に相関が認められず、 ${}^{59}\text{Co}$ からの生成が大きな部分を占めている。

MoおよびNbの放射性同位元素は、それらすべてがMoに起因するとして説明できる。

${}^{52}\text{Fe}$, ${}^{56}\text{Mn}$ および ${}^{52}\text{Mn}$ はFeのみから生成するとして説明できた。

${}^{54}\text{Mn}$ は20MeVでは ${}^{55}\text{Mn}$ の寄与が大半であるが、30MeVではMnの影響は小さくなる。

${}^{52}\text{Mn}$, ${}^{54}\text{Mn}$, ${}^{56}\text{Mn}$ で典型的に認められたように、原子番号がFeより小さい元素については、照射エネルギーによって成分元素と生成量との関係が変わってくる。純鉄は言うまでもないが、低合金鋼であってもその構成元素の95%程度はFeであり、照射エネルギーが高くなると、より多くの核子放出反応が起こるようになると、マトリックスとしてのFeの影響が顕著

になる。

^{51}Cr は、Cr のみの放射化で説明できる。20, 30MeV ではマトリックスとしての Fe の影響は現れない。

5.3 1000時間照射のモデル計算

低放射化材料の関発のためには、現実には加速器等が運転される条件に近い条件で、誘導残留放射能、あるいは、それに対する被曝量の評価を行うことも有意義である。本実験での照射はたかだか7時間程度であったが、現実には加速器等は年単位の期間で使用されている。

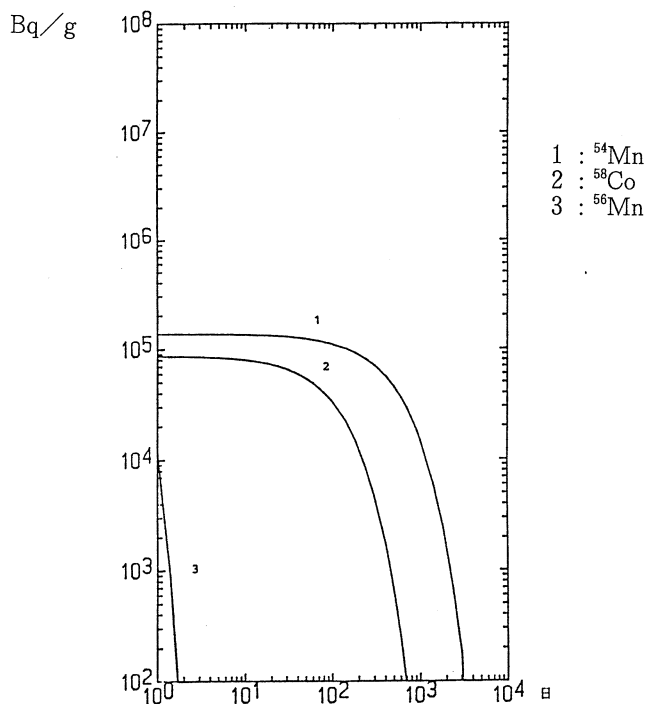
1000時間照射時の核種の壊変率を第6, 7表に示す。また、各試料および各核種の崩壊のようすを、崩壊曲線として第1から10図に示す。

第6表 Radioactivity at the end of 20 MeV irradiation for 1000h (Bq/g).

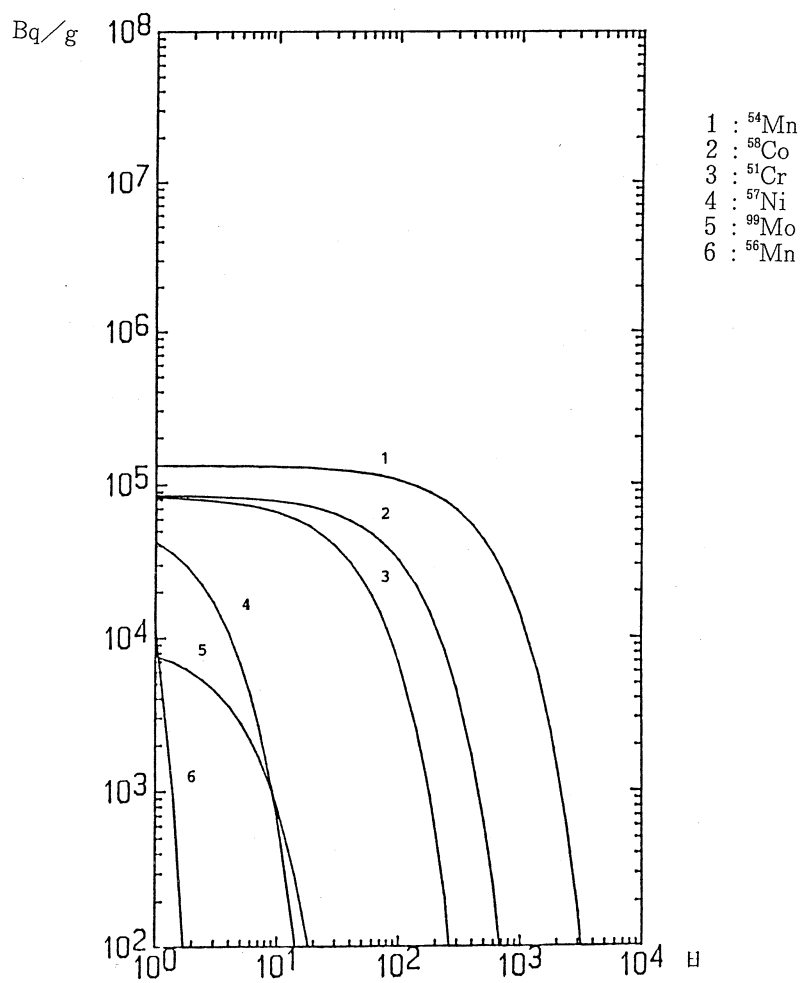
Nuclide	002-2	003-1	150-8	152-9	153-8
Cr-51		8.5E+04 ±6.8E+04	7.9E+06 ±1.4E+06	8.5E+06 ±1.9E+05	1.7E+07 ±3.6E+05
Mn-52				1.5E+04	1.7E+04 ±4.7E+03
Mn-54	1.4E+05 ±1.8E+04	1.3E+05 ±5.7E+04	6.7E+05 ±4.2E+04	1.8E+06 ±5.5E+04	3.2E+06 ±2.5E+05
Mn-56	7.6E+06 ±1.2E+05	7.6E+06 ±1.8E+05	6.5E+06 ±2.2E+05	6.3E+06 ±5.0E+05	6.2E+06 ±1.0E+05
Co-56			9.9E+04 ±7.2E+03		
Co-57			8.2E+06 ±6.4E+05	4.1E+06 ±1.3E+06	1.4E+06 ±2.2E+05
Co-58	8.8E+04 ±5.3E+04	8.7E+04 ±5.7E+04			
Ni-56			1.1E+04	2.8E+04 ±5.4E+03	1.8E+04 ±2.9E+03
Ni-57		6.8E+04 ±2.9E+04	4.4E+07 ±2.5E+06	1.8E+07 ±1.1E+06	8.6E+06 ±7.6E+05
Cu-64				1.2E+06 ±9.4E+04	7.0E+06 ±6.3E+05
As-74			4.3E+03 ±2.0E+02	5.9E+03 ±7.0E+02	1.1E+05 ±1.0E+04
Nb-95			3.0E+04		
Nb-95m			9.7E+04		
Nb-96			5.1E+04 ±1.9E+03	7.2E+04 ±1.4E+04	1.1E+05 ±8.6E+03
Mo-99		9.9E+03 ±5.6E+03	5.1E+04 ±3.4E+03	9.7E+06 ±5.8E+05	1.2E+07 ±6.0E+05
In-111			6.4E+04		1.7E+04 ±3.2E+03
Sb-122			1.2E+05 ±8.3E+04	1.8E+05 ±8.0E+03	1.1E+05 ±1.5E+03

第7表 Radioactivity at the end of 30MeV irradiation for 1000h (Bq/g).

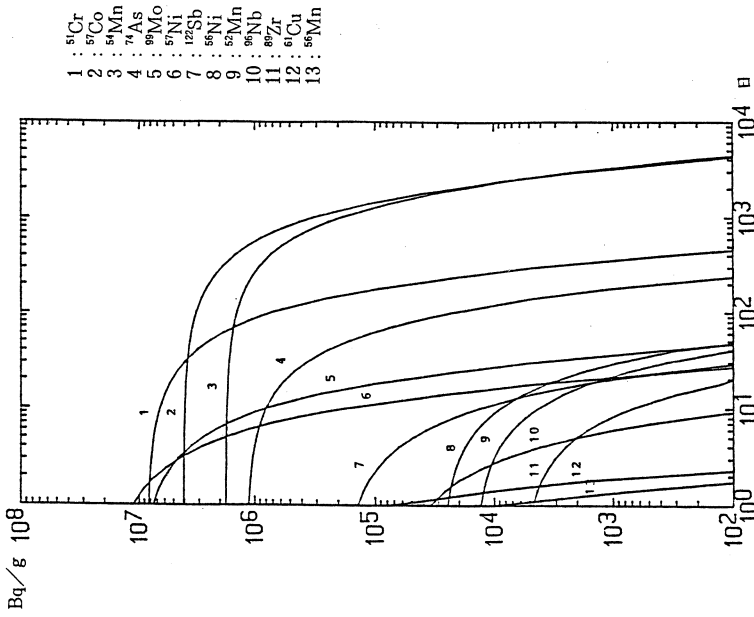
Nuclide	002-2	003-1	150-8	152-9	153-8
Cr-51	6.8E+05 ±1.3E+05	6.3E+05 ±3.7E+03	8.9E+06 ±1.2E+05	1.1E+07 ±3.1E+05	2.2E+07 ±8.4E+05
Mn-52	3.0E+05 ±8.7E+03	2.9E+05 ±1.3E+04	3.0E+05 ±3.0E+04	2.7E+05 ±1.6E+04	2.8E+05 ±4.0E+04
Mn-54	5.2E+06 ±1.5E+05	5.3E+06 ±5.0E+05	5.3E+06 ±3.9E+05	5.9E+06 ±3.8E+05	7.8E+06 ±2.5E+05
Mn-56	2.0E+07 ±2.4E+06	1.9E+07 ±4.1E+06	1.4E+07 ±1.8E+06	1.3E+07 ±2.2E+06	1.6E+07 ±4.7E+06
Fe-52	2.3E+05 ±3.7E+04	2.5E+05 ±2.8E+04	1.9E+05 ±2.2E+04	1.7E+05 ±3.1E+04	2.0E+05 ±3.3E+04
Co-56	5.1E+04 ±1.2E+04	5.4E+04 ±1.5E+04	9.0E+05 ±1.1E+05	4.5E+05 ±2.8E+04	2.7E+05 ±5.3E+04
Co-57		1.2E+04	9.5E+06 ±7.5E+05	3.9E+06 ±4.3E+05	2.0E+06 ±1.4E+05
Co-58	5.5E+04 ±8.0E+03	4.9E+04 ±1.4E+03		4.8E+05 ±4.2E+04	2.1E+05 ±1.9E+05
Ni-56			3.7E+05 ±6.4E+04	1.7E+05 ±1.7E+04	1.1E+05 ±2.6E+04
Ni-57	1.4E+04 ±3.0E+03	4.4E+04 ±8.5E+03	4.5E+07 ±8.1E+06	1.9E+07 ±2.0E+06	9.9E+06 ±8.6E+05
Cu-61				4.0E+05	1.0E+05
Cu-64				7.6E+06 ±3.7E+06	6.7E+05 ±1.9E+05
As-74			4.7E+05 ±6.6E+04	9.1E+05 ±1.7E+05	5.2E+05 ±8.9E+04
Zr-89					1.2E+05
Nb-95m			2.7E+04 ±1.2E+04	4.3E+05	5.3E+05 ±2.2E+04
Nb-96			5.4E+04	3.0E+05 ±8.8E+04	3.6E+05 ±7.7E+04
Nb-97				2.2E+05	4.3E+05
Mo-99		4.7E+03 ±5.1E+02	1.2E+06 ±1.8E+05	5.1E+06 ±4.7E+05	6.7E+06 ±5.0E+05
In-111			8.0E+04 ±1.5E+03	3.4E+04 ±1.6E+04	
Sb-122				1.6E+05 ±2.4E+04	6.5E+ ±5.8E+03



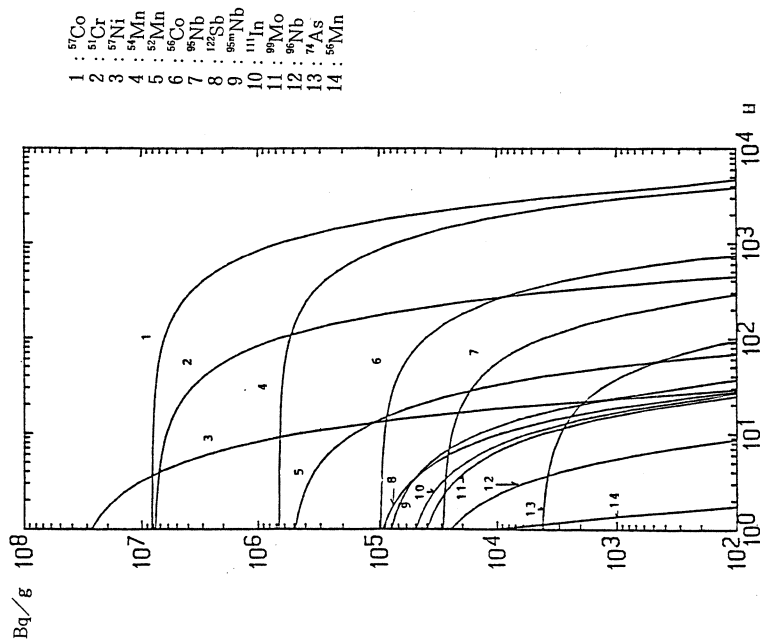
第1図 Decay curves of radionuclide in pure iron 002-2 irradiated by 20MeV Bremsstrahlung for 1000h (Bq/g).



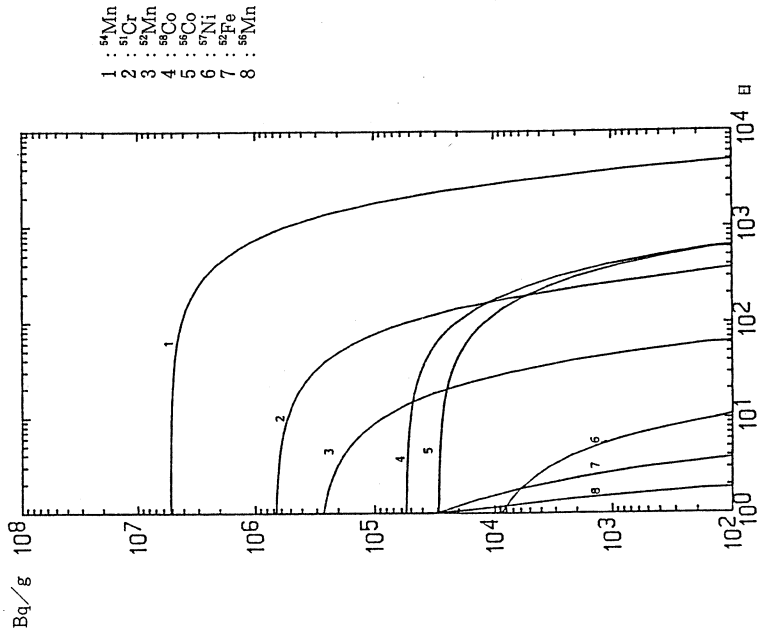
第2図 Decay curves of radionuclide in pure iron 003-1 irradiated by 20MeV Bremstrahlung for 1000h (Bq/g).



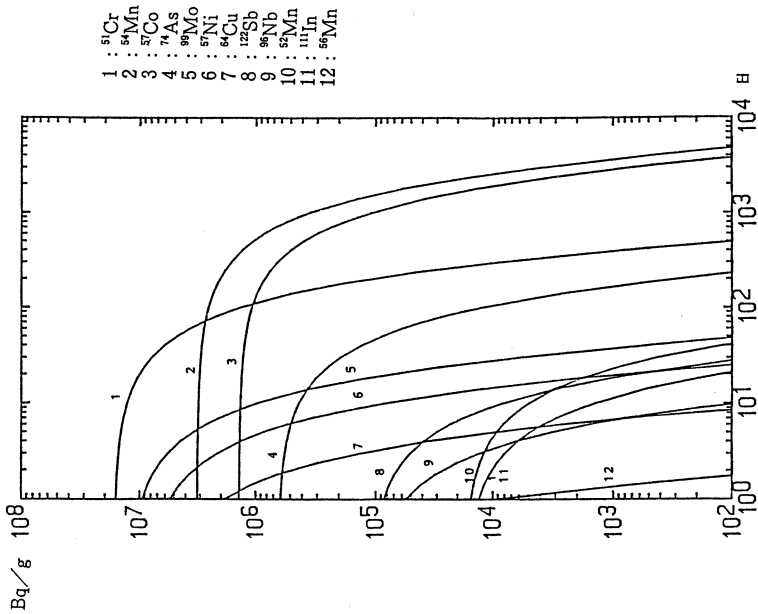
第4图 衰变曲线 of radionuclide in low-alloy steel 152-9 irradiated by 20MeV Bremsstrahlung for 1000h (Bq/g).



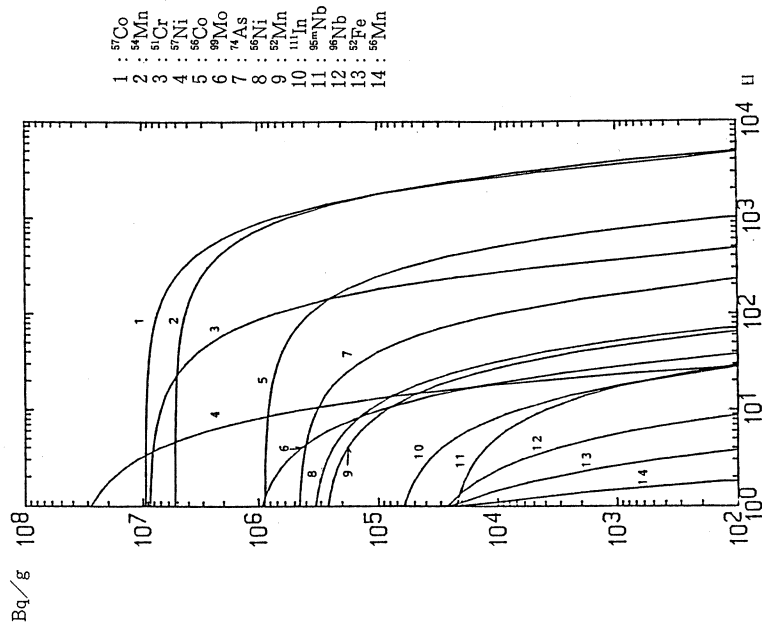
第3图 衰变曲线 of radionuclide in low-alloy steel 150-8 irradiated by 20MeV Bremsstrahlung for 1000h (Bq/g).



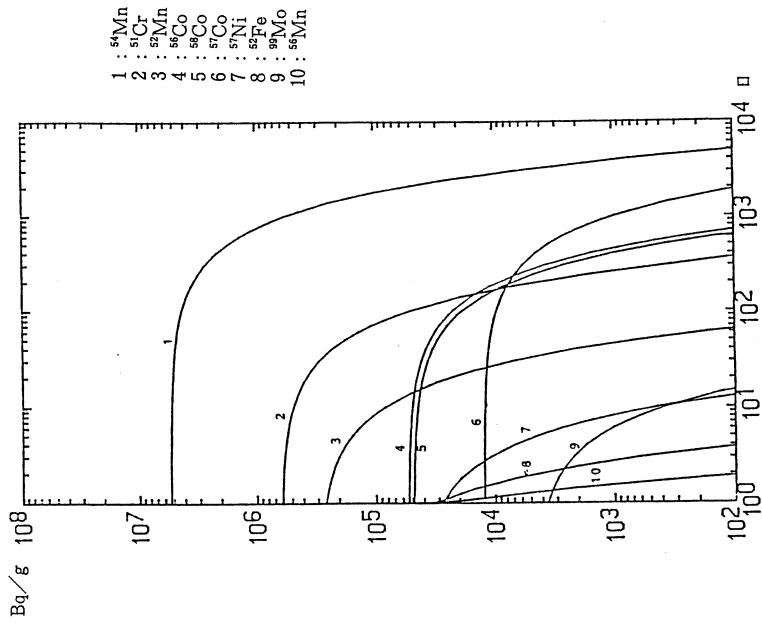
第 6 图 Decay curves of radionuclide in pure iron 002-2 irradiated by 30MeV Bremsstrahlung for 1000h (Bq/g).



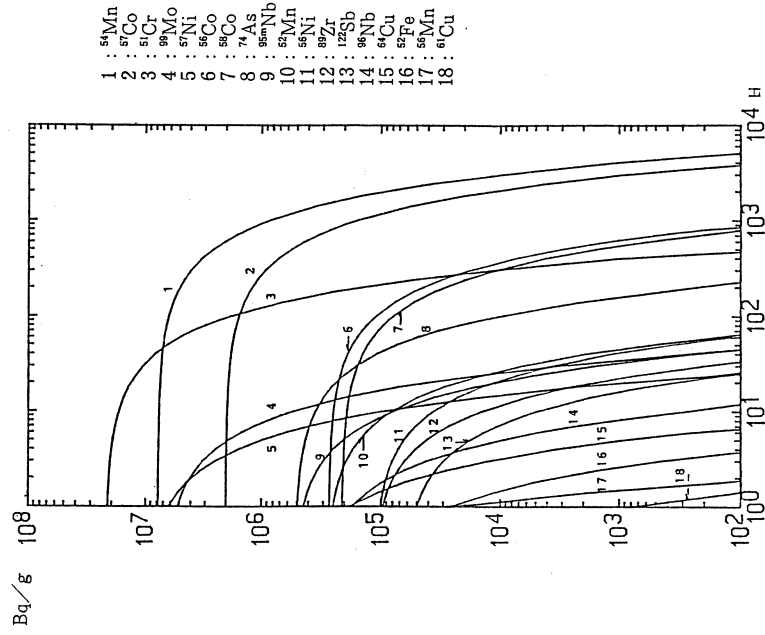
第 5 图 Decay curves of radionuclide in low-alloy steel 153-8 irradiated by 20MeV Bremsstrahlung for 1000h (Bq/g).



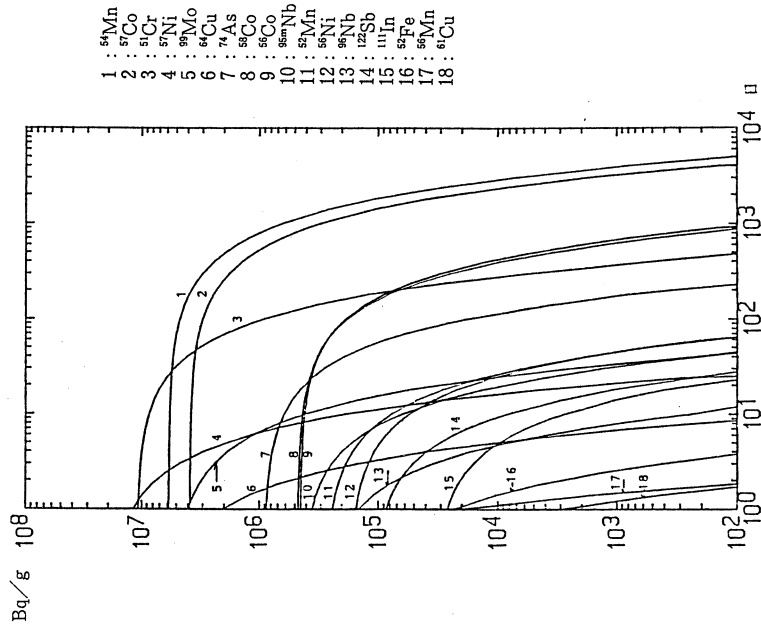
第8图 衰变曲线 of radionuclide in low-alloy steel 150-8 irradiated by 30MeV Bremsstrahlung for 1000h (Bq/g).



第7图 衰变曲线 of radionuclide in pure iron 003-1 irradiated by 30MeV Bremsstrahlung for 1000h (Bq/g).



第10图 Decay curves of radionuclide in low-alloy steel 153-8 irradiated by 30MeV Bremsstrahlung for 1000h (Bq/g).



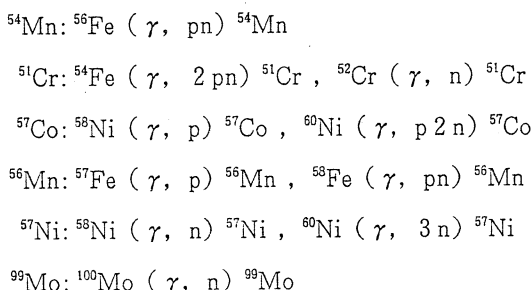
第9图 Decay curves of radionuclide in low-alloy steel 152-9 irradiated by 30MeV Bremsstrahlung for 1000h (Bq/g).

5. 4 被曝に大きな影響を与える核種

照射終了後、長時間残留しそれによる被曝が問題となる核種として、 ^{54}Mn 、 ^{51}Cr 、 ^{57}Co が挙げられる。上記の核種は半減期がそれぞれ、312日、27.7日、271日と、今回観測された放射性核種の中では半減期の長いものである。高エネルギー照射では、これらの核種は、マトリックスの Fe から生成するものであり、今回用いた試料によるその生成崩壊には、有意な違いは認められない。

保守管理時の被曝が問題となる核種は、廃棄物処分時に問題となる核種の外に、半減期が数時間から数日程度の核種の ^{66}Mn 、 ^{57}Ni 、 ^{99}Mo が加えられる。半減期はそれぞれ、2.58時間、1.50時間、66時間である。

また、それぞれの主な生成反応は次の通りである。



単純には、残留放射能の低減のためには、上記の各核種の成因となる元素、あるいは同位体分離しその生成に主として寄与する安定同位元素を含まない材料を用いるのが望ましい、ということになる。

光核反応による消滅処理にはさらに高いエネルギーでの照射が必要であり、基鉄合金においては Fe の残留放射能への影響が、更に大きくなることが予想される。

参 考 文 献

- 1) L. R. Greenwood and D. L. Bowers : J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 585.
- 2) L. Giancarli : J. Nucl. Mater. 139 (1986) 1.
- 3) G. J. Butterworth and L. giancarli : J. Nucl. Mater 155-157 (1988) 575.
- 4) E. Browne and R. Firestone : *Table of Radioactive Isotopes* (John Wiley & Sons, 1986).
- 5) 原 光雄, 飯野栄一, 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 21 (1988) 236.

