

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第 23 卷 第 1 号

1990 年 6 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

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

投 稿 規 定

1. 邦文の原稿はA4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23巻 第1号 目次

I 原子核物理

- I-1 A Study of Nuclear Medium Effects with ${}^6\text{Li}$ (γ_{tagged} , pp) Reactions below Pion Threshold. 1

(核理研, 教養部*, メルボルン大**, 理研***)

伊藤 祥子, 今野 収, 前田 和茂*, 松山日出人,
D. McLean**, 野村 和泉***, 須田 利美*, 菅原 康弘,
M. Thompson**, 寺沢 辰生, 横川 淳

- I-2 ${}^9\text{Be}$ (e, π^+) ${}^9\text{Li}$ * 反応による ${}^9\text{Li}$ の高励起状態の研究 8

(核理研)

竹下 邦和, 加賀谷 聡, 山崎 寛仁, 谷内 努,
庄田 勝房

II 物性物理

- II-1 電子伝導型超伝導酸化物の研究 15

(金研)

梶谷 剛, 平賀 賢二, 細谷 正一, 大石 克嘉,
菊地 昌杖, 庄野 安彦

III 放射化学

- III-1 錫金属中の微量炭素の光量子放射化分析 29

(三菱金属, 核理研*, 金研**)

吉岡 明, 川上 紀, 深谷 忠廣, 野村 紘一,
榎本 和義*, 八木 益男**

- III-2 高純度銅表面における微量炭素の光量子放射化分析 37

(三菱金属, 核理研*, 金研**)

吉岡 明, 川上 紀, 深谷 忠廣, 野村 紘一,
榎本 和義*, 八木 益男**

Ⅲ-3	北上山地, 田野畑累帯深成岩体の地球化学	45
	(金属鉱業事業団, 教養部*, 理学部地学**)	
	林 歳彦, 吉田 武義*, 青木謙一郎**	
Ⅲ-4	伊豆, 神津島火山噴出物の地球化学	66
	(大阪大学教育センター, 教養部*, 理学部地学**)	
	谷口 宏充, 吉田 武義*, 青木謙一郎**	
Ⅲ-5	ベントナイトへの放射性核種の吸着特性	88
	(選研)	
	三村 均	
Ⅲ-6	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(2)	
	-20, 30, 100MeV 照射におけるステンレス鋼中の残留放射能と	
	その生成断面積-	97
	(金研, 核理研*)	
	駒 義和, 三頭 聡明, 八木 益男, 榎本 和義*	
Ⅲ-7	ガンマ線による放射性廃棄物の消滅処理	107
	(サイクロ RI センター, 追手門学院*, 東大**, 動燃***)	
	山寺 亮, 程塚 正敏, 中村 尚司, 藤原 一郎*,	
	柴田 誠一**, 加瀬 健***	
IV 加速器・測定装置		
IV-1	電子線検出用垂直ドリフトチェンバー (VDC) (Ⅱ)	115
	(核理研, 教養部*)	
	田所 孝広, 八田 英之, 谷内 努, 高久 圭二,	
	松山日出人, 野村 昌弘, 今野 收, 玉江 忠明,	
	斎藤悌二郎, 菅原 真澄, 須田 利美*, 宮瀬 晴久*	
IV-2	パルスビーム・ストレッチャー RF 系の研究	121
	(核理研)	
	加藤 龍好, 小山田正幸, 浦澤 茂一, 中里 俊晴	
IV-3	コヒーレント放射光のスペクトル	131
	(科研, 工学部応用物理*, 核理研**)	

伊師 君弘, 柴田 行男, 高橋 俊晴, 三代 秀昭,
 蔦谷 努, 大坂 俊明, 池沢 幹彦, 近藤 泰洋*,
 小山田正幸**, 新村 信雄**, 浦澤 茂一**,
 中里俊晴**, 加藤 龍好**

IV-4 エネルギー分析電磁石によるパンチ圧縮の研究140

(核理研, 科研*工学部応用物理**)

中里 俊晴, 小山田正幸, 新村 信雄, 浦澤 茂一,
 加藤 龍好, 池沢 幹彦*, 大坂 俊明*, 柴田 行男*,
 伊師 君弘*, 蔦谷 努*, 高橋 俊晴*, 三代 秀昭*,
 近藤 泰洋**

V 加速器稼働状況, 放射線安全管理報告

V-1 平成元年度マシン報告149

(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 核理研における作業被曝(1976~88年度)について154

(核理研放射線安全管理室)

榎本 和義, 新村 信雄

VI 論文リスト163

Research Report of Laboratory of Nuclear Science
Volume 23, Number 1, June 1990
Contents

I Nuclear Physics	
I - 1	A Study of Nuclear Medium Effects with ${}^{6,7}\text{Li}(\gamma_{\text{tagged}}, pp)$ Reactions below Pion Threshold 1
	Sachiko Ito, Osamu Konno, Kazushige Maeda, Hideto Matsuyama, David McLean, Izumi Nomura, Toshimi Suda, Yasuhiro Sugawara, Maxwell Thompson, Tatsuo Terasawa and Jun Yokokawa
I - 2	${}^9\text{Be}(\gamma, \pi^+) {}^9\text{Li}^*$ Highly Excited States 8
	Kunikazu Takeshita, Akira Kagaya, Hirohito Yamazaki, Tsutomu Taniuchi and Katsufusa Shoda
II Material Science	
II - 1	Electron-Doping Type Ceramic Superconductors 15
	Tsuyoshi Kajitani
III Radiochemistry	
III - 1	Determination of Trace Amounts of Carbon in Tin Metals by Photon Activation Analysis 29
	Akira Yoshioka, Osamu Kawakami, Tadahiro Fukaya, Kouichi Nomura, Kazuyoshi Masumoto and Masuo Yagi
III - 2	Determination of Carbon Impurity in Surface Layers of a Pure Copper Metal by Photon Activation Analysis 37
	Akira Yoshioka, Osamu Kawakami, Tadahiro Fukaya, Kouichi Nomura, Kazuyoshi Masumoto and Masuo Yagi
III - 3	Geochemistry of the Tanohata zoned pluton in Kitakami Mountains, Japan 45
	Toshihiko Hayashi, Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki

III - 4	Geochemistry of Koze-Shima Volcano, Izu, Japan	66
	Hiromitsu Taniguchi, Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki	
III - 5	Absorption Properties of Radioactive Nuclides on Bentonites.....	88
	Hitoshi Mimura	
III - 6	A Study on the Radioactivities Included in Metallic Materials by Photon Irradiation (II)	
	-Residual Radioactivities Induced in Stainless Steels by Irradiating 20, 30, 60, 100 MeV Bremsstrahlung and their Formation Cross Sections	97
	Yoshikazu Koma, Toshiaki Mitsugashira, Masuo Yagi and Kazuyoshi Masumoto	
III - 7	Transmutation Study of Nuclear Waste by Using the Photofission	107
	Akira Yamadera, Masatoshi Hodozuka, Takashi Nakamura, Ichiro Fujiwara, Seiichi Shibata and Takeshi Kase	
IV Accelerator and Instrumentation		
IV - 1	Vertical Drift Chamber for Detecting Electrons (II)	115
	Takahiro Tadokoro, Hideyuki Hatta, Tsutomu Taniuchi, Keiji Takahisa, Hideto Matsuyama, Masahiro Nomura, Osamu Konno, Tadaaki Tamae, Teijiro Saito, Masumi Sugawara, Toshimi Suda and Haruhisa Miyase	
IV - 2	An RF System for the Pulse Stretcher	121
	Ryukou Kato, Masayuki Oyamada, Shigekazu Urasawa and Toshiharu Nakazato	
IV - 3	Spectrum of Coherent Synchrotron Radiation	131
	Kimihiro Ishi, Yukio Shibata, Toshiharu Takahashi, Hideaki Mishiro, Tsutomu Tsutaya, Toshiaki Ohsaka, Mikihiko Ikezawa, Yasuhiro Kondo, Masayuki Oyamada, Nobuo Niimura, Shigekazu Urasawa, Toshiharu Nakazato and Ryukou Kato	
IV - 4	Bunch Compression for Coherent Synchrotron Radiation	140

Toshiharu Nakazato, Masayuki Oyamada, Nobuo Niimura,
Shigekazu Urasawa, Ryukou Kato, Mikihiro Ikezawa,
Toshiaki Ohsaka, Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Tsutomu Tsutaya,
Toshiharu Takahashi, Hideaki Mishiro and Yasuhiro Kondo

V	Status Report on the Accelerator and the Radiation Safety	
V-1	Status of the Electron Linac	149
	Accelerator Group	
	Akira Kurihara, Sigekazu Urasawa, Tadahiro Onuma, Masayuki Oyamada, Yoshinobu Sibasaki, Sigenobu Takahashi, Toshiharu Nakazato, Masakatsu Mutoh	
V-2	Occupational Exposure in Laboratory of Nuclear Science (1976-1988)	154
	Radiation Safety Control	
	Kazuyoshi Masumoto and Nobuo Niimura	
VI	List of Publications	163

I. 原 子 核 物 理

A Study of Nuclear Medium Effects with ${}^{6,7}\text{Li}$ (γ_{tagged} , pp) Reactions below Pion Threshold

S. Ito, O. Konno, K. Maeda[†], H. Matsuyama,
D. McLean^{††}, I. Nomura^{†††}, T. Suda[†], Y. Sugawara,
M. Thompson^{††}, T. Terasawa, J. Yokokawa

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

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

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

^{†††} *The Institute of Physics and Chemical Research,
Hirosawa, Wako 351, Japan*

§1. Introduction

Recently, accurate measurements have been made for (γ , p) and (γ , pn) reactions in the photon energy region above the giant dipole resonance. The ${}^{6,7}\text{Li}$ (γ , p) reactions were measured¹⁾ at the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. Missing energy spectra are shown in Fig.1. The results show good agreement with a quasi-deuteron (QD)

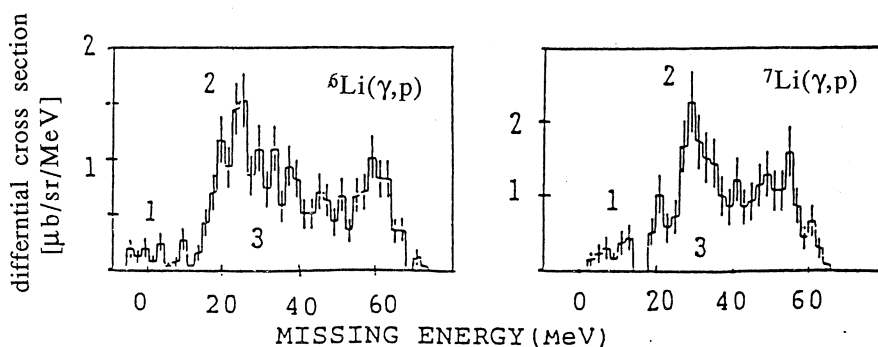


Fig. 1 The missing energy spectra for the ${}^{6,7}\text{Li}$ (γ , p)¹⁾. The three peaks (peak1, 2 and 3) come from the QFK process of the p-shell protons, the QFK process of the s-shell protons and the QD process, respectively.

calculation in the higher missing energy region, and with a quasi-free knockout (QFK) calculation in the lower missing energy region. The ${}^6\text{Li}(\gamma, pn)$ reaction was observed by M. W. Wade *et al.*²⁾ They obtained angular correlations between a proton and a neutron as shown in Fig. 2. A bump is seen at 180 degrees in the center of mass system of the two nucleons. They interpreted their observations in addition to the angular correlation as the results of the QD process. From such studies, one can get the momentum distribution of a proton in a nucleus from the QFK calculation, and one can study the correlation between nucleons in a nucleus from the QD process.

However, photonucleons must be affected and re-scattered by the other nucleons in the residual nucleus, that is, by the final state interaction (FSI). Approximately, it is described, for one nucleon emission reaction, as

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{exp.}} \cong \eta \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{non-FSI}}$$

where η is the transmission coefficient. This equation means that the measured cross section is equal to the cross section before re-scattering multiplied by η . For light nuclei, a value of about 0.5 is used. Though η is calculated from the imaginary part of the average optical potential, it must essentially depend on the reactions before the re-scattering. Therefore, we can't discuss exactly nuclear reactions which release nucleons from nucleus, until we comprehend the FSI completely.

In the (γ, p) reactions below the pion threshold, most of the cross sections are inter-

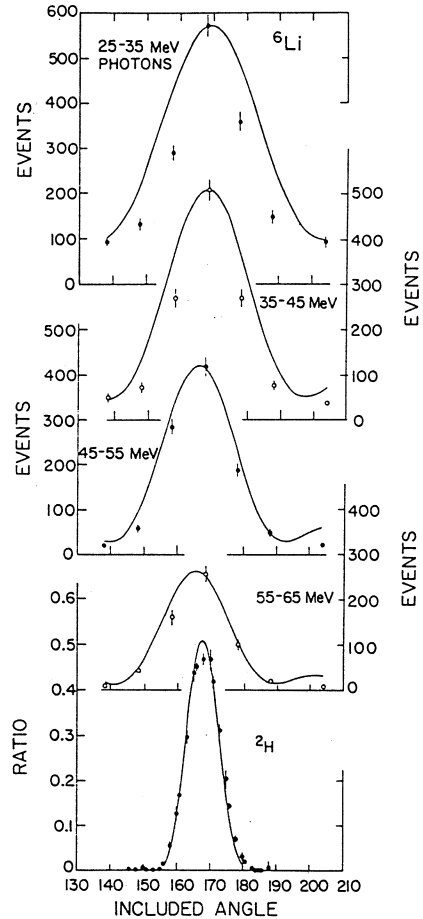


Fig. 2 The angular correlations between a proton and a neutron for the ${}^6\text{Li}(\gamma, pn)$ and ${}^2\text{H}(\gamma, pn)$ reactions²⁾.

preted as results from the (γ, p_0) reaction through a QFK process and the (γ, pn) reaction through a QD process. Further, the (γ, pp) reaction must be suppressed in an initial state of protons only, since it has no electric dipole moment. Consequently, with the (γ, pp) reaction, we can study the effects of the FSI after the QFK or QD process.

It is the purpose of this measurement to approach the reaction mechanism including the FSI by the observation of the (γ, p) , (γ, pn) and (γ, pp) reactions on ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$.

§2. Experimental Arrangement

The schematic diagram of the experimental arrangement is shown in Fig. 3. The measurements were performed by using the photon tagging system of the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. A 130 MeV incident continuous electron beam was generated from the linac and the pulsed beam stretcher (SSTR). Quasi-monochromatic photons whose energy were from 26 to 103 MeV were obtained by the photon tagging technique. The collimated photon beam had a size of about 40 mm at the target position. As the targets, we used a ${}^6\text{Li}$ enriched foil (weight purity $P_w=94.84\%$) with the thickness

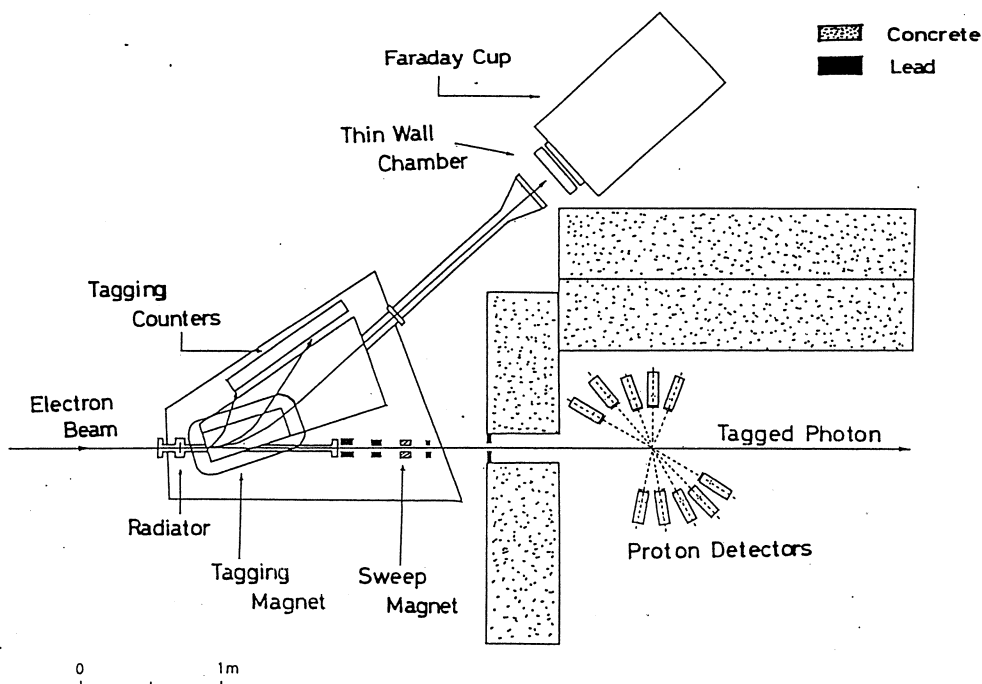


Fig. 3 The schematic diagram of the experimental arrangement.

of 209 mg/cm², and a ⁷Li natural foil ($P_w=93.59\%$) of 219 mg/cm². The proton detectors were $\Delta E-E$ scintillator telescopes, and their threshold energy for protons was about 20 MeV. The angular distribution of photoprotons was measured between 30 and 150 degrees. The proton detectors provided 1.04 sr solid angular acceptance. We measured the ^{6,7}Li (γ , pp) reactions for about 70 hours, each.

§ 3. Results

We analyzed the events induced by tagged photons of energies between 72 and 103 MeV, because of the proton detector threshold (~ 20 MeV) and the Q -values of the ^{6,7}Li (γ , pp) reactions (28.7 and 29.1 MeV for ⁶Li and ⁷Li, respectively).

The ^{6,7}Li (γ , pp) angular correlations between two detected protons were obtained (Fig. 4). We find the large bump at 180 degrees (the backward Θ_{pp}) in the center of mass system of the two protons in both of the ⁶Li and ⁷Li data. In addition, we can find (γ , pp) events at the forward Θ_{pp} ($\Theta_{pp} < 60$ degrees).

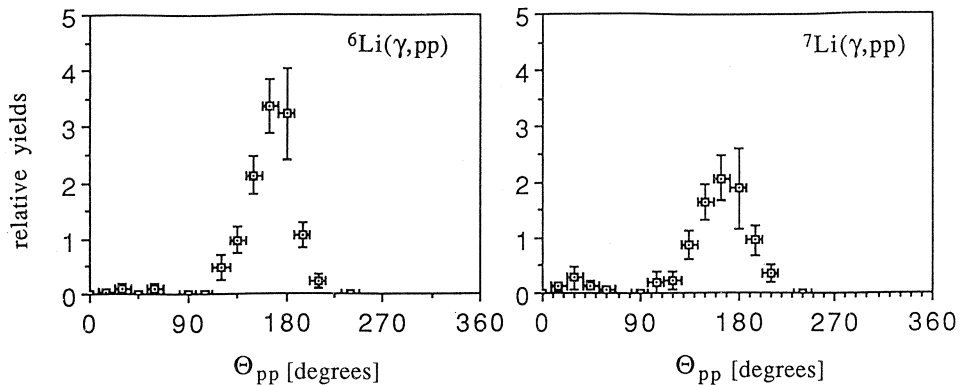


Fig. 4 The angular correlations between a proton and a neutron for the ^{6,7}Li (γ , pp). Θ_{pp} is the angle between two protons in the laboratory system.

We summed up yields between 90 and 270 degrees (the backward Θ_{pp} region) and between -90 and 90 degrees (the forward Θ_{pp} region). The results were shown in Table 1. The value in the backward Θ_{pp} region is 10 \sim 50 times as large as the value in the forward Θ_{pp} region.

Table 1. The sum of the (γ, pp) yields in the two angular regions.

Target	Angular Region	Relative yields
${}^6\text{Li}$	backward Θ_{pp}	10 ± 0.96
	forward Θ_{pp}	0.17 ± 0.086
${}^7\text{Li}$	backward Θ_{pp}	7.7 ± 0.99
	forward Θ_{pp}	0.57 ± 0.22

§ 4. Discussion

The contribution of the (γ, pp) reactions is very large in the backward Θ_{pp} region, though it is extremely small in the forward Θ_{pp} region. Then, we supposed the different reaction mechanisms for each region (see Fig. 5).

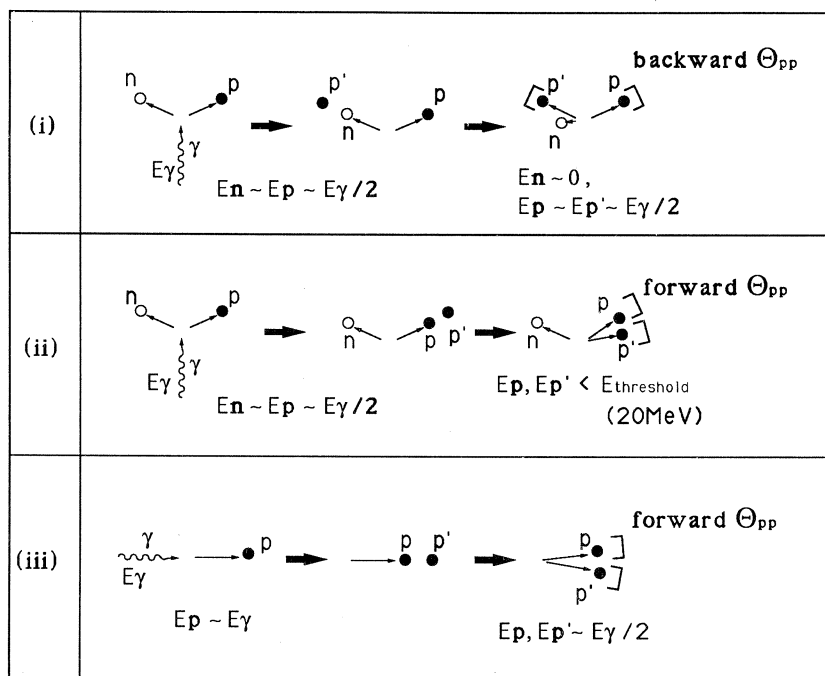


Fig. 5 The reaction mechanisms of the ${}^6,7\text{Li} (\gamma, pp)$ considered in the text.

- (i) the neutron re-scattering with a proton after the QD process.
- (ii) the proton re-scattering with another proton after the QD process.
- (iii) the proton re-scattering with another proton after the QFK process.

For the backward Θ_{pp} region, the pn pair absorbs the energy of the incident photon by the QD process first. The proton and the neutron get the opposite momentum and share

about a half of the incident photon energy each other. Next, the neutron is re-scattered with a proton in the residual nucleus. When the rescattered neutron energy is very small, the two protons can be detected at opposite directions. For the forward Θ_{pp} region, we can think the process in the same way. A proton of the pair is rescattered with another proton, and emitted together in close directions. But, in this measurement, we couldn't detect such events due to the proton detectors threshold. On the other hand, a proton in the nucleus absorbs the energy of the incident photon beam in the QFK process. Then this proton is re-scattered with the other proton in the residual nucleus. In such process, we can detect two protons with sufficient energies in the same direction.

Now, we can connect the (γ, pp) results with the (γ, p) cross sections. We think the QD region in the (γ, p) reaction corresponds to the backward Θ_{pp} region in the (γ, pp) reaction, and the QFK region to the forward Θ_{pp} region. We made a comparison of ${}^6\text{Li}$ with ${}^7\text{Li}$ in each region using the data of the (γ, p) and (γ, pp) reactions. The ratios of the cross sections of ${}^7\text{Li}$ to ${}^6\text{Li}$ are summarized in Table 2. The cross section for ${}^7\text{Li}$ is larger than for ${}^6\text{Li}$ in both region in the (γ, p) reaction, which represents the value before re-scattering as we assumed. On the contrary, the value of ${}^7\text{Li}/{}^6\text{Li}$ in the (γ, pp) reaction, which represents the values after re-scattering, show the different tendencies in the two regions. The cross section for ${}^7\text{Li}$ is larger than for ${}^6\text{Li}$ in the backward Θ_{pp} region, whereas ${}^6\text{Li}$ is larger than ${}^7\text{Li}$ in the forward Θ_{pp} region. This fact can not be understood by incorporating the same value of η for all assumed reaction channels.

From above results, we can consider that the effect of re-scattering is sufficiently different in each reaction. We could do the comparison by means of measuring and analyzing both of the (γ, p) and (γ, pp) reactions on ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$, the mass number of which are very close.