北上山地，古第三紀珪長質火山岩類の地球化学的研究

教養部，理学部地学*

蟹沢聰史・吉田武義・石川賢一

永広昌之・青木謙一郎*

§1. まえがき

北上山地の白亜紀火成活動は初期のデイサイト～玄武岩にわたる火山活動と，花崗岩類の活動が知られており，多くの研究が行われている。しかし，白亜紀後期～古第三紀の火成活動については，これまであまり注意が払われていなかった。その理由は白亜紀初期の火成活動に比べて，その分布が宮古市を中心とした北部北上山地の一部に限られているためと思われる。最近の東北日本西部の秋田県男鹿半島，出羽丘陵および庄内盆地一朝日山地の知見^{1,2)}によると，古第三紀の火山活動の場は棚倉構造線北方延長以西の日本海域～日本海沿岸域に特徴的であり，この地域の火山活動史が，脊梁地域のそれとは異なっていたことが明らかにされてきた。そこで，日本海沿岸地域と北上山地東縁のそれとの比較は，この時期の日本列島の構造的位置づけを知る上で重要な意味を持っていると考えられる。本報告では，北部北上山地の古第三紀珪長質火山岩類の地球化学的性質とその意義について述べる。

§2. 北部北上山地における白亜紀後期～古第三紀の火成活動

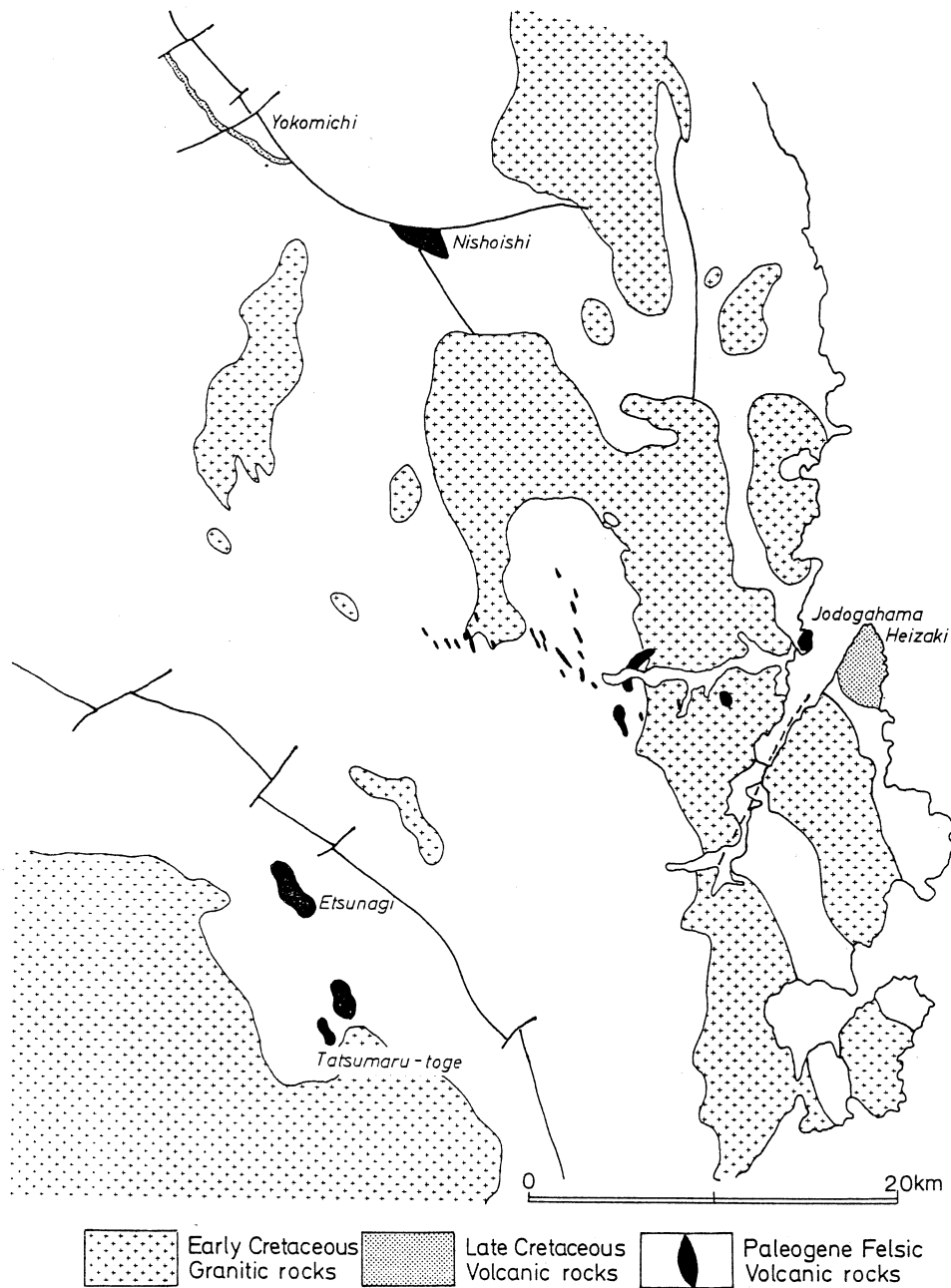
北部北上山地の白亜紀火山活動は；1) 原地山層で代表される白亜紀初期の玄武岩～流紋岩を主体とするもの。2) 宮古市東方の閉伊崎噴出岩³⁾と呼ばれるデイサイト質の溶結凝灰岩を主体とするものと，岩泉西方の横道累層の流紋岩質溶結凝灰岩で，西南日本の濃飛流紋岩に対比されると考えられているもの^{4,5)}。3) 浄土ヶ浜流紋岩類⁶⁾で代表される古第三紀珪長質火山岩類，である。

北部北上山地の古第三紀の火山活動については，これまで，浄土ヶ浜流紋岩の記載と分析値がそれぞれあるが^{6,7)}，それ以外はほとんどない。最近，片田⁸⁾によって董青石(?)流紋岩が報告されている(印刷中，および私信)。

§3. 古第三紀流紋岩の産状と代表的な岩石記載

古第三紀の火山岩類は，遠野花崗岩体の北から田老町にかけて分布し，「早池峰構造帯」・

北部北上帯・岩泉帯および田老帯の古・中生層と白亜紀花崗岩類を貫く（第1図）。代表的な岩体は岩手県宮古市浄土ヶ浜の黒雲母流紋岩のラコリス状～岩栓状の小岩体であり^{6,9)}、そのK-



第1図 北部北上山地東部の後期白亜紀～古第三紀火山岩類の分布。³³⁾

Ar年代は50 Ma¹⁰⁾を示す。浄土ヶ浜流紋岩と岩相的に類似の流紋岩～デイサイトは宮古花崗岩体の西側の閉伊川沿いの岩泉町二升石付近、遠野花崗岩体の北東、立丸峠の北から川井村江繋および小国付近にかけて分布し、一部には火道角礫岩もみられる^{6,7,11)}。

岩質はホルンブレンドデイサイト、黒雲母－ホルンブレンド流紋岩あるいは黒雲母流紋岩などで、いずれも石基はほぼ完晶質で、斑状～填間状組織を示す。斑晶鉱物は自形斜長石、ホルンブレンド、黒雲母などであり、ときに自形石英がみられる。微斑晶として黒雲母や鱗灰石がみられる。斜長石は累帯構造を示し、やや変質してアルバイト質の部分、方解石、あるいは沸石などが不規則にみられることがあるが、一般には新鮮である。ホルンブレンドは自形で、Z軸色は緑色～淡緑色を示し、ときに変質して仮像のみの場合もある。黒雲母は鱗片状でZ軸色は淡褐色～褐色を示す。石基は自形長柱状斜長石と他形粒状石英、鉄鉱物、黒雲母、鱗灰石およびガラス(?)などからなる。小国付近の流紋岩は数mmの自形堇青石(または大隅石?仮像)を含む。流紋岩質凝灰岩は他形碎片状の石英および脱ハリした軽石片を多数含む。この岩石は変質が著しく方解石、緑泥石、アルバイト、絹雲母などが生じている。また、斜長石も変質することが多い。その他、デイサイト、チャート、花崗岩質岩片を多数含む。

§4. 古第三紀珪長質火山岩類の化学組成

主化学組成

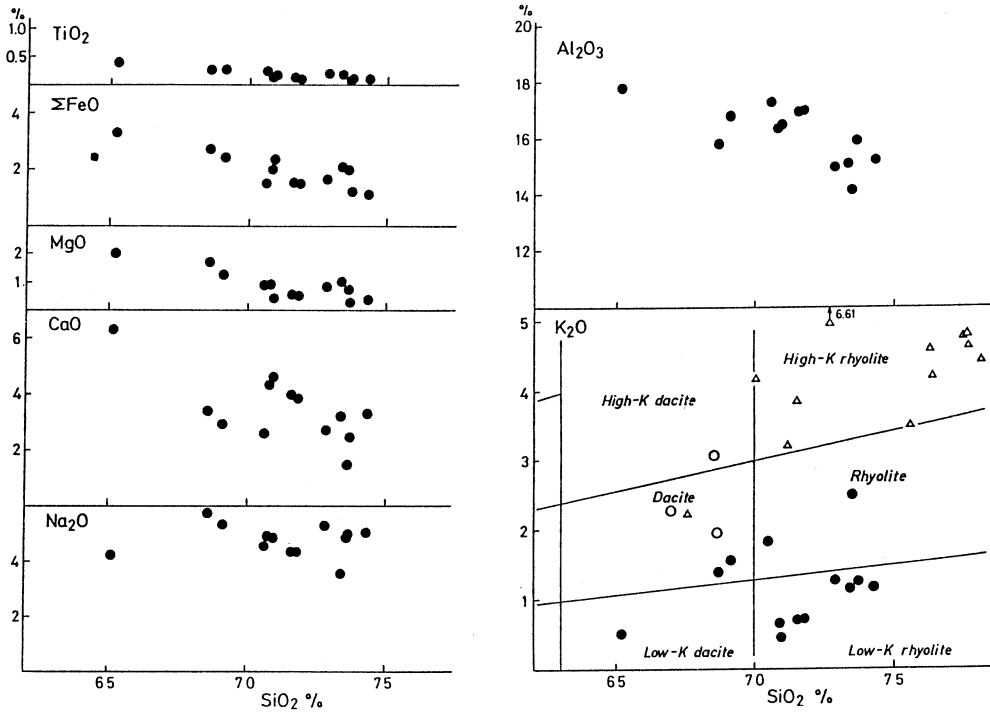
第1表に古第三紀流紋岩類の代表的な分析値を示す。分析は蛍光エックス線法により行ったが、FeOは過マンガン酸カリ滴定法、アルカリは炎光光度法、H₂O±は重量法による分析値を用い、合計が100%になるように補正した。第2図にこれらの火山岩類のSiO₂-K₂O、およびSiO₂-酸化物関係を示す。

白亜紀初期の原地山層を中心とする火山岩類はK₂Oに富む玄武岩から流紋岩にわたる広範囲な組成のものであり¹²⁾、南部北上山地の火山岩類には一部アルカリ岩類の存在が認められる^{13,14)}。また、白亜紀後期の閉伊崎噴出岩類も比較的K₂Oに富むものである。これらに比べて、浄土ヶ浜流紋岩類はK₂Oに乏しく、Na₂Oに富むのが特徴である。また、Al₂O₃に富む。浄土ヶ浜流紋岩類の化学組成の変化を、第四紀那須火山帯の変化傾向と比較すると、明らかにK₂Oに乏しくNa₂Oに富んでいる。また、Al₂O₃とCaOにも富む。CaOは変質のためかややばらつく。MgOはほぼ同じ傾向を示すが、total FeOはやや低い。K₂Oの含有量からは、大部分がEwart¹⁵⁾の低カリ流紋岩の領域に入り、一部がデイサイト～流紋岩に属する。このような性質は青麻－恐火山列の安達火山¹⁶⁾のものに近い。なおK₂Oについては、SiO₂との関係

第1表 北上山地, 古第三紀流紋岩類の分析値。

	8773007	86080701	EH-1	86080713-B	85092705	EH-2	8792506	86080702	86080901	Nisho-01	86072101	OT-2007*	8790317
SiO ₂	63.27	68.93	70.91	69.42	71.23	69.72	66.81	68.23	69.25	72.41	73.31	73.82	72.85
TiO ₂	0.42	0.19	0.15	0.19	0.13	0.20	0.22	0.28	0.25	0.21	0.12	0.14	0.09
Al ₂ O ₃	17.32	16.01	16.83	16.03	16.82	14.37	15.40	16.56	16.98	15.00	15.87	15.13	14.13
Fe ₂ O ₃	1.96	1.33	1.14	1.12	0.93	1.32	1.83	1.17	1.32	1.08	0.85	0.83	1.27
FeO	1.50	0.51	0.47	0.95	0.67	0.76	1.05	1.35	0.52	0.67	0.49	0.40	0.87
MnO	0.07	0.03	0.06	0.03	0.06	0.06	0.06	0.04	0.02	0.04	0.02	0.02	0.04
MgO	1.85	0.43	0.55	0.47	0.46	0.98	1.70	1.27	0.87	0.83	0.29	0.41	0.79
CaO	6.12	4.47	3.92	4.22	3.81	3.01	3.24	2.85	2.50	2.66	2.23	2.35	1.49
Na ₂ O	4.01	4.71	4.23	4.80	4.27	3.34	5.58	5.25	4.46	5.20	4.97	4.97	4.89
K ₂ O	0.50	0.44	0.69	0.65	0.72	1.13	1.34	1.57	1.84	1.26	1.26	1.18	2.50
H ₂ O+	2.59	2.24	0.95	1.70	0.76	4.15	2.03	0.87	0.62	0.48	0.42	0.56	0.92
H ₂ O-	0.29	0.66	0.06	0.37	0.08	0.90	0.66	0.49	1.31	0.09	0.15	0.24	0.05
P ₂ O ₅	0.11	0.05	0.05	0.05	0.05	0.07	0.07	0.07	0.06	0.07	0.02	0.04	0.12
Total	100.01	100.00	100.01	100.00	99.99	100.01	99.99	100.00	100.00	100.00	100.00	100.09	100.01
CIPW norm													
Q	22.61	29.90	34.59	29.23	34.76	38.21	20.43	23.37	29.78	30.57	34.41	34.86	30.59
or	2.95	2.60	4.08	3.84	4.26	6.68	7.92	9.28	10.87	7.45	7.45	6.97	14.77
ab	33.93	39.85	35.79	40.62	36.13	28.26	47.22	44.42	37.74	44.00	42.05	42.05	41.38
an	27.78	21.24	19.12	20.27	18.57	14.48	13.02	13.68	12.01	12.74	10.93	11.40	6.61
C			2.12		2.21	2.35		1.21	3.25	0.41	2.32	1.50	0.96
wo	0.78	0.25		0.14			1.09						
en	0.61	0.22		0.09			0.91						
fs	0.08			0.04			0.04						
en	3.99	0.85	1.37	1.08	1.15	2.44	3.32	3.16	2.17	2.07	0.72	1.02	1.97
fs	0.50			0.52	0.36	0.09	0.13	1.12		0.07	0.04		0.47
mt	2.84	1.19	1.28	1.62	1.35	1.91	2.65	1.70	1.02	1.57	1.23	0.95	1.84
hm		0.51	0.26						0.62			0.18	
il	0.80	0.36	0.28	0.36	0.25	0.38	0.42	0.53	0.47	0.40	0.23	0.27	0.17
ap	0.25	0.12	0.12	0.12	0.12	0.16	0.16	0.16	0.14	0.16	0.05	0.09	0.28
Trace elements (ppm)													
Ba (FLAA)		247	536	213	375	341		281	355		563		
Ce				7.4	15.1			15.9			14.2		
Co				3.2	1.1			6.9			1.0		
Cr				57.3				54.2			5.1		
Cs				0.95	0.46			1.17			1.15		
Nb				1.0	4.0			2.2			2.1		
Ni				3.7	1.1			11.3			1.5		
Rb				13.4	16.1			26.1			28.0		
Sc				3.1	3.4			5.4			0.9		
Sr				529	332			642			495		
Y				4.2	7.0			5.8			3.5		
Zn					34			38					
Zr				74.5	66.9			102			74.7		

1. Sp.No. 8773007 (ホルンブレンド) デイサイト 岩手県川井村神楽東方。2. 86080701 (ホルンブレンド) -黒雲母流紋岩 宮古花崗岩中の岩脈。3. EH-1. 黒雲母-ホルンブレンド流紋岩 川井村立丸峠北方。4. 86080713-B ホルンブレンド-黒雲母流紋岩 宮古花崗岩中の岩脈。5. 85092705 黒雲母流紋岩 川井村立丸峠北方。6. EH-2. 流紋岩質凝灰岩 川井村小国。7. 8792506 黒雲母-ホルンブレンドデイサイト 川井村鈴久名川下流部。8. 86080702 黒雲母-ホルンブレンドデイサイト 宮古花崗岩中の岩脈。9. 86080901 黒雲母流紋岩 田老町小田代 原地山層中の岩脈。10. Nisho-01 (ホルンブレンド)-黒雲母流紋岩 岩泉町二升石。11. 86072101 黒雲母流紋岩 宮古市浄土ヶ浜。12. OT 2007* 黒雲母流紋岩 宮古市浄土ヶ浜⁶⁾。13. 8790317 (董青石)-黒雲母流紋岩 川井村小国江繋。*吉田・片田(1984)による。



第2図 古第三紀火山岩類のSiO₂-酸化物変化図および後期白亜紀～古第三紀火山岩類のSiO₂-K₂O変化図。

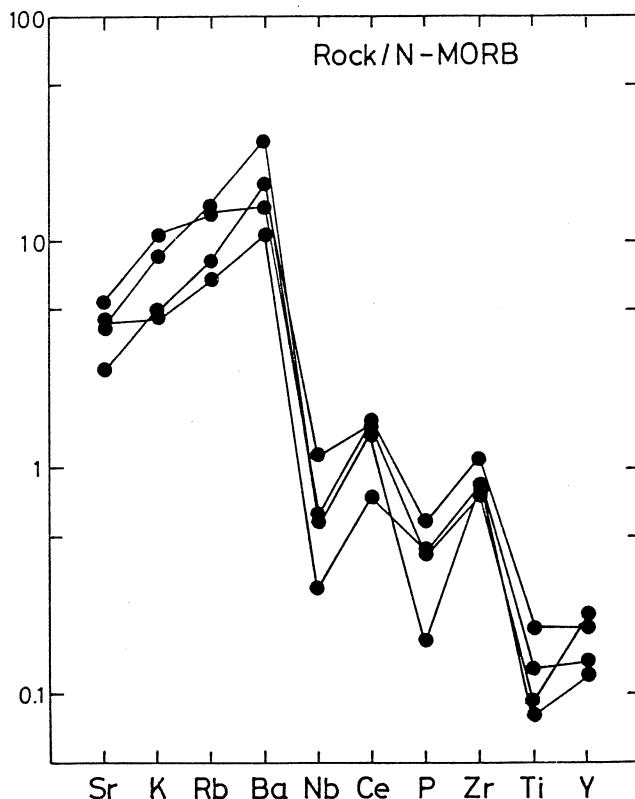
白三角：野田層群中の流紋岩礫（蟹沢，未公表資料），
 白丸：閉伊崎噴出岩の組成（矢内・蟹沢，未公表資料），
 命名区分はEwart（1979）による。

ではややK₂Oに富む系列とK₂Oに乏しい系列があるようにも見えるが，記載岩石学のおよび地域的な差は特にならない。また，ややK₂Oに富む系列はCaOに乏しい。古第三紀珪長質火山岩のK₂Oに乏しい特徴は原地山層火山岩や閉伊崎噴出岩，あるいは野田層群中の流紋岩礫などの組成とは大きく異なる。

微量化学組成

前記主成分を分析した試料の内，4個について，東北大学理学部原子核理学研究施設の電子ライナックを利用し，30 MeV加速電子を用いて微量元素の定量を行った。分析元素は，Ce，Co，Cr，Cs，Nb，Ni，Rb，Sc，Sr，Y，Zn，Zrである。Baについてはフレイムレス原子吸光法¹⁷⁾によって8個を分析した。分析個数が少ないのではっきりした関係は不明であるが，K₂O-Rb，K₂O-Zrはやや正の相関がある。BaはSiO₂とよく相関するが，K₂Oとの関係はみられない。Ca-Srには明瞭な相関がない。インコンパティブル元素のMORB規格化パター

ン¹⁶⁾は第3図に示すように Zr, Y に対して K, Rb, Ba が高く, Nb がその両側の元素に対して低いという典型的な島弧型のパターンで, しかも P と Ti がその両側の元素に対して低く, 明らかに分化の進んだ珪長質岩の特徴をもっている。これらの古第三紀珪長質岩に関連する苦



第3図 北部北上山地の古第三紀珪長質火山岩類のインコンパティブル元素の MORB 規格化パターン。

鉄質岩は今のところ知られていないが, 主成分および微量成分の特徴から, 東北地方で大規模に活動した第四紀更新世の白河および北川デイサイトよりもむしろ安達火山のデイサイトに近い地球化学的性質をもっている¹⁶⁾。すなわち, 大部分の HFS 元素の MORB 規格化値が 1 以下であり, LIL 元素に比べて明らかに低い。また, LIL 元素のうち, K に対して, Rb, Ba へと規格化値が増加している。このような特徴と K の低いことは, これらの古第三紀珪長質岩の少なくとも一部が海洋性島弧を特徴づける低アルカリソレイトに伴う珪長質岩の性格を有するものであることを示唆している。ただし, 安達火山のデイサイトと異なる点は, K/Rb 比が小さく, Ce/Y 比が大きいことで, このことは本地域のデイサイト～流紋岩類が安達火山

のそれに比べてインコンパティブル元素に富んだ起源物質に由来した可能性を示している。

一方、北上山地の前期白亜紀花崗岩類に伴う火山岩類の地球化学的性格は第四紀の高アルカリ（アルミナ）玄武岩ならびにその分化物に相当しており、大陸性地殻を有する海洋性島弧ないし活動的大陸縁辺部に産する火山岩類の特徴を示す^{19, 20)}。したがって、北上山地においては白亜紀から第三紀にかけて、なんらかの地質構造上の変化があった可能性が大きい。

§5. 白亜紀後期～古第三紀火成活動の分布

東北地方における後期白亜紀の珪長質火山岩類としては、閉伊崎噴出岩類、横道累層中の溶結凝灰岩などを除けば、棚倉構造線以西に限られている。その一つは朝日山地北部、山形県庄内平野南縁部の田川酸性岩類で、周辺の花崗岩類の K - Ar 年代、花崗岩類との関係、岩相から、足尾山地の中禅寺型酸性岩類や中部地方の濃飛流紋岩類に対比される²¹⁾。同様の酸性岩類は田川地域の南方、新潟県北部の朝日山地にもみられる²²⁾。

男鹿半島潮瀬の岬の砂礫岩中には溶結構造を示す火砕岩類、火山岩類、および花崗岩類などの礫がみられ、これらの起源としては田川酸性岩類かそれらと等しい珪長質火砕岩類がこの付近まで広がっていたことを示す²³⁾。このことから棚倉構造線の北方延長は男鹿半島を通るとされている。同種の礫は山形県酒田沖の飛島の中新統中にもみられ、この周辺の日本海地域にも先新第三紀珪長質岩類が伏在することを示唆している²⁴⁾。

東北地方日本海側のグリーン・タフ地域から報告された古第三紀火山活動の特徴は陸域火山活動で輝石デイサイト～安山岩質火砕流堆積物からなり、しばしば溶結凝灰岩を伴う^{1, 2, 25)}。男鹿半島入道崎火成岩のデイサイト質溶結凝灰岩の K - Ar 年代は 30Ma, 38Ma を示し、一方フィッシュン・トラック年代は 61Ma, 67Ma を示す。この不一致は上位に重なる門前層の火山活動や本火成岩に貫入している石英斑岩などによる熱の影響、あるいは変質作用のために若返ったものと推定され、朝日山地における田川酸性岩類後の古第三系澄川層に対比されるのが妥当だとされている²⁵⁾。このような古第三紀～新第三紀初頭の火山活動の場は日本海沿岸の朝日～出羽山地に限定され、この地域の火山活動史は奥羽脊梁山地のそれと異なっていた^{1, 2)}。

グリーン・タフ地域の白亜紀後期の火成活動は棚倉構造線以西に限られているが、古第三紀～新第三紀初頭の火成活動はそれよりやや東に張り出して、朝日～出羽山地まで分布する。さらに、その後の火山活動は奥羽脊梁山地にまでおよび、次第に東に広がっていく¹⁾。北部北上山地の古第三紀火山活動との関連については今後検討すべき問題である。

白亜紀後期～古第三紀には西南日本から北上山地東端まで広がった火成活動が、北部北上山

地の一部²⁶⁾をのぞいて、中新世には北上川沿いより東には見られなくなったことは、この間の大きな構造的転換を示すものである。

構造発達史を編む上で重要なのは、火山岩類の時空的変遷を明らかにすること、そのためには年代的にはほぼ同一の火山岩類の性質の検討が必要である。これまで^{1, 2, 25, 27)}、および今回の資料から、現在までに判明している東北日本の後期白亜紀～古第三紀における火山岩類の性質は以下のようにまとめられる。

①先第三紀陸域珪長質火山岩類：

〔日本海側〕朝日山地の田川酸性岩類で代表されるもの。70～90Maの間に形成された陸上火砕岩類。カルクアルカリ岩系に属する。

〔太平洋側〕デイサイト質火砕岩を主とする閉伊崎噴出岩³⁾および横道累層中の溶結凝灰岩³⁾で代表されるもので、前者は61MaのK-Ar年代¹⁰⁾、後者のジルコンのフィッシュン・トラック年代は $71.2 \pm 4.4\text{Ma}$ ⁵⁾を示す。

②古第三紀火山活動：

〔日本海側〕49.3～51.4Maのフィッシュン・トラック年代と30～38MaのK-Ar年代を示す男鹿半島の入道崎火成岩で代表される陸上火砕岩。これらは高アルミナ玄武岩系およびミュージアライトなどのアルカリ岩である²⁸⁾。

〔太平洋側〕浄土ヶ浜流紋岩類、および遠野花崗岩体の北方川井村に分布する流紋岩類で、浄土ヶ浜流紋岩類は50MaのK-Ar年代を示す。大部分が K_2O に乏しい低カリ流紋岩～デイサイトに属し、微量成分は海洋性島弧の火山岩の特徴をもつ。

§6. まとめと今後の問題

白亜紀後期の火成活動は日本海沿岸地域と太平洋沿岸地域のどちらも陸源性の溶結凝灰岩を主とし、岩石学的にも似た性格を示す。しかし、古第三紀における日本海側の火成活動（年代測定の方法により一致した値が出ていないのは問題であるが）は、高アルミナ玄武岩～アルカリ岩であるのに対し、太平洋側のそれは低カリ流紋岩で特徴づけられることは、白亜紀後期から古第三紀にかけての日本列島の火成活動に帯状配列がすでに存在したことを示し、化学組成からの島弧的性格とあわせて構造的位置づけを考える上で重要である。

なお、浄土ヶ浜流紋岩と久慈市南方の古第三紀野田層群中の流紋岩礫とは同一との見解もある²⁹⁾がその根拠は特にない。野田層群の流紋岩礫は斑晶カリ長石を含み、著しく SiO_2 と K_2O に富むもので、北上山地の白亜紀～古第三紀火成岩類とは明らかに異なっており、供給源地の

問題ともあわせて岩石学的検討が必要である。加納³⁰⁾は、野田層群の流紋岩質礫岩の起源を、田野畑花崗岩体と成因的に一連の火山-深成複合岩体を形成するものとしてとらえた。照井・長浜³¹⁾は、久慈地方の上部白亜系久慈層群と古第三系野田層群の後背地の一つは、田老帯から供給された溶結凝灰岩礫の存在から北上山地であり、さらに野田層群の礫の供給地域は東から西への古流向の存在から、太平洋側の前弧海盆内側の火山帯から月長石流紋岩などの礫が供給されたと考えた。三陸沿岸の流紋岩~デイサイトに関連した興味のあるデータとして、KAI KO Project による三陸沖日本海溝のデイサイトと石英閃緑岩 (Sample Nos.53-7および53-3) についてそれぞれ56.4Maと59.4MaのAr-Ar年代が報告されている³²⁾。これらの岩石がどのような岩石学的性質を持っているのかが興味のあるところである。

本研究を行うにあたり、東北大学理学部原子核理学研究施設の榊本和義博士、八木益男教授 (現在金属材料研究所)、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たいへんお世話になった。岩手大学片田正人教授には未公表の堇青石流紋岩についてご教示を頂いた。東北大学理学部藤巻宏和助教授には蛍光X線分析の便宜を与えられ、西岡芳晴氏には試料採取について協力を頂いた。以上の方々に感謝する。また、本研究の一部には文部省科学研究費 (No.62540611, 62460054, 63460048, 01302019) を充てた。

参 考 文 献

- 1) 大口健志: 国立科学博物館専報 16 (1983) 13.
- 2) T. Ohguchi: J. Min. Coll. Akita Univ. 6 (1983) 189.
- 3) 島津光夫, 田中啓策, 吉田 尚: 田老地域の地質, 地域地質研究報告 (5万分の1図幅) (1970) p. 60.
- 4) 棚井敏雄, 飯島 東, 吾妻高志: 地質雑 84 (1978) 459.
- 5) 加藤 誠, 藤原嘉樹, 箕浦名知男, 輿水達司, 斉藤真人: 地質雑 92 (1986) 821.
- 6) 吉田 尚, 片田正人: 宮古地域の地質, 地域地質研究報告 (5万分の1図幅) (1984) p. 64.
- 7) 大和栄次郎: 5万分の1地質図幅「土淵」および同説明書 (1956) p. 16.
- 8) 片田正人: (印刷中および私信)
- 9) 杉本幹博: 金沢大教育紀要 No.23 (1974) 89.
- 10) 柴田 賢, 柳 哮, 浜本礼子: 岩鉱 72 (1977) 119.

- 11) 石原舜三：地質ニュース No.333 (1982) 45.
- 12) 蟹沢聰史：地質学論集 No.10 (1974) 5.
- 13) 滝沢文教，一色直記，片田正人：金華山地域の地質，地域地質研究報告（5万分の1図幅）（1974）p. 62.
- 14) 島津光夫：地質学論集 No.17 (1979) 113.
- 15) A. Ewart : *Trondhjemites, dacites and related rocks*, ed. F. Barker (Elsevier, 1979) p. 13.
- 16) S. Kanisawa and T. Yoshida : Bull. Volcanol. (1989) in press.
- 17) 石川賢一，蟹沢聰史：岩鉱 81 (1986) 492.
- 18) J. A. Pearce : *Continental basalts and mantle xenoliths*, eds. C. J. Hawkesworth and M. J. Norry (Shiva, 1983) p. 230.
- 19) 蟹沢聰史，片田正人：地球科学 42 (1988) 220.
- 20) 氏家真澄，吉田武義，蟹沢聰史，青木謙一郎：核理研研究報告 19 (1986) 265.
- 21) 矢内桂三，井上 武，大口健志：地質雑 79 (1973) 11.
- 22) 高浜信行：地質雑 78 (1972) 323.
- 23) 大口健志，矢内桂三，井上 武：地質学論集 No.9 (1973) 45.
- 24) 土谷信之，大沢 穠，鹿野和彦：地質雑 88 (1982) 979.
- 25) 大口健志，矢内桂三，玉生志郎，植田良夫：岩鉱 74 (1979) 207.
- 26) 久保和也：岩鉱 82 (1987) 203.
- 27) 大口健志，吉田武義，大上和良：地質学論集 No.32 (1989) 431.
- 28) 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.
- 29) 木村勝弘：月刊地球 8 (1986) 370.
- 30) 加納 博：地質雑 73 (1967) 347.
- 31) 照井一明，長浜春夫：北村 信教授記念論文集 (1986) p. 545.
- 32) Y. Takigami, I. Kaneoka, and T. Ishii : Int. KAIKO Conf. on Subduction Zone (1986) p. 16.
- 33) 吉田 尚，大沢 穠，片田正人：20万分の1地質図幅「盛岡」(1983).

足尾山地東縁地域に分布する中新世玄武岩類の 微量元素組成

宇都宮大, 教養部*, 理学部地学**

中村洋一・宇賀神俊彦・石川賢一*

吉田武義*・青木謙一郎**

§1. はじめに

足尾山地東縁地域には幅約3km, 南北約30kmの帯状に, 新第三紀中新世の溶岩, ハイアロクラスタイト, 自破碎溶岩が分布する。これらの岩質は, カンラン石玄武岩, 単斜輝石玄武岩, 及び輝石安山岩である。こうした塩基性火山活動が中新世の日本列島で活発であったことは, 最近になり明らかにされつつある^{1,2,3)}。これら中新世での火山活動を第四紀のそれと対照すると, 日本列島のマグマ活動の時空間変遷をみることになり, プレートの沈み込み地域でのテクトニクスの発展過程とも関係し, 興味深い問題のひとつといえる。

ここでは, 足尾山地東縁地域の火山岩試料のうち代表的なものについて, 光量子放射化分析法による微量元素の定量をおこなったので, その結果を報告する。またそれをもとに, 活動様式と岩質の類似性が高い霊山・高館火山岩類と比較しながら, 中新世の東北日本でのマグマ活動の地球化学的特徴を考察する。

§2. 地質概略

表記火山岩類の分布は足尾山地東縁地域の鹿沼市から栃木県, さらに南の佐野市にかけてである。この地域には標高約300m (比高で約150m) の丘陵地形の発達が見られる。この地域の基盤は足尾山地をつくる中・古生代の堆積岩類で砂岩・泥岩・チャート・粘板岩・石灰岩からなる⁴⁾。この上部に新生代第三紀中新世の鹿沼層群が不整合に分布する。鹿沼層群は下位より日向層, 縦山層, 深岩凝灰岩層からなる。日向層が本研究の対象であり, 主に玄武岩, 安山岩, 及び少量のデイサイトからなる。縦山層は日向層に整合の関係で, 鹿沼市縦山町付近の丘陵の東部に分布する。岩層は砂岩, 礫岩, 及び凝灰岩で, 岩相の変化が著しい。縦山層は産出する有孔虫化石などにより中新世中期のものとしてされている。深岩凝灰岩層は鹿沼市の深岩山などに部分的に分布する流紋岩質緑色凝灰岩で, 無層理塊状を呈する。

日向層の岩相については以下で略述する。日向層の火山岩類は溶岩流がみられることも

あるが、ほとんどが破碎を伴う溶岩流ないし自破碎溶岩流である。また、ハイアロクラスタイトも分布する。溶岩流は柱状ないし板状節理が発達し、層厚20m以上の新鮮な露頭の発達もあるが、かなり風化が進んでいることもある。自破碎ないし破碎を伴う溶岩流は、角礫状の破砕片からなる部分とほとんど未破碎の部分が層状をなすことや、水摩作用を受けたと思われる丸みを帯びた礫を含むことがある。ハイアロクラスタイトは層厚約2m単層の成層構造をもつものや、層厚20m以上が無層理のことがある。一般には風化していることが多いが、一部で角礫を含み硬質のこともある。

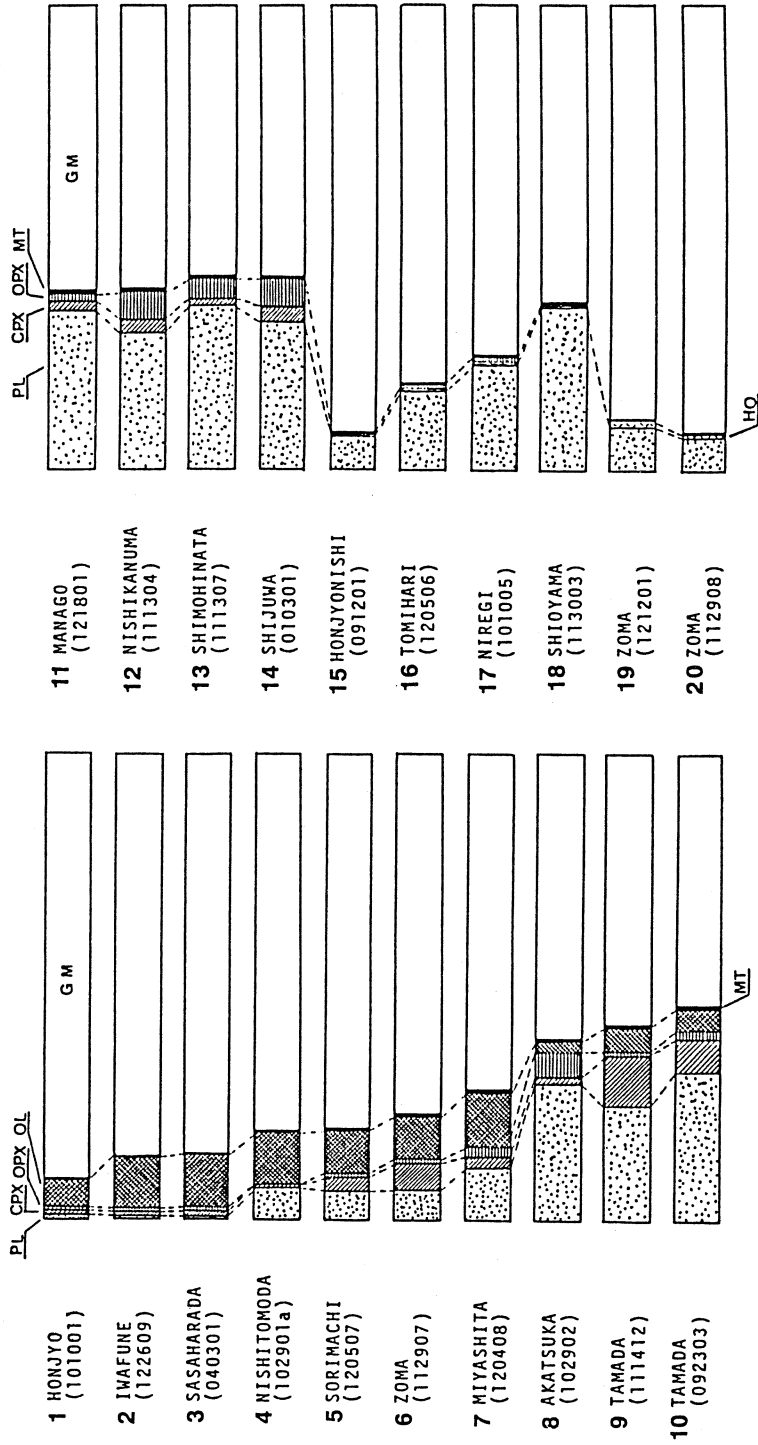
この日向層の岩質や堆積環境を福島県霊山地域に分布する中新世火山岩類と比較してみると、霊山層は溶岩及び火山砕屑岩により構成されていて、その堆積環境は東部ほど浅海で、西部は陸成と推定されている⁵⁾。また、岩質についてみると、霊山火山岩類の下部は流紋岩質から安山岩質で、上部は玄武岩質岩がそれぞれ卓越する。したがって、活動の規模は霊山地域の方が大きい。両者の火山活動の場にはかなり共通性がみられる。また、岩質的にも、その詳細は後述するが、足尾山地東縁地域では初期に珪長質活動を欠く点をのぞくと、かなり類似性が高い。

§3. 分析試料の岩石記載と斑晶モード組成

採集岩石試料の鏡下の岩石学的特徴、斑晶鉱物のモード組成、及び後述する全岩化学組成を参考に、足尾山地東縁地域の火山岩を以下のように区分した。主な試料の斑晶鉱物のモード組成を第1図に示す。

玄武岩は斑晶のカンラン石と輝石の含量に着目して、カンラン石玄武岩、カンラン石輝石玄武岩、輝石玄武岩に大別した。カンラン石玄武岩は斑晶がほとんどカンラン石で、他に少量の単斜輝石と斜長石とを含むが、斑晶量は少ない。斑晶カンラン石はクロマイトを含有していることがある。カンラン石輝石玄武岩は斑晶に斜長石、カンラン石、単斜輝石、少量の斜方輝石を含む。カンラン石輝石玄武岩はさらに、斑晶に斜長石をさほど多く含まないカンラン石玄武岩との漸移型と、斑晶含量が多くてやや大型の斜長石を含むものがある。両者の変化は連続的である。輝石玄武岩は色指数と後に述べる化学組成とを考慮して、苦鉄質型と珪長質型との2種類に区分される。苦鉄質型の輝石玄武岩は比較的少量の大型の斜長石と少量の単斜輝石、斜方輝石を含む。珪長質型の輝石玄武岩はそれより石基の色指数が低く、かつ斑晶に乏しい。

安山岩は有色鉱物斑晶として輝石だけを含む輝石安山岩と、輝石の他に普通角閃石を含むものがある。輝石安山岩は一般にやや大型の斑晶斜長石を含むことが多い。岩質的には大きく、



第1図 モード組成図。

1～3：カンラン石玄武岩，4～7：カンラン石輝石玄武岩，8～10：輝石玄武岩，11～18：輝石安山岩，19～20：角閃石安山岩．PL：斜長石，CPX：単斜輝石，OPX：斜方輝石，OL：カンラン石，MT：鉄鉱物，HO：角閃石，GM：石基．

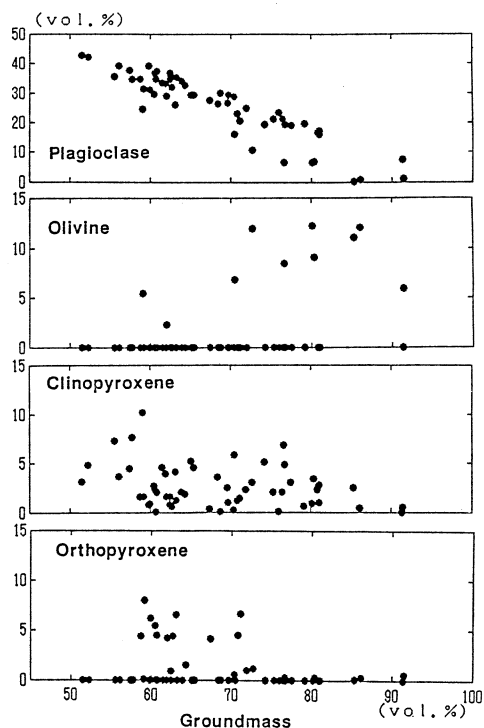
斑晶に輝石を比較的多く含むもの、斑晶の大部分が斜長石のもの、および斑晶に乏しいものに分けられる。また、分布地域ごとに鉱物含量や組織の特徴がよく似る傾向がある。角閃石輝石安山岩の斑晶量はかなり少なく、また、その分布は限られている。斑晶の斜長石と角閃石はともに小型である。

デイサイトは、鏡下で石基に特徴的な微文象様の珪質パッチを含み、安山岩から区別されるが、その分布はかなり狭く試料数も限られている。有色鉱物斑晶組合せにより、輝石のみを含む輝石デイサイト、普通角閃石をも含む角閃石デイサイト、黒雲母をも含む黒雲母デイサイトに3分できる。輝石デイサイトは斑晶に斜長石、単斜輝石、斜方輝石、磁鉄鉱を含み、それぞれ比較的大型である。角閃石デイサイトの斑晶角閃石は酸化していることが多い。黒雲母デイサイトの斑晶黒雲母の含量はかなり少ない。

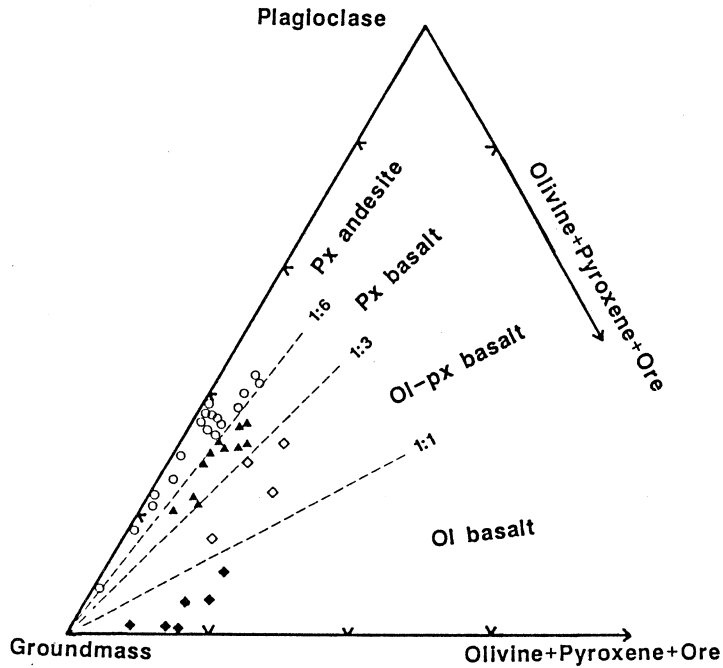
これらの斑晶鉱物含量と石基含量の関係を第2図に示す。石基含量が少ないものでは斑晶カンラン石含量が高く、斜長石はその逆の傾向を示す。つまり、斑晶のカンラン石と斜長石の含量は逆相関している。単斜輝石は斜長石の増加とともに多くなり、斜方輝石斑晶量は石基含量が60~70体積%の斑晶質の岩石で高い。

頂点に斑晶の斜長石（カンラン石+輝石+鉄鉱物）、そして石基をとった三角図を第3図に示す。カンラン石玄武岩は斜長石の有色鉱物に対する含量比が1以下で、輝石安山岩では6以上となっている。カンラン石輝石玄武岩、輝石玄武岩はこの中間である。また、カンラン石玄武岩、および一部の輝石安山岩は斑晶にかなり乏しい。前者の斑晶は大部分はカンラン石で、後者は斜長石のみである。

霊山・高館地域の玄武岩類は記載岩石学的に、カンラン石玄武岩タイプと斜長石玄武岩タイプとに区分できることが指摘されている⁶⁾。足尾山地東縁地域では、玄武岩の斑晶斜長石の含量はカンラン石



第2図 斑晶鉱物含量と石基含量の関係。



第3図 石基-斜長石-有色鉱物（カンラン石+輝石+鉄鉱物）の含量比。

玄武岩、カンラン石輝石玄武岩、輝石玄武岩の順に増加していて、斜長石含量の増加とともに輝石含量（ほとんどは単斜輝石）も増加するのが一般的で、斑晶組合せが斜長石とカンラン石のみの玄武岩はほとんどない。従って、カンラン石玄武岩タイプと斜長石玄武岩タイプとに明瞭には区分しにくい。しかし、玄武岩と安山岩をも含めた足尾山地東縁地域の火山岩全体の斑晶鉱物の組合せの変化として、カンラン石に富むものと斜長石に富むものはエンドメンバーになり得る。

§4. 全岩化学組成

採集岩石の約80個について、全岩主成分化学組成を蛍光X線分析装置により定量した。また、代表的な試料9個については湿式分析法で定量した。湿式分析の結果を第1表に示す。分析試料のうちノルムでカンラン石が算出されるのはカンラン石玄武岩の一部のみである。足尾山地東縁地域の火山岩の主成分化学組成を、霊山・高館地域の火山岩^{3,5,6,7)}と比較して第4図に示す。

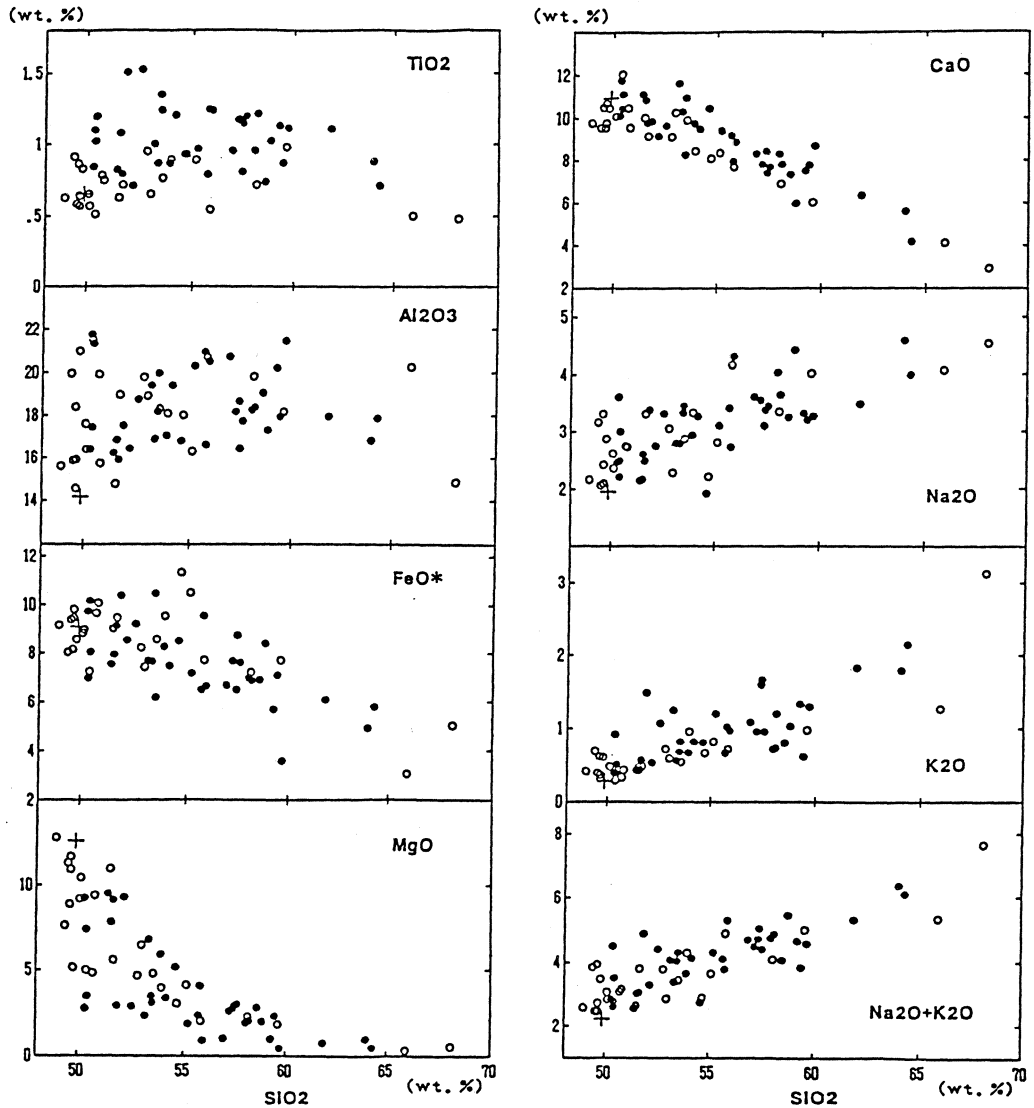
玄武岩では、輝石玄武岩は斑晶にカンラン石が少なく斜長石が多いことから、MgO含量が

第1表 足尾山地東縁地域火山岩の主成分および微量元素組成。

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Sample No.	040301	102901a	120507	102902	092303	120506	121801	091201	112908
SiO ₂	51.60	50.47	52.13	50.36	53.90	53.96	55.71	58.81	58.54
TiO ₂	0.79	0.83	0.71	1.02	0.87	1.38	0.79	1.02	0.74
Al ₂ O ₃	15.94	15.74	16.45	17.42	17.05	16.44	20.92	17.32	19.05
Fe ₂ O ₃	3.47	3.59	2.35	3.70	3.61	3.99	1.95	4.50	3.10
FeO	5.99	6.19	6.41	6.82	5.03	6.87	4.75	4.34	4.12
MnO	0.16	0.05	0.16	0.18	0.16	0.11	0.16	0.15	0.13
MgO	9.13	9.04	9.28	7.41	5.93	3.49	2.36	2.01	2.79
CaO	9.75	11.30	9.15	10.40	9.72	9.44	9.15	6.02	7.34
Na ₂ O	2.48	2.22	2.74	2.21	2.94	3.37	3.41	4.42	3.25
K ₂ O	0.56	0.33	0.53	0.39	0.67	0.74	0.67	1.03	0.80
P ₂ O ₅	0.12	0.25	0.09	0.10	0.12	0.22	0.13	0.38	0.14
Total	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
Na ₂ O+K ₂ O	3.04	2.55	3.26	2.60	3.61	4.11	4.08	5.45	4.04
FeO*	9.12	9.42	8.53	10.15	8.28	10.46	6.50	8.39	6.92
FeO*/MgO	1.00	1.04	0.92	1.37	1.40	3.00	2.76	4.18	2.48
Ce	10.6	-	9.7	11.7	12.8	-	24.2	27.6	20.7
Co	38.1	-	36.2	31.6	27.4	-	12.8	11.6	12.1
Cr	475.	-	398.	182.	219.	-	5.8	5.9	6.3
Cs	0.80	-	0.36	-	0.75	-	1.99	0.61	1.92
Nb	2.5	-	2.3	3.0	3.5	-	4.8	6.7	4.2
Ni	155.	-	182.	46.2	77.3	-	8.5	4.9	8.5
Rb	9.1	-	14.5	5.8	12.3	-	33.1	20.5	16.6
Sc	26.2	-	21.0	34.0	26.8	-	14.0	15.3	20.8
Sr	189.	-	195.	251.	244.	-	266.	346.	263.
Y	22.2	-	20.7	23.0	23.6	-	21.6	33.1	21.4
Zn	72.	-	83.	86.	61.	-	70.	77.	67.
Zr	56.0	-	53.8	56.9	72.8	-	102.	170.	102.