Currently, one has put the value of about 0.5 for the transmission

Table 2. The ratios of the cross sections of ${}^7\text{Li}$ to ${}^6\text{Li}$ for the (γ, p) and (γ, pp) reactions in the two regions discussed in the text.

	${}^7\text{Li}(\gamma, p)/{}^6\text{Li}(\gamma, p)$
QD region	~ 1.3
QFK region	~ 2
	${}^7\text{Li}(\gamma, pp)/{}^6\text{Li}(\gamma, pp)$
backward Θ_{pp}	0.75 ± 0.14
forward Θ_{pp}	3.3 ± 2.1

coefficient η , which represents the FSI, and treated this effect as the correction term. However, the ambiguity of η is not small for the accuracy of recent experimental results, and it is not realistic that the η is treated as a trifling correction. Our results show that we should treat the nuclear reaction with mature consideration about “ η ”, or we should include the FSI in the nuclear reaction process.

§ 5. Conclusion

In summary, the angular distributions for the ${}^{6,7}\text{Li}(\gamma, pp)$ reactions have been obtained in the photon energy range between 72 to 103 MeV. A large bump is observed in the backward Θ_{pp} region, whereas the promising events can be seen in the forward Θ_{pp} region.

We interpreted the (γ, pp) reactions in the two Θ_{pp} regions as the results of two different processes. One is the re-scattering after the QD process, and another is the re-scattering after the QFK process. The comparisons between ${}^7\text{Li}(\gamma, p)/{}^6\text{Li}(\gamma, p)$ and ${}^7\text{Li}(\gamma, pp)/{}^6\text{Li}(\gamma, pp)$ in the two processes showed the opposite tendencies to that expected with the same value of η for the (γ, p_0) and (γ, pn) reaction channels in ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$ nuclei.

Our results show the effects of re-scattering depend on the reactions. Consequently, it is necessary to treat the reaction mechanism including the FSI.

References

- 1) I. Nomura *et al.* : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **22** (1989) 13.
I. Nomura : Ph. D. Thesis, Tohoku Univ. (1989).
- 2) M. W. Wade *et al.* : Phys. Rev. Lett. **53** (1984) 2540.

${}^9\text{Be}(e, \pi^+){}^9\text{Li}$ 反応による ${}^9\text{Li}$ の高励起状態の研究

核理研

竹下邦和*・加賀谷聡**・山崎寛仁
谷内 努・庄田勝房

東北大学核理研では、低エネルギー領域 (π 中間子運動エネルギー50MeV以下)で終状態のレベルを特定した (e, π^\pm) 反応実験を行っている。 (e, π^\pm) 反応の π 中間子エネルギースペクトルは仮想光子理論を用いて (γ, π^\pm) 反応微分断面積に焼き直すことが出来る。このようなエネルギー領域での (γ, π^\pm) 反応はその反応演算子の特徴により原子核のスピン・アイソスピンモードをほぼ選択的に励起するという他の反応にはみられない著しい特徴を持っており、スピン・アイソスピン反転型遷移の研究の上で非常に有効な反応である¹⁾。 (γ, π^+) 反応の逆反応である (π^-, γ) 反応も同様の特徴を持っているが、(π^-, γ) 反応は原子核への運動量移行が一定であるのに対して (γ, π^+) 反応は π^+ 中間子の検出角度を変える事によって運動量移行を可変に出来るという特徴がある。このような特徴を活かした (γ, π^+) 反応による原子核の高励起状態の研究は今までに ${}^6\text{Li}$ ²⁾及び ${}^{12,13}\text{C}$ ³⁾について行われている。 ${}^{12,13}\text{C}$ については強い M2, M4 遷移が実験的に発見され、電子散乱、(π^-, γ) 等の実験及び DWIA による理論計算との比較、解析が行われており、その結果 ${}^{12}\text{C}$ と ${}^{13}\text{C}$ では同様の性質の準位が同様の準位間隔で存在しており、準位のシフトは pairing energy によって説明出来ることが示されている。又、 ${}^6\text{Li}$ についてはいくつかのスピン双極子状態 ($\Delta S=1, \Delta T=1, \Delta L=1$) が発見され、1p殻から 2s1d殻に遷移するモード (valence励起)の他に 1s殻から 1p殻に遷移するモード (core励起)が存在し、この2つのモードが単一粒子エネルギーの違いにより configurational splitting を起こしていることが確認されている。

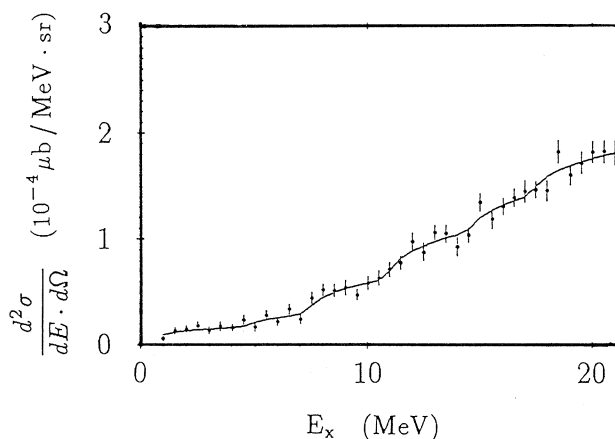
core励起の遷移強度は質量数の増加と共に弱くなることが予想される。本研究の目的は、 ${}^9\text{Be}(\gamma, \pi^+){}^9\text{Li}$ 反応を用いて ${}^9\text{Li}$ の高励起状態に存在すると考えられるスピン双極子状態を実験的に調べ、1p殻核におけるスピン双極子状態の性質を系統的に調べることである。 ${}^9\text{Li}$ の励起状態は実験例が乏しく、スピン・パリティの同定された準位は少なく、 ${}^9\text{Li}$ を残留核とするスピン双極子状態の実験例は (π^-, γ) 反応があるのみである⁴⁾。

*現 高エネルギー物理学研究所

**現 榊東芝

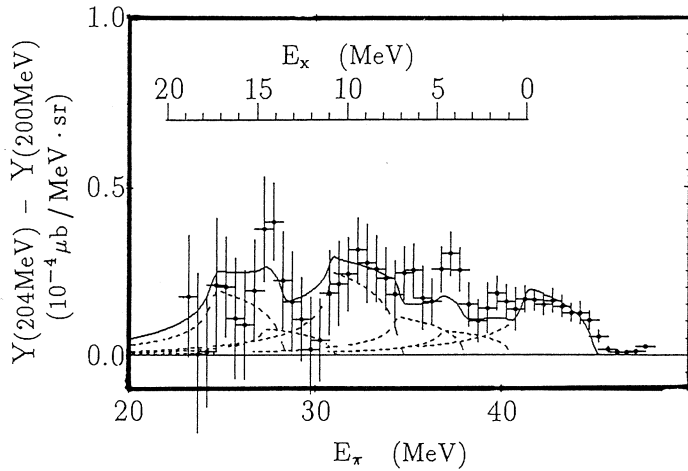
実験は東北大学の電子線型加速器からの電子線を用いて行われた。電子線を厚さ129mg/cm²の⁹Be標的に照射し、(e, π⁺)反応により放出されたπ⁺中間子は、磁気スペクトロメータ及びその焦点面上の多芯比例計数管によって運動量分析され、多芯比例計数管の後方に設置されたプラスチックシンチレータとチェレンコフカウンタからなるバックアップカウンタによって粒子識別される。入射電子エネルギーは204MeV、測定角度は30°, 60°, 90°, 120°, 150°の5点、測定エネルギー範囲は、残留核⁹Liの励起エネルギーで0 MeV~20MeVである。又、測定角度120°についてはphoton difference法による解析を行うために入射電子エネルギー200MeVによる測定も行った。

測定された(e, π⁺)反応エネルギースペクトルの例を第1図に示す。尚、図中の曲線は、解析によって得られた(γ, π⁺)反応微分断面積に計算によって得られた光子スペクトルを掛け合わせて得られた曲線である。



第1図 (e, π⁺)反応エネルギースペクトルの例(60°)。

得られたスペクトルは終状態を⁹Liに残すような過程によるπ⁺中間子の他にquasi-free process (QFP) (γ+⁹Be→π⁺+⁹Li+n)によるπ⁺中間子の寄与も考えられる。このようなQFPは終状態が3体以上になるためπ⁺中間子のエネルギースペクトルは連続となり(e, π⁺)反応スペクトルからこの寄与を評価することは困難である。そこで、測定角度120°については、準単色γ線による測定と同等の結果を得られるphoton difference法による解析を行った。結果を第2図に示す。尚、図中の曲線は、後述する解析によって得られた(γ, π⁺)反応微分断面積に計算によって得られた準単色光子スペクトルを掛け合わせて得られた曲線である。高励起エネルギー領域では反応微分断面積は0に近くQFPの寄与は無視できる量であ

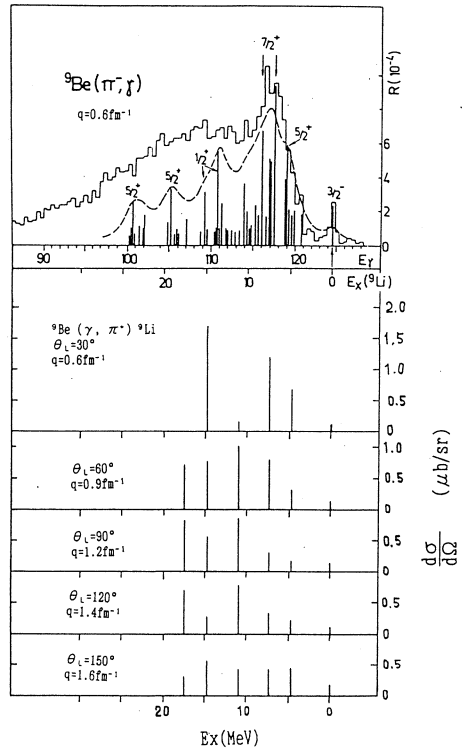


第2図 photon difference 法による解析結果。

る。QFPの寄与は大きな放出角度依存性を持つとは考えられないので、本解析では全ての角度においてQFPは無視できるとして以下に述べる方法で解析を行った。

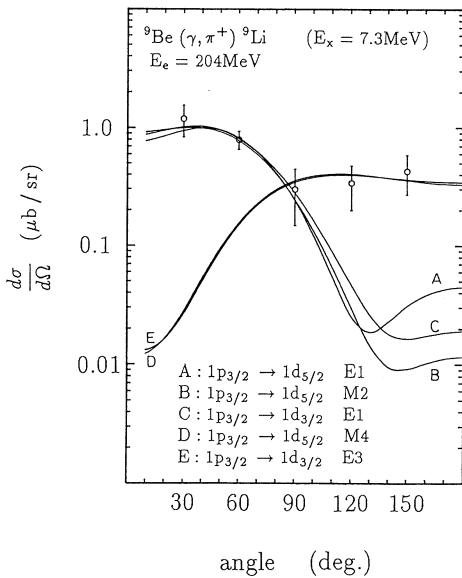
第一に、統計精度の悪い30度を除いた全ての角度の (e, π^+) エネルギースペクトラムを励起エネルギーをそろえて足し合わせ、励起エネルギーレベル及び (γ, π^+) 反応微分断面積をパラメータとして χ^2 -fittingを行い励起エネルギーレベルを決定し、次に、各角度については、励起エネルギーレベルを固定し反応微分断面積のみをパラメータとして、 χ^2 -fittingにより各レベルの反応微分断面積を求めた。本解析により決定された ${}^9\text{Li}$ の励起エネルギーは4.7, 7.3, 10.9, 14.6, 17.4 MeVである。尚、 χ^2 -fittingの励起エネルギーの初期値はphoton difference法による解析結果に見られるpeakの値を用いた。

得られた ${}^9\text{Be}(\gamma, \pi^+){}^9\text{Li}$ 反応の強度分布を、

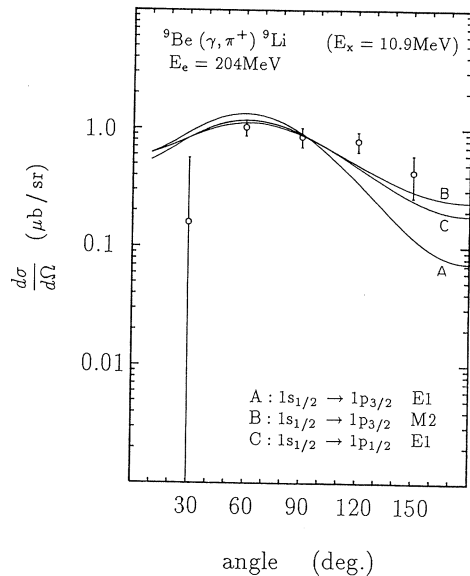


第3図 ${}^9\text{Be}(\pi^-, \gamma){}^9\text{Li}$ 反応エネルギースペクトル及び ${}^9\text{Be}(\gamma, \pi^+)$ 反応の強度分布。

${}^9\text{Be}(\pi^-, \gamma){}^9\text{Li}$ 反応エネルギースペクトル及びその Kissener 等による理論計算とともに第 3 図に示す。 (π^-, γ) 反応実験ではおおまかな構造しか見えないが、Kissener 等による (π^-, γ) 反応の理論計算と本研究で得られた準位を比較すると、ほぼ同様の励起エネルギーに準位が存在する。又、単一粒子殻模型による DWIA の理論計算との比較を行った。4.7MeV 及び 7.3MeV の準位は、後方では valence 励起による E3 又は M4 遷移の寄与がみられ、前方では同じく valence 励起による E1 又は M2 遷移によって角分布を良く再現する。第 4~5 図に計算結果の例を示す。尚、理論値は、適当に規格化してある。この様な DWIA の理論計算と



第 4 図 ${}^9\text{Be}(\gamma, \pi^+){}^9\text{Li}$ ($E_x=7.3\text{MeV}$) の微分断面積の角度分布及び単一粒子殻模型による DWIA の理論計算。

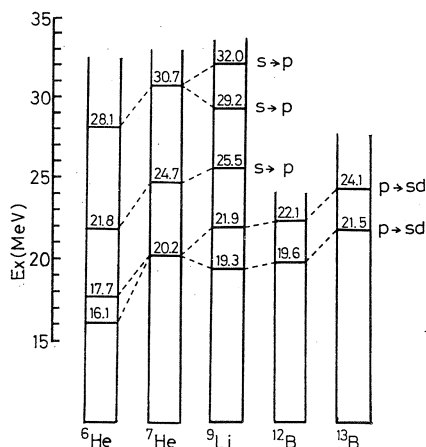


第 5 図 ${}^9\text{Be}(\gamma, \pi^+){}^9\text{Li}$ ($E_x=10.9\text{MeV}$) の微分断面積の角度分布及び単一粒子殻模型による DWIA の理論計算。

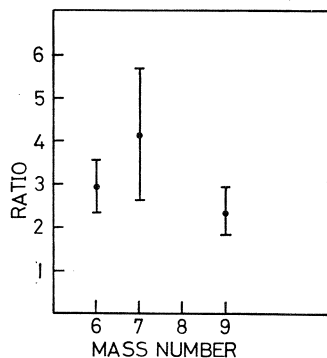
の比較によると 4.7MeV 及び 7.3MeV の準位は、1 p 殻から 2 s 1 d 殻への遷移による valence 励起、10.9MeV、14.6MeV の準位は 1 s 殻から 1 p 殻への遷移による core 励起による準位であると考えられる。次に ${}^6\text{He}$ 、 ${}^7\text{He}$ 及び ${}^{12}\text{B}$ 、 ${}^{13}\text{B}$ 原子核との比較を行う。第 6 図に ${}^6\text{He}$ 、 ${}^7\text{He}$ 、 ${}^9\text{Li}$ 、 ${}^{12}\text{B}$ 及び ${}^{13}\text{B}$ におけるスピン双極子状態の親核からの励起エネルギー分布を示す。 ${}^6\text{He}$ 、 ${}^7\text{He}$ 間には数 MeV のシフトがあるが、 ${}^7\text{He}$ と ${}^9\text{Li}$ は、励起エネルギー及び励起エネルギー間隔共に同じ傾向がありシフトは ${}^6\text{He}$ と ${}^7\text{He}$ の場合に比較して大きくない。又、何れの原子核においても、valence 励起は、親核からの励起エネルギー 20~50MeV 付近に集中している。

Kissener 等によると core 励起は $1s_{1/2}$ から $1p_{3/2}$ への遷移が主要であり、質量数が増すとと

もに core 励起の遷移強度は急激に減少し $1 p_{3/2}$ 殻が完全に詰まる ^{11}B では core 励起は見られない。 ^6Li , ^7Li 及び ^9Be についてのスピン双極子遷移の core 励起と valence 励起の反応微分断面積の比を第 7 図に示す。core 励起の遷移強度の急激な減少は見られず, Kissener 等は $1 s_{1/2}$ か



第 6 図 ^6He , ^7He , ^9Li , ^{12}B 及び ^{13}B におけるスピン双極子状態の親核からの励起エネルギー分布。



第 7 図 ^6Li , ^7Li 及び ^9Be についてのスピン双極子遷移の core 励起と valence 励起の反応微分断面積の比。

ら $1 p_{1/2}$ への遷移を過小評価していると考えられる。

$1 s_{1/2}$ から $1 p_{1/2}$ への遷移による core 励起の寄与を調べるために, $^{11}\text{B}(\gamma, \pi^+)$ 反応実験等が望まれる。

この様に (γ, π^+) 反応は原子核のアイソベクトル型スピン双極子状態の研究に適したプローブである。より正確な議論のためには, 実験的には単色 γ 線を用いた (γ, π^+) 反応実験, 理論的には正確な QFP の計算及び系統的でより現実的な波動関数等が望まれる。

更に (γ, π^+) 反応と同様に原子核のアイソベクトル型スピン双極子状態の研究に適した高エネルギーでの (n, p) , $(d, ^3\text{He})$ 反応実験等も望まれる。

参 考 文 献

- 1) M. K. Singham and F. Tabakin : Ann. Phys. **135** (1981) 71.
- 2) K. Shoda *et al.* Proc. Int. Symp. Weak and Electromagnetic Interaction in Nuclei, ed. H. V. Klapdor (Heidelberg 1986).

- 3) K. Shoda *et al.* : Phys. Rev. C **33** (1985) 2179.
- 4) J. C. Alder *et al.* : Proc. Int. Top. Conf. on meson-nuclear Physics (Pittsburgh, 1976)
P. 626.
- 5) H. R. Kissener *et al.* : Nucl. Phys. A **312** (1978) 394.

II. 物 性 物 理

電子伝導型超伝導酸化物の研究

金研

梶谷剛・平賀賢二・細谷正一
大石克嘉・菊地昌枝・庄野安彦

本研究は電子伝導型超伝導酸化物とされている $\text{Nd}_2\text{CuO}_{4-y}$ および Nd を La ないし Ge で部分的に置換した試料の結晶構造を中性子回折と X 線回折によって研究し, Nd の部分置換のもたらす構造上の変化を測定した。また 200K から 700K の範囲における電気抵抗測定を行った所電気抵抗の極少現象があることがわかった。

§1. 序

銅を含む超伝導酸化物はその電気伝導担体の差から, 正孔伝導型と電子伝導型とに分けることができる。本研究は 214 型ペロブスカイトの一種である $\text{RE}_{2-x}\text{Ce}_x$ (ないし Th_x) CuO_{4-y} , (ただし RE は Nd, Pr, Sm および Eu を指す) について, 結晶構造を中性子回折と X 線回折によって調べようとするものである。

これらの酸化物は十倉ら^{1,2)}と Markert と Maple³⁾によって相次いで発見されたものであり, 従来の正孔型超伝導酸化物では銅の形式電価が約 2.3 価になるのに対して, この系では 2 価よりも若干低くなると考えられている。この系の結晶構造は La 系 214 型酸化物の構造 K_2NiF_4 型と若干異っており, T' 相¹⁻³⁾と呼ばれるものであり, 正孔型化合物で共通に見られる CuO_6 八面体も CuO_6 ピラミッドも形成されていない。T' 相の結晶の RE^{3+} を Ce^{4+} ないし Th^{4+} で部分的に置換すると銅の形式電価が 2 価から置換量に応じて低下する筈である。置換量, x , が 0.15 から 0.18 の間の試料に超伝導転移起きる。ただし, 超伝導転移を起こすためには試料を若干還元して, さらに銅の形式電価を下げる必要がある。銅の形式電価の上下が本当の電価の上下を意味するのか否かは確認されていない。T' 相の酸化物が超伝導転移を起こす Ce ないし Th の置換量の範囲は La 系酸化物に比較して狭い。すなわち前者では $x=0.15$ から 0.18 であるのに対して後者では 0.09 から 0.19 までであり, 超伝導転移温度も Nd, Pr および Sm 系酸化物でそれぞれ 25, 20 および 17K 程度である。T' 相では銅原子は酸素が平面的に四配位した位置にあり, このような結晶構造上の特徴が電気伝導担体の差ないしは超伝導機構の差 (見掛け上の差である可能性も大きい) をもたらしているように見える。

本研究では、まず、粉末試料を用いて Nd 系酸化物の純粋状態と添加元素を加えた状態について中性子および X 線粉末回折実験を室温において行い、添加元素の与える結晶構造上の変化を検出しようとした。さらに室温から約1200K の範囲での格子定数の変化を X 線粉末回折によって調べ、構造相転移の可能性を探った。電気抵抗測定を200K から700K の範囲で行い、格子定数の温度変化に現れた折れ曲りが電気抵抗の極少現象と結びついていることを見出した。その後、単結晶試料を育成することに成功し、単結晶を用いた構造決定もできた。この結果についても簡単に報告する。

§2. 実験方法

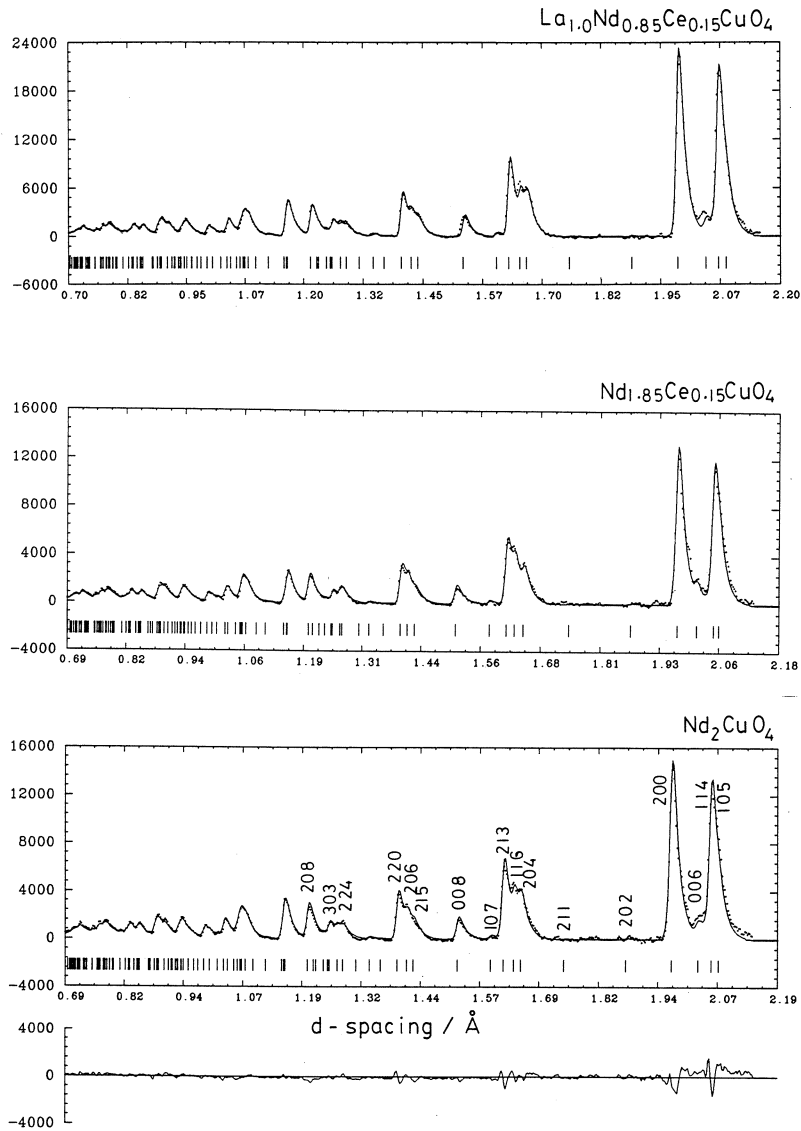
粉末状試料は原料酸化物を大気中にて反応焼結させて作成した。中性子粉末回折実験に用いた試料の組成は $\text{Nd}_2\text{CuO}_{4-y}$ 、 $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ と $\text{LaNd}_{0.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ である。X 線回折測定による格子定数/温度曲線の測定には $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ 、 $x = 0, 0.05, 0.10, 0.13, 0.15$ および 0.20 の試料を用いた。一方、単結晶試料の組成は $\text{Nd}_2\text{CuO}_{4-y}$ と $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ である。単結晶は赤外線式浮遊帯容融炉を用い、CuO フラックスによる Travelling-Solvent 法⁵⁾により大気圧の酸素気流中で育成された。育成された結晶は最大 $5\text{ mm} \times 7\text{ mm} \times 0.1\text{ mm}$ 程度の板状だった。この結晶を砕き、 $0.15\text{ mm} \times 0.20\text{ mm} \times 0.05\text{ mm}$ 程度の結晶片を得て X 線単結晶回折実験を行った。単結晶試料は大気中にて673K で1日から3日間焼鈍して酸素欠損を減らした。 $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ 試料についてはこれに加え、1173Kにて18時間5 N の Ar ガス気流中で焼鈍して急冷し、逆に酸素を部分的に還元した試料も用意した。