1. カンラン石玄武岩, 笹原田.
2. カンラン石輝石玄武岩, 西友田.
3. カンラン石輝石玄武岩, 反町.
4. 輝石玄武岩, 赤塚.
5. 輝石玄武岩, 玉田.

6. 輝石安山岩, 富張.
7. 輝石安山岩, 真名子.
8. 輝石安山岩, 本城西.
9. 角閃石安山岩, 象間.

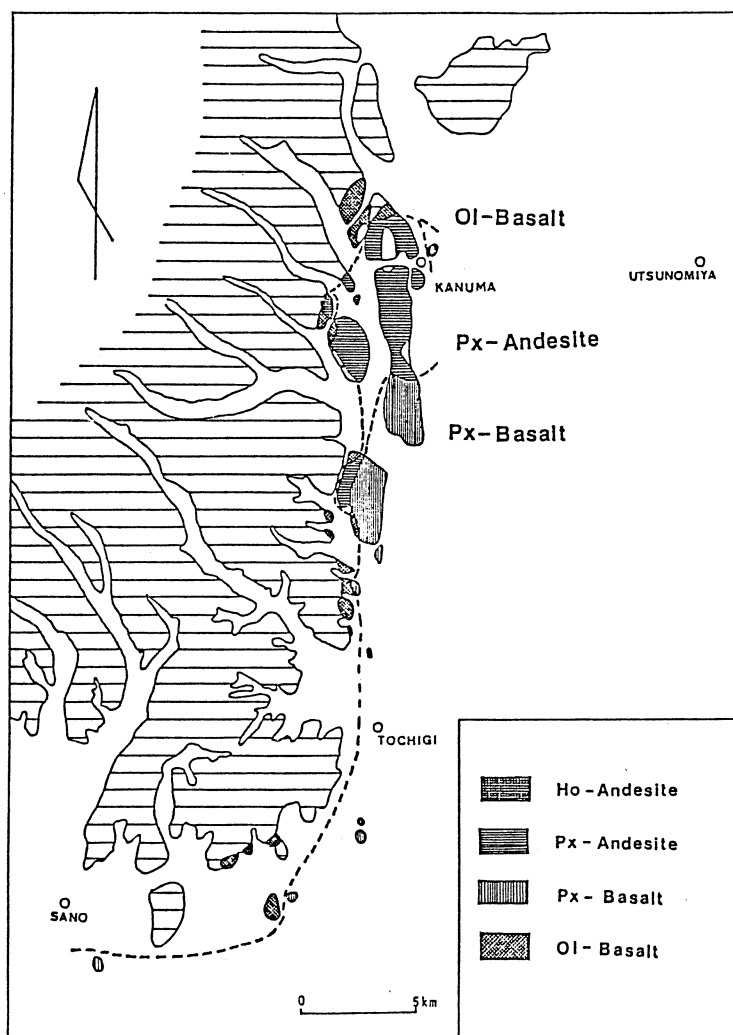


第4図 主成分化学組成変化図。黒丸は足尾山地東縁地域の火山岩，白丸は霊山・高館火山岩．+印は霊山地域の未分化オリビンソレイト¹¹⁾。

低く Al_2O_3 含量が高いため，組成変化図上でカンラン石玄武岩およびカンラン石輝石玄武岩から区別できる。すなわち， MgO 含量が 5 wt.% 以下が輝石玄武岩であり， Al_2O_3 が 18 wt.% より高いのが輝石玄武岩である。霊山・高館玄武岩のように MgO 含量が 10 wt.% を越えるようなものは足尾山地東縁地域では見いだされていない。足尾山地東縁地域の玄武岩の一部には TiO_2 のかなり高いものがある。

輝石安山岩はそれぞれの地域ごとによく似た組成を示す。角閃石を含む安山岩は分析値が1個しかないため比較しがたいが、ややSiO₂に富む。輝石デイサイトはいずれも化学組成がよく似ている。黒雲母デイサイトは石基に珪質パッチをかなり含むことから、全岩組成上は安山岩であるが、ここではデイサイトとして扱った。足尾山地東縁地域ではSiO₂含量が60wt.%を越える岩石はかなり少なく、また霊山地域でもみられるような65wt.%以上のものの出現はない。

以上のような、足尾山地東縁地域火山岩類についての、全岩主成分化学組成上の特徴と鏡下での岩石学的特徴から区分した各岩型の地理的分布を第5図に示す。カンラン石玄武岩は足尾



第5図 足尾山地東縁地域火山岩の分布図。

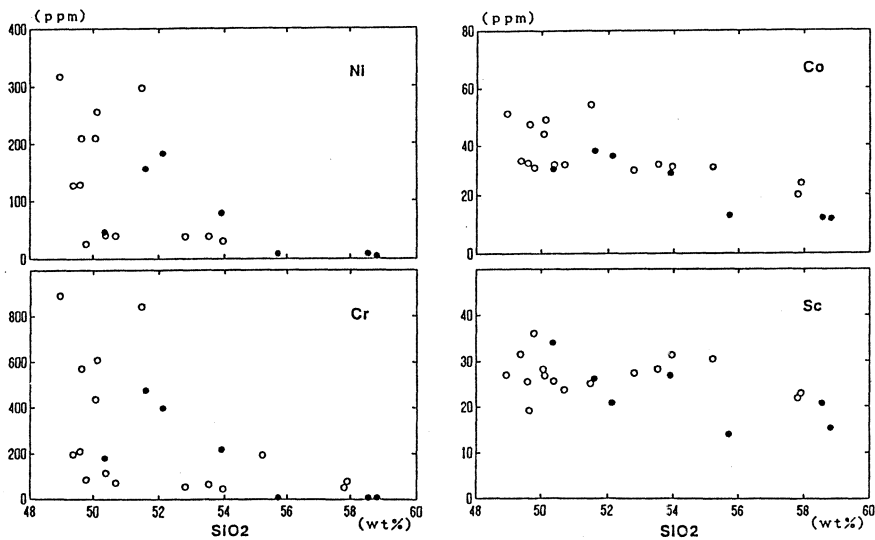
Ol basalt: カンラン石玄武岩とカンラン石輝石玄武岩, Px basalt: 輝石玄武岩,
Px andesite: 輝石安山岩, Ho andesite: 角閃石安山岩.

山地の東縁にはほぼ沿って南北に帯状に分布する。その東側の地域に、輝石玄武岩が同様にほぼ帯状に分布する。これに対し、輝石安山岩は北部の鹿沼市西方付近にのみ偏在する。各火山岩類の形成時代の検討は今後の課題であるが、鹿沼層群はこの地域で概ね南東方向に緩く傾斜する傾向が認められていることから、早期の噴出物ほどカンラン石に富む苦鉄質組成のマグマ活動であった可能性が大きい。足尾山地東縁地域には明確な断層構造は認められず、霊山地域で指摘されているような火山活動と断層構造との密接な関係の存在⁵⁾は確認されていない。

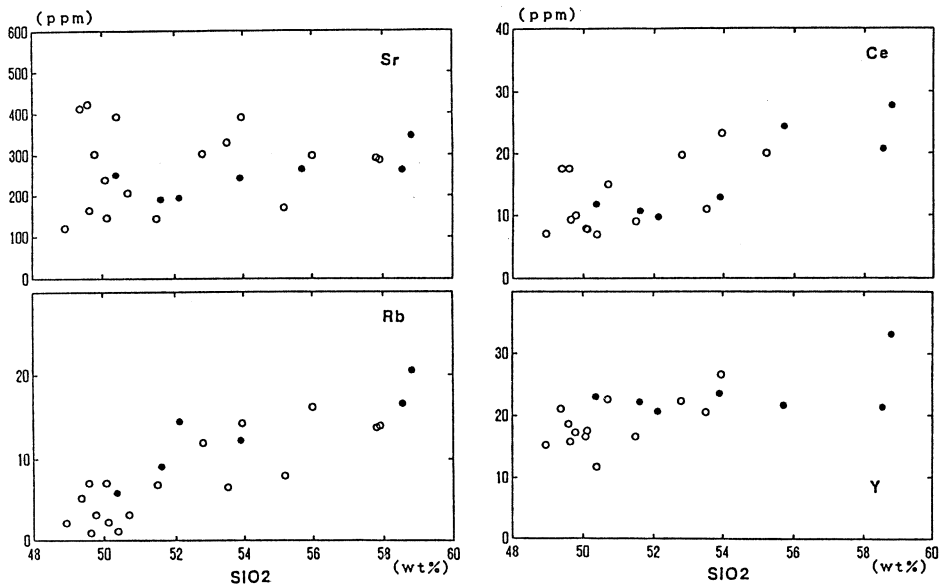
§5. 微量元素組成

足尾山地東縁地域火山岩のうち代表的な試料の7個について微量元素組成を定量した。分析は東北大学理学部原子核理学研究施設の電子ライナックを利用し、30MeV加速電子をもちいて光子放射法により行った⁸⁾。定量した元素はCe, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Y, Zrの12元素である。定量結果を第1表に、横軸にSiO₂をとった変化図を第6図に示す。第6図には霊山・高館地域の玄武岩についてのデータ³⁾も比較のために示してある。

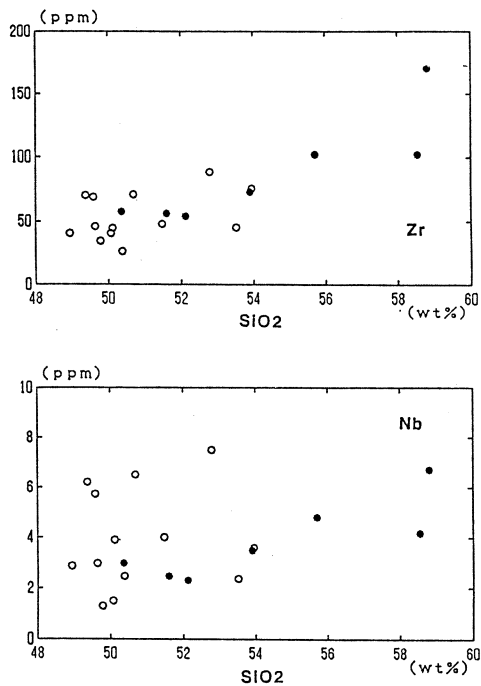
一般に、Ni, Cr, Co, Scといったコンパティブル元素はSiO₂含量の増加とともに減少するが、足尾山地東縁地域の火山岩試料および霊山・高館玄武岩についてもこの傾向が認められる。但し、前者は後者に比べて、珪長質玄武岩～苦鉄質安山岩組成において、NiとCrに富む傾向が見られる。CoとScについては、そのような両者の組成差は認められない。



第6図-1 SiO₂-微量元素組成の変化図 (その1. コンパティブル元素)。黒丸は足尾山地東縁地域火山岩, 白丸は霊山・高館玄武岩。



第6図-2 SiO₂-微量元素組成の変化図(その2. インコンパティブル元素)。黒丸は足尾山地東縁地域火山岩, 白丸は霊山・高館玄武岩。

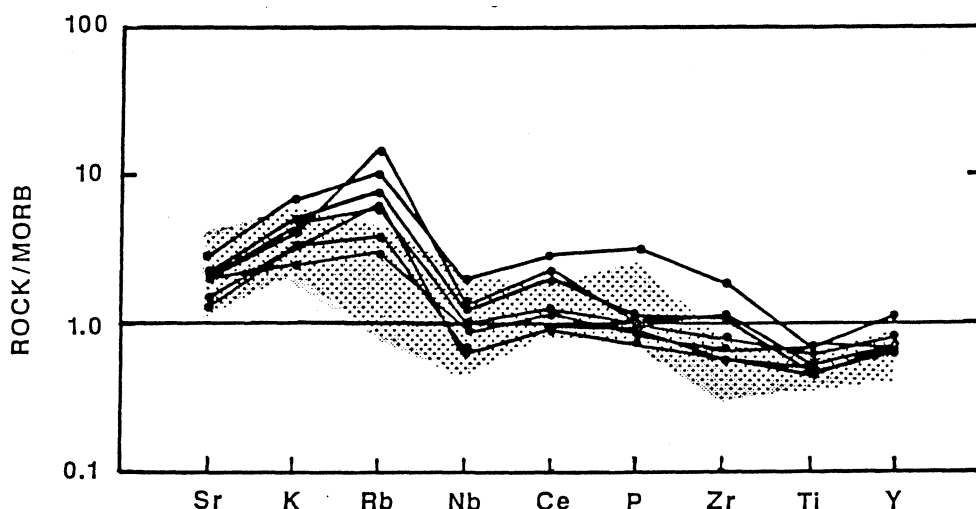


第6図-3 SiO₂-微量元素組成の変化図(その3. HFS元素)。黒丸は足尾山地東縁地域火山岩, 白丸は霊山・高館玄武岩。

インコンパティブル元素は SiO_2 含量の増加とともに一般に増加するが、足尾山地東縁地域の火山岩ならびに霊山・高館玄武岩のRb, Ce, Yについてもそのような傾向が認められる。Srについては、足尾山地東縁火山岩では玄武岩から安山岩へと増加傾向を示すのに対して、霊山・高館火山岩では玄武岩にSrに富むものが認められ、単調な変化傾向を示さない。

HFS元素は概して、 SiO_2 含量の増加とともに増加することが多いが、足尾山地東縁火山岩のZrとNbにもその傾向がみられる。一方、霊山・高館火山岩類には SiO_2 が低い火山岩で、Nbが高い試料が認められる。

足尾山地東縁部の火山岩類の微量元素組成についての深海性ソレイト (MORB) 規格化パターン⁹⁾を第7図に示す。比較のために、霊山・高館玄武岩についてのパターンを陰で示して



第7図 足尾山地東縁地域火山岩と霊山・高館玄武岩のMORB規格化パターン。
陰をつけた領域は霊山・高館玄武岩の変化範囲。

ある。足尾山地東縁部の火山岩はMORBに比較して、全体としてインコンパティブル元素に富みHFS元素に乏しい傾向が認められる。また、足尾山地東縁火山岩を霊山・高館玄武岩と比較してみると、両者は概ね類似した規格化パターンを示しているが、前者は後者に対して、Srの正異常の程度が小さく、Kの正異常の程度はやや大きい。またRbでは著しい正異常が見られる。これに対して、NbやZrでの負異常の程度は小さい傾向がある。

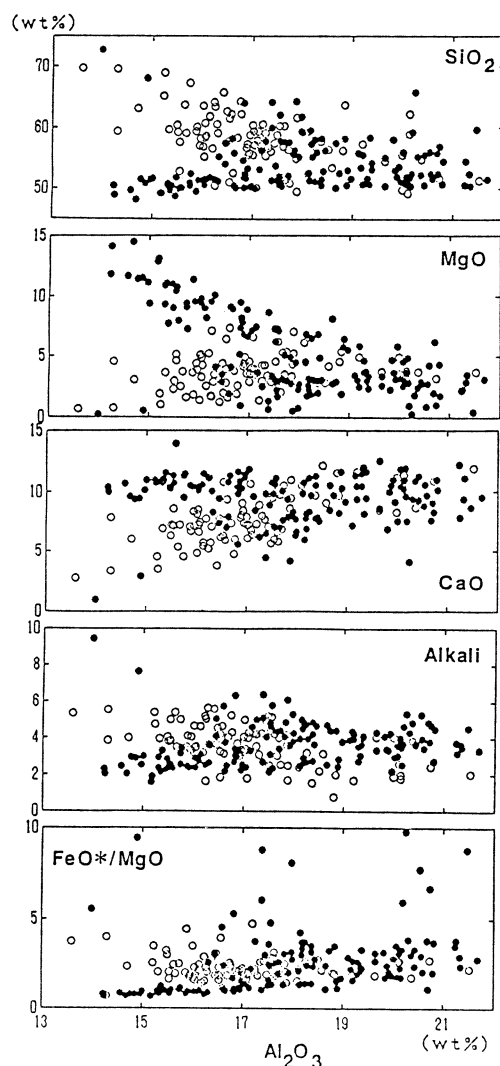
§6. 東北日本第三紀火山岩類の地球化学的特徴

東北日本はプレートの沈み込み帯であり、典型的な島弧海溝系での活発なマグマ活動がみられる地域でもある。日本列島での第四紀火山岩の地球化学的性質はかなり詳細が明らかにされ

てきている。そこで、東北日本の第四紀火山岩と、今回新たに得られた足尾山地東縁地域及び霊山・高館地域の第三紀火山岩について、それぞれの地球化学的特徴を比較して、東北日本の火山フロント側における第三紀中新世でのマグマ活動の特徴をみる。

足尾山地東縁地域火山岩と霊山・高館火山岩^{3,5-7)}の主成分化学組成を、東北日本第四紀火山岩類（ソレライト，高アルミナ，アルカリ，カルクアルカリのすべての岩系を含む）¹⁰⁾と比較する。第8図に、両者の主成分化学組成における差異が比較的明瞭にみられる横軸に Al_2O_3 含量をとった組成変化図を示す。この図から明らかなように、 Al_2O_3 含量が低いのは第三紀火山岩では MgO に富む苦鉄質な岩石であるのに対し、第四紀火山岩では MgO に乏しい珪長質な岩石となっている。すなわち、東北日本第四紀火山岩では MgO 含量が10wt.%を越えるような高 MgO 含量のカンラン石玄武岩は出現しておらず、一方、足尾山地東縁地域と霊山・高館地域の第三紀火山岩では SiO_2 含量が55wt.%を越える岩石は、斑晶斜長石に著しく富み Al_2O_3 含量が高い安山岩である。これらには、同じ理由に起因すると思われる CaO とアルカリ含量の差異も認められる。

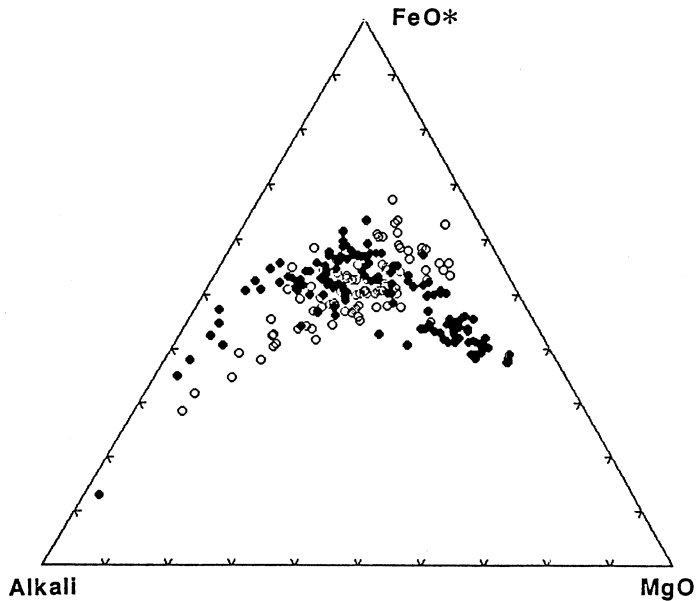
さらに、第8図において第三紀火山岩の FeO^*/MgO 比と Al_2O_3 含量との関係を見ると、 FeO^*/MgO 比の最小値（とくに苦鉄質側での）は Al_2O_3 含量に対して、直線的な変化をしている。また、 CaO 含量の最大値についても Al_2O_3 含量と同様の関係にある。この様な変化をする理由の一つとして、第三紀火山岩のマ



第8図 第三紀火山と第四紀火山岩の主成分化学組成の比較図。黒丸は足尾山地東縁地域火山岩と霊山・高館火山岩，白丸は第四紀東北日本火山岩。

グマの結晶晶出がカンラン石と単斜輝石と（あるいは更に斜長石と）でコテクティックであった可能性がある。もしそうであれば，第三紀火山岩のマグマの化学組成，温度，圧力条件を制限する有用な示唆となり得るので，今後，分析値を増やして詳しく検討する必要がある。

MFA三角図（第9図）において，第三紀火山岩類と第四紀火山岩類とを比較した場合，両



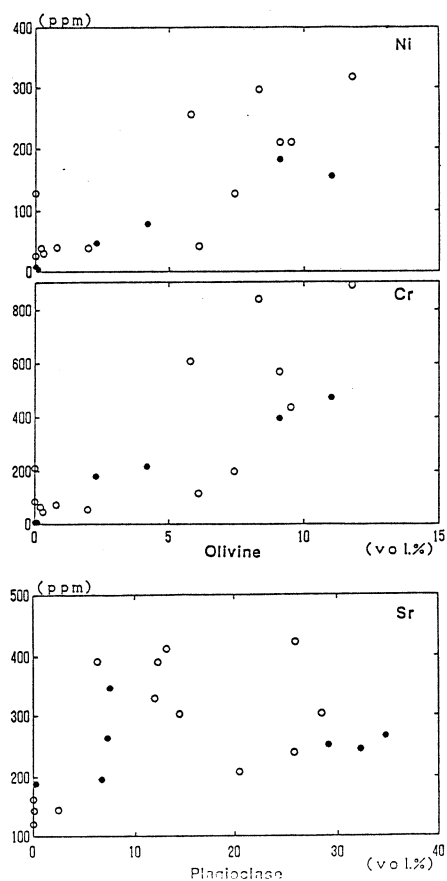
第9図 MFA三角ダイアグラム。黒丸は足尾山地東縁地域火山岩と霊山・高館火山岩，白丸は東北日本火山岩。

者は分化において FeO^* に濃集する時期が異なるようである。第9図では岩系を無視して点示してある。足尾山地東縁地域と霊山・高館地域の火山岩についての各岩系の境界線は，予察的であるが，第四紀火山岩のそれとは異っている。そして，それを考慮したとしても上記の傾向は認められる。同様の傾向は，図には示していないが， $\text{FeO}^*/\text{MgO}-\text{SiO}_2$ 図でもみられる。

吉田ら³⁾は霊山・高館地域の玄武岩について，カンラン石斑状玄武岩は無斑晶質玄武岩に移化し低アルカリソレイト岩系の領域に，斜長石斑状玄武岩は他の斑状玄武岩とともに低アルカリソレイトから高アルミナ玄武岩系の領域にそれぞれ点示されることを指摘している。足尾山地東縁地域火山岩では，既述したようにカンラン石玄武岩，カンラン石輝石玄武岩，輝石玄武岩が輝石安山岩を含めて互いにかなり連続的な組成変化をしており，カンラン石玄武岩タイプと斜長石玄武岩タイプとを明瞭に区分することは難しい。つまり，足尾山地東縁地域火山岩は，いずれの岩系分類図でも，おおよそはカンラン石玄武岩がアルカリソレイト岩系の領域に，

輝石玄武岩から輝石安山岩が高アルミナ玄武岩系の領域に点示される傾向が見られるものの、全体としては低アルカリソレイト、高アルカリソレイト、高アルミナ玄武岩の領域に連続的に点示されている。すなわち、東北日本の第四紀火山岩において認められる明瞭な水平方向の変化（例えば、岩系の変化など）は、新第三紀中新世に活動した足尾山地東縁火山岩類や霊山・高館火山岩類では明らかに不明瞭となっている。こうした事実は、この時期に噴出したマグマの性格そのものに第四紀のそれとは差異があったこと、ひいてはそうしたマグマを形成した上部マントルの組成や温度・圧力構造を支配する要因に差異、例えば沈み込みスラブ傾斜の変化など、があった可能性を示唆するものであろう。

微量元素組成をみた場合、吉田ら³⁾によれば、霊山・高館玄武岩ではカンラン石玄武岩、斜長石斑状玄武岩ともにBa、Kに正異常がみられ、このうち斜長石斑状玄武岩ではさらにSrの正異常も認められる。また、Nbは一般には負異常は顕著ではないが、一部にNbの負異常が大きいものがある。従って、こうした霊山・高館玄武岩の微量元素組成は第四紀東北日本火山岩との共通性が高く、基本的には島弧型を示すと指摘している。足尾山地東縁地域のMORB規格パターンをそれぞれの岩質ごとにみると、カンラン石玄武岩、輝石玄武岩、輝石安山岩につれて、インコンパティブル元素、HFS元素とも濃集していく傾向にある。既述したように、カンラン石玄武岩、輝石安山岩につれ、斑晶のカンラン石の減少、斜長石の増加の傾向があり、カンラン石と斜長石は同時に平衡晶出はせず、晶出時期に相違があった可能性がある。



第10図 微量元素組成と斑晶のカンラン石・斜長石含有量の関係。

上図と中図は全岩NiとCr含量と斑晶カンラン石含有量の関係。

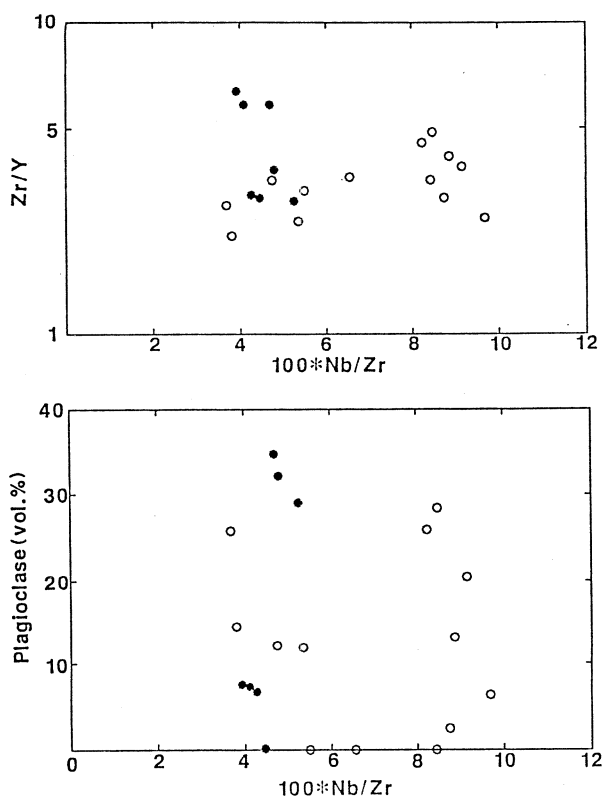
下図は全岩Sr含有量と斑晶斜長石含有量の関係。

黒丸は足尾山地東縁地域の火山岩、白丸は霊山・高館玄武岩・第四紀東北日本火山岩。

そこで、斑晶含量の微量元素組成への影響をみるために、第三紀火山岩について斑晶のカンラン石と斜長石の含量と微量元素組成の関係をみてみる(第10図)。斑晶カンラン石とNiの含量とは相関が認められ、Ni含量値は斑晶カンラン石の含量にあきらかに支配されている。また、Cr含量も同様に斑晶カンラン石の含量と相関があり、この地域のカンラン石はクロマイトを包有することが多い²⁾ことから、全岩のCr含量はカンラン石中のクロマイト包有物の量と関連している可能性がある。また、Sr含量も斑晶斜長石の含量が増加するにつれてやや増加する傾向がみられる。しかしながら、斑晶斜長石の含量が少ないものにもSr含量の高いものが見られる。Niのカンラン石と液相、Srの斜長石と液相のそれぞれの分配係数の差(約

10倍)に起因する可能性もあるが、むしろカンラン石の方が斜長石に比べて、より平衡に近い条件で晶出した可能性が高く、そうした差異が各岩質ごとの全岩微量元素組成に影響を与えたことを示唆する。

火山岩中のZr/Y比はPearce⁹⁾によれば、テクトニクス場を反映し、3以上のときは大陸的、それ以下のときは海洋的となっている。また、同様に100×Nb/Zr比はSakuyama & Nesbitt¹²⁾によれば、9以上で島弧的・大陸的で、4以下でMORB的であるという。足尾山地東縁地域火山岩と霊山・高館火山岩類についての、これらの値の分布を第11図に示す。結晶分別の効果を検討する必要があるが、足尾山地東縁地域火山でZr/Y比が高いのは輝石安山岩



第11図 Nb/Zr比及びZr/Y比と斑晶斜長石含有量。上図は全岩のNb/Zr比と斑晶斜長石含有量の関係。下図は全岩におけるNb/Zr比とZr/Y比の関係。黒丸は足尾山地東縁地域火山岩、白丸は霊山・高館玄武岩。

(2試料)と角閃石安山岩(1試料)である。Nb/Zrでみると、足尾山地東縁地域火山岩はすべて低めで、このうち玄武岩はZr/Yも低めとなっている。一方、霊山・高館玄武岩ではNb/Zr比は低めのものと、その比が9に近いものと分かれ、斑晶斜長石含量との関係は明瞭ではない。分析試料数がまだ少なく、詳しい検討は困難であるが、足尾山地東縁地域に噴出したマグマの方が霊山・高館玄武岩のそれに比較してより単純な来歴であることによるのかもしれない。

霊山地域のカンラン石玄武岩にはMgOに富み、 FeO^*/MgO 比が1以下で、800ppmと高いCr含量を示すものがあることから、石坂・巽¹¹⁾はこれをソレイト系列の未分化・始源的な島弧火山岩を代表するものであろうと考えた。また、周藤ら²⁾は霊山地域の玄武岩で FeO^*/MgO 比が1以下で、高いCr含有量をもち、 Fo_{88} のカンラン石斑晶をもつものは、上部マントルで生成された初生カンラン石ソレイトマグマそのものかあるいはそれに近い組成のものであると推定している。足尾山地東縁地域における最も斑晶の少ないカンラン石玄武岩は、石基含量が86体積%、斑晶カンラン石は含量12% (Fo_{87})、斜長石は含量0.2% (An_{89})、そして、2%の単斜輝石(ディオプサイド)をもつ岩石である。また、その全岩Cr含量は480ppmである。したがって、霊山地域ほどではないが、足尾山地東縁地域にもかなり未分化の組成のものが出現している。

霊山地域のMgに富むオリビンソレイトのうち、島弧での未分化マグマの組成に近い試料(第4図参照)についての無水熔融実験¹³⁾によれば、そのようなマグマは、11kb, 1315°Cでカンラン石(Fo_{88})・斜方輝石(En_{89})と平衡共存し、11kb, 1306°Cでカンラン石(Fo_{88})、斜方輝石(En_{88})、及び単斜輝石と平衡共存し得る。ただし、カンラン石と単斜輝石だけの組合わせはなく、単斜輝石はより高圧側での組合せに出現している。足尾山地東縁地域に産する比較的未分化な組成の玄武岩は斑晶鉱物に斜方輝石を欠き、鉱物組合せも多少異なり、かつ斑晶含量もやや多めのため、上記の実験結果を直接には適用できないが、上記実験の温度・圧力条件にかなり近い上部マントルで形成されたマグマがさほど分化することなく噴出した可能性が高い。単純な系の実験結果¹⁴⁾ではあるが、玄武岩において斜長石がカンラン石と平衡共存できるのは7kb以下である。また、系に H_2O があるとその斜長石の液相線は低下する傾向にある。カンラン石輝石玄武岩において斑晶単斜輝石の含有量が増えるにつれて、斑晶斜長石の核部のAn値は88から84に低下していくことから判断して、マグマは上昇するにつれてより低圧での晶出へと移行していったらしい。また、輝石玄武岩や輝石安山岩には、比較的大型の斑晶斜長石(核部のAn値が78程度)を普通に含んでいることから、上部マントルで形成されたマグマ

の一部が、約25kmのマントル付近より以浅で停止し、そこで、更に晶出分化してそれらのマグマが形成された可能性が高い。

以上みてきたように、足尾山地東縁地域の第三紀火山岩は霊山・高館火山岩と主成分化学組成、微量元素組成が類似し、また後者同様にかなり未分化組成の玄武岩も出現している。一方、斑晶鉱物組合せや微量元素組成の一部には顕著な差異もみられ、両者のマグマの組成あるいはマグマの生成条件が異なっていた可能性もある。いずれにしても、これら第三紀中新世のマグマ活動は第四紀のそれとはかなり特徴を異にするようである。東北日本の第三紀火山岩の岩石学的・地球化学的データは、第四紀火山岩のそれと比較するとまだまだ充分ではない。日本列島のマグマ活動の時間変遷とプレート沈み込み地域でのテクニックスの発展過程のより具体的なモデルを描くためには、こうした日本列島の第三紀火山岩についての詳細で多角的なデータが要求されている。

本研究にあたり、東北大学理学部原子核理学部研究施設の榎本和義博士、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、東北大学サイクロンRIセンターの中村尚司教授、山寺亮博士、ならびに職員の方々に種々の便宜をはかって頂いた。また、本研究の一部に文部省科学研究費補助金 (Nos. 62460054, 63540644, 63460048, 01302019) を使用した。ここに記して謝意を表する。

参 考 文 献

- 1) Y. Tatsumi and K. Ishizaka : Earth Planet. Sci. Lett. **53** (1981) 124.
- 2) 周藤賢治, 八島隆一, 滝本俊明 : 岩鉱 **80** (1985) 55.
- 3) 吉田武義, 阿部智彦, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **18** (1985) 203.
- 4) 鈴木陽雄 : 栃木県地質図及び栃木県地質説明書 (1977).
- 5) 八島隆一 : 福島大学理科報告 **11** (1962) 31.
- 6) 八島隆一 : 岩鉱 **50** (1963) 136.
- 7) 阿部智彦, 青木謙一郎 : 岩鉱 **62** (1969) 172.
- 8) T. Yoshida, k. Masumoto and K. Aoki : J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. **81** (1986) 406.
- 9) J. A. Pearce : *Continental basalts and mantle xenoliths*, eds. C. J. Hawkesworth and M. J. Norry (Shiva, 1983) 230.

- 10) Y. Kawano, K. Yagi and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III 7 (1961) 1.
- 11) 石坂恭一, 巽 好幸 : 岩鉱 75 (1980) 10.
- 12) M. Sakuyama and R. W. Nesbitt : Jour. Vol. Geotherm. Res. 29 (1986) 413.
- 13) I. Kushiro : *Magmatic processes*, ed. B. O. Mysen (Geochemical Society, 1987) 165.
- 14) D. C. Presnell, S. A. Dixon, J. R. Dixon, T. H. O' Donnell, N. L. Brenner, R. L. Schrock and D. W. Dycus : Contrib. Mineral. Petrol. 66 (1978) 203.

九州南方，大隅諸島近辺の火山岩類の光量子放射化分析

富山大，教養部*，理学部地学**

氏家 治・吉田武義*・青木謙一郎**

§1. はじめに

1.1 なぜ大隅諸島か？

東日本火山帯に属する東北日本弧の玄武岩質岩石の化学組成は，島弧横断方向に規則的に変化し，その成因として様々な機構が考えられている¹⁻⁵⁾。これに対し西日本火山帯の一部をなす琉球（または霧島）火山帯では，その構成岩石が島弧横断方向の組成変化を示すという基本的な点についてさえ2，3の口頭発表がなされているにすぎず⁶⁾，岩石化学的研究が立ち後れている。

さて，大隅諸島とは，広義には，屋久島，種子島，口永良部島，馬毛島，竹島，硫黄島および黒島を指す（第1図）。同諸島の近海底には日本有数の規模を誇る鬼界カルデラがあり⁸⁾，同カルデラは広域火山灰層として有名なアカホヤ（Ah）火山灰の噴出源としても知られている⁹⁾。このアカホヤ火山灰で代表される莫大な量の珪長質マグマがいかにして形成されたかということは，火山学的にも岩石学的にも重要な問題である。

大隅諸島内およびその近辺には，琉球火山帯に属する開聞，薩摩硫黄島（鬼界カルデラの一部），口永良部島，中之島などの活火山があり，それらは北北東—南南西方向の火山列をなす。薩摩硫黄島の西方約30kmの黒島は，やや古い（約1 Ma）小型の成層火山である¹⁰⁾。また近辺には，2 Maよりも若い全岩 K—Ar 年代値を示す火山性の海山が幾つも存在する¹¹⁾。これら第四紀火山岩類の分布域の幅は約60kmで特に広いとは言えないが，その直下の深発地震の震源面の深さは約130kmから200kmにわたり，この点では東北日本弧に匹敵する。故に大隅諸島近辺は，琉球火山帯の岩石の島弧横断方向の化学組成変化を研究するのに適したフィールドと言える。

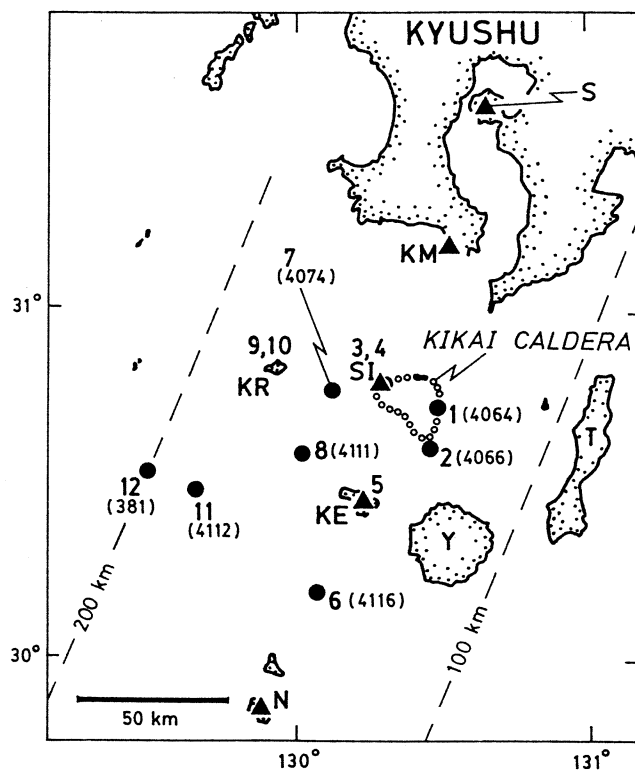
1.2 研究目的および方法

本研究の目的は，岩石化学的手法により，a) 鬼界カルデラの珪長質マグマの成因の検討と，b) 琉球火山帯における火山岩類の島弧横断方向の化学組成変化の確認とその成因の検討を行うことにある。そのために大隅諸島およびその近辺の第四紀火山岩類12個を選び，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て，光量子放射化法¹²⁾による微量成分組成に関

する分析を行った。以下にその結果を報告し、合わせて若干の考察を加える。

§2. 分析試料

第1図に、分析番号(1~12)を用いて試料の採取位置を示す。12個の試料のうちで陸上から得られたのは5個(3, 4=薩摩硫黄島, 5=口永良部島, 9, 10=黒島)である。残る7個は、白嶺丸(金属鉱業事業団所有)によるGH75-5¹³⁾とGH84-1¹¹⁾の2回の調査航海中に海山からドレッジされた火山岩である。これら海山の緯度・経度や岩石記載などの詳細は、別に報告がある^{11,13)}。分析試料12個のうち1個は玄武岩, 8個は安山岩, 2個はデイサイト, そして残り1個は流紋岩である。以下においては、鬼界カルデラおよび活火山列付近の岩石試料(1~8)を火山フロント付近の試料と呼び、活火山列から30km以上離れた産地のもの(9~12)を背弧側の試料と呼ぶ。



第1図 分析試料の産地。第四紀火山図⁷⁾に加筆改変。産地は分析番号(第1表)で表してある。カッコ内の数字は白嶺丸のステーション番号。黒三角は活火山(S=桜島, KM=開聞, SI=薩摩硫黄島, KE=口永良部島, N=中之島)。KR=黒島。T=種子島, Y=屋久島。等深線は深発地震の震源面の深さ。

S3. 分析結果

分析結果を試料の主成分組成と共に第1表に示す。

第1表 大隅諸島近辺の火山岩類の全岩化学組成。

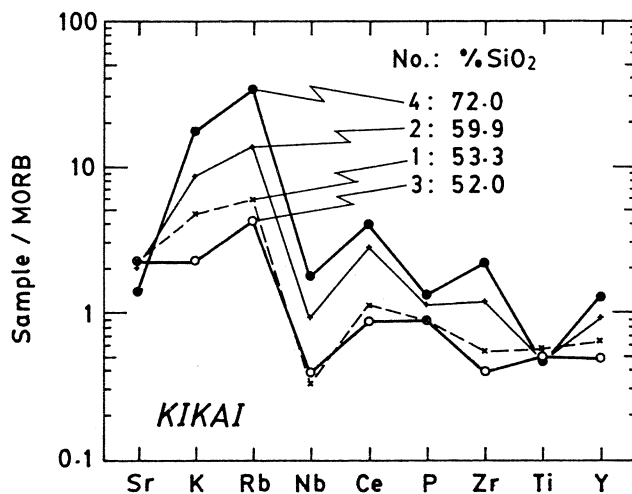
Anal.No. Sm.name	1 UK02	2 UK03	3 UK11	4 UK10	5 UK12	6 UK07	7 UK04	8 UK05	9 UK08	10 UK09	11 UK06	12 UK01
SiO ₂ (%)	53.26	59.89	52.00	72.02	54.41	63.00	55.76	54.05	55.62	64.12	57.52	55.73
TiO ₂	0.89	0.74	0.77	0.64	0.76	0.51	0.77	0.69	0.89	0.73	0.82	0.90
Al ₂ O ₃	17.26	16.34	18.12	13.52	15.55	16.84	17.77	18.39	18.78	16.79	18.38	17.89
ΣFeO	10.33	7.07	9.39	3.35	8.34	5.45	8.96	8.76	7.66	6.17	6.98	7.58
MnO	0.19	0.13	0.15	0.09	0.16	0.13	0.17	0.18	0.15	0.12	0.14	0.16
MgO	5.18	3.55	5.76	0.67	7.72	2.57	4.06	4.55	4.34	1.19	3.57	4.58
CaO	9.42	7.68	10.91	2.67	9.20	6.21	9.13	10.16	8.56	4.40	7.70	8.01
Na ₂ O	2.65	3.13	2.44	4.13	2.65	3.47	2.46	2.48	2.70	3.89	3.22	3.32
K ₂ O	0.70	1.32	0.35	2.74	1.08	1.72	0.81	0.67	1.15	2.39	1.54	1.61
P ₂ O ₅	0.11	0.14	0.11	0.16	0.12	0.10	0.10	0.08	0.14	0.20	0.14	0.22
Ce (ppm)	11.5	28.1	8.8	39.5	15.5	23.3	17.8	11.9	23.6	37.4	31.5	37.8
Co	25.9	20.1	31.4	2.6	45.4	11.8	25.2	25.0	20.4	7.1	19.1	21.7
Cr	22.6	78.8	56.9	tr	430	21.7	137	125	16.4	8.5	62.3	46.5
Cs	0.60	0.87	0.26	0.82	1.16	0.47	1.70	1.87	1.00	1.55	1.55	1.73
Nb	1.2	3.4	1.4	6.3	3.4	3.7	2.7	1.5	4.0	8.2	4.7	7.8
Ni	13.6	38.3	28.0	2.0	126	13.0	74.4	67.6	8.1	8.4	28.2	29.1
Rb	12.0	27.4	8.4	69.4	25.0	39.9	17.5	17.0	37.4	81.9	46.8	40.1
Sc	27.4	25.1	30.7	12.2	21.2	15.8	29.8	28.7	24.0	16.3	23.9	20.0
Sr	276	250	278	169	230	249	273	269	299	216	329	454
Y	20.0	28.4	15.1	38.1	20.6	19.3	18.7	17.4	21.8	44.4	25.3	25.7
Zn	99	86	80	84	62	55	91	72	72	88	63	66
Zr	49.8	108	35.8	200	81.0	91.1	71.6	50.5	102	176	111	139

主成分組成^{8, 11, 14, 15)}は100%換算値(9と10は氏家の未公表データ)。tr=微量。
分析番号は本文および図と共通。

- 1 = OS-3303 (ST. 4064): 単斜輝石-安山岩¹¹⁾。
- 2 = OS-3502 (ST. 4066): カンラン石含有単斜輝石-安山岩¹¹⁾。
- 3 = 78 IO 167-1 (薩摩硫黄島): 単斜輝石カンラン石-玄武岩¹⁴⁾。
- 4 = 75 IO -8 (薩摩硫黄島): 紫蘇輝石普通輝石-流紋岩⁸⁾。
- 5 = KE36 (口永良部島): 古期山体の安山岩¹⁵⁾。
- 6 = OS-8504 (ST. 4116): ホルンブレンドーデイサイト¹¹⁾。
- 7 = OS-4305 (ST. 4074): 単斜輝石-安山岩¹¹⁾。
- 8 = OS-8007 (ST. 4111): カンラン石含有単斜輝石-安山岩¹¹⁾。
- 9 = 760906-1 (黒島): カンラン石含有単斜輝石斜方輝石-安山岩。
- 10 = 760907-3 (黒島): 単斜輝石斜方輝石-デイサイト。
- 11 = OS-8104 (ST. 4112): カンラン石含有斜方輝石-安山岩¹¹⁾。
- 12 = D124-1-A (ST. 381): カンラン石含有単斜輝石-安山岩¹¹⁾。

3.1 鬼界カルデラ

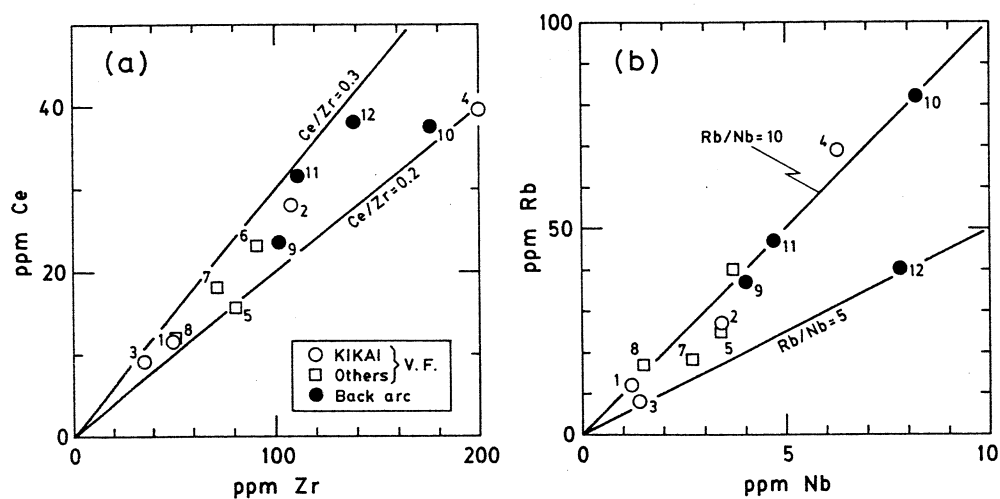
鬼界カルデラの4個の試料の液相濃集元素含有量のN-MORB(N型中央海嶺玄武岩)規格化パターンを第2図に示す。玄武岩~デイサイト質マグマ中で液相に濃集する傾向のある元素(K, Rb, Nb, Ce, Zr, Y)の含有量は, SiO₂の増量につれて, 相互に似た割合で増大する。Nbは1と3の試料で含有量の関係が逆転しているように見えるが, これらの試料のよう



第2図 鬼界カルデラ産火山岩の液相濃集元素含有量パターン。規格値は、ソレイト質中央海嶺玄武岩 (N-MORB) の平均組成¹⁶⁾。

に Nb に乏しい (= 1~2 ppm) 場合の測定値には数 10% の相対誤差が見込まれるので¹²⁾ これは測定誤差の範囲内の現象である。故にこの点は無視してよい。

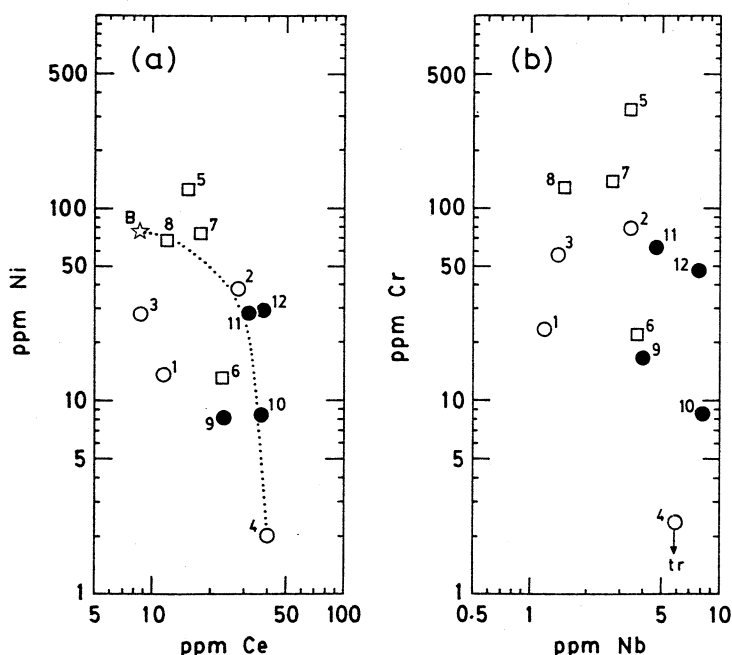
全固相と液相の間の Nernst 型分配係数 (= 全岩分配係数 = D) が殊に小さな元素の含有量の変化の割合が一定であることは、2 成分相関図 (第 3 図) においてより明瞭に示される。すなわち鬼界カルデラの 4 個の試料 (白丸) は、第 3 a, b 図において夫々 Ce/Zr と Rb/Nb