中性子粉末回折実験は本所の MARK20粉末回折装置を用いて行った。X 線粉末回折実験と X 線単結晶回折実験はそれぞれ PHILIPS-PW1700回折装置と RIGAKU-AFC 6 回折装置を用いて実施した。室温以上の温度での X 線粉末回折実験には通電加熱できる白金製試料台を用いた。中性子および X 線粉末回折強度分布の解析には Rietveld 法のプログラム TOF-LS⁶⁾ と RIETAN⁷⁾ をそれぞれ用いた。電気抵抗測定は四端子法にて行った。試料は固相反応によって作成した焼結ペレットを $3\text{ mm} \times 3\text{ mm} \times 7\text{ mm}$ 程度の大きさに形成し、白金線を銀ペーストにて接着した。電気抵抗測定は有効測定桁数6.5桁数の高精度デジタルボルトメーターを用いて行った。

§3. 実験結果

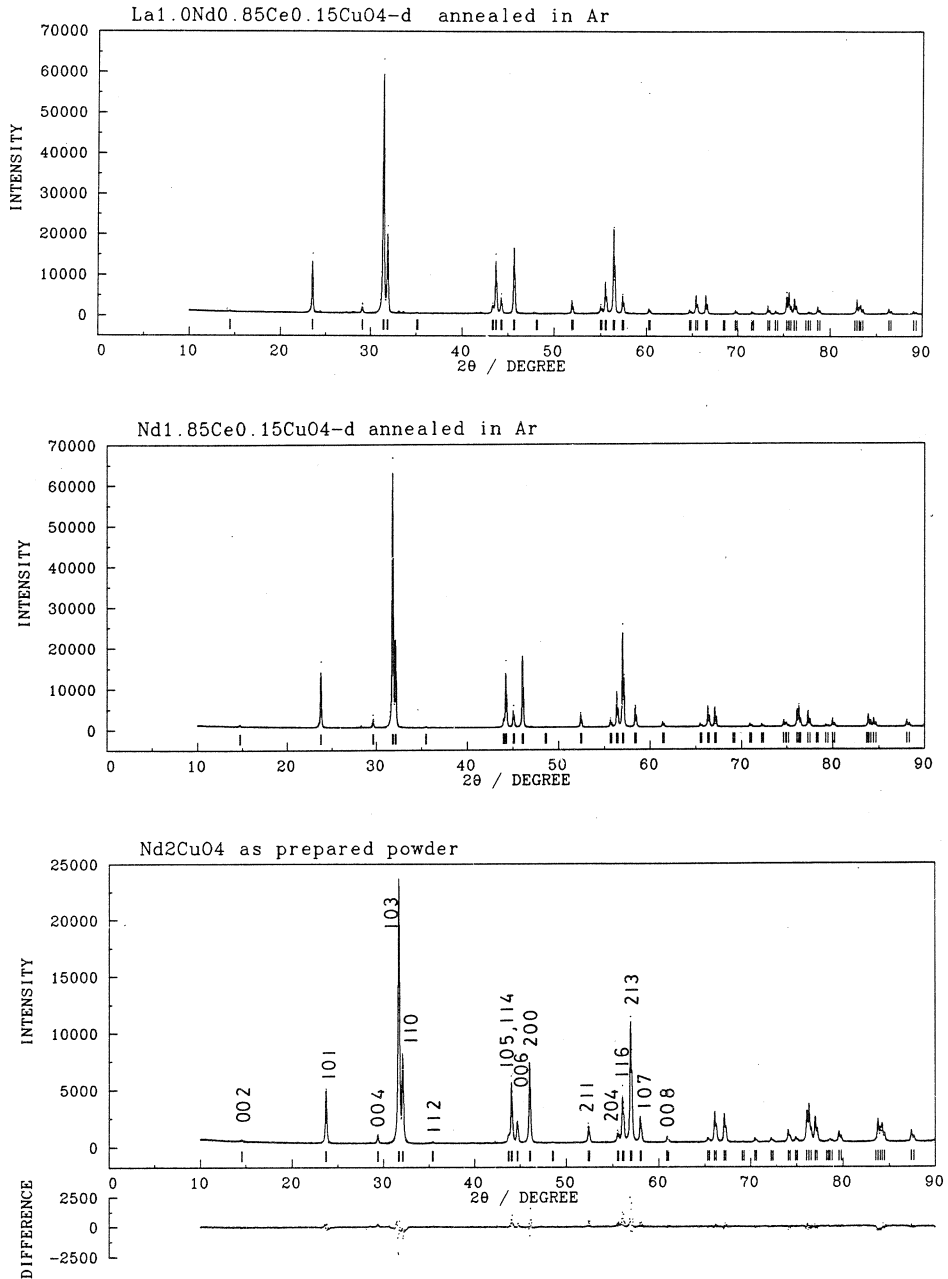
3.1 室温における粉末回折

第1と2図は本所で測定した $\text{Nd}_2\text{CuO}_{4-y}$, $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ および $\text{LaNd}_{0.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ の中性子回折強度分布と X線回折強度分布。中性子回折測定は散乱角 $2\theta = 150^\circ$, 60° , 30° および 15° にて行っているが第1図は $2\theta = 150^\circ$ のデータである。X線回折測定



第1図 MARK20回折装置によって測定された TOF 型中性子回折図形。測定は室温において行った。点は測定値、曲線は計算値である。

によって格子定数を決定し、さらに Nd (La および Ce も同位置) の座標, $4e(00z)$, $Z=0.35$ を決定した。温度因子 $B=8 \pi^2 \langle u^2 \rangle$, は中性子回折測定データによって決定した。決定した値を第1表に示した。



第2図 中性子回折に用いた試料のX線粉末回折図形。

第1表 Structural Parameters of Powder Samples。

	Nd ₂ CuO ₄ as prepared	Nd _{1.85} Ce _{0.15} CuO ₄ annealed in Ar	La _{1.0} Nd _{0.85} Ce _{0.15} CuO ₄ annealed in Ar
Nd/Ce/La 4 e (0 0 z)	z=0.3530 (4) B=0.53 (9) Occ.=1.0/0/0	0.3535 (4) 0.73 (10) Nd/Ce 0.925/0.075	0.3527 (4) 0.33 (10) Nd/Ce/La= 0.425/0.5/0.075
Cu 2 a (0 0 0)	B=0.41 (15)	0.64 (15)	0.48 (16)
O ₁ 4 c (0 ½ 0)	B=0.91 (13) Occ.=1.00 (4)	1.42 (15) 1.02 (2)	0.92 (14) 1.00 (2)
O ₂ 4 d (0 ½ ¼)	B=0.81 (14) Occ.=1.05 (2)	0.61 (14) 1.00 (4)	0.87 (26) 1.02 (2)
a (Å)	3.9419 (1)	3.9466 (1)	3.9782 (1)
c (Å)	12.1627 (3)	12.0864 (3)	12.2899 (4)
Residuals (R _B)			
X-ray	0.083	0.095	0.058
ND			
2 θ=60°	0.056	0.048	0.041
2 θ=150°	0.097	0.090	0.039

CeないしLaをNdと置換できるか否かが、研究の当初問題だったが粉末回折の結果、間違いなくNdはLaやCeによって置換され、CuはLaやCeと置換しないことがわかった。決定された結晶学パラメーターにはCeやLaの添加による格子定数の変化があるものの目立った差が見られない。

Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}の試料は25K以下で超伝導転移を起こすがこの試料のCu, 2a(0 0 0)とO₁, 4c(0 ½ 0)の温度因子B, が他の試料よりも有意に大きい。温度因子, $B = 8 \pi^2 \langle u^2 \rangle$, ないし平均2乗振幅 $\langle u^2 \rangle$ が大きいという事は次のふたつの可能性を示している。即ち、実際にCuとOの熱振動振幅が大きいという可能性とCuとOの座標に局所的な「乱れ」があり、温度因子にそのような「乱れ」による付加的な項が付け加わった可能性である。もしも、後者の「乱れ」に温度依存性がないならば試料温度を変えて測定を繰返す事で熱振動振幅を評価できるため「乱れ」による項も評価できるがSoft-phononの存在すら予想されるような本件の場合、結晶の「乱れ」に温度依存性がある可能性も高く、正確な評価はむづかしい。

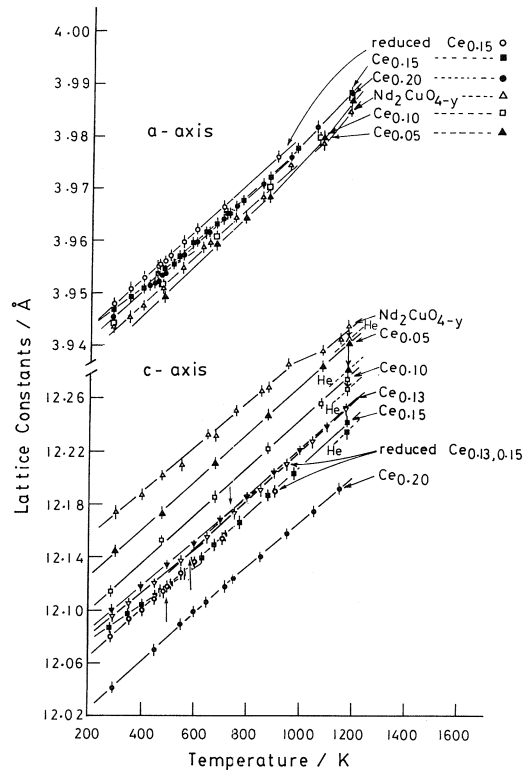
いずれにしても粉末回折実験から得られた示唆、即ち、Nd系超伝導酸化物におけるCu-O面内の温度因子が非超伝導体よりも大きく、超伝導転移の発現にはCu-O面の多少の乱れが必要である可能性がある。

3.2 室温から1200Kまでの格子定数変化

第3図は測定結果を示す。大部分の測定は大気中で行なったが1173K (900°C)において高純度、6N、Heガス雰囲気中に置いてin-situの状態です試料の部分還元を行った後の格子定数も示した。図中の「He」という表示はそれを示す。Nd_{1.87}Ce_{0.13}CuO_{4-y}とNd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}の試料については焼結材と1173KにてArガス中で部分還元した試料の双方について測定を行った。

測定の結果、Nd₂CuO_{4-y}試料のC軸は900K以上で一旦縮むことがわかった。これは結晶中の酸素が一部脱離することによる。NdをCeで一部置換した試料を1173KにおいてHe中で焼鈍すると一部酸素が脱離し、同じようにC軸が縮む。

Nd_{1.87}Ce_{0.13}CuO_{4-y}とNd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}の試料の300Kから900Kの範囲でC軸長の温度変化曲線に折れ曲りがあることがわかった。Ce_{0.13}の場合、焼結直後の状態では750±10K、Arガス中で部分還元した状態では600±10Kに折れ曲りがあり、Ce_{0.15}の場合は焼結直後の試料にだけ500±10Kに折れ曲りが見られる。X線粉末回折強度分布にはこの折れ曲りの温度前後で回折ピークの分裂のような目立った変化が見られないことから、この折れ曲りは結晶構造転移によるものではないと考えられる。このC軸の折れ曲

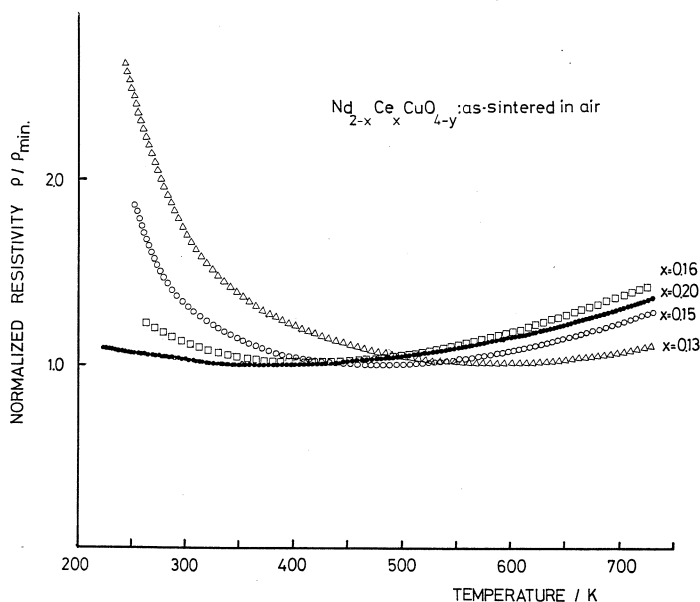


第3図 X線粉末回折測定によって決定したNd_{2-x}Ce_xCuO_{4-y} x=0~0.2の室温から1173Kまでの格子定数。x=0.13と0.15の試料のC軸長変化に折れ曲りが見られる。Heと記したものは高純度(6N)Heの中で焼鈍した後の値を示す。

り現象に対応した変化が電気抵抗に現れることを期待して次の測定を行った。

3.3 電気抵抗測定

焼結直後の試料を用い200K から700K までの範囲で N_2 ガス雰囲気中にて電気抵抗測定を行った。第4図にその結果の一部を示す。各曲線はそれぞれの最小値で規格化してある。図中の電



第4図 $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$, $X=0.13\sim 0.16$ の焼結直後の試料の200Kから700Kまでの電気抵抗。各曲線はそれぞれの最小値（極少値）で規格化してある。C軸長に折れ曲りが見られる温度で電気抵抗が極少状態になる。

気抵抗温度曲線は皆中央部で低く、両端で高い凹形をしている。また各曲線の極少点は同一温度にはなく、Ce濃度が増加すると低温側に移動する。このように電気抵抗が室温程度の温度で極少になる現象は比較的多くの酸化物結晶に見られており、その代表的なものは $TiO_{1\pm x}$, $x < 0.25^8)$ である。この電気抵抗の極少現象と前節で示したC軸長の温度変化曲線の折れ曲り現象はほぼ対応している。

C軸の折れ曲り、ないしは電気抵抗の極少が起きる温度前後の温度でもX線粉末回折図形に変化が見られず結晶構造の変化を伴う変化ではないことがわかっているため $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$ 結晶における電気抵抗極少現象も $TiO_{1\pm x}$ の場合と同じく温度低下に伴う電気伝担導体（キャリア）の局在化による転移、いわゆる Mott-Hubbard 転移に近いものである可能性が高い。この電気抵抗の極少温度を仮に金属/半導体転移温度と呼ぶことにする。この転移温度を

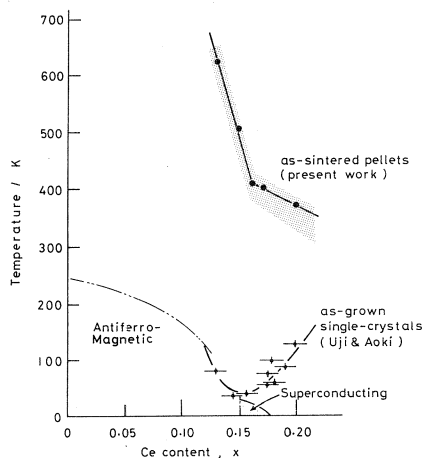
状態図中に書き込んだものが第5図である。図中に加えた影の部分は電気抵抗がそれぞれの試料の極少値よりも高いが1%以内の差しかない温度領域を示す。転移温度はCe濃度に対して直線的に変化するのではなく、 $Ce_{0.15}$ 以下では急に、それ以上ではゆるやかに減少している。つまり、超伝導転移の起きる領域ではゆるやかに変化し、Ce濃度がその領域よりも低い領域では急に半導体になり易くなっている。金属/半導体転移温度は試料中の酸素量を減らし電気伝導担体を増やせば低下する筈であり、Ar中にて焼鈍した $Ce_{0.15}$ から $Ce_{0.20}$ までの試料には4Kにいたるまで電気抵抗の極少状態は存在しないことがわかった。図中に最近UjiとAoki⁹⁾によって公表された Nd_{2-x}

Ce_xCuO_{4-y} 単結晶試料のC面に平行な方向での電気抵抗が極少になる温度も加えた。UjiとAokiの試料はCuOフラックスを用いてルツボ中で育成されたものであり、結晶化温度から室温まで放冷されたため含有酸素量は焼結ペレットよりも若干低い筈である。本研究で得た金属/半導体転移温度との差は試料中の酸素量の差によると考える。

3.4 X線単結晶回折測定

$Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$ およびその他の系のT'相の単結晶を用いた構造解析が現在進行中であり、興味深い知見が得られている。本稿ではその一部を紹介する。

第2表は本研究によって決定した Nd_2CuO_{4-y} と $Nd_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$ の結晶学パラメーターである。実験に用いた単結晶の対称性について、 $h+k+l \neq 2m$, $\frac{1}{2} \frac{1}{2} n$, $\frac{1}{4} \frac{1}{4} n$ あるいは $\frac{1}{2} 0 n$, $n=0, 1, 2 \dots$ 等の反射強度を捜したが $h+k+l=2n$ 型の反射強度だけが統計的に意味のあるものだった。第2表に示した結晶学パラメーターを用いて Nd_2CuO_{4-y} 格子模型(ORTEP図)を描いたものが第6図である。図中の原子の大きさはそれぞれの原子の熱振動振幅 u_{ij} に基いている。図中の金属原子はほぼ等方的な振動振幅をもっているのが球に近い型をしている。一方Cu-O面内の酸素 O_1 , $4C(0 \frac{1}{2} 0)$ はかなり縦長、(つまり u_{33} が大きい)になっており、この原子はCu-O面から多少上下方向に「逃げた」方が安定化する可能性がある。 $Ce_{0.17}$ 試料の大气中での焼鈍材における O_1 の u_{ij} を見ると u_{33} は Nd_2CuO_{4-y} よりも小さく、



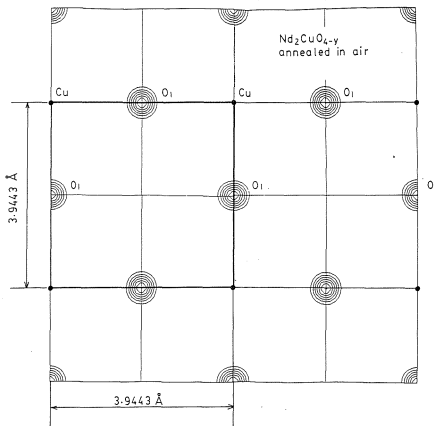
第5図 電気抵抗の温度変化曲線から求めた金属/半導体転移温度のCe濃度依存性の影の部分は電気抵抗が各々の試料における極少値と1%以内の差しかない領域を示す。

第2表 Structural Parameters of Single-Crystals.

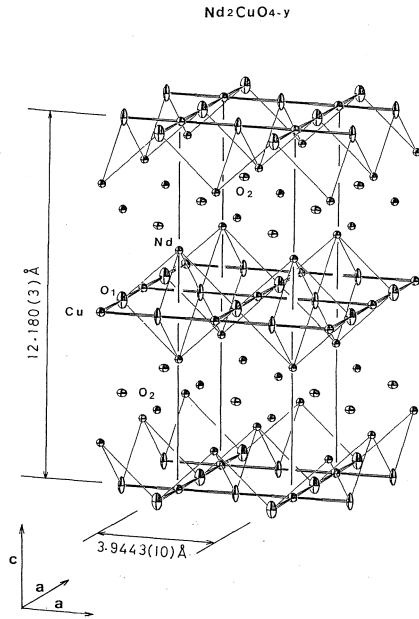
	Nd ₂ CuO ₄ annealed in air	Nd _{1.83} Ce _{0.17} CuO ₄ annealed at 400°C in air	Nd _{1.83} Ce _{0.17} CuO ₄ annealed in Ar gas
Nd/Ce	z=0.35126 (2)	0.35234 (3)	0.35231 (5)
4 e (0 0 z)	u ₁₁ =u ₂₂ =0.075 (1) Å ²	0.0060 (1)	0.0057 (2)
	u ₃₃ =0.0063 (1) Å ²	0.0029 (1)	0.0097 (2)
	B=0.561	0.392	0.553
Occ. (Nd/Ce)	1.0/0.0	0.915/0.085	0.915/0.085
Cu	u ₁₁ =u ₂₂ =0.0089 (3)	0.0051 (5)	0.0050 (6)
2 a (0 0 0)	u ₃₃ =0.0078 (3)	0.0118 (5)	0.0156 (7)
	B=0.67	0.58	0.67
O ₁	u ₁₁ =0.007 (1)	0.001 (2)	0.002 (2)
4 c (0 ½ 0)	u ₂₂ =0.005 (1)	0.030 (3)	0.009
	u ₃₃ =0.032 (2)	0.011 (2)	0.022 (3)
	B=1.16	1.08	0.85
	Occ.=1.00 (2)	1.00 (2)	0.98 (2)
O ₂	u ₁₁ =u ₂₂ =0.008 (1)	0.005 (1)	0.007 (2)
4 d (0 ½ ¼)	u ₃₃ =0.008 (1)	0.017 (2)	0.023 (3)
	B=0.63	0.71	0.96
	Occ.=1.03 (2)	1.00 (2)	1.00 (2)
a (Å)	3.9443 (10)	3.9389 (8)	3.9431 (1)
c (Å)	12.180 (3)	12.062 (4)	12.050
Reflections	1102	1122	1099
(uniques)	(260)	(242)	(223)
R _f	0.052	0.060	0.071
R _{wf}	0.045	0.068	0.075

これは Ce 添加によって電子が供給された結果 Cu と O_1 との結合が強くなった事を示唆しているものと考えている。Ar 中で焼鈍して部分還元すると u_{22} は減少するので Cu-O 結合は若干弱くなっているようである。

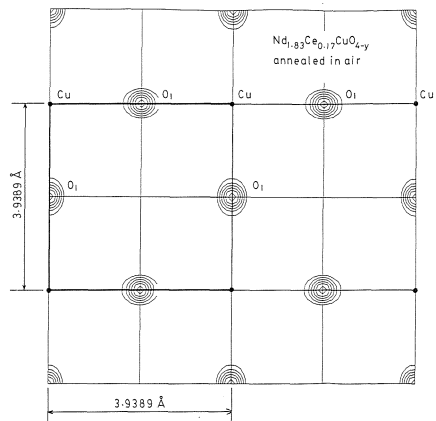
このような振幅に関する議論は結晶構造が複雑で決定すべきパラメーターが多数ある場合には不正確になってしまうが幸運な事に T' 相の構造は単純であり、その分だけ決定されたパラメーターの精度は高いものと思われる。このような振幅に関連した議論は調和振動を仮定して決定する u_{ij} を通じて行うよりもフーリエ合成法によって結晶中の電子分布を再構成して確認した方が、直接的にわかり易い。第 7, 8 図および 9 図は酸素原子を対象としたフーリエ差合成図であり、Cu-O 面内の酸素（正確には酸素に属する電子）の分布を示している。



第 7 図 X 線単結晶回折測定強度を再合成して作った Nd_2CuO_{4-y} の Cu-O 面におけるフーリエ差合成図。金属原子, Nd と Cu, による散乱強度を差し引いて再合成を行った。