第3図 Nb-Zr および Nb-Rb 相関図。記号：白丸は鬼界カルデラ、白四角はその他のフロント付近の火山、黒丸は背弧側の火山。番号は第1表と同じ。

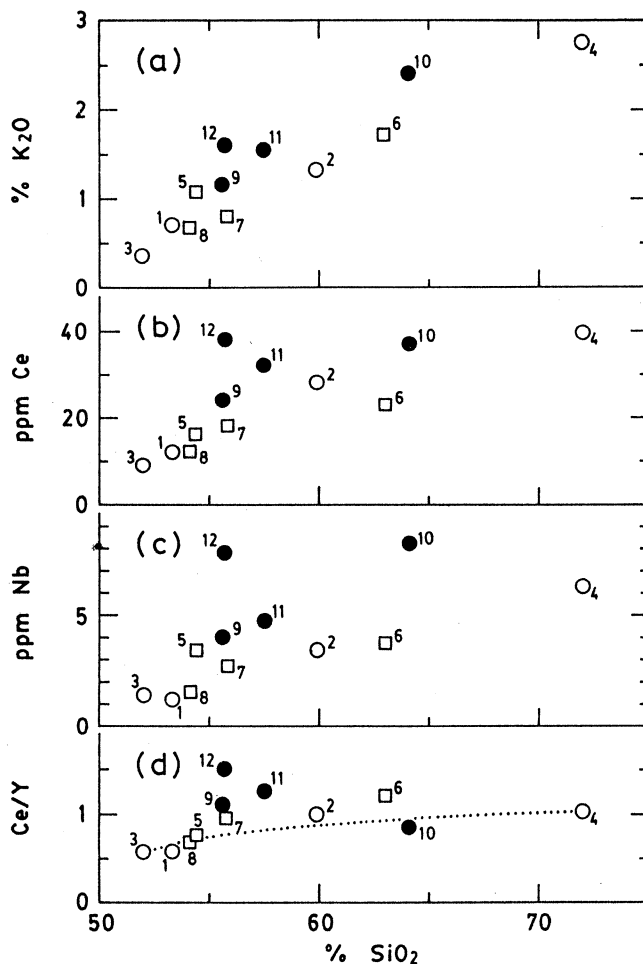
の比が一定に近い。同一根源物に由来するマグマにおいては、マグマ発生時の溶融度が極端に低いときやマグマが著しく SiO_2 に富むときなどのような特殊な場合を除くと、Ce, Zr, Nb および Rb など D の小さな成分の比は、マグマ根源物の同比からあまり大きくは変わらない³⁾。つまり Ce/Zr や Rb/Nb の値は、マグマ成因論における一種のトレーサーとして役立つ。故に第3図は、鬼界カルデラのマグマが全て単一の（または化学的に類似した）マントル物質に由来することを強く示唆する。

鬼界カルデラの珪長質マグマの成因に関しては、主に陸上の岩石の K_2O , Rb, Zr および Y の含有量に基づいて、複数玄武岩質マグマ塊モデルとでも呼ぶべき次の仮説が提唱されている¹⁴⁾。すなわち珪長質マグマは、既存の地殻物質の再溶融作用で生じたのではなく、1) マントルで生じた1個目の玄武岩質マグマ塊が上昇して地殻内で固結し、2) その後上昇してきた2個目の玄武岩質マグマ塊の熱のために1個目の固結物が部分溶融して生じたというモデルである。海山からの試料をも含み、また検討する液相濃集元素の種類も増えた今回の分析結果は、上記のようにこの仮説を支持する。さらにこの仮説は、Sr 同位体についての研究結果とも調和的である¹⁷⁾。



第4図 Ni-Ce および Cr-Nb 相関図。白星 (B) は流紋岩質マグマとの混合作用によって安山岩 (2) を生じた玄武岩質端成分 (未分化マグマ) の組成で、点線は混合の割合が様々に変化したときの混合マグマの仮想的組成トレンド。他の記号と番号は第3図と同じ。tr: 微量。

鬼界カルデラの試料のうちで、分析番号2と3は固相濃集元素（NiとCr）の含有量が似ているにもかかわらず、2の方が著しく液相濃集元素（CeとNb）に富む（第4図）。液相濃集元素を含む様々な2成分変化図において（例えば第3 a, b, 第5 a, b, c 図），分析番号2（安山岩）のデータが3（玄武岩）と4（流紋岩）のデータの結合線近くにプロットされる。



第5図 液相濃集元素およびCe/Y比とSiO₂の相関図。記号と番号は第3図と同じ。点線は玄武岩（3）マグマと流紋岩（4）マグマが様々な割合で混合したときの混合マグマの仮想的組成トレンド。

また液相濃集元素の含有量比を用いた図（例えば第5 d図）においても、分析番号2のデータは、3と4の組成を様々な割合で混合したときに得られる曲線付近に位置する。そして固相濃集元素に富んだ玄武岩質マグマと液相濃集元素に富んだ流紋岩質マグマが混合すれば、固相濃集元素と液相濃集元素の両者をお互に多く含む中間組成のマグマが形成される¹⁸⁾。そこで分

析番号2の安山岩の成因として、3の玄武岩よりも未分化な（固相濃集元素に富む）玄武岩マグマと4で代表される流紋岩マグマとの混合作用が考えられるが、この仮説の検討は後の考察の項で行う。なお鬼界カルデラの火山岩の多様性の成因として、既に、同様のマグマ混合説が提唱されている¹⁴⁾。

3.2 島弧横断方向の化学組成変化

海底火山の岩石の研究⁹⁾から、本研究対象域では、背弧側の岩石のほうが火山フロント付近の岩石よりも K_2O 、Rb および Zr に富むことが知られている。このことは、火山島の岩石を含む今回のデータでも確認される（例えば K_2O については第5 a 図）。今回初めて分析値の得られた他の液相濃集元素（Ce と Nb）も、 SiO_2 含有量が同じ場合には、やはり背弧側の試料のほうに多く含まれる（第5 b, c 図）。また背弧側の試料は、フロント付近のものよりも Ce/Y 比が高い傾向にある（第5 d 図）。分析番号10の試料（黒島のデイサイト）だけがこの傾向から外れるが、これは同試料が多量の Y（=44 ppm）を含むためである。その原因は不明であるが、あるいは同マグマが Y に富む物質を同化したことを表しているのかもしれない。

Y は稀土類元素と同じ3価で、稀土類のうちで5番目に重い Ho とほぼ同じイオン半径を有する（6配位席を占めるとき 0.900 と 0.901 \AA ¹⁹⁾）。マグマ中での元素の挙動は、電価とイオン半径によってほとんど決定されるので²⁰⁾、Y と Ho の挙動はよく似ているであろう。Ce はいうまでもなく軽稀土類を代表する元素である。故に Ce/Y 比は、軽稀土類：重稀土類の比を近似的に表すものと考えてよい。すなわち第5 d 図は、少なくとも玄武岩に近い組成（ $SiO_2 < 58\%$ ）に限れば、火山岩中の軽稀土類：重稀土類の比が火山フロント付近で低く背弧側で高いことを示唆する。火山フロントから背弧側へ向けての軽稀土類：重稀土類の比の増大は、東北日本弧でも知られている²¹⁾。

§4. 考 察

4.1 マグマ混合仮説の検証

鬼界カルデラの岩石の分析結果の項（3.2）で述べた、玄武岩質と流紋岩質の2種マグマの混合仮説を以下に検討する。なおこの項では、混合作用の玄武岩質端成分と想定されるマグマを「未分化マグマ」と呼ぶ。

この仮説が正しければ、マグマ混合作用の産物である安山岩（分析番号2）の SiO_2 含有量（約60%）が一般的な玄武岩と流紋岩のそのほぼ中間であるから、混合の端成分の量比は1：1に近いはずである。また同時に流紋岩質端成分中の Ni 含有量は実質的にゼロに近いので、

未分化マグマ中の Ni 量は 2 の安山岩中の量 (38 ppm) の約 2 倍のはずである。そこでカンラン石だけの分別によって未分化マグマ (Ni = 76 ppm) から番号 3 の玄武岩 (Ni = 28 ppm) が導かれ、カンラン石と液相との間の Ni の分配係数が $14^{23)}$ であると仮定すると、取り去られたはずのカンラン石の量は、レイリー分別モデル (Arth²⁴⁾ の式 8) では 7% で、平衡晶出モデル (Arth²⁴⁾ の式 4) では 13% と算出される。故に未分化マグマの液相濃集元素含有量は、番号 3 の分析値より 10% ほど少ないはずということになる。

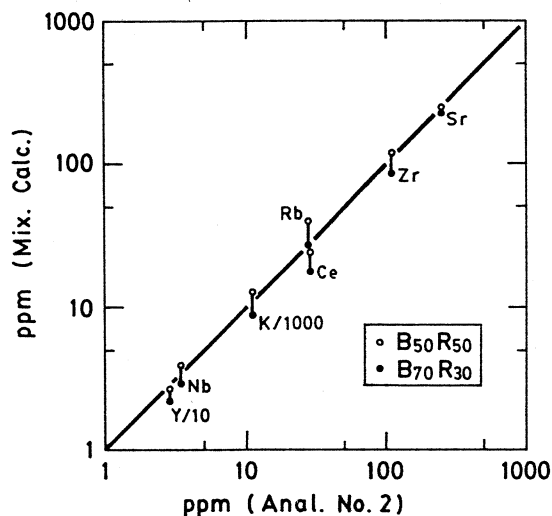
ここで珪長質端成分の化学組成の変化幅の大きいこと (例えば鬼界カルデラ産流紋岩 7 個の Rb 量は 61~75 ppm の範囲にある¹⁴⁾) と分析時の測定誤差を考慮すると、上の 10% の差異は無視できる。故に以下の計算では、未分化マグマの液相濃集元素含有量として第 1 表の番号 3 の値を代用する。

第 6 図は、上で決定した未分化マグマと流紋岩 (分析番号 4) の液相濃集元素組成を用い、兩種マグマが 5 : 5 ないし 7 : 3 の割合で機械的に混合したときに生じる中間マグマの化学組成の計算値 (縦軸) を、現実の安山岩 (番号 2) の組成 (横軸) と比較したものである。同図には、計算値と分析値とがほぼ等しいことが表されている。すなわち液相濃集元素に比較的富む分析番号 2 の安山岩は、マグマの混合作用の産物である可能性が高いと言える。

全く同じ理由から、フロント付近の他の岩石のうちで液相濃集元素を比較的多量に含むもの (第 4 a, b 図で右寄りに位置する 5, 6, 7 など) は、同様のマグマ混合作用を蒙った岩石であろうと思われる。

4.2 マグマ根源物の均質性

固相濃集元素 (Ni と Cr) 含有量が同じレベルの試料同士を比べても (第 4 図), やはり背弧側の岩石のほうが液相濃集元素に富む傾向が認められる。玄武岩質マグマが生じる条件下 (マンツルの部分溶融度が 50% 以下) では、マグマは、溶融度が小さいほど液相濃集元素に富



第 6 図 混合マグマと安山岩 (分析番号 2) の液相濃集元素含有量の比較。縦軸 (Mix. Calc.): 未分化マグマ (B) と流紋岩 (R) が 5 : 5 ないし 7 : 3 の割合で混合したときの混合マグマの組成の計算値。横軸: 分析値 (2)。未分化マグマと流紋岩の組成については本文参照。

むが、その固相濃集元素量は溶融度によってあまり変わらない¹⁸⁾。それゆえ第4図は、背弧側の玄武岩質マグマ発生時のマンツルの溶融度が相対的に小さかったことを示唆する。

全岩分配係数 (D) の殊に小さな元素に限れば、今回の試料はその産地によらず鬼界カルデラの岩石と同様の量比を有する (例えば Ce/Zr , Rb/Nb : 第3図)。既に述べたようにこのことから、全ての岩石が、火山フロントからの距離と無関係にほぼ一定の液相濃集元素比を持つ根源物に由来する可能性を指摘できる。

背弧側の岩石は、 SiO_2 量を用いた2成分変化図 (例えば第5 a, b, c 図) において、火山フロント付近の岩石の並ぶ直線よりも液相濃集元素に富む側にプロットされる。また鬼界カルデラの玄武岩 (番号3) と流紋岩 (番号4) のマグマの混合によって生じ得る Ce/Y 比と比較しても、背弧側の岩石の Ce/Y 比は明らかに高い (第5 d 図)。故にフロント付近のマグマがどのような割合で混合しても、背弧側の岩石と同じ化学組成のマグマは生じそうにない。すなわち初生マグマ自体が液相濃集元素に富むことが、背弧側の岩石が相対的に多量の液相濃集元素を含む原因である可能性が高い。

ここで、既存の地殻物質その他による混染作用によって背弧側の岩石の液相濃集元素含有量が高くなった可能性も、否定はできない。しかしその可能性を示唆するデータは、番号10のデイサイトのY含有量以外には、これまでのところ存在しない。故に以下においては混染作用の効果は無視し、さきの複数玄武岩質マグマ塊モデルをも含め、究極的には全てのマグマがマンツルに由来するものとの仮定に立って考察を進める。

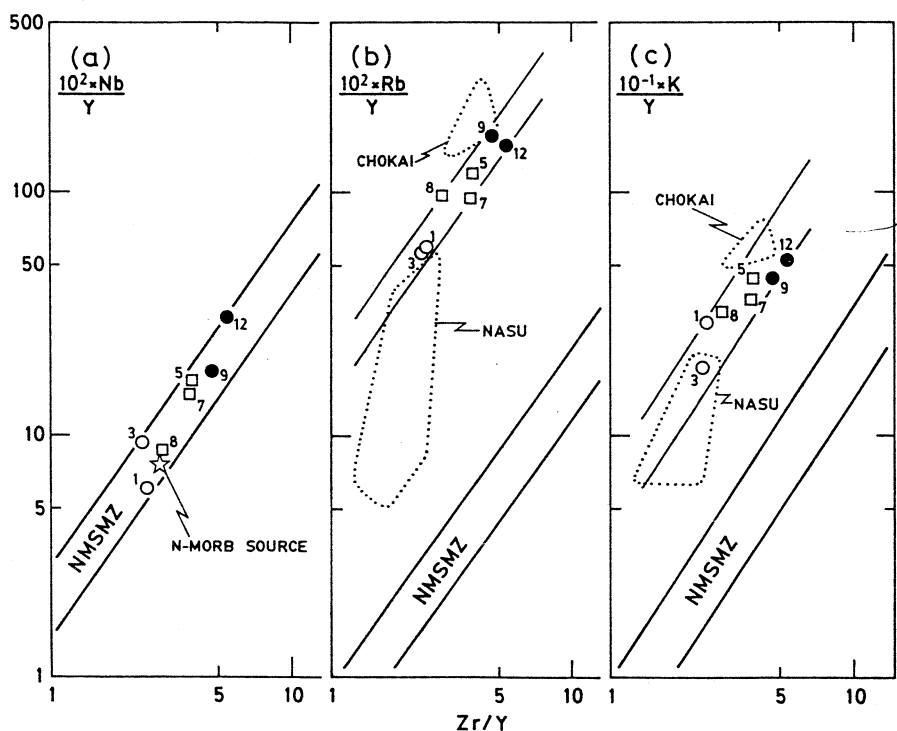
液相濃集元素の量比は一定のまま、その絶対量が背弧側のマンツルにおいて高かった場合にも、液相濃集元素に富んだマグマが生じうる。しかしその場合にもマンツルの溶融度が一定なら、マグマ中の液相濃集元素の量比は、各成分の絶対量とは無関係に常に一定のはずである。故に Ce (D の殊に小さな成分) と Y (D の比較的大きな液相濃集元素) の量比がフロント付近と背弧側で系統的に異なること (第5 d 図) は、仮にこのモデルが正しいとしても、マグマ発生時の部分溶融度が異ならない限り説明できない。すなわち前記の島弧横断方向の火山岩の化学組成の変化は、基本的にはマンツルの部分溶融度が背弧側において小さいことに起因すると結論される。

第2図において SiO_2 に乏しい岩石は、 Sr , K および Rb の N -MORB 規格値が1よりも大きく、 Nb , Zr , Ti および Y の同値は1よりも小さい。鬼界カルデラ以外の岩石も同様の N -MORB 規格化パターンを示す (図は省略)。このようなパターンは、島弧の玄武岩質岩石に特有のものであり、a) 島弧玄武岩のマグマ根源物が本来 N -MORB のそれに類似した物質であっ

たこと、および b) サブダクション帯に由来する流体相と共に Rb などが添加された後にマグマを発生したこと、を示すものである²²⁾。恐らく大隅諸島近辺の玄武岩質マグマの根源物は、琉球島弧下のフィリピン海プレートから流体相を添加されたマントル物質であろう。そして D の殊に小さな元素の含有量の比がほぼ一定であることから、大隅諸島近海域下のマントルは、少なくとも液相濃集元素組成に関して、ほぼ均質である可能性が高い。

4.3 東北日本弧との比較

第 7 図において、大隅諸島近海域の玄武岩～安山岩 ($\text{SiO}_2 < 56\%$) と東北日本の玄武岩の液相濃集元素組成上の特徴を比較する。今回の分析値は、第 7 a 図において NMSMZ 内にあり、



第 7 図 Rb/Y-Zr/Y および K/Y-Zr/Y 図による東北日本産玄武岩類との比較。N-MORB Source (白星=平均的 N 型中央海嶺玄武岩の根源物の組成), NMSMZ (固相-液相間の反応だけで N-MORB Source から導かれうる岩石の組成帯) および Chokai と Nasu (鳥海火山帯と那須火山帯の玄武岩の組成域) は氏家²⁾による。ただし a 図の NMSMZ は、Nb の D が Rb の D と等しいものと仮定して今回描きなおした。他の記号と番号は第 3 図と同じ。

そのうちの 2 個の Zr/Y は平均的な N-MORB の根源物の同比よりも低い。この事実は、a) 大隅諸島近海域の玄武岩～安山岩の根源物が本来的には N-MORB の根源物の類似物であること、および b) 大隅諸島近海域の玄武岩～安山岩の根源物が平均的な N-MORB の根源物

よりも液相濃集元素に乏しい組成であったこと、を示唆する²⁾。この点は東北日本弧の玄武岩類の根源物と同様である。

大隅諸島近海域の玄武岩～安山岩の分析値は、第7 b, c 図においては、 Rb/Y と K/Y が NMSMZ よりも顕著に高く、NMSMZ と平行な一本の帯の中にある。NMSMZ からこの帯までの隔たりの程度は、那須火山帯と鳥海火山帯の玄武岩類の隔たりかたの中間にある。このことは、a) 大隅諸島近海域のマグマ根源物が Rb と K に富む流体相の添加を受け、b) その影響の強さは那須火山帯と鳥海火山帯の受けたものの中間程度であること、の2点を示唆する。

第7 b, c 図において東北地方の2つの火山帯の玄武岩類の組成域が異なる理由は、次のように説明されている^{2,3,4)}。それは、東北日本弧のサブダクション帯直上の含水マントルにおいては、火山フロント（那須火山帯）下と背弧側（鳥海火山帯）で脱水分解する鉱物（角閃石と金雲母）と残留鉱物が異なるため、そこに発生する流体相の化学組成も異なり、それら流体相の添加を受けたマグマ根源物の化学組成も異なるというものである。この成因説のバリエーションとして、第7図は大隅諸島近海域におけるマグマ根源物が東北日本弧における2種類のマグマ根源物の混合物であることを示す、との解釈が可能である。第2の解釈は、東北日本弧のモデルは大隅諸島近海域のマグマ成因論には適用できず、含水マントルからマグマが発生する際に角閃石成分と金雲母成分とが同時にマグマ中に収容されるというものである。いずれの解釈が正しいか、あるいは上のいずれでもない第3の解釈がありうるのかという点は、今後の研究課題である。

§5. まとめ

1. 鬼界カルデラの珪長質マグマは、玄武岩質マグマと共通の根源物に由来する可能性が非常に高い。
2. 鬼界カルデラを含む大隅諸島近海域の安山岩質マグマには、玄武岩質と流紋岩質の2種マグマの混合作用で生じたと思われるものが多く存在する。
3. 大隅諸島近海域の第四紀火山岩は、島弧横断方向に化学組成変化を示す。すなわち背弧側の岩石の方が K_2O 、 Rb および Nb など液相濃集元素を多く含み、また Ce/Y 比が高い。これは、背弧側において初生マグマ発生時の溶融度が相対的に低いことを反映している。
4. マグマ根源物の液相濃集元素組成は、東北日本弧と異なり、火山フロントからの距離と関係なくほぼ均一であると思われる。

本研究にあたり、次の諸氏から貴重な試料を提供していただいた。地質調査所の小野晃司氏

(試料3と4)と湯浅真人氏(12)および九州大学の中田節也氏(5)。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氏、現在金研に移られた八木益男氏、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氏、山寺亮氏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氏、藤巻宏和氏、長谷中利昭氏には、諸般にわたって御助力頂いた。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金(Nos. 61470050, 62460054, 63460048, 01302019)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) Y. Tatsumi, M. Sakuyama, H. Fukuyama and I. Kushiro : J. Geophys. Res. 88 (1983) 5815.
- 2) O. Ujike : J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. 82 (1987) 245.
- 3) O. Ujike : Geochim. Cosmochim. Acta 52 (1988) 2037.
- 4) 中川光弘, 霜島 洋, 吉田武義 : 岩鉱 83 (1988) 9.
- 5) M. Yamamoto : Contrib. Mineral. Petrol. 99 (1988) 352.
- 6) 例えば, 氏家 治 : 岩鉱 82 (1987) 153.
- 7) 曾屋龍典, 小野晃司, 三村弘二 : 第四紀火山図, 地質調査所編「日本地質アトラス」(1982) p. 62.
- 8) 小野晃司, 曾屋龍典, 細野武男 : 薩摩硫黄島地域の地質(5万分の1図幅), 地質調査所(1986) p. 80.
- 9) 町田 洋 : 火山灰は語る—火山と平野の自然史(蒼樹書房, 1977) p. 324.
- 10) M. Joshima, K. Shibata, K. Ono and O. Ujike : Rock Magnet. Paleogeophys. 5 (1978) 65.
- 11) 氏家 治, 中村光一 : 地調月報(1989, 公表準備中).
- 12) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki : J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. 81 (1986) 406.
- 13) E. Honza : Cruise Report, Geol. Surv. Japan 6 (1976) 81.
- 14) 氏家 治, 曾屋龍典, 小野晃司 : 岩鉱 81 (1986) 105.
- 15) 中田節也 : 火山, 第2集 31 (1986) 95.
- 16) J. A. Pearce, T. Alabaster, A. W. Shelton and M. P. Searle : Phil. Trans. R. Soc.

Lond. **A300** (1981) 299.

- 17) K. Notsu, K. Ono and T. Soya : *Geology* **15** (1987) 345.
- 18) J. Gill : *Orogenic andesites and plate tectonics* (Springer-Verlag, 1981) p. 390.
- 19) R. D. Shannon : *Acta Crystallogr. A* **32** (1976) 751.
- 20) Y. Matsui, N. Onuma, H. Hasegawa, H. Higuchi and S. Banno : *Bull. Soc. Fr. Mineral. Cristallogr.* **100** (1977) 315.
- 21) H. Fujimaki and H. Kurasawa : *J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol.* **75** (1980) 313.
- 22) J. A. Pearce : *Continental basalts and mantle xenoliths*, eds. C. J. Hawkesworth and M. J. Norry (Shiva, 1983) p. 230.
- 23) A. P. LeRoex, H. J. B. Dick, A. J. Erlank, A. M. Reid, F. A. Frey and S. R. Hart : *J. Petrology* **24** (1983) 267.
- 24) A. J. Irving : *Geochim. Cosmochim. Acta* **42** (1978) 743.
- 25) J. G. Arth : *J. Res. U. S. Geol. Surv.* **4** (1976) 41.