第 6 図 X 線単結晶回折測定によって決定した結晶学パラメーターを基に描いた Nd_2CuO_{4-y} の ORTEP 図。



第 8 図 $Nd_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$ 試料を空气中で充分焼鈍した後の状態での Cu-O 面のフーリエ差合成図。酸素（に属する電子）の形が Cu 原子の方向に伸びている。

図中の太線が単位胞に対応している。図には u_{ij} に関して議論した内容に沿った変化が現れている。

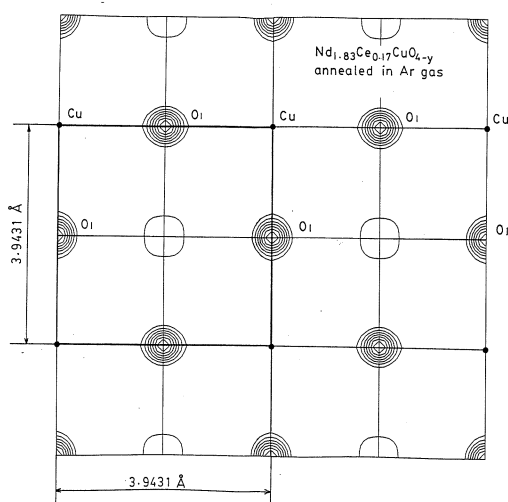
§ 4. 討論と結論

Nd 系 214 型超伝導酸化物の研究は粉末回折実験を起点として、電気抵抗測定、単結晶回折実験へと進んできた。

Nd 系 214 型酸化物の結晶構造は比較的安定であり、Nd の約半分を La と置換場合にも保たれ、Ce を添加したり、さらにその試料を部分的に還元しても保たれることが粉末回折実験と単結晶回折実験によってわかった。

室温から約 1200K までの範囲で $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ $x=0\sim 0.20$ の試料の格子定数を X 線粉末回折測定によって調べた所 $\text{Ce}_{0.15}$ 付近の Ce 濃度をもつ試料の C 軸長の温度変化曲線に折れ曲りが見い出された。この折れ曲りの起きる温度前後でも X 線粉末回折強度分布には構造相転移を示唆するような変化が現れなかった。従って C 軸長の温度変化に現れた折れ曲りは結晶中の原子の結合状態の変更によるものである可能性が高く、電気抵抗にその変化と対応する変化が現れるものと考えて電気抵抗測定を行った。測定の結果 C 軸長の温度変化に異常が起きる温度付近で電気抵抗が極少になる事がわかった。また、部分還元した試料では C 軸長の温度変化に異常が起きる温度も低下した。このような電気抵抗が極少になる現象は $\text{TiO}_{1\pm x}$ 等にも見られ、Nd 系超伝導酸化物の電気伝導機構は $\text{TiO}_{1\pm x}$ のそれとかなり似たものである事が示唆された。

Nd 系酸化物の結晶構造に与える Ce 添加や酸素の部分還元効果を単結晶を用いた結晶構造解析によって調べた。Ce 添加によって Cu-O 面内の酸素の振動振幅 u_{22} と u_{33} とが変化する。これは Ce 添加による Cu-O 結合の強化と結びついた変化である事がフーリエ差合成で見た酸素の分布状態の変化から良く理解できた。Ce 添加後部分還元すると Cu-O 結合は若干緩むように見受けられ、フーリエ差合成図上の酸素の形も丸味を帯びる。このような状態の結晶の電気抵抗が室温においても一番低くなる事から、電気伝導担体は Cu-O 間の化学結合がある程度



第 9 図 $\text{Nd}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ 試料を 900°C において Ar 中で焼鈍した後の Cu-O のフーリエ差合成成分。酸素の形が少し大きくなると共に丸味を取り戻している。

強くなければいけないが、各結合手に余り強く拘束されない方が容易に動き廻る事ができるので電気抵抗が低くなるものと考えられる。

本研究の完成後行った粉末中性子回折実験¹⁰⁾によって部分還元によって失なわれる酸素はCu-O面内のものである事が確認された。しかし第2表に示した結晶学パラメーターからもそれが示唆される。第3表は第2表中のパラメーターから計算した隣接原子間距離である。Ce添加や部分還元によって変化するのは主にNd/Ce-O₁, Cu-Nd/CeおよびNd/Ce-Nd/Ce間距離である。これらの変化はCe添加や部分還元によってCu-O面とNd (Ce) -O₂-Nd (Ce) 2重層との距離が縮む事を示し、Nd (Ce) -O₂-Nd (Ce) 2重層はほぼ不変である。この事からも部分還元によるCu-O面内の酸素がNd/Ce-O 2重層の中の酸素よりも不安定で脱離し易いことが理解できる。

第3表 Interatomic Distance (Å)_c

Atom Pair	Nd ₂ CuO ₄	Nd _{1.83} Ce _{0.17} annealed in air	Nd _{1.83} Ce _{0.17} annealed in air
Nd/Ce-O ₂	2.326 (1)	2.324 (4)	2.330 (4)
Nd/Ce-O ₁	2.678 (1)	2.655 (4)	2.652 (4)
Cu-O ₁	1.972 (1)	1.969 (1)	1.972 (2)
Cu-Nd/Ce	3.326 (2)	3.306 (2)	3.305 (7)
Nd/Ce-Nd/Ce	3.623 (1)	3.562 (1)	3.549 (4)

なお、以上述べた研究の成果は文献¹¹⁾として公表する。

本研究は科学研究費補助金、重点領域研究“超伝導発現機構の解明”によって研究費の補助を受けたものである。

参 考 文 献

- 1) Y. Tokura, H. Takagi and S. Uchida : Nature **337** (1989) 345.
- 2) H. Takagi, S. Uchida and Y. Tokura : Phys. Rev. Lett. **62** (1989) 1197.
- 3) J. T. Markert and M. B. Maple : Solid State Commun. **70** (1989) 145.
- 4) Y. Saito, T. Nozi, A. Endo, N. Matsuzaki, M. Katsumata and N. Higuchi : Jpn. J. Appl. Phys. **26** (1987) 1491.
- 5) S. Kimura and I. Shindo : J. Cryst. Growth **41** (1977) 192.
- 6) R. B. Von Dreele, J. D. Jorgensen and C. G. Windsor : J. Appl. Cryst. **15** (1982) 581.
- 7) F. Izumi : J. Cryst. Soc. Jpn. **27** (1985) 23.
- 8) S. P. Denker : J. Appl. Phys. **37** (1966) 142.
- 9) S. Uji and H. Aoki : Proc. LT19 (submitted) to be published in Physica B.
- 10) K. Oh-Ishi, T. Kikuchi, Y. Syono and T. Kajitani : Physica C (to be submitted)
- 11) T. Kajitani, K. Hiraga, S. Hosoya, K. Oh-Ishi and M. Kikuchi : Physica C (in press)

Ⅲ. 放 射 化 学

錫金属中の微量炭素の光量子放射化分析

三菱金属, 核理研*, 金研**

吉岡 明・川上 紀・深谷忠廣

野村紘一・榎本和義*・八木益男**

Trace amounts of carbon in tin metals have been determined by photon activation analysis using the $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ reaction. In order to avoid contamination of the carbon and melting of the sample during irradiation, preparation and bremsstrahlung irradiation of the sample were carried out cautiously. Chemical separation of the carbon as CO_2 was performed by the combustion method in an oxygen stream at 1350°C . The CO_2 gas was collected by passing through a double trap containing $\text{NaOH}-\text{BaCl}_2$ mixed solution, and precipitated finally as BaCO_3 to measure the positron annihilation gamma-rays. As a result, it was demonstrated that the trace amounts of carbon can be determined accurately, precisely and favourably.

§1. はじめに

一般に錫の製錬法は、原料の錫石 SnO_2 を炉中で炭素還元して粗錫を製造し、さらに粗錫を電解精製して高純度錫を得る工程からなっている。この電解処理で錫とそれに含まれる不純物は分離され、純度97%の錫は99.99%以上に精製される。精製工程における不純物の挙動については文献^{1,2)}に一部報告されているが、炭素不純物については全く報告されていない。錫に対する炭素の溶解度については以前 Ruff ら³⁾により、沸騰状態の錫に極微量の炭素が溶解し、冷却によってグラファイトとして析出すると報告されているが、その詳細は不明である。

一般に錫に含まれる炭素は微量であると従来は考えられており、その分析においてはより一層の炭素汚染の除去や検出限界の改善などが必要となる。燃焼法を用いた錫中の炭素分析法では、Revin ら⁴⁾は空中浮揚融解により、るつぼからの炭素汚染によるブランクを無くした方法を、吉森ら⁵⁻⁷⁾は発生させた二酸化炭素の測定に非水溶媒光度滴定法を導入し定量下限を改善した方法を提案した。しかしながらこのような非放射性炭素による分析法では、あらゆる炭素汚染を完全に除去することは極めて困難と考えられている。特に金属試料の表面の炭素汚染については、その表面を洗浄した後でも微量の炭素が存在することを Barrandon ら⁸⁾は指摘しており、これは表面における炭素化合物の吸着が短時間で起こるためと考えられている。

上記に対して、放射化分析は試料の照射後にエッチングすることで表面汚染は除去でき、またその後非放射性炭素が汚染しても分析結果に誤差を生じないという特長を持つ。炭素の放射化分析法のうち、光量子放射化分析法では、 $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ 光核反応を利用した炭素定量法が検討されている⁹⁻¹⁶⁾。この分析法は試料を均一に放射化できるため試料形状による分析誤差が小さいこと、妨害核反応が少ないこと、測定する ^{11}C の半減期 ($t_{1/2}=20.4\text{m.}$) が比較的長く炭素の分離操作が容易であるなどの利点を持つ。著者らは光量子放射化分析法における炭素の分離法として燃焼法を導入し種々の電子材料中の微量炭素の定量法を検討し、この分析法は操作が容易で検出下限が十分に低くかつ定量精度が極めて高いことを明らかにした¹⁶⁻¹⁸⁾。また一方低融点試料の場合、照射時に試料が融解し、試料表面あるいは雰囲気からの炭素が試料内部に取り込まれる危険性があり、それに対する処理法も併せて検討してきた¹⁹⁾。

本研究では引き続き低融点試料である錫中の微量炭素の定量法を確立し、さらに実試料への適用を行い、得られた結果は日本工業規格 (JIS 法) の炭素定量法²⁰⁾による結果と比較することを試みた。さらにまた、得られた結果を基礎にして錫の精製工程における炭素の挙動について若干の考察を加えることを試みた。

§ 2. 実 験

2.1 試 料

炭素定量用標準物質は日本鉄鋼協会製標準試料 JSS-003-1 を用いた。これはチップ状で供給され炭素含有率は0.0011%である。この秤取量は約0.5gとした。分析試料としては粗錫 (A)、高純度錫 (B)、およびガス分析用の助燃剤として用いられる錫 (C) の3種類を用い、それぞれ約1gを秤取して試料とした。A 試料は乾式製錬法による酸化錫の炭素還元から、B 試料は A を電解精製して得られたものである。C 試料は5 mm ϕ \times 1 mm のペレットで、low carbon の表示 (分析値の表示無し) をもつ LECO 社製の市販品である。

2.2 照射試料の調製および照射

A 試料は王水、B および C 試料は塩酸により、室温で2分間エッチングし、蒸留水で洗浄後さらにアセトンで洗浄した。各試料は原則として空気中の二酸化炭素の影響を避けるため真空装置により真空状態 (10^{-4} Torr 以下) で清浄な石英試料管に封入することにした。この調製法の詳細は前報¹⁹⁾に示してある。また比較のため、B 試料については常圧封入 (1 atm) の照射試料も調製した。

調製された試料は水冷式照射ホルダー²¹⁾の白金コンバーターの後方に固定し、電子線エネルギー

ギ-30 MeV, 平均電流100~130 μ Aの2 mm厚白金による制動輻射で20分間づつ個別に照射した。この際、未転換電子による錫試料の融解を防ぐために、白金コンバーターと試料の間に10 mm厚のグラファイトを挿入し、電子線をできるだけ除去することを試みた。各試料の調製法と照射条件は第1表に示した。

第1表 試料調製法および照射条件。

試料	調製法	照射試料位置 (コンバーターからの距離, cm)	未転換電子線除去用 グラファイトの挿入
A-1			
A-2	真空封入	2	あり
A-3			
B-1	常圧封入	2	なし
B-2	常圧封入	5	なし
B-3			
B-4	真空封入	2	あり
B-5			
C-1			
C-2	真空封入	2	あり
C-3			

2.3 炭素の化学分離

照射後、石英試料管を開封して試料を取り出し、表面炭素汚染をするため、A試料は王水、BおよびC試料は塩酸で2分間エッチングした。エッチング前後の試料重量差から求めたエッチング深さは平均約40 μ mであった。ついで燃焼法により試料中の炭素を分離するため、試料は炭素担体とともにアルミボートに入れ、1350°Cに設定された管状電気炉に挿入し酸素気流中(500ml/min.)で5分間溶融燃焼させた。最終的な炭素回収率測定にも利用する炭素担体は炭素含有率4.11%の鉄鋼標準試料を使用し、その222mgを秤量して加えた。また炭素定量用高純度鉄標準試料の場合は、さらに助燃剤として錫粉末を約1g加え、同じ条件で燃焼させた。燃焼により炭素はCO₂に、一部はCOとして酸素気流中に分離され、後者はSchutze試薬管(酸化管)を通してCO₂に変換した。次に燃焼の際に飛散した微粒子の酸化物を完全に除去するため、濃硫酸トラップによるガス洗浄、さらにテフロン繊維製ろ紙によるその飛沫除去を行い、発生させたCO₂は二連の塩化バリウム含有水酸化ナトリウム溶液で炭酸バリウム沈殿として回収した。錫試料の燃焼による酸化は激しく、著しい酸素の消費をとまなうので、分離装置

導管内の内部圧力低下をもたらした。しかしこの灰力低下は濃硫酸トラップで緩和され、最終のCO₂吸収液の逆流現象は防止された。生成した炭酸バリウム沈殿は吸引ろ過により、ろ紙上35mm φに均一に集め、水およびエチルアルコールで洗浄した。ついで同形状のもう一枚のろ紙で沈殿をサンドイッチ状に挟み、これをポリエチレン製の袋に入れ、10×10cmの亚克力板に張り付けて放射能測定用試料とした。用いた分離装置の詳細は前報¹⁹⁾に示してある。

2.4 放射能測定

放射能測定はOrtec社製高純度Ge検出器（分解能；1.9 keV，相対効率；30%）をCanberra社製シリーズ35+MCAに接続して行った。各測定試料は2.3に示した形状にして、一定のジオメトリーのもとで測定し、測定における誤差をできるだけ小さくした。化学分離を行うため照射終了20分後から陽電子消滅ガンマ線を繰り返し600秒間づつ測定し、各測定値は照射終了後の値に補正した後、さらに制動放射線照射線量および炭素回収率の補正を行い相互比較した。

§3. 結果と考察

3.1 炭素汚染の影響

錫中の炭素定量値に与える試料の調製および照射条件の違いによる影響は第2表に示した。

第2表 錫中の炭素定量結果。

試料	¹¹ Cの回収率 (%)	炭素濃度 (ppm)	照射後の試料状態
B-1	86.0	0.207	表面融解顕著
B-2	88.7	0.089	表面融解少量
B-3	90.0	0.038	表面融解なし

制動放射線照射の際、白金コンバーターを透過する未転換電子線により、試料内に熱が発生するため水冷下で照射されても、錫は低融点（232℃）金属であるため融解されることがある。試料B-2はB-1よりも照射位置をコンバーターから遠ざけたが、それでも少量の融解が認められた。また表から融解の度合いが大きいほど炭素濃度は高くなっていることがわかる。これらの試料は融解時に表面汚染の炭素あるいは試料雰囲気からの炭素が試料内部にまで取り込まれ照射後のエッチングでは除染できなかったことを示す。試料融解の原因となる未転換電子線の除去は電磁石を利用すれば効率よく行われるが、試料を電磁石の後方に置くため照射線量の低下をまねき微量炭素の定量には十分な感度が得られなくなる。榎本ら²²⁾はコンバーター直後

に電子線除去のためグラファイトを置き制動放射線量の高い位置で、分解しやすい生物試料の高感度光量子放射化分析を可能にした。そこで低融点金属である試料B-3にこの照射法を適用した結果、試料の融解は認められず、得られた炭素濃度は試料B-1および2と比較して最低値を示すことがわかった。これから上記の照射方法は特に低融点金属試料中の炭素分析に有効であることが実証された。

また試料B-3は照射石英管内に真空封入したが、この方法は雰囲気からの炭素汚染を除去でき、特に試料形状が複雑な場合、必要不可欠な方法とされており有効であった。

3.2 錫中の炭素の定量

本法およびJIS法による錫試料中の炭素の定量結果は第3表に示した。JIS法は比較的検出感度の良い燃焼-赤外線吸収法によった。その分析試料は塩酸あるいは王水でエッチングし、蒸留水さらにアセトンで洗浄した後、真空デシケータ中で2時間保存し分析した。

第3表 錫試料中の炭素定量結果。

試料	¹¹ Cの回収率 (%)	光量子放射化分析法		燃焼-赤外線吸収法* 炭素定量値 (ppm)
		炭素定量値 (ppm)	平均値 (ppm)	
A-1	90.7	0.476	0.499±0.042 (8.4%)	3.4±1.8 (n=4)
A-2	93.3	0.547		
A-3	91.3	0.474		
B-3	90.0	0.038	0.038±0.010 (26.3%)	3.6±1.3 (n=5)
B-4	90.7	0.047		
B-5	88.0	0.028		
C-1	91.3	0.039	0.040±0.007 (17.5%)	1.8±0.8 (n=5)
C-2	92.7	0.033		
C-3	92.0	0.047		

*：高周波加熱燃焼-赤外線吸収法を用いた炭素定量分析装置 (LECO社製 CS-244) を使用。

n：分析数。

本法による定量値は試料Aで標準偏差約8%，試料BおよびCで約20%の精度で得られた。また検出下限は4ppbと計算された。JIS法による炭素定量値は本法と比較して高く、バラツキも大きいことがわかった。JIS法では定量下限が0.001%と示されているように、ppmある

いはそれ以下の定量は炭素汚染の影響が大きく困難であるとされている。

試料BおよびCは炭素濃度が約0.04ppmと小さく、燃焼法の助燃剤として極めて適当であると判定されるが、実際の使用に当ってはその表面の炭素量およびその除染法が問題となるであろう。このことは炭素定量法において、試料中の濃度と表面濃度を分別する必要があることを示し、今後の大きな検討課題になると思われる。

3.3 錫の精製における炭素の挙動

各試料の炭素以外の不純物濃度はICP発光分光分析法およびフレイムレス原子吸光法により求めた。これら不純物濃度は推定錫純度とともに第4表に示した。

第4表 錫試料中の不純物濃度および推定錫純度。

試料	Cu	Pb	Fe	Sb	As	Bi	Sn
A	0.21	1.48	0.01	0.03	0.11	0.12	97
B	<0.001	0.002	0.001	<0.001	<0.001	<0.001	99.99
C	0.005	0.021	0.005	0.025	0.013	0.006	99.9

試料Aは酸化錫の炭素還元により得られた粗錫であり各不純物濃度も高い。試料BはAの電解精製により極めて高純度化されている。また試料CはBと比べ各不純物濃度は高いが、錫純度から電解精製によって製造されたものと推定される。これら錫試料の製造工程と第3表に示した炭素濃度から、錫の精製における炭素の挙動を推定してみる。(1)炭素還元より得られる粗錫中の炭素濃度は1ppm以下と微量であり、これから錫に対する炭素の溶解度は極めて小さいと結論される。(2)電解精製工程により、炭素濃度は一層低下する。一般的に錫電解液には錫の電着を滑らかにするため膠やβナフトールなど有機物が数g/lの高濃度で添加されているが、この電解液中の炭素濃度に比べて得られる電解錫中の炭素濃度は極めて微量となっている。(3)試料BとCを比較した場合、後者は第4表に示した各不純物濃度が高いが炭素濃度は前者と同程度であり他の不純物濃度との相関はみられない。

このように金属試料中の微量炭素の挙動をより明確にするためにはさらに多くの確実なデータが必要であるが、ppm以下の炭素定量法として本法は極めて信頼性に優れており、他試料に適用しても、その威力を発揮すると考えられる。

§4. 結 び

本法では著者らが従来までに開発してきた光量子放射化分析による微量炭素定量法を發展させ、試料の調製および照射法を改善することで、錫中の微量炭素を精度良く定量することを可能にした。この方法は錫以外の低融点金属試料にも適用可能であり、今後さらに多種金属の実試料への適用を試みるべきと考えている。また炭素定量法として大きな課題となる試料中と表面の炭素分別定量についても検討する予定である。

参 考 文 献

- 1) P. A. Wright : " *Extractive Metallurgy of Tin* ", 2nd Ed. (Elsevier, 1982).
- 2) 渡辺元雄 : " 錫製錬 " (錫製錬をまもる会, 1979).
- 3) O. Ruff, B. Bergdahi : *Z. anorg. Chem.* **106** (1919) 76.
- 4) V. Y. Revin, A. A. Klyan, V. N. Larin : *Zh. Anal. Khim.* **30** (1975) 1007.
- 5) 吉森孝良, 谷内俊彦 : *分析化学* **32** (1983) 110.
- 6) 吉森孝良, 谷内俊彦 : *分析化学* **32** (1983) 547.
- 7) 田中龍彦, 九津見啓之, 秦野 浩, 吉森孝良 : *分析化学* **38** (1988) T45.
- 8) J. N. Barrandon, L. Quaglia, J. L. Debrun : *J. Radioanal. Chem.* **4** (1970) 115.
- 9) Ch. Engelmänn : *J. Radioanal. Chem.* **6** (1970) 399.
- 10) G. J. Lutz, L. W. Masters : *Anal. Chem.* **42** (1970) 948.
- 11) V. I. Rodionov, V. N. Samosyuk, B. A. Chapyzhnikov, G. Revel, M. Fedoroff : *Radiochem. Radioanal. Lett.* **18** (1974) 379.
- 12) M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, G. Revel : *Radiochem. Radioanal. Lett.* **22** (1975) 283.
- 13) M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, G. Revel : *J. Radioanal. Chem.* **38** (1977) 107.
- 14) C. Loos-Neskovic, M. Fedoroff, V. N. Samosyuk, B. A. Chapyzhnikov : *Radiochem. Radioanal. Lett.* **45** (1980) 185.
- 15) M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, G. Revel : *J. Radioanal. Chem.* **55** (1980) 219.
- 16) M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, J. C. Rouchaud, V. N. Samosyuk, B. A. Chapyzhnikov : *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **88** (1985) 45.
- 17) A. Yoshioka, K. Nomura, M. Takeya, K. Shimura, K. Masumoto, M. Yagi : *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **122** (1988) 42., 核理研研究報告 **19** (1986) 98.

- 18) 吉岡 明, 野村紘一, 川上 紀, 志村和俊, 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 21 (1988) 42.
- 19) 吉岡 明, 野村紘一, 川上 紀, 深谷忠廣, 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 22 (1989) 195.
- 20) JIS Z-2615 (1979).
- 21) M. Yagi, K. Kondo, J. Radioanal. Chem. **36** (1977) 247.
- 22) 榎本和義, 鈴木信男 : 核理研研究報告 13 (1980) 150.

高純度銅表面における微量炭素の光量子放射化分析

三菱金属, 核理研*, 金研**

吉岡 明・川上 紀・深谷忠廣

野村紘一・榎本和義*・八木益男**

Determination of the carbon impurity in surface layers of a copper metal has been examined by photon activation analysis using the $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ reaction. Chemical isolation of the radiocarbon as CO_2 was performed by the combustion method at 1350°C in a high flow rate of oxygen stream. The radiocarbon was then collected by passing through a double trap containing NaOH solution, and precipitated finally as BaCO_3 for measurement of the positron annihilation gamma-rays. The carbon concentration in surface layers was determined by the following two methods. In the first method, it was determined from the difference between whole radiocarbons in the sample and those in the sample etched the surface layers after irradiation. In the second method, it was also determined by oxidizing only the surface layers at 650°C . As a result, the carbon concentrations determined by the former and latter were found to be 0.108 and $0.070 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, respectively.