機器光量子放射化分析法による標準岩石試料 およびカーボナタイト風化土壌試料の分析

東大

豊田和弘・床次正安

§1. 序

著者らはブラジル連邦共和国で採取されたカーボナタイトの岩石試料, およびその風化土壌試料の化学分析を現在行っている。カーボナタイトとはマグマ起源の炭酸塩を主成分とした岩石であり, 通常の火成岩に比べ, 希土類元素, ニオブ, ジルコニウムなどの稀元素を濃縮しており, 資源的にも注目されている岩石である。

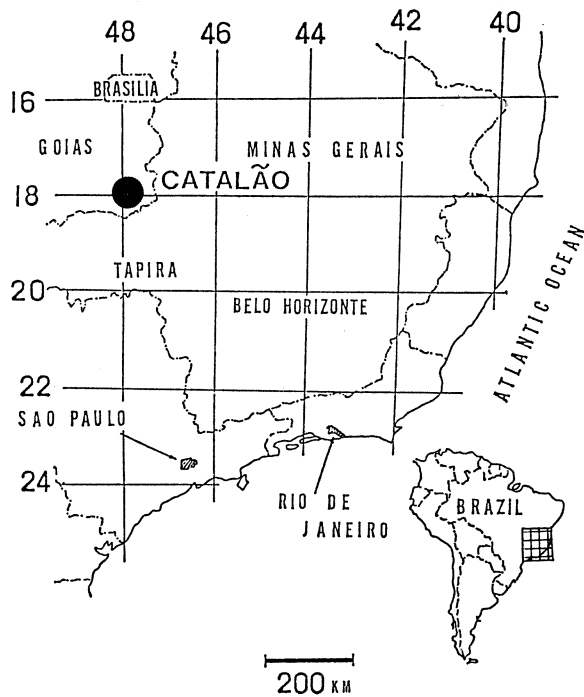
カーボナタイト試料は不均一性が大きく, また試料中には難分解性鉱物が含まれている。したがって, これらの試料の分析には少量の鉱物ごとの非破壊分析が望ましい。その点, 光量子放射化分析法は中性子放射化法では非破壊定量分析の困難なジルコニウム, ニオブ, そしてイットリウムなどの元素について非破壊多元素同時定量分析の可能な有用な分析法と考えられる。

そこで我々は今回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た光量子放射化法を用いて, 標準岩石試料およびカーボナタイト風化土壌試料の定量分析を試験的に行った。現在のところ分析数が少ないので, 今回報告するデータは予備的なものと考えている。

§2. 実 験

分析した試料はUSGS標準岩石試料AGV-1, GSJ標準岩石試料JG-1, JB-1, JB-2, JA-2, JGb-1, JR-1, JLk-1, JLS-1, JDo-1, およびNIES(国立公害研発行)No.2 Pond Sedimentの11個の標準試料と, ブラジル南東部, カタロン・カーボナタイト岩体における風化土壌のボーリング・コア(第1図)¹⁾の8試料である。この土壌試料はブラジルのGOIASFERTIL社の協力で入手した。また標準岩石試料のうち, AGV-1, JG-1, JB-1については奨励値が信頼できるものとして標準試料として検量線を引き, 他の岩石試料の微量成分の含有量を求めた。

ところで, カーボナタイト風化土壌は珪酸塩よりも炭酸塩が主成分である場合が多く, また試料中のニオブ, ジルコニウムなどのカーボナタイト特有の稀元素の含有量は標準岩石のそれよりも遙かに大きい。したがって, ニオブ, ジルコニウム, ストロントニウム, セリウムの分析



第1図 ボーリング・コア試料の採取されたカタロン・カーボナタイト岩体の位置。

試料中に予想される含有量になるように調整した，またマトリックスも土壌試料に似せて作製した混合試薬を，分析試料と同時に照射した。

これらの試料を 105°C で乾燥後，約 100mg を秤量して，高純度アルミ箔に包み，10mm φ のペレット状に成形して照射試料とした。試料 5～6 個毎に比較試料を 1 個並べ，高純度石英管に封入した。この比較試料は試料中の照射の γ 線の強度変化をモニターするためのものである。この比較試料は試薬を混合して作製したもので，マグネシウム，カルシウム，チタン，マンガン，鉄を主成分としている。この 5 元素からのスペクトルを内標準ピークとして用いた²⁾。また，この比較試料の測定データは微量元素の測定のとときに問題になる主成分からの妨害ピークの補正にも使用できる。

照射は加速エネルギー 30 MeV，平均電流約 $120 \mu\text{A}$ の電子線を厚さ 2 mm の白金板で制動放射に転換して光量子放射化²⁾を行った。試料は白金板後方数 cm の位置で 2 時間照射した。照射後約 3～10 時間，3～4 日，12～18 日の 3 つの測定期間に分けて，それぞれ 1 試料につき 100 秒，1000 秒，6000～20000 秒の時間をかけて， γ 線測定を行った。最初と 2 回目の放射線計測には東北大学理学部核理研の pure Ge 半導体検出器を，最後の 3 回目の放射線計測は東京

大学アイソトープ総合センターのGe (Li) 半導体検出器を使用した。定量目的元素はAs, Ba, Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Pb, Rb, Sr, Y, Zn, Zrの14元素である。

§3. 結果と今後の課題

目的元素の定量に利用した核種、およびその γ 線エネルギー、半減期、定量に用いたスペクトルの測定した期間および試料中の目的元素の含有量を計算するために、その文献値を使用した標準岩石の種類を第1表に示した。ニオブやクロムの定量の際に問題となる、試料中に大量に共存する鉄から生成する妨害核種からの干渉補正は、比較試料のスペクトルのデータを用いて行った²⁾。一方、コバルトの定量の際に問題となるとされている⁴⁷Caの γ 線(808 keV)は比較試料からは検出されず、妨害は無視できるものとした。

第1表 定量目的元素についてのデータ。

元素	核反応	半減期	γ 線エネルギー	測定期	標準試料
As	$^{75}\text{As} (\gamma, n) ^{74}\text{As}$	17.78 d	595.9 (keV)	3	B
Ba	$^{136}\text{Ba} (\gamma, n) ^{135m}\text{Ba}$	28.7 h	268.2	1	A, B, G
Ce	$^{140}\text{Ce} (\gamma, n) ^{139}\text{Ce}$	137.2 d	165.9	3	A, B, G
Co	$^{59}\text{Co} (\gamma, n) ^{58}\text{Co}$	70.8 d	810.8	3	A, B
Cr	$^{52}\text{Cr} (\gamma, n) ^{51}\text{Cr}$	27.70 d	320.1	3	A, B
Cs	$^{133}\text{Cs} (\gamma, n) ^{132}\text{Cs}$	6.47 h	667.5	3	A, B, G
Nb	$^{93}\text{Nb} (\gamma, n) ^{92m}\text{Nb}$	10.15 d	934.5	3	A, B, G
Ni	$^{58}\text{Ni} (\gamma, n) ^{57}\text{Ni}$	36.0 h	1377.6	1	A, B, G
Pb	$^{204}\text{Pb} (\gamma, n) ^{203}\text{Pb}$	52.0 h	279.2	2	A, G
Rb	$^{85}\text{Rb} (\gamma, n) ^{84}\text{Rb}$	32.9 d	881.6	3	A, B, G
Sr	$^{88}\text{Sr} (\gamma, n) ^{87m}\text{Sr}$	2.80 h	388.4	1	A, B, G
Y	$^{89}\text{Y} (\gamma, n) ^{88}\text{Y}$	106.6 d	1836.0	3	A, B, G
Zn	$^{68}\text{Zn} (\gamma, n) ^{67}\text{Zn}$	61.9 h	184.5	2	A, B, G
Zr	$^{90}\text{Zr} (\gamma, n) ^{89}\text{Zr}$	78.4 h	909.2	2	A, B, G

標準試料: A: AGV-1, B: JB-1, G: JG-1

このような方法で各標準岩石試料について得られた値を第2表に示す。すでに報告されている文献値³⁻⁵⁾と比較すると、多少の不一致はあり、今後更にデータを蓄積していきたいと考えている。今回得られたデータの誤差の大きな原因の一つとして、光量子放射化法では中性子放射化法に比べて、当然のことながら、それぞれの試料の照射位置で照射線束密度が大きく変動するため、今回行った様に比較試料を5~6個ずつおきに並べるのでは誤差が大きくなることを考えている。次回では秤量した鉄線およびチタン箔などをアルミ箔で包んで作製したフラックスモニターを、各試料ごとに密着させて照射し、各試料の照射 γ 線の強度変化をより正確に補正することを予定している。

分析したボーリング土壌試料について得られたデータを第3表に示した。表層のラテライト質風化土壌、表面から数mの位置にある珪酸を主成分としたの珪質帯、表面から20~70mの深さのカーボナタイト風化帯および深さ90~100mのカーボナタイト母岩の4つに分けて、分析値の範囲を表示してある。蛍光X線分析¹⁾による主成分組成の一部(SiO_2 , $\text{CaO} + \text{MgO}$)も同時に記した。

第2表 標準岩石試料および標準土壌試料の分析値。

元素	Pond Sediment	JA-2	JB-2	JGb-1	JR-1	JLk-1	JLs-1	JDo-1
As (ppm)	13	0.8	3.3	0.9	16	31	N.D.	N.D.
Ba (ppm)	280	360	210	71	51	650	430	N.D.
Ce (ppm)	39	28	6.6	9.0	45	92	N.D.	3.0
Co (ppm)	25	27	37	63	N.D.	15	N.D.	N.D.
Cr (ppm)	84	430	33	65	N.D.	72	N.D.	N.D.
Cs (ppm)	4	3.8	0.7	N.D.	19	10	N.D.	N.D.
Nb (ppm)	8	8.9	N.D.	2.4	16	20	N.D.	N.D.
Ni (ppm)	34	150	12	26	N.D.	31	N.D.	N.D.
Pb (ppm)	109	15	N.D.	N.D.	22	43	N.D.	N.D.
Rb (ppm)	47	72	6.7	6	249	129	N.D.	N.D.
Sr (ppm)	112	260	185	330	32	68	297	N.D.
Y (ppm)	28	20	23	9	43	43	N.D.	13
Zn (ppm)	290	69	130	120	26	91	N.D.	N.D.
Zr (ppm)	111	120	45	28	93	124	N.D.	N.D.

第3表 ブラジル・カタロン岩体のカーボナタイト母岩およびカーボナタイト風化土壌試料についての分析値。

元素 深度	ラテライト土壌 0~10m	珪質化帯 6 m	カーボナタイト風化帯 20~70m	カーボナタイト母岩 90~100m
MgO+CaO(%)	<2	0	10~37	27~41
SiO ₂ (%)	2~30	79	14~36	1~12
As (ppm)	N.D.~200	25	N.D.~22	N.D.~17
Ba (%)	1.3~2.7	0.43	0.37~1.1	0.66~1.4
Ce (%)	16.4~22.3	4.6	0.89~4.1	5.1~8.0
Co (ppm)	80~540	23	37~73	N.D.~24
Cr (ppm)	1570~4260	330	400~560	490~590
Nb (ppm)	23000~500	100	1400~3600	10~100
Ni (ppm)	100~170	20	30~210	N.D.
Pb (ppm)	400~1900	100	N.D.~400	300
Sr (%)	0.46~1.6	0.26	0.22~0.8	0.96~1.2
Y (ppm)	1400~2460	230	190~650	300
Zn (ppm)	260~800	180	150~550	250~1100
Zr (ppm)	190~1660	40	500~1300	30~400

これまでの研究¹⁾から、表面から90~100mの深さのカーボナタイト母岩では炭酸塩が主成分であるのにたいし、採取した深度が小さくなるにつれて、試料は風化作用により炭酸塩が溶脱したものとなり、表層のラテライト化風化土壌では炭酸塩はほぼ消失していることがわかっている。第3表から、セリウム、ニオブ、イットリウム、ジルコニウムは風化の過程でもほとんど残留して濃縮したものと推察される。また、珪質化帯というのは、表層のラテライト化作用に伴い溶脱した珪酸が、なんらかの原因で深さ6m付近で再固化してできたものと推定されている。

ラテライト風化土壌については、セリウムの含有量が約20%と驚異的な分析値が出されたが、化学分離を伴ったICP発光分析法でも同様な分析値¹⁾が既に出されている。とにかく、これらの試料はカーボナタイト母岩自体が鉱物の不均一性が大きく、細かい化学組成のデータ

の検討は試料中の鉱物との対応関係を考慮に入れる必要があり、今後分析試料数をさらに増やして、これらの微量元素の挙動について考察を行いたいと考えている。

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、東北大学岩鉱教室の吉田武義博士、および核理研の職員の方々に大変お世話になったことに対し深謝したい。又、東京大学アイソトープ総合センターの共同利用でお世話になった小泉好延博士、およびセンターの職員の方々に感謝したい。

参 考 文 献

- 1) 豊田和弘, 堀内弘之, 小沢徹, 芳賀信彦, 床次正安, 相川信之, K. Fujimori, C. Cordeiro : 日本地球化学会年会講演集 (1988) 3B01.
- 2) 榊本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 18 (1985) 108.
- 3) S. Abbey : Geological Survey of Canada, paper 83-15 (1983) 114.
- 4) 榊本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 21 (1988) 243.
- 5) 榊本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 17 (1984) 159.

IV. 加 速 器 ・ 測 定 装 置

Evidence of Coherent Synchrotron Radiation

Toshiharu Nakazato, Masayuki Oyamada, Nobuo Niimura,
Shigekazu Urasawa, Osamu Konno, Akira Kagaya, Ryukou Kato,
Takashi Kamiyama^{*}, Yoshiharu Torizuka^{**},
Takao Nanba^{†***}, Yasuhiro Kondo^{††}, Yukio Shibata^{†††},
Kimihiko Ishi^{†††}, Toshiaki Ohsaka^{†††} and Mikihiro Ikezawa^{†††}

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

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

^{††} *Department of Applied Physics, Faculty of Technology,
Tohoku University, Aoba-ku Sendai 980, Japan*

^{†††} *Research Institute for Scientific Measurements, Tohoku University
Aoba-ku Katahira Sendai 980, Japan*

Coherent effects in synchrotron radiation (SR) have been observed for the first time from 180 MeV short electron bunches of 2.5 mm using the Tohoku 300 MeV Linac. The intensity of the coherent SR was about 10^5 times as strong as that of incoherent SR in the wavelengths of 0.4~2.2 mm. This enhancement factor corresponds to the number of electrons in a bunch. The SR intensity showed a quadratic dependence on the electron beam current. The radiation was mainly polarized in the orbital plane. The possibility of induced RF in a vacuum chamber was excluded experimentally.

^{*} Present address : Institute of Materials Science, University of Tsukuba, Tsukuba 305 Japan.

^{**} Present address : Atomic Energy Research Institute, Nihon University, Surugadai Chiyoda-ku Tokyo 101 Japan

^{***} Present address : Faculty of Sciences, Kobe University, Rokkohdai Nada-ku, Kobe 657, Japan

§ 1. Introduction

An intense coherent synchrotron radiation (SR) might be produced in the far-infrared region in a storage ring where small bunches of electrons circulate. This possibility was proposed by F. C. Michel¹⁾ in 1982. The enhancement due to the coherent effect is expected to be N , where N is the number of electrons in a bunch. Thus from storage rings which have about 10^{10} electrons in a bunch we might be able to obtain intense photon flux with a continuous spectrum at far-infrared wave lengths. A positive sign of the presence of coherent SR has been observed by J. Yarwood et al.²⁾ in SRS, Daresbury. However, its existence has not been conclusively established by their experiments as well as by E. Schweizer et al.³⁾ in BESSY, Berlin. In a recent experiment G. P. Williams et al.⁴⁾ could observe no enhancement in the wavelength region of $30\sim 400\ \mu\text{m}$ due to the long bunch length (about 30 cm) of the NSLS, BNL ring. According to F.C. Michel, the enhancement due to the coherent effect can be expected in a wavelength region comparable to the longitudinal bunch length. Since the longitudinal bunch length of an electron linac is generally much shorter than that of an ordinary electron storage ring, we used the Tohoku 300 MeV Linac⁵⁾ to observe the SR in the long wavelength region. In this paper we will present clear evidence of coherent SR.

§ 2. Experimental Method

The assembly of this experiment is shown in Fig.1. A magnetic field was applied to the 180 MeV electron beam to produce SR. The strength of the bending magnetic field was 0.247 T at the light emitting point on the electron orbit. In consequence we obtain a bending radius of 2.44 m and a characteristic wavelength λ_e of ordinary SR of 230 nm. A duration of the burst, or the electron bunch train, is $0.1\sim 2\ \mu\text{sec}$ and its repetition is 300 pps. The average beam current can be varied continuously from 0 to 300 nA by a beam profile defining slit at the last stage of the linac, which scrapes the electron bunches. The average beam current was measured by a secondary emission monitor downstream of the bending magnets. The accelerating RF frequency in Tohoku 300 MeV Linac is 2856 MHz. As the phase distribution of a bunch was estimated⁶⁾ to be about 5 degrees, the longitudinal bunch length was about 1.5 mm. In passing through the beam

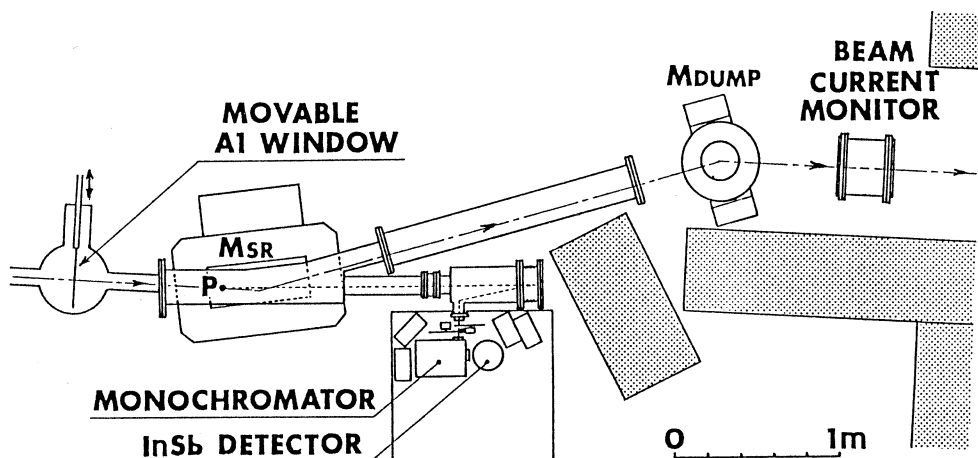


Fig.1. Experimental assembly. The chain line with arrow shows an electron beam trajectory. The point P in the bending magnet M_{SR} is the light emitting point of the SR. M_{DUMP} is used to dump the electron into the beam catcher through the beam current monitor.

transport system from the linac to the experimental room, the bunch length was stretched to about 2.5 mm at the light emitting point, where the transverse bunch size was about $2 \times 2 \text{ mm}^2$ and the beam energy spread was 0.2%.

The detail of the optical equipments are shown in Fig.2. Emitted SR was collected by a

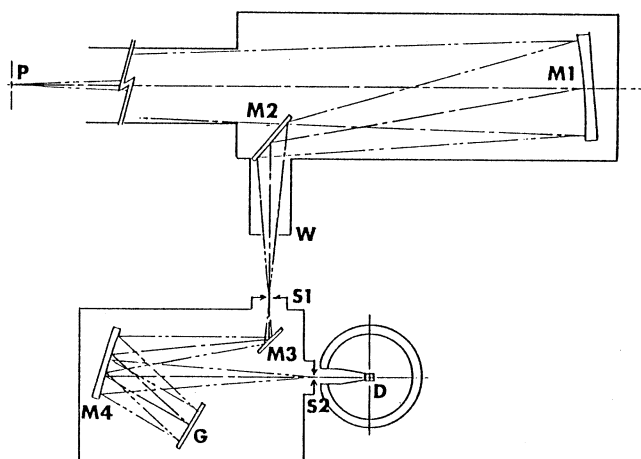


Fig.2. Schematic layout of optical setup. M1 : spherical mirror, M2, M3 : Plane mirrors, M4 : collimating mirror, W : crystal quartz window for vacuum, S1, S2 : slits, G : grating, D : InSb detector. An opening angle from P to M1 is 70mrad. There are a light chopper, a shutter and longwave pass filters between W and S1, which are not shown.

concave mirror with an acceptance of 70 mrad, dispersed with a 30 cm Littrow type grating monochromator and detected by a liquid-He-cooled InSb bolometer. Three gratings of 0.5, 1 and 2 grooves/mm were prepared to cover over the wavelengths from 0.4 to 2.2 mm. The monochromator was complemented by longwave pass filters with cutoff wavelengths of 0.33 and 1.0 mm, a quartz plate and black polyethylene. Its resolution ($d\lambda/\lambda$) was about 0.1. The absolute sensitivity of this measuring system was calibrated with a 140 W mercury discharge lamp, which was supposed as a blackbody radiation source of 4000 K^{7,8)} in these wavelengths. The optical geometries such as the solid angle or the f-number were considered in the above calibration. The radioactive background noise has been measured to be negligible.

§3. Experimental Results

3.1. Enhancement of SR Intensity

Fig.3. shows the spectrum of SR observed together with a curve calculated for

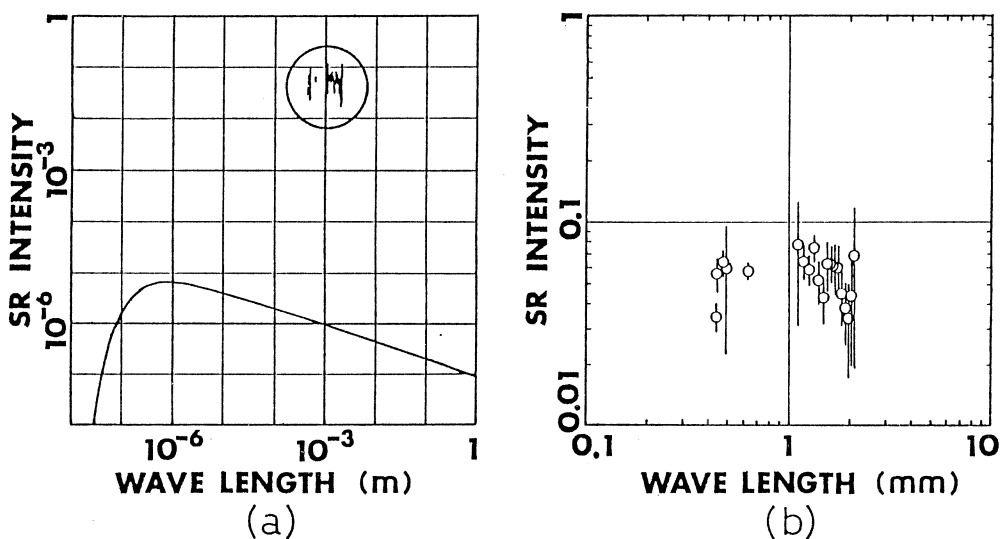


Fig.3. Observed spectrum of coherent SR. A unit of SR intensity is [photons/electron/mrad/1%BW], i.e. the number of photons which are emitted by an electron in a bunch for 1 mrad of the electron orbit arc and for a 1% bandwidth. The data points in a circle of figure (a) are enlarged in figure (b). A curve shows the intensity of ordinary incoherent SR calculated for the same experimental condition. Data in these figures are measured at the average beam current of 250 nA, which corresponds to about 10^6 electrons in a bunch in average. The bars of the data points show the fluctuation of SR intensity during the measurement.

ordinary incoherent SR. The intensity of SR is drastically enhanced compared to that of incoherent SR calculated. Now consider an enhancement factor g defined as:

$$g = \frac{\text{measured intensity of SR}}{\text{calculated intensity of incoherent SR}}$$

Hence, the enhancement factor g is about 10^5 for Fig.3. This value corresponds to the average number of the electrons in a bunch, N , which is estimated to be 10^6 for the beam current of this experiments. At the wavelength of 2 mm, a relation $g \sim 0.15 \times N$ has been obtained for $N < 5 \times 10^6$.

3.2 Beam Current Dependence of SR Intensity

Dependence of the SR intensity on the electron beam current was also measured. The results are shown in Fig.4. for the wavelength of 2 mm. The observed SR intensity is clearly proportional to the square of the electron beam current. According to the theory^{1),4),9)} of the coherent SR, its intensity is proportional to N^2 , and moreover, is enhanced by N times to that of incoherent SR. From these two criteria, we conclude that we observed coherent SR in the wavelength region from 0.4 to 2.2 mm.

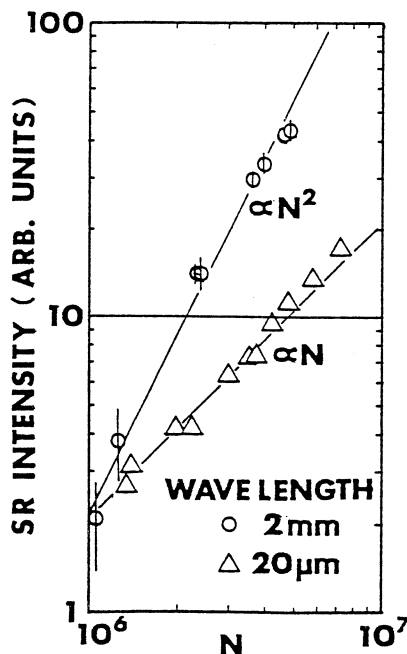


Fig.4.

Beam current dependence of the SR intensity. N is the number of electrons in a bunch, which is proportional to the electron beam current. The SR intensity is proportional to N^2 at wavelength of 2 mm, while to N at $20 \mu\text{m}$. The values of intensity should not be compared between the two wavelengths.

Previously, we measured the SR intensity in the shorter wavelengths between 3 and $30 \mu\text{m}$ by using wide band pass filters¹⁰⁾. At the wavelength of $20 \mu\text{m}$ the SR intensity

was proportional to the electron beam current as shown in Fig.4, though absolute calibration of the intensity was not made. In this wavelength region coherent SR was not ascertained. Therefore a big growth of the SR intensity is expected in the wave lengths between 30 and 400 μm . Measurements around this region will be carried out in near future.

3.3 SR Spectrum

The spectrum of coherent SR corresponds to the square of the bunch form factor^{4),9)}. In Fig.3 (b) the obvious intensity decrease is not perceptible in the wave length region shorter than the longitudinal bunch length of 2.5 mm. This spectrum suggests that the electron bunch from the linac has a complicated form. For, if it had a simple shape like a Gaussian, the intensity of coherent SR would change drastically around the wavelength comparable to the bunch length. A study of bunch shape will give us important information to understand the mechanism of the coherent SR production.

3.4 Polarization of SR

The degree of polarization P is defined as

$$P = \frac{I_{\parallel} - I_{\perp}}{I_{\parallel} + I_{\perp}}$$

where I_{\parallel} and I_{\perp} are the SR intensity which has an electrical vector parallel and perpendicular to the orbital plane, respectively. The polarization of coherent SR has been measured to be $P = 0.6 \sim 0.7$ for the wavelength region from 0.3 to about 2 mm, i.e. the radiation is mainly polarized in the orbital plane. On the other hand the calculated P for incoherent SR in the same optical aperture is 0.62 and 0.80 for wavelengths of 0.3 and 2 mm, respectively. These results suggest that the angular distribution of coherent SR is similar to that of incoherent SR. In addition, by calculating the vertical angular distribution for incoherent SR, the optical acceptance is obtained to be 74, 51, 40% of total intensity integrated over all the vertical angle for wavelengths of 0.3, 1.0, 2.0 mm, respectively. In Fig.3 the data points were not corrected by the optical acceptance because of the lack of knowledge about the vertical angular distribution of coherent SR, i.e. 100% vertical acceptance is assumed.

3.5 Effect of Induced RF

When a bunch of charged particles passes through in a vacuum chamber, an RF electromagnetic field will be excited in it. The properties of induced RF are similar to those of coherent SR. The RF intensity is proportional to the square of the beam current, or N^2 , and its spectrum depends on the bunch form factor. One must distinguish coherent SR from induced RF. The value of RF wake can be calculated by the knowledge of the impedance of the vacuum chamber¹¹⁾. Using the impedance function measured in the ISR¹²⁾, CERN, and assuming that the bunch is a delta-function-like point charge of 10^6e , we estimated the order of the RF intensity induced in the vacuum chamber near the light emitting point. The spectral energy deposit by the RF wake at 1 mm wavelength with 1% band width per unit vacuum chamber length per one bunch is estimated to be about 5×10^{-16} J/1%BW/m, while the radiation intensity measured in our optical solid angle was about 3×10^{-15} J/1%BW in the same conditions. The calculated value of RF wake is an overestimation because we assumed a point charge. Though this estimation is negligibly small in comparison with radiation measured, we confirmed the influence of induced RF experimentally.