§1. はじめに

金属中に含まれる微量炭素の影響を解明する分析法は多方面にわたって開発されてきているが、最近では金属中の炭素濃度の定量のみならず、その表面濃度分布がかなり重要視されるようになってきた。これは金属表面の炭素汚染とその洗浄効果の定量的な解析と表面におけるトレースキャラクタリゼーションに関する研究が進められてきたためである。

表面の炭素分析法にはオージェ電子分光法 (AES), X線光電子分光法 (XPS), 二次イオン質量分析法 (SIMS) などの物理的手法があり、それらの表面分析装置の発展は目覚ましいものがあるが、いずれもそれらは定量性に劣ると言われている。そこで一方では、従来の燃焼法を改良した方法が提案され表面炭素への応用が検討されてきた。この方法は $600\sim 650^\circ\text{C}$ 酸素気流中で試料表面のみを酸化することによって、試料表面にある炭素を CO_2 として分離定量することを基礎としており、Solet¹⁾はニッケル試料について、Leeら²⁾、Chenら³⁾および猪熊ら⁴⁾

は鉄試料について、Gretzinger ら⁵⁾は各金属試料にこの方法を適用してその有用性を検討してきた。一方、米国のPerkin-Elmer社ではこの分析操作を自動化した装置を開発し市販するまでに至っている⁶⁾。しかしながら、この方法は試料表面に存在する炭素量が微量の場合、分析法の感度や分析操作中での炭素汚染、例えば燃焼ガスの精製やボートまたはるつぼのブランク値などが問題となっている。

放射化分析法は高感度であると同時に、上記の炭素汚染は分析値に影響しない特徴をもっている。特に光量子放射化分析法は試料を均一に放射化でき、妨害核反応も極めて少ないなどの利点があるため、 $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ ($t_{1/2}=20.4\text{m.}$) 反応を利用した微量炭素分析法の検討が活発におこなわれてきた⁷⁻¹³⁾。著者らは炭素の分離に燃焼法を用いた光量子放射化分析法を基礎的に検討し、その鉄鋼、銅、ヒ化ガリウム、ヒ素、ガリウム単体および錫中の微量炭素の定量分析への応用を試み、この方法は操作が比較的容易で定量精度が極めて高いことを明らかにしてきた¹⁴⁻¹⁷⁾。

引続き本研究では表面炭素の定量分析に上記方法を適用することを新たに試みることにしたが、この適用にあたっては次の二つの改良法が検討された。(A)照射試料表面のエッチングの有無から、それぞれ定量される炭素量の差を求め、それを表面炭素量として換算する方法、(B)照射試料表面をエッチングしないで、650°C酸素気流中で試料表面のみを酸化し、表面炭素のみを CO_2 として分離し定量する方法で、以後これらをA法およびB法と記することにする。

分析試料としては高純度銅である無酸素銅を用い、試料中の炭素濃度とAおよびB法による表面炭素濃度の定量を試みた。

§2. 実 験

2.1 試料および調製法

炭素定量用標準物質は炭素含有量が0.0010%である日本鉄鋼協会製標準試料JSS-003-2を使用した。この標準物質はチップ状で供給されたため、約0.5gをそのまま1cm径のペレットに成型し、高純度アルミニウム箔で包み照射試料とした。このペレットの前後には光量子照射線束モニターとして同径、厚さ30 μm のニッケル箔を置き、さらにアルミニウム箔で包み石英試料管に封入した。

分析試料としての無酸素銅は表面積を大きくするために、厚さ0.4mmの板材を6×30mmに切断し、約1mmの隙間があくようコイル状に巻き照射試料とした。同じ表面処理条件に統一するため、全試料はJIS法¹⁸⁾に準じて、硝酸(1+1)で2分間エッチングし蒸留水で二度洗

浄した後、さらにアセトンでリンスして清浄な大気中で乾燥し秤量した。これら試料は照射中、雰囲気からの反跳炭素による汚染を防止するため、清浄な石英試料管に真空排気し (10^{-4} Torr) 封入した。この封入操作および真空装置の詳細は前報に示してある通りである¹⁶⁾。各試料封入管には光量子照射線束モニターとしてのニッケル箔を巻付け、さらにアルミニウム箔で包んで照射試料とした。

2.2 照 射

試料は東北大学核理学研究施設の直線型電子線加速器を使用して照射した。各試料は水冷式照射ホルダー¹⁹⁾の白金コンバーターの後方 3 cm の位置に固定し、電子線加速エネルギー 30 MeV、平均電流約 100~130 μ A の電子線の 2 mm 厚白金による制動輻射で 20 分間ずつ個々に照射した。

2.3 炭素の化学分離

炭素の化学分離法は前述した A および B 法に従った。A 法ではさらに試料中の炭素量のみを測定する場合 (A-1 法) と、試料中および表面における炭素の含量を測定する場合 (A-2 法) に区分するため、照射試料は硝酸 (1+1) で 2 分間エッチングした場合と、しない場合に分けた。一方 B 法の試料はエッチングしないでそのまま分離操作を行うことにした。試料はアルミナポートに移し炭素キャリアと、さらに場合によっては助燃剤を積み重ね、これを管状電気炉に入れて酸素気流中 (500 ml/min.) で 5 分間熔融燃焼させた。ここで炭素キャリアは微量炭素の保持担体として、そして炭素化学分離における化学収率測定用として用いた。電気炉中での燃焼によって炭素は CO_2 、あるいは一部 CO として酸素気流中に分離されるが、 CO 状態は Schutze 試薬管 (I_2O_5 のシリカゲル上コーティング) を通して完全に CO_2 に変換させた。ついで熔融燃焼時に飛散したマトリックス元素の酸化物を完全に除去するため、濃硫酸トラップによるガス洗浄、さらにテフロン繊維製ろ紙による飛沫除去を行い、発生させた CO_2 は最終的には二連式塩化バリウム含有水酸化ナトリウム溶液で捕集した。ここで生成した炭酸バリウム沈殿は 35 mm ϕ ろ紙上に吸引ろ過により均一に集め、水およびエチルアルコールで洗浄し乾燥させた。ついで同形状のもう一枚のろ紙で捕集された沈殿をサンドイッチ状に挟み、ポリエチレン製の袋に入れ、放射能測定用試料とした。各方法あるいは試料における炭素の分離操作および燃焼条件は第 1 表に示してある。ここで使用した炭素の分離装置の詳細は前報¹⁴⁾に示した通りである。

第1表 炭素の分離操作および燃焼条件。

試料および 分離法	照射後の エッチング	炭素キャリア	助燃溶融剤	燃焼温度 (°C)
鉄鋼標準試料 [JSS-003-2]	無	鉄鋼チップ, 222mg (炭素含有率4.11%)	錫粒, 0.5g	1350
無酸素銅試料 (A-1法)	有	鉄鋼チップ, 222mg (炭素含有率4.11%)	錫粒, 0.5g	1350
無酸素銅試料 (A-2法)	無	鉄鋼チップ, 222mg (炭素含有率4.11%)	錫粒, 0.5g	1350
無酸素銅試料 (B法)	無	PbCO ₃ , 203mg	無	650

A-1法: 試料中の炭素量測定。

A-2法: 試料中および表面の炭素含量測定。

B法: 表面炭素量測定。

2.4 放射能測定

捕集された沈殿から発生する陽電子消滅ガンマ線の測定は Ortec 社製高純度 Ge 検出器 (分解能; 1.9keV, 相対効率; 30%) を Canberra 社製シリーズ35+MCA に接続した装置を使用して行った。ポリエチレン製の袋に入った測定試料は 10cm角のアクリル板に張り付け一定のジオメトリーのもとで注意深く測定し, 測定誤差はできるかぎり小さくした。化学分離を行ったため照射終了20分後から300秒ずつ測定し, 各測定値は照射終了後の値に補正し, さらに制御放射線照射線量および分離炭素の回収率の補正を行い相互比較した。

§3. 結果と考察

3.1 炭素の分離試験

炭素定量用の鉄標準試料とA法における銅試料については, すでに助燃溶融剤として錫を用いることが, また炭素キャリアとして炭素高含有鉄鋼チップを用いることが, 燃焼法併用光量子放射化分析法においては, 極めて良好な定量結果を与えることが実証されている¹⁴⁾。そこでB法における銅試料表面の炭素分離については予備試験を試みることにした。銅試料表面の炭素の起源は, 油脂などの有機質あるいは大気中の二酸化炭素の化学吸着に由来する化学種であると推定される。これらの炭素は酸素気流中では, 比較的低温で酸化されたり分解されてCOあるいはCO₂に変換されると同時に銅試料表面も酸化されると考えられる。その際, 表面の炭

素のみを分離するためには、燃焼温度を制御することによって銅試料の融解を避け、内部炭素の拡散を防止しなければならない。従って、ここでは燃焼温度はGretzingerら⁵⁾の提案した650℃に設定し、また炭素キャリアは約300℃で分解する炭酸鉛を使用して、酸素気流中での銅試料の燃焼を行うことにした。その結果、銅試料は融解しないで、その表面のみが黒色の酸化銅に変換され、また炭酸鉛は酸化鉛に変換されたことがそれぞれX線回折分析で同定され、上記の炭素分離法は適切に行えることが確認された。

3.2 銅試料の試料中および表面炭素の定量

銅試料の試料中および表面炭素は鉄標準試料JSS-003-2を標準物質として使用しそれとの比較により定量した。得られた結果は第2表に示した。

第2表 銅試料の試料中および表面炭素の定量結果。

炭素分離法	RUN	試料量(g)	炭素回収率(%)	炭素量測定値(μg)	試料中炭素濃度(μg/g)	表面炭素量(μg)	表面炭素濃度(μg/cm ²)
A-1	1	0.507	82.7	0.047	0.093		
	2	0.609	94.7	0.038	0.062		
	3	0.500	90.0	0.039	0.078		
	平均値				0.078±0.016		
A-2	1	0.674	80.7	0.449		0.396*	0.110
	2	0.647	82.7	0.410		0.360*	0.100
	3	0.705	84.7	0.461		0.406*	0.113
	平均値						0.108±0.007
B	1	0.631	84.7	0.238		0.238	0.066
	2	0.619	88.7	0.282		0.282	0.078
	3	0.637	89.3	0.236		0.236	0.066
	平均値						0.070±0.007

* : 表面炭素量(μg) = 炭素量測定値(μg) - 試料量(g) × 試料中炭素濃度平均値(μg/g)

A-1法から得られた銅試料中の炭素濃度は0.078μg/gで定量の再現性の指標となる標準偏差は約20%であった。この標準偏差が比較的大きいのは定量値がこの分析法の定量下限に近いと考えられる。A法による表面炭素量は、A-2法より得られた各銅試料の試料中および表面の炭素含量から、A-1法で求めた試料中の平均炭素濃度を各試料重量に乗じて得られた各試料中炭素量を差し引いて求めた。さらに表面炭素濃度は表面炭素量をあらかじめ測定し

ておいた試料表面積で除して得た。この表面炭素濃度は $0.108 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ で標準偏差は約 6.5% と高い精度で定量された。これは表から分かるように A-2 法の測定値が A-1 法のそれに比較して約 10 倍と大きく、この表面炭素濃度に対する試料中の炭素濃度のバラツキの影響は少ないためと考えられる。B 法による表面炭素濃度についても $0.070 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ で標準偏差は約 10% と精度良く定量された。A 法と B 法を比較すると後者の表面炭素濃度の方が若干小さい値であり、銅試料表面の炭素の存在状態あるいはその形態による差異とも考えられるが、今後さらに検討が必要であろう。しかしながら A, B 両方法による表面炭素濃度はその濃度レベルから判断すればほぼ一致した値であると考えられる。また本研究の試料と同様に調製された銅試料の表面炭素濃度について Gretzinger ら⁵⁾ は、この B 法と同様に表面炭素を分離して電導度法により定量し $0.15 \pm 0.02 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の値を報告し、一方 Quaglia ら²⁰⁾ は ^{12}C (d, p) ^{13}N 反応を基礎とした放射化分析により $0.04 \sim 0.1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の定量値を報告している。それぞれ異なった銅試料および方法を使用したにもかかわらず、それらの表面炭素濃度は比較的良く一致したことは極めて興味深い。

本研究の二方法による表面炭素濃度は試料中の炭素濃度に比較して大きな値を示し銅試料表面の炭素汚染が定量的に確認された。この汚染は試料調製の際、洗浄に使用したアセトン中の重質有機物や大気中の炭酸ガス吸着によるものと推定される。試料は最終的には真空状態 (10^{-4} Torr) で封入されたことから、これらの炭素汚染は試料表面に強く化学吸着しているとも考えられる。

§ 4. まとめ

燃焼法と光量子放射化分析を併用した従来の炭素分析法を改良することで銅試料の試料中および表面の炭素濃度を高感度、高精度で定量することができた。本法は多種の金属試料にも適用可能であり、特に照射後のエッチングの有無の差を基礎とする表面炭素定量法は低融点金属試料に有効と考えられる。また試料調製の違いによる表面炭素濃度の比較は今後重要な検討課題になると予想され、微量な炭素を精度良く定量する方法として本法が威力を発揮するものと期待される。

参 考 文 献

- 1) I. S. Solet : Anal. Chem. **38** (1966) 504.
- 2) W. R. Lee, L. L. Lewis : Anal. Chem. **42** (1970) 103.

- 3) J. Chen, U. Barth, E. Grallath : Fresenius Z. Anal. Chem. **334** (1989) 154.
- 4) 猪熊康夫, 落合 崇, 蔵保浩文 : 鉄と鋼 **14** (1985) 1670.
- 5) K. Gretzinger, E. Grallath, G. Tölg : Anal. Chim. Acta. **193** (1987) 1.
- 6) R. F. Culmo : Instrum-Res. **66** (1986) 68.
- 7) Ch. Engelmann : J. Radioanal. Chem. **6** (1970) 399.
- 8) V. I. Rodionov, V. N. Samosyuk, B. A. Chapyzhnikov, G. Revel, M. Fedoroff :
Radiochem. Radioanal. Lett. **18** (1974) 379.
- 9) M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, G. Revel : Radiochem. Radioanal. Lett. **22** (1975)
283.
- 10) M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, G. Revel : J. Radioanal. Chem. **38** (1977) 107.
- 11) C. Loos-Neskovic, M. Fedoroff, V. N. Samosyuk, B. A. Chapyzhnikov : Radiochem.
Radioanal. Lett. **45** (1980) 185.
- 12) M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, G. Revel : J. Radioanal. Chem. **55** (1980) 219.
- 13) M. Fedoroff, C. Loos-Neskovic, J. C. Rouchaud, V. N. Samosyuk, B. A.
Chapyzhnikov : J. Radioanal. Nucl. Chem. **88** (1985) 45.
- 14) A. Yoshioka, K. Nomura, M. Takeya, K. Shimura, K. Masumoto, M. Yagi : J.
Radioanal. Nucl. Chem. **122** (1988) 42., 核理研研究報告 **19** (1986) 98.
- 15) 吉岡 明, 野村紘一, 川上 紀, 志村和俊, 榊本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **21**
(1988) 42.
- 16) 吉岡 明, 野村紘一, 川上 紀, 深谷忠廣, 榊本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **22**
(1989) 195.
- 17) 吉岡 明, 野村紘一, 川上 紀, 深谷忠廣, 榊本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **23**
(1990)
- 18) JIS Z-2615 (1979) .
- 19) M. Yagi, K. Kondo : J. Radioanal. Chem. **36** (1977) 247.
- 20) L. Quaglia, G. Weber : J. Radioanal. Chem. **17** (1973) 91.

北上山地，田野畑累帯深成岩体の地球化学

金属鉱業事業団，教養部*，理学部**

林 歳彦・吉田武義*・青木謙一郎**

§1. はじめに

北上山地には，苦鉄質～珪長質の白亜紀深成岩体が多数分布する。その一つである田野畑岩体は，岩手県東部，北部北上山地に位置し，石英閃緑岩から花崗閃緑岩に至る広い岩相変化を示している^{1,2,3}。林⁴は詳しい地質調査から，本岩体が岩体主要部と周辺のいくつかの小岩体から構成されていることを明らかにし，さらに，この岩体主要部が周縁部から内部に向かってより珪長質粗粒の岩石へと変化する典型的な累帯深成岩体であることを示し，これを田野畑累帯深成岩体と命名した。

本報告では，この田野畑岩体，すなわち，田野畑累帯深成岩体とその周縁に分布する小岩体を構成する岩石について，光量子放射化法などを用いて行なった，主要ならびに微量成分元素の分析結果を報告し，累帯深成岩体におけるそれら元素の挙動について論じる。

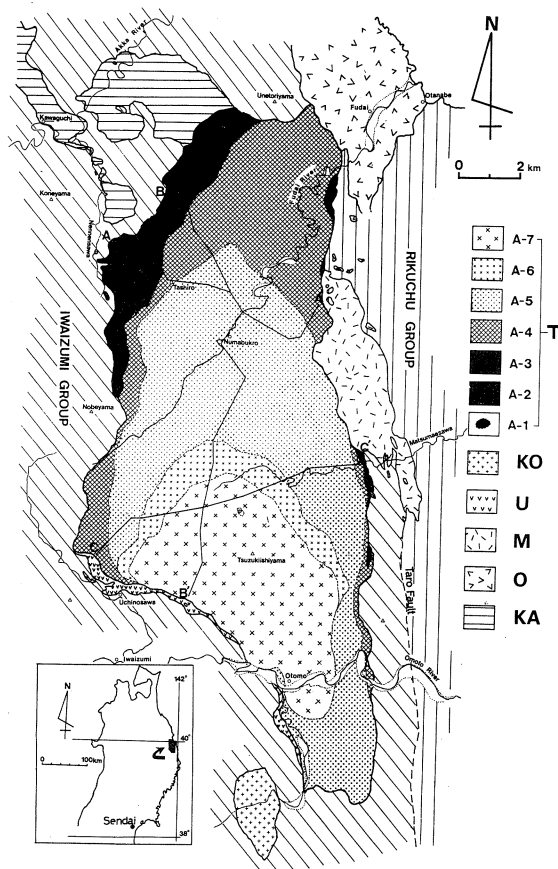
§2. 田野畑累帯深成岩体および周縁部小岩体

田野畑岩体は，ジュラ紀～下部白亜系の岩泉層群および陸中層群⁵からなる基盤岩類を非調和的に貫く。田野畑岩体の主要部をなす田野畑累帯深成岩体からの黒雲母の K-Ar 年代は118～122Ma⁶である。この累帯構造を示す岩体主要部の周縁部には，それとは貫入時期ならびに岩質が異なる，川口，太田名部，松前沢，内ノ沢および高清水の小岩体が分布する。(第1図)。

2.1. 田野畑累帯深成岩体

本岩体は田野畑岩体の主要部をなし，南北約20km，東西約9kmの範囲に露出する。本岩体を構成する岩石中に認められる苦鉄質鉱物の定向配列方向は，基盤岩との境界線と比較的調和的である。また，本岩体構成岩石は，その産状，岩相，鉱物組合せ，モード組成(第2図)およびそれらの相互関係から，7つの岩型(第1表)に区分でき，これらは，周縁部から中心部に向かって compositional zoning を示す一つの累帯深成岩体 (Zoned Pluton) を構成している⁴。

A-1型は，岩体周縁部に，ごく少量観察される。その産状には異なる2種類がある。一つは，岩体西部のA-2～A-3型岩石が分布する地域で，径1～3mの転石として産し，もう



第1図 北上山地，田野畑地域の地質図⁴⁾

T：田野畑累帯深成岩体，KO：高清水岩体，U：内ノ沢岩体
M：松前沢岩体，O：太田名部岩体，KA：川口岩体

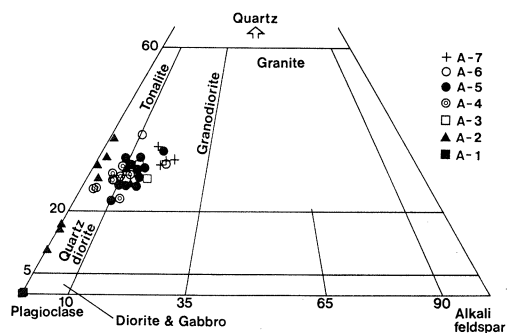
第1表 田野畑累帯深成岩体を構成する各岩型とその鉱物組合せ

岩型名	岩石名	鉱物組合せ
A-1	単斜輝石含有角閃石はんれい岩	Pl+Opx+Cpx+Ho±Bi
A-2	黒雲母角閃石石英閃緑岩～トータル岩	Pl+Cpx+Ho+Bi+Qz+Kf
A-3	黒雲母角閃石トータル岩～花崗閃緑岩	Pl±Cpx+Ho+Bi+Qz+Kf
A-4	黒雲母角閃石トータル岩～花崗閃緑岩	Pl+Ho+Bi+Qz+Kf
A-5	角閃石黒雲母花崗閃緑岩	Pl+Ho+Bi+Qz+Kf
A-6	黒雲母花崗閃緑岩	Pl±Ho+Bi+Qz+Kf
A-7	黒雲母優白質花崗閃緑岩	Pl+Bi+Qz+Kf

Pl：斜長石，Opx：斜方輝石，Cpx：単斜輝石，Ho：ホルンブレンド

Bi：黒雲母，Qz：石英，Kf：カリ長石

一つは、基盤岩と直接し、露頭として観察されるものである。A-2型の岩石は、北西部および東部の岩体周縁部に分布する。岩体東部の基盤岩との接触部では、トータル岩から暗緑色の石英閃緑岩～石英はんれい岩へと移化することがある。この石英はんれい岩には、斜方輝石が認められるが、半自形粒状の斜長石結晶が墳間状の石英に取り囲まれており、全体



第2図 田野畑累帯深成岩体構成岩石の斜長石-カリ長石-石英三角図¹⁾。

に細粒である点で、A-1型のはんれい岩と区別できる。A-3型の岩石は、主に岩体の北西側に認められ、A-2型岩石の内側に分布する。本岩は、A-2型に比べ、ホルンブレンドは粒径は変わらない(2~3mm)が自形性が良くなり、黒雲母は粒径が約3mmと大きくなり、モード的にも増加している。A-4型の岩石は、A-3型の内側の、主に岩体北部に分布する。岩体南部では、本岩は基盤岩と直接する。この岩石のA-3型と最も異なる特徴は、A-3型には無い5mm~1cmの長柱状自形ホルンブレンドと、1~2mmの細粒柱状自形ホルンブレンドが共存することである。また、本岩には、一般に苦鉄質鉱物の弱い定向配列が認められる。A-5型の岩石は、A-4型の内側に位置し、その分布は本岩体中で最も広い。本岩の特徴は、粗粒で、ホルンブレンドと黒雲母の量が等しいかあるいは黒雲母の方が多く、A-4型の岩石に比較してホルンブレンドの量が少ないことである。A-4型の岩石同様、本岩にも2種類のホルンブレンドが認められるが、長柱状ホルンブレンドの量が、A-4型の岩石よりも少ない。A-6型はA-5型の内側に分布する。本岩は粗粒~極粗粒で、ホルンブレンドをほとんど含まず、六角柱状の黒雲母を特徴的に含む。石英は径5~7mmの石英プールとして産する。A-7型の岩石は、A-5型、A-6型の内側に位置し、岩体の南側では、基盤岩あるいは内ノ沢岩体と直接する。本岩は極粗粒であり、約1cmに達する石英プールや、六角柱状の黒雲母を有する。アプライト~ペグマタイト質脈がしばしば観察される。本岩体には、これらの他に、ごく小規模ではあるが、斑状黒雲母花崗閃緑岩およびペグマタイトが分布している。

2.2. 田野畑累帯深成岩体構成岩石間の相互関係

田野畑累帯深成岩体を構成する各型の岩石は、A-1型のはんれい岩を除いて、互いに漸移関係あるいは一部貫入、一部漸移の関係にある。A-1型のはんれい岩と他の型の岩石との関係は、その産状から、A-2~A-3型の岩石中に捕獲されていると考えられる。A-2型か