The RF power which is induced in a long vacuum chamber in the upper stream of the light emitting point will come down through the chamber to the optical measuring system. In order to intercept the RF power from upper stream, a thin movable aluminum window was set as shown in Fig.1. No difference in the radiation intensity was observed when the window was inserted. If the induced RF intensity was considerable, the radiation intensity must be changed by the interception. Therefore, a possibility of the influence of the induced RF has been excluded by this result. The degree of polarization of 0.6~0.7 is another reason to stand for coherent SR instead of RF wake. It is hardly possible for RF wake which is diffused in the vacuum chamber to have such a strong polarization.

§4. Discussion

It is demonstrated that the bunched electron beam accelerated by a linac has sufficient feasibility as a strong light source in the milli/submillimeter wave region. Suppose the

bending radius of 1 m, a 100 MeV electron linac with a high peak current is suitable for the applications. A single bunch of 5×10^{10} electrons with length of 1.5 mm has been already obtained¹³⁾. The experiments for the transient phenomena will be enabled by the intense pulse radiation from the electron linac beam.

In case of the electron storage ring the longitudinal bunch shape is almost Gaussian-like distribution. For lack of higher frequency component in Gaussian in the frequency domain, the value of the bunch form factor decreases rapidly in the short wavelength region. However, if one imposes a disturbance on the bunch, one can increase the higher frequency components. For example, a higher harmonics RF cavity¹⁴⁾ will deform the bunch shape from Gaussian to Fermi-Dirac-like distribution, which has higher frequency components in the frequency domain much more than Gaussian. It is emphasized that the efforts to deform the bunch, as well as to obtain a short bunch, is important for the storage ring.

§5. Summary

We have observed the first evidence of the existence of coherent SR in the wavelength region of 0.4 to 2.2 mm. The intensity of radiation observed was about $0.15N$ times stronger than that of ordinary incoherent SR, where N is the number of electron in a bunch. The degree of polarization was measured to be 0.6 to 0.7. The possibility of the influence of induced RF is excluded experimentally. The beam from an electron linac is immediately usable as an intense light source in the milli/submillimeter wavelength region. Shaping of the bunch form is important to increase the radiation intensity in the short wavelength region.

This confirmation for the existence of coherent SR will have an impact on a wide field of study; not only for the application to the solid state physics or the biological physics but also for interest in the elementary physics and especially in the astrophysics; i.e. the astronomical phenomena like a pulsar¹⁾ can be studied in a laboratory on the earth.

Acknowledgment

We wish to acknowledge helpful discussion with K. Shoda, M. Sugawara, T. Saito, T.

Terasawa, T. Tamae and K. Masumoto in the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. We would like to thank M. Mutoh, A. Kurihara, S. Takahashi, Y. Shibasaki, T. Ohnuma, T. Tsutaya, H. Mishiro and S. Kimura for their technical support and assistance for study.

References

- 1) F. C. Michel : Phys. Rev. Lett. **48** (1982) 580.
- 2) J. Yarwood, T. Shuttleworth, J. B. Hasted and T. Nanba : Nature **312** (1984) 742.
- 3) E. Schweizer, J. Nagel, W. Braun, E. Lippert and A. M. Bradshaw : Nucl. Instr. and Meth. **A239** (1985) 630.
- 4) G. P. Williams, C. J. Hirschmugl, E. M. Kneedler, P. Z. Takacs, M. Shleifer, Y. J. Chabal and F. M. Hoffmann : Phys. Rev. Lett. **62** (1989) 261.
- 5) Mitsubishi Denki Giho **42** (1968) (Special Issue for Tohoku 300 MeV Linac, Mitsubishi Electric Co.)
- 6) M. Sugawara, T. Ichinohe, S. Urasawa, M. Oyamada, T. Kubota, A. Kurihara, O. Konno, Y. Shibasaki, T. Terasawa, K. Nakahara, S. Nemoto, M. Mutoh, K. Shoda and T. Torizuka : Nucl. Instr. and Meth. **95** (1971) 430.
- 7) J. Bohdansky : Z. Phys. **149** (1957) 383.
- 8) A. J. Lichtenberg and S. Senic : J. Opt. Soc. Am. **56** (1966) 75.
- 9) T. Miyahara : KEK Report **85-3** (1985).
- 10) T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, O. Konno, T. Kamiyama, M. Ikezawa, T. Nanba and Y. Kondo : Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University **21** (1988) 94.
- 11) About the RF impedances and wakes, see e.g., P. B. Wilson : High Energy Electron Linacs : Application to Storage Ring RF and Linear Colliders, SLAC-PUB-2884, (1982) p. 58.
- 12) A. Hofmann, J. Borer, S. Hamsen, J. H. Hemery, K. Huebner, J. C. Juillard, S. Myers, E. Peschardt, J. Poole, T. Risselada, L. Vos and B. Zotter : IEEE Trans. Nucl. Sci. **NS-32** (1985) 2212.
- 13) J. Rees : *Proc. 1986 Linear Accelerator Conference* (SLAC, Stanford, California,

1986) p. 209.

- 14) A. Hofmann and S. Myers : Proc. 11th Int. Conf. High-Energy Accelerators, ed. by W. S. Newman (CERN, Geneva, 1980) p. 610.

V. 加速器・データ処理装置稼働状況

昭和63年度マシン報告

核理研マシングループ

栗原 亮・浦沢茂一・大沼忠弘

小山田正幸・柴崎義信・高橋重伸

中里俊晴・武藤正勝

概況

ライナックは、今年度予算の関係で大きな性能向上をはかる更新はできなかった。そこで、制御系では、ソフトの改修と回路の手直しを、また、他の機器では、故障の予防と安定運転を考慮した整備・修理と部品交換を行なった。

RF窓交換は、以前の水漏れ事故後に考えた、計画的な工事である。B部のRF窓交換は、4月工事に行なった。次回は、A部の交換を行う予定である。

故障の予防と安定運転を考慮してクライストロンパルサー（以下KPと略す）4台の主電源トランスの絶縁油交換を8月工事に行った。

KPのサイラトロンを従来のKU-275Cから高信頼のF175に順次変更することにし、今年度は2本交換した。

前回、事故の報告をした冷凍機は、当初予算内に入らず、次年度待ちになっていたが、幸いにも設備更新費で冷水製造装置として3月に更新した。

マシンタイム実施状況

今年度は、ライナックは大きなトラブルも無く順調に稼働した。しかし、3月に入って、第2実験室・第2空調室屋根の防水工事と冷水製造装置更新工事があり、工事日を多く取ったので12シフトを来期に持ち越した。マシンタイムの実施状況を第1表（共同利用係調べ）に示す。

保守状況

立体回路系では、KP#2の左腕のA7・8と4月工事で確認したB5の2箇所VSWR悪化の改善を計った。KP#2の左腕のVSWR悪化は、A8移相器のアンバランス分だけと思われたが、方向性結合器付直管のVSWRが悪く、これを交換した。B5の測定では反射の場所が特定できなかった。そこで、測定しながら再組立を行ない、全体のVSWRの値を低くした。

第1表 昭和63年度マシンタイム実施状況。

課 題	前 期		後 期		昭和63年度		備 考
	割 当	実 施	割 当	実 施	割 当	実 施	
$\gamma \pi$ (庄田)	12	12	14	14	26	26	
$\gamma \pi$ (成)	7	7	2	2	2	2	
e, e' p (菅原)	12	12			12	12	
e, e' p (玉江)	5	5	16	16	21	21	
e, e' m (斎藤)	12	12	12	12	24	24	
Tag (寺沢)	8	8	7	0	15	8	7 シフト繰越
Tag (前田)	6	6	16	16	22	22	
γ, p (玉江)	1	1			1	1	
e, p (宮瀬)	6	6	4	0	10	6	4 シフト繰越
e s (斎藤)	5	5			5	5	
ND	21+2*	19	17+4*	21	38+2*	40	
物性・RI	23+3*	26	23	22	46+3*	48	1 シフト繰越
SOR	6	6	4	4	10	10	
LINAC	2	2			2	2	
π MAG	2+2*	4	2	2	4+2*	6	
MWPC			2	2	2	2	
BaF			1	1	1	1	
Alダクト	1*	1			1*	1	
π^0 測定器	2	0	2*	2	2	2	
	130+8*	132	120+6*	114	250+8*	246	12シフト繰越

* 先期より繰越

悪化の原因は、A7・8では、方向性結合器付直管に、またB5では、組み立て時の無理な力に原因があった。

冷却系では、毎年定常的な交換・工事の他に、配管関係の劣化がひどく、フロースイッチ、タワー系伸縮継手、WGとBFポンプ防振配管などの交換が多かった。特に、伸縮継手の水漏

れは、8月工事の冷却系の試運転時に発生した。最初は2個の水漏れ、次は3個の水漏れと発生し、結局タワー系の10個の伸縮継手全数を交換した。工事期間中の事故のためマシンタイムに影響は無かった。

真空系では、I系ターボ・ポンプの設置やイオンポンプ交換などの保守が主であったが、アルミ製のI系3方向分岐用真空ダクト（I系M5ダクト）の交換を8月工事に行った。

パルサー系とビームライン電源では、長年使用してきたものが多く、使用回路部品は現在の部品と較べて高電圧・高電力であり、部品の入手が困難か、あるいは、入手できないものが増えつつあり、調整で性能を維持している。特に、電源関係では、毎年度両者を一式ずつ更新している。しかし、更新は、電源の数が多いためあとしばらくはかかる見込みである。

ライナック制御保護系の回路は、パルサー系やビームライン電源と同様に回路部品の問題、さらに制御される機器側の変化などがあり、機器に対応した改修を行う時期にきている。

冷水製造装置の更新は、3月13日からの工事で据え付け・調整・試運転と無事終了した。更新に伴い冷却系の見直しでタワー配管などに若干の手直しが必要である。これは89年度に実施する予定である。

RFドライバー最終段のクライストロンは、現在製造中止になっているので、手持ち分のクライストロンのチューニングを行った。RFドライバーは、手持ち分のクライストロンで数年間使用できる見通しである。

設備関係の更新を重大故障が起こる前に着手する必要がある。現在、クーリングタワー・冷却系配管・純水系の循環ポンプ（ACポンプは、軸封部の水漏れの修理が不能）などの更新が必要で、これらは、物品の手配から工事完了まで長期間かかるので計画的な実施を考慮しなければならない。

主な工事は、以下のとおりです。

4月工事

真空系	イオン・ポンプ交換（IP 10, 14, 15）
RF系	RF窓B部交換及びVSWR測定（B1, B2, B3, B4, B5, B6, B7, B8, B9, B10, B11）
立体回路系	KP # 2の左腕のVSWR悪化の改善
制御系	Qマグネット電源Q1, Q2点検
直流電源	M5基準・バイアス電池交換, 電流上昇鈍化・応答悪化の改善
冷却系	加速管温度センサー交換, 冷凍機（冷媒, アンローダー, 膨張弁, ドライ

ヤー, 潤滑油) 整備

6月工事

VAPO洗浄 KP # 1, # 2, # 3, # 4, # 5

冷却系 III系AD8・ γ チャンネル フレアー部・ACC B5入り口ジャケットの水漏れ修理

真空系 I系 ターボ・ポンプ設置・操作回路改修

8月工事

パルサー系 KP # 1, 2, 4, 5トランス油交換, KP # 1 NFB交換, KP # 5トリガ回路交換

冷却系 ACCデミネ交換, 冷凍機軸封部修理, タワー葉流浄, タワー系伸縮継手更新, WGとBFポンプ防振配管交換, ACC循環ポンプモーターベアリング交換

立体回路系 B5 VSWR改善, 再組立でVSWR1.45から1.23に改善された。B12RF窓交換

真空系 I系M5ダクト交換

制御系 第2実験室と制御室のPC改修, 制御プログラム制作, モニタTV配線

10月工事

冷却系 デミネライザー樹脂交換 (純水製造・BF系)

真空系 SDIIリーク盲フランジ取り付け, Lバルブリミットスイッチ取り付け

パルサー系 KP # 5 KLY・VACメータリレー取付, KP # 5 ラインフィルター交換, KP # 1, 2 デバイダー交換, ガンパルサー (GP) 補助電源更新 (DC800V, DC450V)

制御系 ビームダクトステアリング電源操作ソフト改修, ビームモニター系ソフト改修, ACC・STCソフト改修, Qマグネット制御ループ接続

直流電源 KP # 4・フォーカスコイル電源テスト

12月工事

冷却系 タワー給水管ヒータ配線, 純水器補修, タワー補修

パルサー系 KP # 5 PFN交換 (全数), ショントダイオードアブソーバー用コンデンサー交換

制御系 ECS・分析マグネット電流設定を μ VAXより制御可能

RF系 A4移相器交換, KP # 2左加圧リークテスト

ACC・STC ソフト改修

2月工事

- 冷却系 立体回路 パイプつぶれ交換, 純水レベル計調整
- パルサー系 KP # 1 サイラトロン駆動回路交換, 集束コイル電源調整 KP # 2, KP # 5,
GPサイラトロン交換
- 制御系 μ VAXバージョンアップ
- RF系 ドライバー調整&KP # 5 RFパワー特性測定

3月特別工事

- 冷却系 冷却水製造装置更新
- 真空系 自動リークバルブ (第1, 第2) 取付
- RF系 ドライバー調整, 最大出力6KWまで可能

データ処理装置報告

核理研計測グループ

武藤正勝・大沼忠弘・小田島明美

昭和63年度のデータ処理装置の稼働実績を第1, 2表に示す。

前回報告 (Vol21.No1.131) したオンラインシステム更新計画の一部としてVAXstation II /GPXを昨年9月に購入した。今のところ実験のデータ収集に使っているのは1グループだけで、使用時間の大部分はデータ解析などである。第1図はVAXを中心とした新しいオンライン・データ処理系の概略である。昨年度新設の原子核測定室とデータ集積室との間のデータ転送には、光ファイバー・ケーブルとCAMACのオプティカル・リンクモジュール (核理研製) を使っている。当初のオプティカル・リンクのデータ転送スピードは48Kビット/秒で、これでは遅いとの不満が実験グループから出ていたので、これを1.25Mビット/秒 (62.5Kワード

第1表 昭和63年度・用途別利用実績表(1)。

(単位:時間)

機種 用途 月	OKITAC-4500			OKITAC-50/60			OKITAC-50V/65			
	データ 集積	保守 故障	合計	データ 集積	保守 故障	合計	会話数	利用 時間	CPU 時間	保守 故障
4	81	2	83	228	7	235	130	411	51	0
5	0	0	0	559	2	561	230	1338	184	0
6	62	0	62	435	0	435	269	828	167	2
7	10	2	12	264	0	264	360	738	99	0
8	0	0	0	0	2	2	358	702	78	0
9	189	0	189	0	0	0	430	1101	162	26
10	0	2	2	1	0	1	293	554	42	4
11	131	0	131	373	2	375	163	759	40	25
12	68	0	68	448	0	448	281	1158	115	2
1	68	2	70	107	0	107	237	1323	97	4
2	66	0	66	671	2	673	144	620	14	0
3	60	0	60	202	2	204	84	521	56	0
合計	735	8	743	3288	17	3305	2979	10053	1105	63
月平均	61	1	62	274	1	275	248	838	92	5

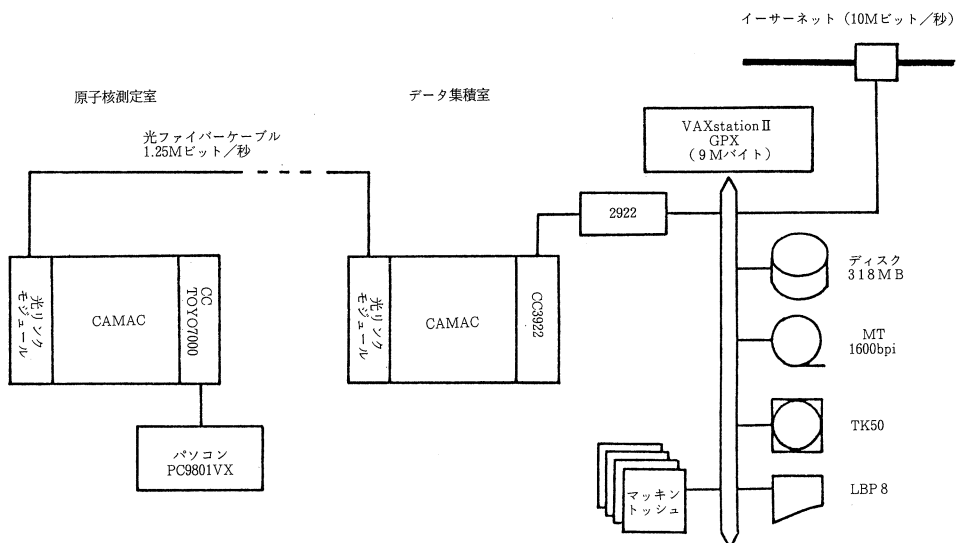
／秒) にスピードアップする改造を行った。このことにより当面の原子核関係の実験では、データの転送がネックになることはないものと思われる。

殆どの実験グループが今年度中にOKTAからVAXに移行する計画でおり、そうなると実験が終わった後のデータ解析を円滑に行うための環境を早急に整備する必要がある。今年度はそうした問題を中心に、オンライン・オフラインシステム全体の整備計画をどうするかについて検討していきたいと考えている。

第2表 昭和63年度・用途別利用実績表(2)。

(単位：時間)

機種	MicroVAX II	
	用途	CPU
月	利用時間	時間
4
5
6
7
8
9
10
11	9883	1491
12	8232	413
1	5154	11
2	729	326
3	7992	210
合計	31990	2451
月平均	6398	490



第1図 新しいオンライン・データ処理システム。

Ⅵ. 論 文 リ ス ト

論文リスト

核理研共同利用の成果を核理研研究報告以外の学術雑誌に掲載された論文（1988年1月～12月）の題目を収録しました。

I 原子核物理

1. Charge Number Dependence of π^+ in $^{12}\text{C}(\gamma, \pi^+)$ Reaction.
K. Shoda, S. Tōyama, M. Torikoshi, O. Sasaki and T. Kobayashi : Nucl. Phys. **A 486** (1988) 512.
2. Branching of π^+ Production from Nuclei by 200 MeV Electron.
K. Shoda, T. Kobayashi, O. Sasaki and S. Tōyama : Nucl. Phys. **A 486** (1988) 526.
3. Spin-isospin Transitions in $^{40}\text{Ca}(\gamma, \pi^+)^{40}\text{K}$ Reaction.
A. Kagaya, K. Shoda, K. Takeshita, T. Shimada, T. Kobayashi, and H. Tsubota : Abst. of 17th INS International Symposium on Nuclear Physics at Intermediate Energy (Tokyo, 1988) p.30.
4. $^{24}\text{Mg}(\gamma, \pi^+)^{24}\text{Na}$ Reaction near Threshold.
H. Tsubota, K. Shoda, O. Sasaki, S. Tōyama, T. Kobayashi, A. Kagaya, K. Takeshita and B. N. Sung : *ibid.* p.58.
5. Observation of the $\frac{1}{2}^+$ ^9Be State by the (e, π^-) Reaction.
T. Yamaya, S. Oh-ami, B. N. Sung, K. Shoda, A. Kagaya, K. Takeshita, T. Kobayashi, H. Tsubota and T. Shimada : *ibid.* p.80.
6. $^6\text{Li}(e, e' p)$ Coincidence Experiment.
M. Nomura, T. Tamae, T. Tadokoro, H. Matsuyama, M. Sugawara, H. Miyase, H. Tsubota and Y. Kawazoe : *ibid.* p.82.
7. Angular Distributions for the $^{12}\text{C}(e, e' n)^{11}\text{C}$ Reaction in the Giant Resonance.
T. Saito, S. Suzuki, K. Takahisa, T. Tohei, T. Nakagawa, Y. Kobayashi and K. Abe : *ibid.* p.84.
8. Out-of-Plane Measurement of the $^{65}\text{Cu}(e, e' p_0)$ Reaction in the Giant Resonance Region.
Y. Kawazoe, H. Miyase, H. Tsubota, K. Namai, A. Nomura, H. Kawahara,

- A. Tanaka, T. Tamae and M. Sugawara : J. Phys. Soc. Jpn. **57** (1988) 2869.
9. The ^{40}Ca ($e, e' p_0$) ^{39}K Coincidence Cross Section in the Giant Dipole Resonance Region.
A. Tanaka, T. Hino, H. Kawahara, M. Nomura, T. Tamae, M. Sugawara, H. Tsubota, H. Miyase and Y. Kawazoe : Nucl. Phys. A **489** (1988) 331.
10. Measurements of ^{10}B (γ, p) and ^{10}B (γ, pn) Cross Sections at $E_\gamma=66-103$ MeV.
T. Suda, T. Terasawa, I. Nomura, J. Yokokawa, T. Suzuki, Y. Torizuka, K. Maeda, O. Konno, J. Eden, G. O' Keefe, R. Rassool, M. N. Thompson and J. Kim : J. Phys. Soc. Jpn. **57** (1988) 5.
11. ^{12}C (γ, n) Cross Section from 30 to 100 MeV.
P. Harty, M. N. Thompson, G. O' Keefe, R. Rassool, K. Mori, Y. Fujii, T. Suda, I. Nomura, O. Konno, T. Terasawa and Y. Torizuka : Phys. Rev. **C37** (1988) 13.
12. The Analyzing Power of the ^{12}C (γ, p) Reaction Measured Using Tagged Polarized Photons.
J. Yokokawa, O. Konno, I. Nomura, T. Suda, T. Suzuki, T. Terasawa, Y. Torizuka, K. Maeda, J. Eden, D. McLean and M. N. Thompson : J. Phys. Soc. Jpn. **57** (1988) 695.

II 物性物理

1. Crystal Structures of $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-\delta}\text{A}_\delta\text{O}_{9-\gamma}$ (A=Ni, Zn & Co).
T. Kajitani, K. Kusaba, M. Kikuchi, Y. Shono and M. Hirabayashi : Jpn. J. Appl. Phys. **27** (1988) L354.
2. Temperature Dependence of Thermal Motion and Position of Hydrogen in KH_2AsO_4 Studied by Neutron Diffraction Structure Analysis.
M. Matsuda, N. Niimura, S. Kawano, A. Nonaka and N. Yamada : J. Phys. Soc. Jpn. **57** (1988) 3824.
3. Defects with Deep Levels in GaAs Induced by Plastic Deformation and Electron Irradiation.
T. Haga, M. Suezawa and K. Sumino : Jpn. J. Appl. Phys. **27** (1988) 1929.

4. Investigation of Midgap Defects in GaAs Induced by Heat-treatment (ELS), Electron-irradiation, and Plastic Deformation.

T. Haga, M. Suezawa and K. Sumino : Defects in Electronic Materials **104** (1988) 387.

III 放射化学

1. Revaluation of the Internal Standard Method Coupled with the Standard Addition Method Applied to Soil Samples by Means of Photon Activation.

K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. **121** (1988) 131.

2. Determination of Carbon in Copper by Photon Activation Analysis.

A. Yoshioka, K. Nomura, M. Takeya, K. Shimura, K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. **122** (1988) 175.

3. Determination of Several Trace Metals in Seaweed by Neutron Activation Analysis after Diethyldithiocarbamate Extraction and Polystyrene-foam Collection.

N. Suzuki, Y. Iwata and H. Imura : Int. J. Environ. Anal. Chem. **30** (1987) 289.

4. Substoichiometric Separation and Determination of Trace Metals.

N. Suzuki : J. Radioanal. Nucl. Chem. **124** (1988) 197.

5. Extraction of Uranium by Emulsion Liquid Membranes Containing β -Diketones and Tributyl Phosphate.

K. Akiba and J. Ohki : High Temp. Materials Processes **8** (1988) 21.

6. Recoil Behaviour of Central Metal Atoms in Cobalt and Zinc Phthalocyanine Mixed Crystals.

Y. Oki, H. Shoji and N. Ikeda : J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett. **126** (1988) 269.

7. 東北日本弧，第四紀玄武岩組成の水平変化.

中川 光弘, 霜鳥 洋, 吉田 武義 : 岩鉱 **83** (1988) 9.

8. みかぶ緑色岩帯の岩石化学 — 超苦鉄質岩類と苦鉄質火山岩との成因的關係 —

大貫 仁, 吉田 武義, 花松 俊一 : 地球 **10** (1988) 398.

9. 北上山地の前期白亜紀火成活動の特徴.
蟹沢 聰史・片田 正人 : 地球科学 42 (1988) 220.
10. Tholeiitic and Calc-alkaline Magma Series at Adatara Volcano, Northeast Japan.
A. Fujinawa : Lithos. 22 (1988) 135.

IV 加速器・測定器

1. SSTR-The 150 MeV Pulse Stretcher of Tohoku University.
T. Tamae, M. Sugawara, Y. Yoshida, O. Konno, T. Sasanuma, M. Muto,
Y. Shibasaki, T. Tanaka, M. Hirooka, K. Yamada, T. Terasawa,
S. Urasawa, T. Ichinohe, S. Takahashi, H. Miyase, Y. Kawazoe,
S. Yamamoto and Y. Torizuka : Nucl. Instrum. and Meth. A 264 (1988) 173.
2. 東北大学共用リング計画とその放射光利用.
新村 信雄 : 加速器科学 2 (1988) 13.

編 集 委 員

齋 藤 悌二郎 (委員長) 寺 沢 辰 生
新 村 信 雄 榊 本 和 義

核 理 研 研 究 報 告 第22卷 第1号

1989年6月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設
 仙台市太白区三神峯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
 仙台市青葉区立町24番24号
 TEL (263) 1166 (代)

RESEARCH REPORT OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

Volume 22 Number 1 June 1989

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