ら A-7 型の岩石のうち、漸移関係にあるのは、A-2 型と A-3 型、および A-6 型と A-7 型の岩石である。A-4 型と A-5 型の間には、貫入関係と漸移関係の両方が認められる。A-2 あるいは A-3 型と A-4 型との関係、および A-5 型と A-6 あるいは A-7 型との関係は、数 10m の近接した露頭間で、岩相が異なることから貫入関係と考えられる。ただし、A-5 型と A-6 型とは、岩体の中心部では漸移関係にある⁴⁾。田野畑累帯深成岩体の形成を貫入関係からみると、大きく前期 (A-2・3 型) と後期 (A-6・7 型) に区分され、これらの間に中期 (A-4・5 型) の活動がある。A-4・5 型の活動は A-2・3 型に対して貫入関係にあり、A-6・7 型に対しては一部貫入、一部漸移の関係にある。従って、A-4・5 型は A-6・7 型に一連のものともみることにも可能である。このように、田野畑累帯深成岩体の形成史は、岩型相互の貫入関係から大きく 2 期に区別することが可能であるが、これら両グループの存在は後に述べるように全岩組成上の特徴、ならびに既述の普通角閃石の組織上の相違点 (A-2・3 型では細粒の 1 種類であるのに対して、A-4・5 型では粗粒と細粒の 2 種類からなること) などからも示唆される。

2.3. 累帯深成岩体周縁部の小岩体

川口岩体：川口岩体は田野畑累帯深成岩体北西部の基盤岩中に、大小様々な大きさの岩体として点在する。主に黒雲母角閃石石英閃緑岩～優黒質花崗閃緑岩からなり、その他に、単斜輝石含有角閃石はんれい岩と角閃石黒雲母花崗閃緑岩が分布する。これらはいずれも漸移関係にある。本岩の K-Ar 年代は 122Ma⁶⁾を示し、田野畑累帯深成岩体よりも形成時期が早い。川口岩体を構成する岩石の特徴は、弱いプロトクラシック組織を示し、構成鉱物の定向配列が顕著であり、暗色包有物も同方向に伸長していることである。

太田名部岩体：本岩体は、田野畑累帯深成岩体北東側の太平洋岸に分布し、南北約 10km、東西約 4 km の岩体である。太田名部岩体は黒雲母角閃石花崗閃緑岩～角閃石黒雲母花崗岩からなり、浅所貫入岩相を示す³⁾。本岩の K-Ar 年代は 112～117Ma⁶⁾であり、田野畑累帯深成岩体よりも新しい。

松前沢岩体：松前沢岩体は累帯深成岩体の東縁に位置し、主にアプライト質の黒雲母花崗岩～花崗閃緑岩からなる。松前沢岩体と累帯深成岩体との接触部では、松前沢岩体の岩石に急冷縁が認められることなどから、本岩体は累帯深成岩体が生成固結後に貫入したものと推定される。

内ノ沢岩体：内ノ沢岩体は累帯深成岩体の南縁に位置し、アプライト質のザクロ石含有白雲母黒雲母花崗岩からなる。本岩体は、累帯深成岩体に対して後から貫入しており、その K-Ar

年代は113Ma⁶⁾である。

高清水岩体：高清水岩体は岩体主要部の南西側に位置するが、他の岩体とは直接しない。本岩体を構成する岩石は細～中粒のザクロ石含有黒雲母花崗岩～花崗閃緑岩である。この岩石のK-Ar年代は120Ma⁶⁾を示している。

§3. 田野畑累帯深成岩体の岩石学的特徴

3.1. 田野畑累帯深成岩体におけるモード組成の変化

田野畑累帯深成岩体構成岩石におけるモード組成（第2表）の変化を検討するためにSiO₂-モード組成変化図を作成した（第3図）。集積岩と推定されるA-1型を除くと、モード組成の変化は次のとおりである。

A-2型からA-3型へと、斜長石は増加、石英はほぼ一定、そして黒雲母は急減する。一方、A-4型からA-7型へと斜長石は減少し、石英は増加、そして黒雲母はあまり変化していない。カリ長石はA-2型からA-7型へと単調に増加し、ホルンブレンドは単調に減少している。鉄鉱はほぼ一定で明瞭な変化を示さない。

3.2. 主要構成鉱物の産状と組織の変化

林⁴⁾によれば、岩体の周縁部（A-2型）から中心部（A-7型）への、主要構成鉱物の産状と組織の変化は次のとおりである。（1）斜長石：岩体全体を通じて、構成鉱物のうち最も自形性が良い。岩体中心部の岩石のものほど自形性が良く、累帯構造が著しくなる傾向がある。（2）斜方輝石：A-2型の岩石のごく一部に産し、他形。（3）単斜輝石：A-2、A-3型の岩石のホルンブレンド中に産する。粒径は、A-2型よりA-3型のものの方が小さくなる。単斜輝石とホルンブレンドの境界部はアクチノ閃石質ホルンブレンドとなることが多い。（4）ホルンブレンド：A-2型の岩石では、2～3mmの粒状、A-3型の岩石では、2～3mmの短柱状、A-4型の岩石では1cmの長柱状および1～2mmの細粒柱状、A-5型の岩石では、5mm前後の長柱状および1～2mmの細粒柱状、A-6型では粒径およびモード量が減少し、A-7型では認められなくなる。組成累帯構造は、A-4、A-5型の長柱状ホルンブレンドに認められるが、他のものでは顕著でない。（5）黒雲母：岩体内側ほど自形性が良く、粒径が増加し、c軸方向に厚くなる傾向をもつ。また、A-6、A-7型では、キंकや波動消光を示すものが多い。（6）石英：粒径は、岩体内側の岩石のものほど大きくなる傾向をもつ。A-4～A-7型の岩石では、石英プールとして産する。（7）カリ長石：岩体全体を通じて、常に他の主要構成鉱物の粒界を充填する。（8）不透明鉱物：その大部分は磁鉄鉱であ

第2表 田野畑累帯深成岩体およびその周縁部に分布する小岩体構成岩石のモード組成ならびに主成分および微量元素化学組成。

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Stage	A-1	A-1	A-2	A-2	A-2	A-3	A-3	A-4	A-4	A-4	A-5
Sm. No.	52840	01033A	101425	53024	90944	101403	52949	52819	101302	90938	100708
vol. %											
Pl	59.7	52.4	50.0	46.5	51.3	53.9	52.4	55.8	55.0	58.3	52.9
Kf	—	—	0.2	5.2	1.0	7.0	6.0	4.1	7.6	5.5	9.2
Qz	—	—	22.6	22.7	26.0	23.4	24.9	25.0	25.2	28.4	27.9
Opx	0.0	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Cpx	3.0	1.8	0.0	0.1	0.0	0.0	—	—	—	—	—
Act	2.2	1.5	—	0.1	—	0.0	—	—	—	—	—
Ho	34.5	39.2	13.5	12.6	10.7	9.4	6.0	7.7	5.1	2.6	1.2
Bi	0.1	2.0	12.0	11.2	8.6	5.0	4.2	5.3	4.3	4.0	7.0
Ore	0.3	0.8	0.6	1.5	0.7	1.1	0.7	1.7	1.0	0.8	0.9
Sph	—	0.0	0.1	0.2	0.2	0.1	0.5	0.5	1.4	0.2	0.6
Ap	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Others	0.2	2.3	1.1	0.0	1.5	0.2	0.1	0.0	0.5	0.2	0.3
Total	100.0	100.0	100.1	100.1	100.0	100.1	94.8	100.1	100.1	100.0	100.0
wt. %											
SiO ₂	46.24	46.61	58.93	62.35	62.65	64.19	66.32	65.24	65.72	67.09	67.47
TiO ₂	0.60	1.19	0.85	0.72	0.72	0.44	0.47	0.60	0.59	0.44	0.38
Al ₂ O ₃	21.74	17.16	17.04	15.93	16.28	16.31	16.03	16.41	16.57	16.55	16.32
Fe ₂ O ₃	2.00	1.91	2.56	2.65	2.46	2.41	2.21	2.32	2.23	2.02	1.93
FeO	5.05	9.48	4.47	3.23	2.90	2.27	1.62	1.66	1.48	1.31	1.26
MnO	0.13	0.18	0.09	0.09	0.09	0.07	0.06	0.08	0.07	0.06	0.09
MgO	6.53	6.44	3.27	2.65	2.31	1.98	1.36	1.48	1.31	1.01	1.04
CaO	15.26	12.06	7.02	5.76	6.01	5.46	4.71	4.90	4.72	4.37	3.82
Na ₂ O	1.16	1.23	2.98	2.93	3.51	3.29	3.75	3.92	4.28	4.55	4.61
K ₂ O	0.34	0.49	1.58	2.32	1.68	2.32	2.32	1.81	1.93	1.64	1.70
H ₂ O+	1.28	1.93	0.99	0.93	0.75	0.57	0.60	0.69	0.65	0.43	0.77
H ₂ O-	0.28	0.34	0.20	0.24	0.21	0.32	0.27	0.34	0.20	0.28	0.30
P ₂ O ₅	0.08	0.06	0.29	0.20	0.23	0.24	0.18	0.19	0.18	0.19	0.15
Total	98.41	99.08	100.27	100.00	99.80	99.87	99.90	99.64	99.93	99.94	99.84
ppm											
Sc	36.0	36.7	15.0	12.1	11.3	8.0	3.5	7.9	4.7	3.9	7.8
Co	32.6	38.9	20.3	18.1	15.3	11.9	10.0	9.9	7.6	6.4	5.3
Zn	40	106	84	77	57	56	72	72	61	54	60
Rb	8.2	19.2	49.3	74.2	60.2	58.0	67.6	51.7	52.4	41.7	48.9
Cs	0.25	2.09	2.41	5.97	2.03	2.06	3.30	3.74	2.26	1.87	1.26
Sr	593	468	595	573	567	678	673	764	773	729	628
Ba	—	373	285	713	196	491	629	661	884	657	680
Ce	5.2	3.8	38.0	34.1	61.8	24.1	39.4	35.4	49.6	36.2	33.7
Y	8.5	6.1	21.3	16.1	18.7	10.2	9.9	8.1	14.4	10.2	11.0
Nb	1.6	2.1	7.9	7.4	11.5	3.4	7.9	7.6	11.6	8.1	8.2
Zr	14.5	12.5	71.0	88.1	124	6.6	92.0	99.4	95.1	107	114

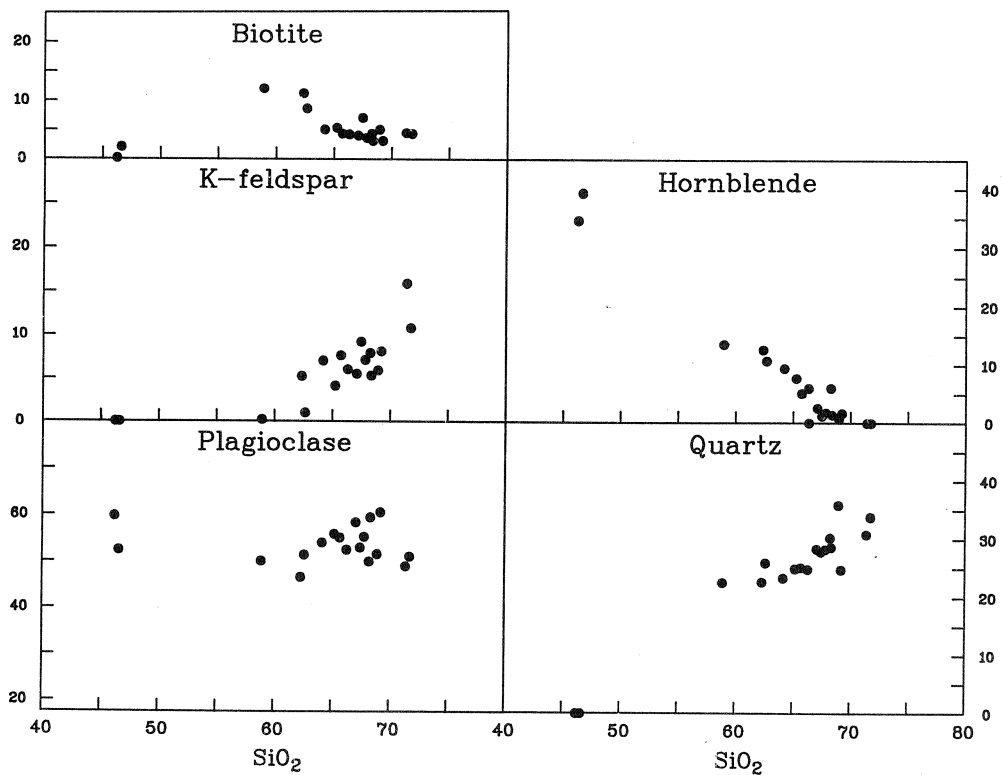
Act : アクチノ閃石, Ore : 鉄鉱, Sph : スフェン, Ap : 燐灰石,
Others : その他, それ以外の記号は第1表参照

No.	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22
Stage	A-5	A-5	A-5	A-5	A-6	A-7	A-7	川口	川口	川口	松前沢
Sm. No.	92704	52702	100716	81921	91910	80615	80430	01432A	101229	101230	92238
vol. %											
Pl	55.2	49.9	59.4	60.5	51.5	48.9	51.0	50.0			49.9
Kf	7.1	7.9	5.3	8.1	5.9	15.9	10.8	—			11.8
Qz	28.3	30.3	28.7	24.8	35.9	30.9	33.9	12.4			27.1
Opx	—	—	—	—	—	—	—	—			—
Cpx	—	—	—	—	—	—	—	0.0			—
Act	—	—	—	—	—	—	—	—			—
Ho	1.8	6.0	1.4	1.7	0.7	—	—	21.7			—
Bi	3.6	4.3	3.1	3.1	5.0	4.3	4.3	14.9			10.6
Ore	0.8	1.0	0.6	0.7	0.8	0.0	0.0	0.3			—
Sph	0.7	0.3	0.5	0.1	0.1	—	—	—			—
Ap	—	—	—	—	—	—	—	0.1			—
Others	2.6	0.3	1.0	0.8	0.2	—	—	0.5			0.5
Total	100.1	100.0	100.0	99.8	100.1	100.0	100.0	99.9			99.9
wt. %											
SiO ₂	67.83	68.26	68.36	69.22	68.95	71.41	71.76	45.32	45.72	53.29	66.35
TiO ₂	0.32	0.41	0.41	0.30	0.35	0.23	0.15	1.19	0.37	1.13	0.34
Al ₂ O ₃	16.59	16.15	16.57	16.64	16.92	15.95	16.00	15.41	17.67	17.72	17.51
Fe ₂ O ₃	1.80	1.76	1.96	1.49	1.43	1.00	1.07	3.47	2.38	3.17	1.02
FeO	0.98	1.21	1.12	1.06	0.98	0.70	0.81	11.09	4.88	6.03	1.99
MnO	0.07	0.07	0.08	0.07	0.04	0.05	0.05	0.27	0.12	0.17	0.09
MgO	0.84	0.93	0.86	0.65	0.65	0.50	0.37	6.57	10.73	4.14	0.81
CaO	3.92	3.95	3.97	3.94	3.76	3.02	3.10	11.37	14.91	8.84	3.10
Na ₂ O	4.60	4.39	4.48	4.53	4.56	4.53	4.40	1.38	1.02	3.06	4.47
K ₂ O	1.80	1.86	1.72	1.56	1.87	2.22	1.53	1.27	0.61	1.21	2.87
H ₂ O+	0.72	0.61	0.31	0.34	0.45	0.40	0.64	2.18	1.43	1.22	0.96
H ₂ O-	0.26	0.24	0.26	0.22	0.21	0.20	0.25	0.36	0.27	0.23	0.28
P ₂ O ₅	0.14	0.14	0.17	0.16	0.14	0.12	0.08	0.07	0.07	0.20	0.12
Total	99.87	99.98	100.27	100.18	100.31	100.33	100.21	99.95	100.18	100.41	99.91
ppm											
Sc	3.9	5.9	4.2	2.6	3.4	—	2.8	26.4		25.8	4.0
Co	5.4	4.9	4.5	2.9	3.4	2.8	2.2	46.1		23.6	1.5
Zn	37	51	54	42	42	37	38	128		74	54
Rb	45.8	61.0	45.9	32.4	40.0	64.4	32.0	61.4		44.4	86.0
Cs	2.76	2.81	1.87	1.05	0.51	3.51	1.79	4.78		2.23	2.78
Sr	644	643	677	863	873	713	692	408		547	678
Ba	594	210	614	575	499	758	628	535		683	525
Ce	30.0	44.5	44.3	28.7	26.0	12.1	24.2	13.9		34.5	37.5
Y	11.1	11.5	13.6	8.7	10.6	8.9	9.2	14.7		19.5	18.2
Nb	8.2	10.1	9.3	6.7	9.1	9.4	7.2	3.4		8.1	7.7
Zr	96.4	103	115	89.5	94.6	78.1	82.0	17.7		111	275

る。これらは、A-2~A-4型の岩石では、ホルンブレンドや黒雲母の包有物として産することが多いが、A-5~A-7型の岩石では粒径が増加し、スフェーンや磷灰石をとめない、いくつかの結晶が集まって産することが多くなる。

3.3. 造岩鉱物の組成変化

田野畑累帯深成岩体からの代表的な造岩鉱物の化学組成を第3表⁷⁾に示す。斜長石の組成は、岩体の周縁部(A-2型)で $An_{60} \sim An_{32}$ 、中心部(A-7型)で $An_{35} \sim An_{12}$ と変化している。その場合、斜長石の組成範囲のAn側のAnモルはA-2型からA-7型へと単調に減少しているのに対して、Ab側のAnモルはA-2~A-4型とA-5~A-7型との間にギャップが認められ、後者の方がよりAbモルに富んでいる。角閃石ならびに黒雲母の $Fe/Fe+Mg$ は、全岩の SiO_2 量が増加するにつれ、組成範囲が重なりながら、やや減少か、ほぼ一定の値をとる⁷⁾。



第3図 田野畑累帯深成岩体構成岩石の SiO_2 -モード組成変化図。

第3表 田野畑累帯深成岩体各帯における造岩鉱物の平均化学組成。

Name Type	P1 A-1	P1 A-2	P1 A-3	P1 A-4	P1 A-5	P1 A-6	P1 A-7	Kf A-2	Kf A-3	Kf A-4	Kf A-5	Kf A-6	Kf A-7
SiO ₂	44.78	54.00	56.10	57.28	58.25	59.41	60.56	64.88	65.55	64.45	64.89	64.96	65.17
Al ₂ O ₃	34.24	28.56	27.30	26.67	26.03	25.42	24.73	18.41	18.38	18.34	18.37	18.39	18.48
FeO*	0.16	0.17	0.16	0.12	0.15	0.13	0.07	0.01	—	0.02	0.06	0.05	—
CaO	18.85	11.71	9.96	9.11	8.38	7.09	6.62	0.32	0.33	0.32	0.38	0.36	0.34
Na ₂ O	1.27	5.06	6.02	6.38	7.02	7.05	7.94	1.25	1.03	0.94	1.14	1.51	1.17
K ₂ O	0.01	0.30	0.32	0.34	0.34	0.38	0.36	14.89	15.27	14.68	14.76	14.49	14.76
Total	99.31	99.80	99.86	99.90	100.17	99.48	100.28	99.76	100.56	98.75	99.60	99.76	99.92

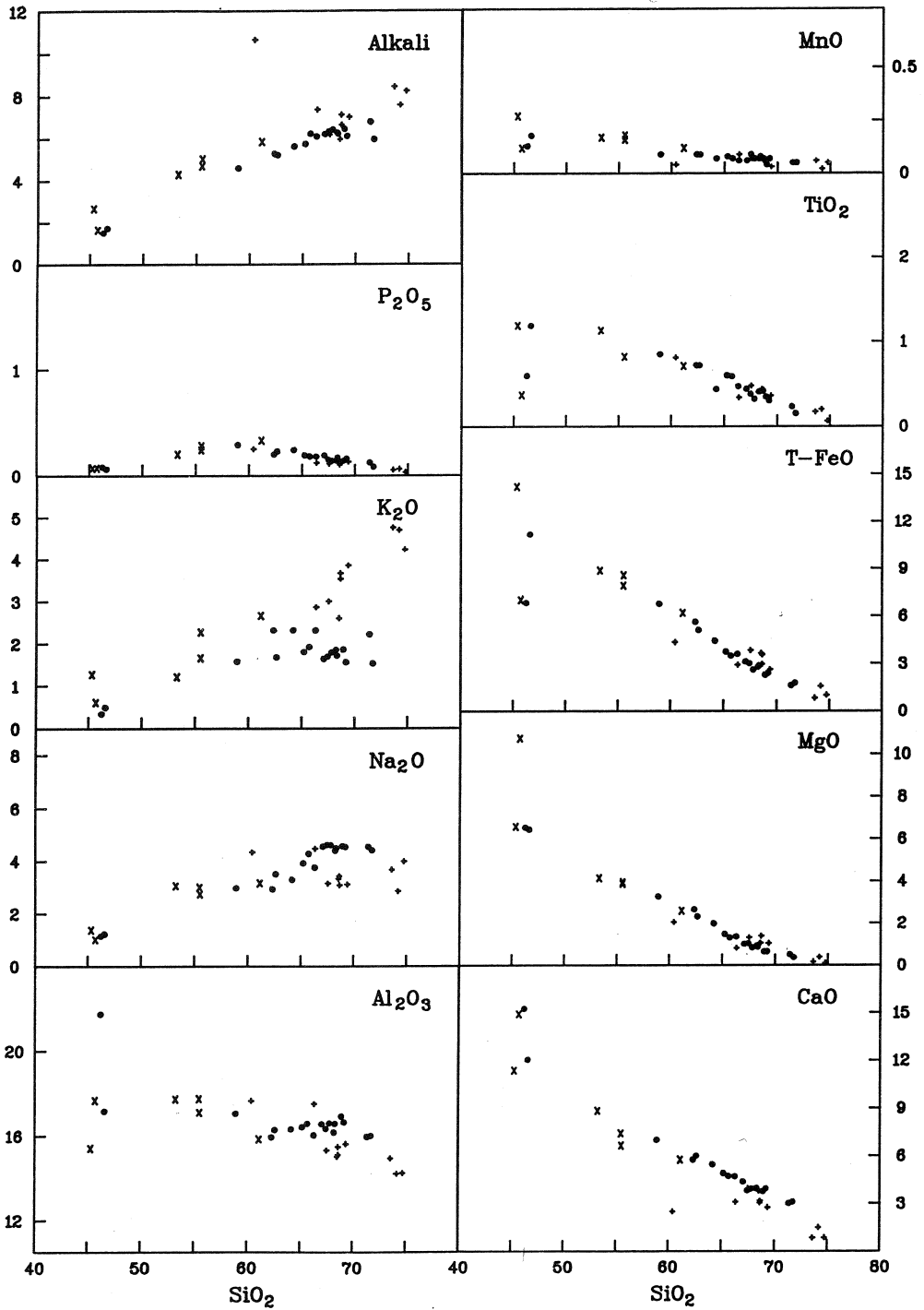
Name Type	Opx A-1	Cpx A-1	Cpx A-2	Ho A-1	Ho A-2	Ho A-3	Ho A-4	Ho A-5	Ho A-6	Bi A-2	Bi A-3	Bi A-4	Bi A-5	Bi A-6	Bi A-7
SiO ₂	53.24	53.00	53.35	46.27	46.85	47.63	48.84	49.29	48.75	36.94	37.40	37.56	37.64	37.95	37.17
TiO ₂	0.13	0.15	0.12	1.32	1.49	1.27	0.98	0.77	0.69	3.80	3.55	3.72	3.37	3.41	3.58
Al ₂ O ₃	1.37	1.53	1.12	9.11	7.69	7.17	6.89	6.04	6.23	14.03	14.33	14.20	13.81	14.26	15.43
Cr ₂ O ₃	—	0.02	0.02	0.07	0.02	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
FeO*	20.98	7.70	7.90	13.39	15.35	14.45	13.45	13.08	13.54	19.07	17.36	17.12	16.80	16.06	17.28
MnO	0.73	0.28	0.49	0.28	0.43	0.52	0.62	1.04	1.28	0.31	0.34	0.46	0.95	1.04	0.93
MgO	22.34	13.95	13.17	13.14	12.17	12.85	13.78	13.96	13.46	11.83	12.92	13.13	13.27	13.64	11.69
CaO	1.29	22.87	23.33	11.74	11.88	12.05	11.88	11.61	11.55	0.22	0.23	0.20	0.24	0.24	0.20
Na ₂ O	0.00	0.44	0.63	1.41	1.12	1.06	1.10	1.08	1.28	0.26	0.24	0.07	0.21	0.39	0.30
K ₂ O	—	—	—	0.55	0.85	0.69	0.46	0.49	0.56	9.26	9.41	9.31	9.22	9.04	9.38
Total	100.08	99.94	100.13	97.28	97.85	97.69	98.00	97.36	97.34	95.72	95.78	95.77	95.51	96.03	95.96

Name Type	Mt A-2	Mt A-3	Mt A-4	Mt A-5	Mt A-6	Mt A-7	Ilm A-2	Ilm A-7
TiO ₂	0.30	0.22	0.32	0.24	0.20	0.33	43.96	33.89
Cr ₂ O ₃	—	0.28	0.20	0.24	0.24	0.16	—	—
V ₂ O ₅	1.06	0.66	0.63	0.49	0.41	0.38	1.16	0.77
Fe ₂ O ₃	68.68	70.47	69.09	68.56	68.80	68.80	15.82	33.36
FeO	31.43	31.78	31.28	30.82	30.28	30.97	34.81	28.74
MnO	0.52	0.76	0.76	0.79	1.33	0.81	4.66	1.71
Total	101.99	104.17	102.28	101.14	101.26	101.45	100.41	98.47

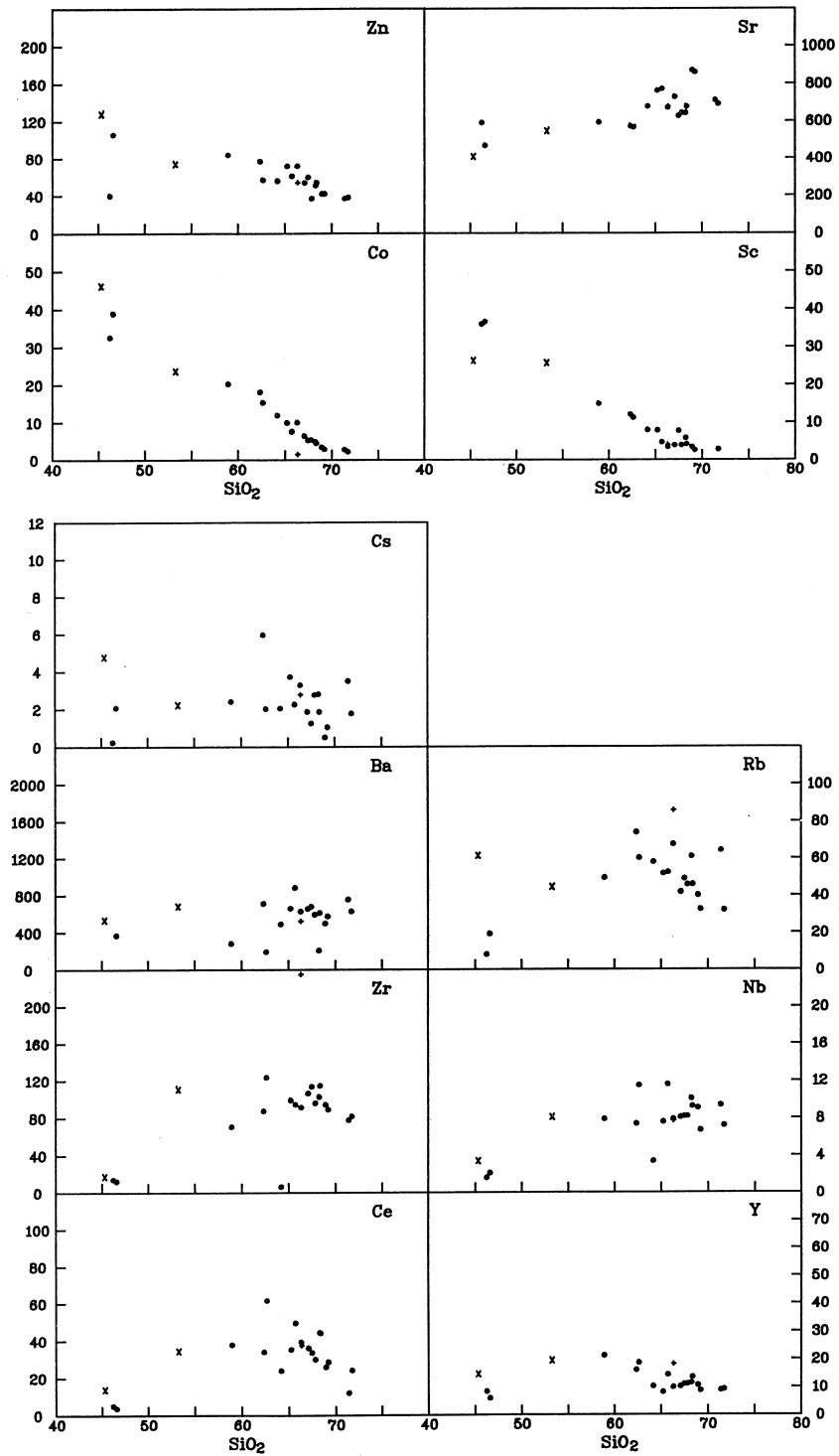
Mt : 磁鉄鉱, Ilm : チタン鉄鉱, それ以外の記号は第1表参照

§4. 試料の分析方法と分析結果

田野畑累帯深成岩体構成岩石18個と周辺の小岩体からの4個の岩石について化学分析を行なった。主成分元素の分析には湿式分析法を用いた。SiO₂, Al₂O₃, MgO, CaO, H₂O±については重量分析, TiO₂, MnOについては比色分析, Total FeO, P₂O₅については容量分析, Na₂O, K₂Oは蛍光分析によって定量した。また, 光量子放射化法を用いて, Ba, Ce, Co, Cs, Nb, Rb, Sc, Sr, Zn, Zr および Y の11微量成分元素の分析を行った。試料の放射化には東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックを利用し, 30MeVの加速電子を用いた⁸⁾。分析結果を第2表に示す。周辺の小岩体については, 系統的な分析を行っていないので, 以下の議論では加藤³⁾のデータを引用した。第2表の値をSiO₂を横軸にとった組成変化図に表わしたものが第4図と第5図である。



第4図 田野畑累帯深成岩体構成岩石の SiO_2 -主成分酸化物組成変化図。
 黒丸は田野畑累帯深成岩体構成岩石，×は川口岩体，そして，+は太田名部岩体および松前沢岩体構成岩石を示す。



第5図 田野畑累帯深成岩体構成岩石の SiO_2 -微量元素組成変化図。
記号は第4図と同じ。

§5. 田野畑岩体の全岩化学組成

5.1. 田野畑岩体を形成したマグマの性格

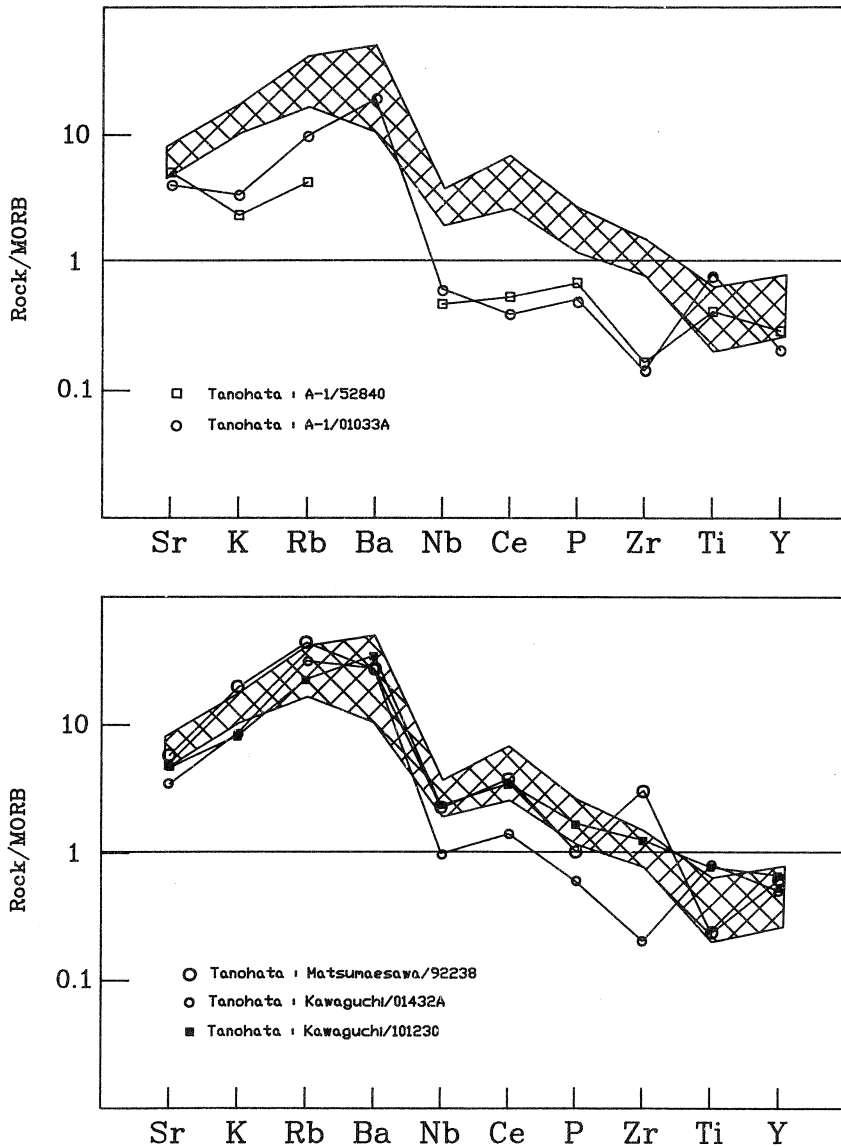
田野畑岩体を構成する岩石の大部分は AFM 図⁹⁾において、カルクアルカリ系列の領域にプロットされる。SiO₂-アルカリ図⁹⁾においては、田野畑累帯深成岩体構成岩石が高アルミナ玄武岩系列岩の領域に近い低アルカリソレライト系列の領域内にはほぼ点示されるのに対して、周辺の小岩体は累帯深成岩体より前に活動したのも、後に活動したのも、よりアルカリ量に富み、高アルミナ玄武岩系列の領域に点示される。カリ量でみた場合、田野畑累帯深成岩体は medium-K 系列¹⁰⁾に相当し、周縁部小岩体のもは、medium-K~high-K 領域¹⁰⁾に点示される。周縁部小岩体構成岩石中にも、田野畑累帯深成岩体に先だって形成されたものと、後から形成されたものとの間に、後述するような化学組成上の違いが認められる。

第6図に田野畑岩体構成岩石のインコンパティブル元素についての MORB 規格化パターン¹¹⁾を示す。田野畑累帯深成岩体構成岩石、特に A-2型から A-7型の岩石は、全体として非常に似通ったパターンを示しており、図で網をかけた範囲に落ちる。その規格化パターンは例えば、東北本州弧背弧側に位置する第四紀火山からのカルクアルカリ安山岩類に非常に近く、Nbの負異常と、HFS 元素に対する LIL 元素の濃集を示している。そして、Y の値に対して、Ce や P が高い。東北本州弧新生代火山岩類のうち、流紋岩質岩とは規格化パターンが明らかに異なっている。つまり、流紋岩では著しい Sr, Ti, そして P 規格化値の低下を通常示すが、田野畑累帯深成岩体構成岩ではそのような特徴は認められない。つまり、田野畑岩体構成岩石が示す MORB によるインコンパティブル元素規格化パターンは発達した島弧~活動的大陸縁辺部に産するカルクアルカリ安山岩に典型的に認められるものである。A-1型のはんれい岩は A-2型以降の岩石に比較して、K, Rbとともに、Nb, Ce, Zr などにも乏しいが、HFS 元素に対して LIL 元素に富む傾向は明瞭に認められる。

5.2. 全岩主成分組成の変化

A-1型のはんれい岩は産状、組織、モード組成が他の型のものとは不連続なため、全岩組成においても開きがあるが、いくつかの組成変化図上で、A-2型以下の岩石とともにスムーズな組成変化トレンドを描くことが可能である。

A-2型から A-7型の岩石では、SiO₂量で59%から72%まで変化している。各成分は第4図、第5図において、ほぼ同一の線上にプロットされ、岩体の周縁部から中心部へと連続的に変化している。SiO₂量が増えるにつれて、TiO₂, FeO*, MgO, CaO 量は連続的に減少している。Na₂O は A-2型から A-3型へと微増した後、A-4型から A-5型へ急増し、そ



第6図 インコンパティブル元素のMORB規格化パターン。
 網をかけた部分は田野畑累帯深成岩体を構成するA-2～A-7型の岩石が示す領域である。

の後A-6型からA-7型へと一定ないしわずかに減少している。K₂Oは、A-2型からA-3型へとわずかに増加後、A-3型からA-4型へと減少し、その後A-7型までほぼ一定の値を示している。FeOがA-2型からA-3型へと減少後、A-4型からA-7型へは減少率が低下しているのに対して、Fe₂O₃はA-2型からA-3型へとほぼ一定ないしわずかに減少した後、A-4型からA-7型へと急減している。また、Fe₂O₃/FeOはA-2型からA-4

型へと増加後、A-5型からA-7型へとほぼ一定ないしわずかに減少している。P₂O₅はA-2型からA-7型へ単調に減少している。Al₂O₃はA-2型からA-3型へとわずかに減少した後、A-3型からA-4型へ増加し、その後A-6型からA-7型へ減少している。これらの変化はNa₂OやK₂Oにみられる変化、あるいは斜長石モード組成の変化などとよく対応しており、有意のものと判断される。アルカリはA-1型からA-4型まで直線的に増加した後、A-5型からA-7型へほぼ一定ないしわずかに減少の傾向を示している。K/Na比はA-2型からA-3型へと一定ないしわずかに増加した後、A-3型からA-4型へ減少し、その後はA-7型までほぼ一定ないしわずかに増加の傾向を示している。FeO*/MgO比はA-2型からA-3型へと微増し、その後、A-4型からA-7型へと増加している。以上のように、田野畑累帯深成岩体構成岩石の全岩化学組成の変化は、これらが一連のものであることを示すとともに、A-2・3型と、A-4・5型およびA-6・7型との間に組成変化様式の違いが存在することを明瞭に示している。

第4図において、周縁小岩体をなす太田名部岩体、松前沢岩体構成岩石は、そのモード組成を反映して、K₂Oに富み、Na₂Oが低く、田野畑累帯深成岩体構成岩石の描く組成変化経路とは異なるトレンドを描いている。また川口岩体については、苦鉄質側岩石の分析値しかないで、岩体全体にわたって田野畑累帯深成岩体と組成を比較することはできないが、少なくとも苦鉄質側ではK₂O、Na₂Oともに高い傾向が認められる。累帯深成岩体の貫入に先だって形成された川口岩体と、後から形成された、太田名部、松前沢岩体には、全体として、前者がより苦鉄質であるのに対して、後者はより珪長質である傾向がある。さらに、川口岩体が田野畑累帯深成岩体構成岩石と同様のK/Na比を有しているのに対して、後から貫入した太田名部、松前沢岩体はより高いK/Na比を示している。

5.3. 全岩微量成分組成の変化

微量元素に関しては、まず、Sc、CoがA-2型からA-7型へと単調に減少している（第5図）。ZnもA-2型からA-7型へと減少の傾向を示している。RbはA-2型からA-3型へほぼ一定か、わずかに増加した後、A-4型へと減少している。その後A-4型からA-7型までほとんど同じ程度の平均値を示している。Csの挙動ははっきりしないが、全体にはほぼ一定か、わずかに減少の傾向がみられる。ただし、A-6型からA-7型へはわずかに増加しているようである。SrはA-2型からA-3、A-4型へと増加後、A-6型からA-7型へは減少しているようである。この変化はAl₂O₃や斜長石のモード組成変化とよく対応している。Baは分析精度が充分ではないので、細かいことは言えない。CeはA-2型からA-7型

へと減少しているが、A-2～A-3型とA-4～A-7型では異なるトレンドを描いているようにも見える。Yの含有量もA-3型以降に対して、A-2型が最も高いが、A-4型からA-7型へはあまり変化していない。NbもA-2型からA-7型へと減少する傾向がみとめられるが、A-2～A-3型のトレンドに対してA-4～A-7型は別のトレンドを描いているように見える。ZrもNbと同じ挙動を示している。試料101403はNb、Zrともに他の試料に比べて著しく低い値を示しているが、原因は不明である。後から貫入した松前沢岩体の岩石は田野畑累帯深成岩体や川口岩体に比較して、高いZr/Nb比を示している。

§6. 田野畑累帯深成岩体の形成機構

6.1. 累帯深成岩体

花崗岩質貫入岩体には、累帯深成岩体が多く観察される。累帯深成岩体の定義は明確ではないが、一般には、岩体の周縁部でより苦鉄質で、中心部に向かってより珪長質となる組成累帯構造を示す岩体を累帯深成岩体 (Zoned Pluton) と呼んでいる¹²⁾。近年、深成岩について、微量元素組成、同位体比が数多く測定されるようになって、累帯深成岩体が注目されている。その理由として、これらのデータを用いて花崗岩質マグマの分化を論じる際、累帯深成岩体が最も適していることがあげられる。すなわち、累帯深成岩体を構成する各ユニットの岩石が同一マグマに由来する (co-magmatic) ならば、主要および微量元素組成を用いて、結晶分化経路をコントロールした鉱物の種類や量の推定が可能になる。また、各ユニットの鉱物組合せの変化はその推定をより確かなものにし、晶出順序の推定を可能にする。さらに、推定された鉱物の晶出順序から、岩石の溶融実験で得られたP-T図をもとに、その結晶分化経路を描くことができる。

累帯深成岩体の成因については、主に以下の三つの機構が考えられている。(1) in situ differentiation by inward fractional crystallization: このメカニズムが累帯深成岩体の成因としては最も一般に支持されている。これは、単一のマグマが、溜りにおいてその周縁部から中心部に向かって、結晶分別作用によって分化し、組成の累帯構造が生じるというものである¹³⁾。(2) successive intrusion: これは、茨木岩体で考えられた^{14,15)}もので、単一の親マグマが分化し、その分化物が successive intrusion することによって組成の累帯構造ができるというメカニズムである。(3) magma mixing (with multiple injection, fractional crystallization). これは Loch Doon Pluton などで主張されているもので、主に同位体のデータに基づくことが多い¹⁶⁾。

第4表 田野畑帯深成岩体を構成する各岩型の平均組成と推定された集積相組成。

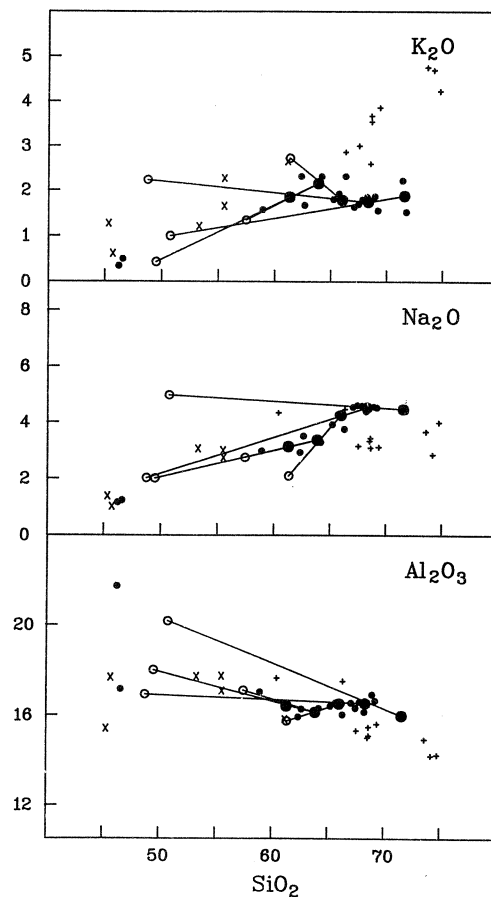
Type	A-2	A-2・3	A-4	A-5・6	A-7
Pl	49.3	51.0	56.4	54.9	50.0
Kf	2.1	4.8	5.7	7.3	13.4
Qz	23.8	24.3	26.2	29.3	32.4
Cpx	0.0	0.0	—	—	—
Act	0.1	0.1	—	—	—
Ho	12.3	9.7	5.1	2.1	—
Bi	10.6	7.3	4.5	4.4	4.3
Ore	0.9	1.0	1.2	0.8	0.0
Sph	0.2	0.3	0.7	0.4	—
Others	0.9	0.5	0.2	0.9	—
Total	100.1	98.8	100.1	100.0	100.0
SiO ₂	61.31	63.88	66.02	68.35	71.59
TiO ₂	0.76	0.59	0.54	0.36	0.19
Al ₂ O ₃	16.42	16.14	16.51	16.53	15.98
Fe ₂ O ₃	2.56	2.43	2.19	1.73	1.04
FeO	3.53	2.51	1.48	1.10	0.76
MnO	0.09	0.08	0.07	0.07	0.05
MgO	2.74	2.08	1.27	0.83	0.44
CaO	6.26	5.49	4.66	3.89	3.06
Na ₂ O	3.14	3.37	4.25	4.53	4.47
K ₂ O	1.86	2.16	1.79	1.75	1.88
H ₂ O+	0.89	0.71	0.59	0.53	0.52
H ₂ O-	0.22	0.26	0.27	0.25	0.23
P ₂ O ₅	0.24	0.21	0.19	0.15	0.10
Total	100.02	99.89	99.84	100.08	100.27
Sc	12.8	8.7	5.5	4.6	2.8
Co	17.9	13.8	8.0	4.4	2.5
Zn	73	66	62	48	38
Rb	61.2	65.0	48.6	45.7	48.2
Cs	3.47	3.34	2.62	1.71	2.65
Sr	578	623	755	721	703
Ba	398	507	734	529	693
Ce	44.6	39.9	40.4	34.5	18.2
Y	18.7	13.7	10.9	11.1	9.1
Nb	8.9	8.9	9.1	8.6	8.3
Zr	94.4	101	101	102	80.1
Cumulates	A-2 ^{a)}	A-2 ^{b)}	A-2・3	A-4	A-5・6
SiO ₂	49.54	57.47	61.34	48.79	50.77
TiO ₂	1.59	1.07	0.67	2.15	1.36
Al ₂ O ₃	18	17.11	15.76	16.93	20.18
Fe ₂ O ₃	3.22	2.82	2.83	6.16	5.86
FeO	8.56	5.38	4.1	4.78	3.17
MnO	0.14	0.11	0.09	0.07	0.19
MgO	6.02	3.95	3.33	4.98	3.19
CaO	10.11	7.7	6.81	11.35	8.92
Na ₂ O	2.01	2.75	2.09	2.02	4.97
K ₂ O	0.43	1.35	2.73	2.23	0.99
P ₂ O ₅	0.39	0.29	0.24	0.53	0.44
Total	100.01	100.00	99.99	99.99	100.04

a) 分別相に石英を含まない場合, b) 分別相に石英を含む場合

6.2. 田野畑累帯深成岩体における結晶分別作用

林^{4,7)}は田野畑累帯深成岩体において、鉱物モード組成ならびに主要造岩鉱物の組成が岩体周縁部から中心部に向かって連続的に変化していることや、全岩化学組成がなめらかな変化経路を示す^{3,4)}ことなどから、田野畑累帯深成岩体を構成する岩石（少なくともA-2～A-7型の岩石）は、同一マグマの一連の結晶分別作用により形成されたと結論している。

今回の分析結果は、そのような一連の分化物のなかで、先に形成されたA-2・3型と後から形成されたA-6・7型との間に組成変化様式の違いが存在することを示している。それら両トレンドをA-4・5型が繋ぎ、その結果、いくつかの分析元素において組成変化経路がS字状を呈している（第7図）。この問題を詳しく検討するために、まず各岩石グループについて



第7図 田野畑累帯深成岩体における組成変化経路と分別相の組成変化。
大きい黒丸は各岩型の平均化学組成であり、それとタイラインで結ばれた白丸が分別相の組成を示す。それ以外の記号は第4図と同じ。

での平均組成を計算した(第4表)。分析データが必ずしも十分ではないので、A-5型とA-6型は一緒にして(A-5・6型)、また、A-2型の平均値とともにA-2型の一部とA-3型を用いた平均値(A-2・3型)を計算した。さらに、これらの平均値を使用して、Wright and Doherty¹⁷⁾が用いた方法により、分別鉱物の組合せの検討と、その量比の計算を試みた。

花崗岩質岩の場合、火山岩とは異なり、分別結晶相の組合せを決めることはそう簡単ではない。林⁴⁾は田野畑累帯深成岩体における各型の鉱物組合せの変化および産状から鉱物の晶出順序を推定している。彼は、単斜輝石はホルンブレンド中に産するが、A-2型よりA-3型のものの方が小さくなり、A-4型ではホルンブレンド中に単斜輝石はみられなくなること、石英とカリ長石については、両者の接合部において、石英の自形性が良いこと、カリ長石は常に他の主要構成鉱物の粒界を充填していることから、石英の方がカリ長石よりも早期に晶出したと考えられること、斜長石は構成鉱物中最も自形性が良く、リキダス相と考えられることなどから、晶出順序は、斜長石、斜方輝石、単斜輝石、ホルンブレンド、黒雲母、石英そしてカリ長石の順であったと推定している。

実際の分別相の計算にあたっては、隣合う岩型の主成分組成の平均値(第4表)を用いた。そして、分別相としてはそのうちの苦鉄質側岩石を実際に構成している鉱物、ならびにその組成(第3表)を使用した。主成分を用いたので燐灰石などの副成分鉱物は分別相から除外した。カリ長石は常に填間状に分布し、しかもそのモードがSiO₂の増加とともに単調増加しているのでこれも除外した。斜長石は自形~半自形で量が多く、ホルンブレンドはモードがSiO₂の増加とともに単調に減少しているので、また、鉄鉱は通常、ホルンブレンドに伴われるので、これらは分別相に常に含まれるものとした。問題は石英と黒雲母である。石英は、A-2型からA-3型へSiO₂が増加するにもかかわらずあまり増加せず、その後、A-6型からA-7型へと急増している。これは、前者では石英が分別し、後者では石英が分別相でなくなったことを示唆している。一方、黒雲母は、A-2型からA-3型へと急減し、A-4型からA-7型へはほとんど一定になっていることから、前者では主要な分別相として存在し、後者では分別量が急減したことを示している。これらを参考にして得られた分別相の組合せと、量比に関する計算結果を第5表に示す。これらの計算結果はモード組成の変化様式などから予想される分別相とも矛盾しないものを選んである。A-2型からA-2・3型を分別する場合については、分別相に石英を含む場合と含まない場合の両方の計算結果を示してある。この場合いずれが適当か明瞭ではないが、石英を加えるとわずかに残差自乗和が小さくなる。この結果から明

第5表 田野畑累帯深成岩体における分別相に関する計算結果。

親 マグマ 娘 マグマ		分別相 (%)					残差自乗和	分別量
		斜長石	石英	角閃石	黒雲母	磁鉄鉱		
A-2	A-2・3	44.51	—	41.55	11.10	2.83	0.0737	17.6%
A-2	A-2・3	48.56	18.52	17.40	12.81	2.69	0.0520	36.0%
A-2・3	A-4	45.97	28.30	8.24	14.91	2.56	0.1113	39.4%
A-4	A-5・6	55.94	—	37.97	—	6.07	0.1792	10.1%
A-5・6	A-7	75.58	—	17.65	—	6.76	0.0742	13.9%

らかなように、分別相は主に斜長石、ホルンブレンド、鉄鉱からなり、これにときに黒雲母や石英が加わっている。分別相の鉱物組合せは、A-2～A-4型と、A-4～A-7型とで明瞭な差があり、前者では黒雲母、ときに石英が分別相に加わっているのに対して、後者ではそれらを欠いている。特にA-2・3型からA-4型を導くには石英の分別が必要である。

第7図に、上の結果を用いて計算した集積相の組成(第4表)を各岩型の平均組成とともに示す。集積相の組成は、分別した固相量を用いて全岩化学組成から計算した。この図でも、田野畑累帯深成岩体構成岩石の組成変化は2本のトレンドとこれを繋ぐ部分とからなり、その結果として分化経路がS字状を呈することが明瞭に示されている。このS字状の分化経路は、分化の途中で石英が分別相に加わった後、なんらかの原因でその後、石英(+黒雲母)の分別が止まったために生じたと推定される。A-2型からA-4型では斜長石組成のAb側が変化せず、A-5型以降でAb成分が急に増加している現象はこの石英の挙動と関係するものかもしれない。

6.3. 田野畑累帯深成岩体の形成機構

石英と斜長石間の相関係は花崗岩系(An-Ab-Or-Qz系)¹⁸⁾で検討できる。花崗岩系において、マグマが水に飽和している場合、高圧側では石英の安定領域は広く、温度低下に伴い斜長石に続いて石英斑晶が晶出する。ところが、このマグマが低圧側に移動すると、石英の初相領域は減少するために、マグマは斜長石ないし長石初相領域にはいって、石英の晶出が止まる。

A-2・3型からA-4型、そしてA-5・6型にかけて推定される分別相の変化は、花崗岩質マグマの分化の途中で、固化深度が浅くなったために生じたと考えることが可能である。

そのような固化深度の変化は、周縁部に分布する A-2・3 型に対して、より中央側に位置する A-4・5 型が貫入関係にあることから、未固結の中心部が早期に固化した A-2・3 型からなる周縁殻を破って上昇することにより生じた可能性が最も高い。A-4・5 型から A-6・7 型への分化は基本的には、核部が上昇した後での、より浅所での *in situ* の結晶分別作用によるものであろう。これらの間でも一部に貫入関係が認められることから、未固結部の上昇が小規模ながら引き続いて進行していたと考えられる。

田野畑岩体を形成したマグマの結晶分化=固結のレベルが大きく 2 つあると考えると田野畑岩体の形成史を次のように描くことができる。まず、早期にマグマの主要部は相対的に深いレベルにあり、そこで A-2・3 型を形成していた。その位置での温度の低下に伴い、A-4 型を形成していたが、この時点でマグマ溜り内部の未固結部が上昇して、固化途上の A-4 型がより内側の液状核部とともに周縁部の A-2・3 型を切って上方に移動した。上昇したマグマでは石英の分別が止まり、斜長石とホルンブレンドを主とする結晶分化作用により A-5 型から A-7 型が形成されて、浅い溜りは全体として固化した。これらの間にも一部に貫入関係があることから、A-4 型の上昇後も、小規模の液状核部の上方移動が引き続き進行したと推定される。

光量子放射化分析にあたり、東北大学核理研の榎本和義博士、現在金研に移られた八木益男教授、ならびにライナック・マシングループの方々、東北大学サイクロトロン RI センターの中村尚司教授、山寺亮博士をはじめ職員の方々にお世話になった。また、東北大学教養部、蟹沢聰史教授、石川賢一博士、同岩鉱教室の大沼晃助教授、藤巻宏和助教授、長谷中利昭博士、そして、理学電機(株)村田守博士には、諸般にわたって御助力頂いた。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金 (Nos. 01302019, 02453045) 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) 石井清彦, 千藤忠昌, 植田良夫: 岩鉱 39 (1955) 177.
- 2) K. Ishii, T. Sendo and Y. Ueda: Sci. Rep. Tohoku Univ. Ser. III, 5 (1956) 153.
- 3) 加藤祐三: 岩鉱 72 (1977) 443.
- 4) 林 歳彦: 岩鉱 81 (1986) 359.
- 5) 杉本幹博: 東北大地質古生物研邦報 73 (1972) 97.

- 6) 河野義礼, 植田良夫 : 岩鉱 53 (1965) 143.
- 7) 林 歳彦 : 岩鉱 77 (1982) 147.
- 8) T. Yoshida, K. Masumoto and Aoki K. : J. Japan. Assoc. Min. Pet. Econ. Geol. 81 (1986) 406.
- 9) H. Kuno : Bull. Volcanol. 29 (1966) 195.
- 10) J. B. Gill : *Orogenic andesites and plate tectonics* (Springer-Verlag, 1981) p. 390.
- 11) J. A. Pearce : *Continental basalts and mantle xenoliths*. eds. C. J. Hawkesworth and M. J. Norry (Shiva, 1983) p. 230.
- 12) J. A. Vance : Geol. Soc. Am. Bull. 72 (1961) 1723.
- 13) P. C. Regland and J. R. Butler : J. Geology, 13 (1972) 381.
- 14) 田結庄良昭 : 地質雑 77 (1971) 57.
- 15) Y. Tainosho : J. Geosciences, Osaka City Univ. 17 (1974) 53.
- 16) A. N. Halliday, W. E. Stephens and R. S. Hartman : J. Geol. Soc. London, 137 (1980) 329.
- 17) T. L. Wright and P. C. Doherty : Geol. Soc. Amer. Bull. 81 (1970) 1995.
- 18) O. F. Tuttle and N. L. Bowen : Geol. Soc. Amer. Mem. (1958) p. 74.

伊豆，神津島火山噴出物の地球化学

大阪府科学教育センター，教養部*，理学部**

谷口宏充・吉田武義*・青木謙一郎**

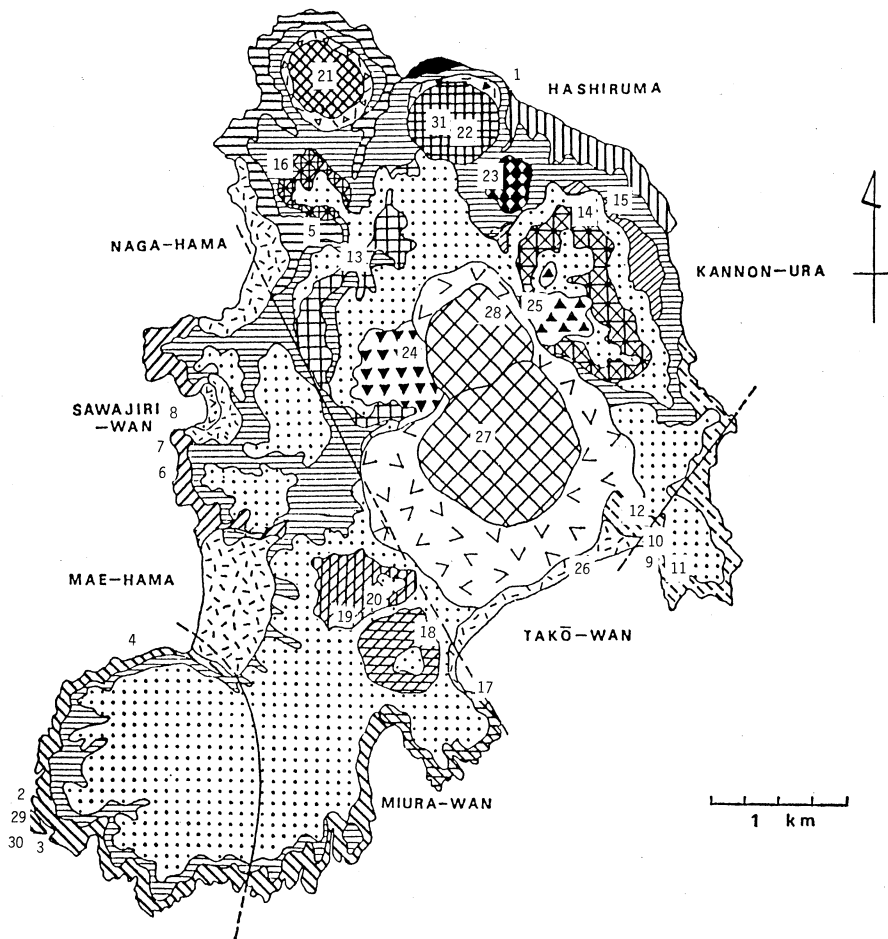
§1. まえがき

伊豆諸島中の神津島は新島，式根島とともに流紋岩よりなる第四紀火山島である^{1,2,3)}。これら三つの島を含む地域の岩石学的問題は多量の流紋岩の成因であり，また，新島に少量噴出している高アルミナ玄武岩との関わりについても注目が払われねばならない。だが，その研究例は極めて少ない。そのうち，Tsuya¹⁾は神津島の各種流紋岩は，主要元素の変化傾向から判断して，同一マグマの晶出分化作用によって形成された可能性を指摘している。福山ほか⁴⁾は希土類元素の存在パターンから，新島の流紋岩は高アルミナ玄武岩質マグマからの晶出分化作用によっては形成されない事を指摘している。

本報告では，神津島火山岩についての光量子放射化法などによる分析結果を岩石記載とともに示し，それらに基づいて，マグマの成因的事柄について若干の考察を行う。

§2. 地質概説

神津島の地質については既に報告しているので^{2,5)}，ここではその概略だけを述べる。第1図に同島の地質図を示す。神津島は伊豆半島の湯が島層群相当の第三紀層を基盤とし，基盤の一部は返浜にカリ流紋岩として分布している。第四紀火山活動の初期には高アルミナ玄武岩系の普通輝石角閃玄武岩の活動の可能性があるが，前後してソーダ流紋岩の活動が始まった。ソーダ流紋岩の活動は三つの時期に区分される。第I期活動は黒雲母流紋岩からなる砂糠山溶岩，那智山溶岩，カミングトン閃石流紋岩からなる名組湾溶岩，沢尻湾溶岩，そして紫蘇輝石流紋岩の走る間溶岩，面房溶岩の噴出によって構成されている。噴出年代は70,000～54,000 Y.B.P 程度⁵⁾である。たぶん浅い海底に噴出し，数個以上の離島を形成した。第II期活動(40,000～29,000 Y.B.P)は秩父山火砕岩の噴出から始まり，同火砕岩下部層の噴出を基準にして前期と後期の二つの時期に細分される。第II期以後の活動はすべて黒雲母流紋岩質マグマによるものであり，また，本活動によって第I期に形成された離島間は厚い碎屑物によって埋められ，ひとつないし少数の島にまとめあげられた。前期活動では丈五郎山溶岩円頂丘，阿波命溶岩円頂丘が生まれ，後期活動では松山鼻溶岩円頂丘，大沢溶岩円頂丘，高処山溶岩円頂丘



	Tenjō-san lava dome		Ōsawa lava dome
	Tenjō-san crumble breccia		Matsuyama-hana lava dome
	Shiromama pyroclastic rock		Awanomikoto lava dome
	Kushiga-mine cinder cone		Jogorō-yama lava dome
	Shiroshima cinder cone		Jogorō-yama pyroclastic rock
	Kaminari-yama lava dome		Chichibu-yama pyroclastic rock
	Anagi-yama lava dome		Membō lava (lower)
	Anagi-yama crumble breccia		Hashiruma lava
	Kōbe-yama lava dome		Sawajiri-wan lava
	Kōbe-yama crumble breccia		Nagumi-wan lava
	Chichibu-yama pyroclastic rock (upper)		Wachi-san lava
	Sawajiri-wan vent breccia		Sanuka-yama lava
	Takōdo-yama lava dome		Kaesu-hama lava

第1図 神津島の地質図。
 図中の数字は岩石試料の採集位置を表わし、第1表のNo.に対応している。

が生まれた。更に沢尻湾火道角礫岩もこの時期の噴出物かもしれない。この後期噴出物は秩父山火砕岩上部層によって直接被われている。第Ⅲ期活動は雷山、アナギ山および神戸山の三つの溶岩円頂丘を形成した活動(2,600 Y.B.P)と、それ以後の天上山の活動の二つに細分される。先の三つの円頂丘は同一マグマの割れ目噴出の結果形成されたと考えている。天上山の活動は最も新しく西暦838年⁶⁾であり、初期に軽石丘の形成と降下火砕物の活動があり、続いて火砕流、最後に双子の溶岩円頂丘が上昇した。

§3. 岩石記載

第四紀火山活動で噴出した岩石は、普通輝石角閃石玄武岩とソーダ流紋岩である。後者は更に斑晶有色鉱物の組み合わせから黒雲母流紋岩、カミングトン閃石流紋岩および紫蘇輝石流紋岩に大別される。第Ⅰ期活動はこれら三種の流紋岩質マグマによったが、他はすべて黒雲母流紋岩質マグマだけの活動であった。以下に各岩石の記載学的特徴の要点を述べる。

(1) 普通輝石角閃石玄武岩

斑晶としては斜長石、普通輝石、角閃石、磁鉄鉱が現れ、そのうち斜長石が最も多く、自形で長さ1 mm位、組成はラブラドライト程度である。普通輝石は大きさ0.5~1 mmで、しばしば周囲より角閃石に変化している。角閃石は酸化角閃石で強い多色性(X=light brown, Z=brown, $c \wedge Z' = 6^\circ$)を呈する。長径は0.2~1.3 mm程度である。石基は主に褐色の火山ガラスであるが、それに斜長石、角閃石および磁鉄鉱を伴う。

(2) 黒雲母流紋岩

他の流紋岩に比べやや斑晶に乏しい(1~19 vol. %)。斑晶は一般に斜長石、石英、黒雲母、磁鉄鉱であるが例外的に角閃石を含み、また石英を欠く事がある。斜長石はオリゴクレス〜アンデシンで、丸みを帯びた黒雲母や磁鉄鉱の小片を含む事がある。黒雲母は一般に新鮮であるが、天上山の岩石の一部はオパサイト化し、あるいは変質し、たぶん vermiculite 化したものを含む。石基は一般にガラス質であり、時に隠微晶質、スフェルライト質あるいは真珠岩状組織を示す。石基鉱物として斜長石、黒雲母、ジルコン、クリスタライト等が確認される場合もある。

(3) カミングトン閃石流紋岩

斑晶量は他の二種類の流紋岩の中間にあたる(11~26 vol. %)。斑晶は斜長石、石英、カミングトン閃石、磁鉄鉱であり、それに少量の紫蘇輝石を含む。稀に周囲をカミングトン閃石で取り囲まれた普通角閃石が認められる。斜長石はオリゴクレス〜アンデシンで、融食された

第1表 岩石試料のリスト

No.	Sample No.	Main Mafic Phenocryst	Member Name	No.	Sample No.	Main Mafic Phenocryst	Member Name
1	731121	(Hb)-Hy	Hashiruma	17	731144	Bi	Matsuyama-hana
2	731103	(Hb)-Hy	Membo	18	733192	Bi	Osawa
3	731104	(Hb)-Hy	Membo	19	731141	Bi	Takodo-yama
4	733152	(Hb)-Hy	Membo	20	733191	Bi	Takodo-yama
5	733168	(Hb)-Hy	Nagumi-wan	21	731124	Bi	Kobe-yama
6	731166	Cum	Sawajiri-wan	22	731122	Bi	Anagi-yama
7	7311613	Cum	Sawajiri-wan	23	731115	Bi	Kaminari-wama
8	7311618	Cum	Sawajiri-wan	24	7311312	Bi	Shiroshima
9	731146	Bi (Li)	Sanuka-yama	25	731139	Bi	Kushiga-mine
10	7311410	Bi (Ob)	Sanuka-yama	26	731145	Bi	Shiromama
11	733193	Bi (Pe)	Sanuka-yama	27	731138	Bi	Tenjo-san
12	731148	Bi	Sanuka-yama	28	731132	Bi	Tenjo-san
13	7311111	Bi	Nachi-san	29	731102	Au-Hb basalt (Xe)	
14	731111	Bi	Jogoro-yama	30	KA0127	Au-Hb basalt (Xe)	
15	733182	Bi	Jogoro-yama	31	735121	Bi quartz diorite (Xe)	
16	733183	Bi	Awanomikoto				

Hy: hypersthene, Hb:hornblende, Cum: cummingtonite, Bi: biotite,
Li: lithic, Ob: obsidian, Pe: perlite, Xe: xenolith

黒雲母を含むことがある。石英は自形～融食形である。カミングトン閃石は長径数 mm 以下で、一般に自形の淡緑色からやや褐色がかったものである ($c \wedge Z' = 10 \sim 13^\circ$)。新鮮なものが多いが、なかにはオパサイト化し、あるいは変質の進んだものも認められる。石基は一般にガラス質、隠微晶質、スフェルライト質である。鉱物としては斜長石、シリカ鉱物、磁鉄鉱、ジルコンが認められ、稀に黒雲母が生じている。

(4) 紫蘇輝石流紋岩

他に比べて斑晶の多い (15~40 vol. %) 流紋岩である。斑晶として斜長石 (オリゴクレーヌ～アンデシン)、石英、紫蘇輝石、磁鉄鉱を含み、それに少量の角閃石を伴う。稀に少量の普通輝石が認められる。石英や磁鉄鉱は一般に融食形、紫蘇輝石は自形で新鮮である。面房溶岩中の紫蘇輝石は $En_{68-63}Fs_{42-37}$ であった。斜長石や紫蘇輝石は稀に黒雲母の小片を含む。石基はガラス質、隠微晶質、スフェルライト質であり、鉱物として斜長石、シリカ鉱物、磁鉄鉱等を含む。

第1表に岩石試料の説明を、第2表に各流紋岩のモード組成を示す。一般に石基の割合は黒雲母流紋岩で最も多く、角閃石流紋岩、紫蘇輝石流紋岩の順に少なくなる。斜長石/石英の値は1例を除いて1以上であり、また、斜長石は常に存在する。

第2表 神津島流紋岩のモード組成

No.	Sample No.	Main Mafic Phenocryst	Pl	Q	Hy	Hb	Bi	Ore	Gr	Xe	Pl/Q
1	731121	(Hb)-Hy	17.2	4.5	0.4	-	-	0.1	59.9	17.9	3.8
2	731103	(Hb)-Hy	23.3	6.8	0.5	-	-	0.4	69.2	-	3.4
3	731104	(Hb)-Hy	15.5	4.0	0.4	0.1	-	0.5	79.5	-	3.9
4	733152	(Hb)-Hy	10.7	3.8	0.5	-	-	0.1	84.9	-	2.8
5	733168	(Hb)-Hy	18.6	6.9	0.3	0.1	-	0.2	73.8	-	2.7
6	731166	Cum	10.4	3.6	-	0.6	-	0.2	85.3	-	2.9
7	7311613	Cum	12.2	2.6	-	0.3	-	0.3	84.6	-	4.8
8	7311618	Cum	8.5	2.4	-	0.3	-	0.3	88.6	-	3.5
9	731146	Bi	1.0	0.1	-	-	-	-	98.9	-	10
10	7311410	Bi	1.8	-	-	-	0.2	0.1	98.0	-	-
11	733193	Bi	0.8	-	-	-	-	-	99.2	-	-
13	7311111	Bi	5.4	4.8	-	-	0.5	0.2	89.2	-	1.1
14	731111	Bi	7.0	3.9	-	-	0.7	0.2	88.2	-	1.8
15	733182	Bi	4.5	5.3	-	-	0.5	-	89.8	-	0.8
16	733183	Bi	10.1	2.7	-	-	0.7	0.2	86.3	-	3.8
17	731144	Bi	5.8	1.6	-	-	0.3	0.3	92.1	-	3.6
18	733192	Bi	6.5	3.8	-	-	0.3	0.1	89.3	-	1.7
19	731141	Bi	4.3	2.4	-	-	0.5	0.2	92.6	-	1.8
20	733191	Bi	6.4	3.8	-	-	0.9	0.1	88.9	-	1.7
21	731124	Bi	8.8	2.5	-	-	0.5	0.3	87.8	-	3.5
22	731122	Bi	11.8	4.3	-	-	0.5	0.3	83.0	0.2	2.8
23	731115	Bi	11.9	5.8	-	-	0.8	0.1	81.5	-	2.0
24	7311312	Bi	11.7	2.2	-	-	0.1	-	86.0	-	5.3
25	731139	Bi	3.4	0.4	-	-	0.2	0.2	95.8	-	7.3
26	731145	Bi	8.9	4.8	-	-	0.6	0.1	85.7	-	1.9
27	731138	Bi	12.6	5.8	-	-	0.3	0.1	81.2	-	2.2
28	731132	Bi	8.9	3.8	-	-	0.5	-	86.9	-	2.4

Pl: plagioclase, Q: quartz, Hb: cummingtonite + common hornblende
 Ore: magnetite + ilmenite, Gr: groundmass

§4. 試料の分析方法ならびに分析結果

神津島火山の流紋岩および玄武岩質捕獲岩について、主要ならびに微量成分元素の全岩化学分析を行なった。主成分元素の分析には湿式分析法を用いた。SiO₂, Al₂O₃, MgO, CaO, H₂O±については重量分析, TiO₂, MnOについては比色分析, Total FeO, P₂O₅については容量分析, Na₂O, K₂Oは蛍光分析によって定量した。また、光量子放射法を用いて、Ba, Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Zn, ZrおよびYの13微量成分元素の分析を行った。試料の放射化には東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックを利用し、30MeVの加速電子を用いた⁷⁾。結果を第3表と第4表に示し、組成変化図を第2図と第3図に示す。

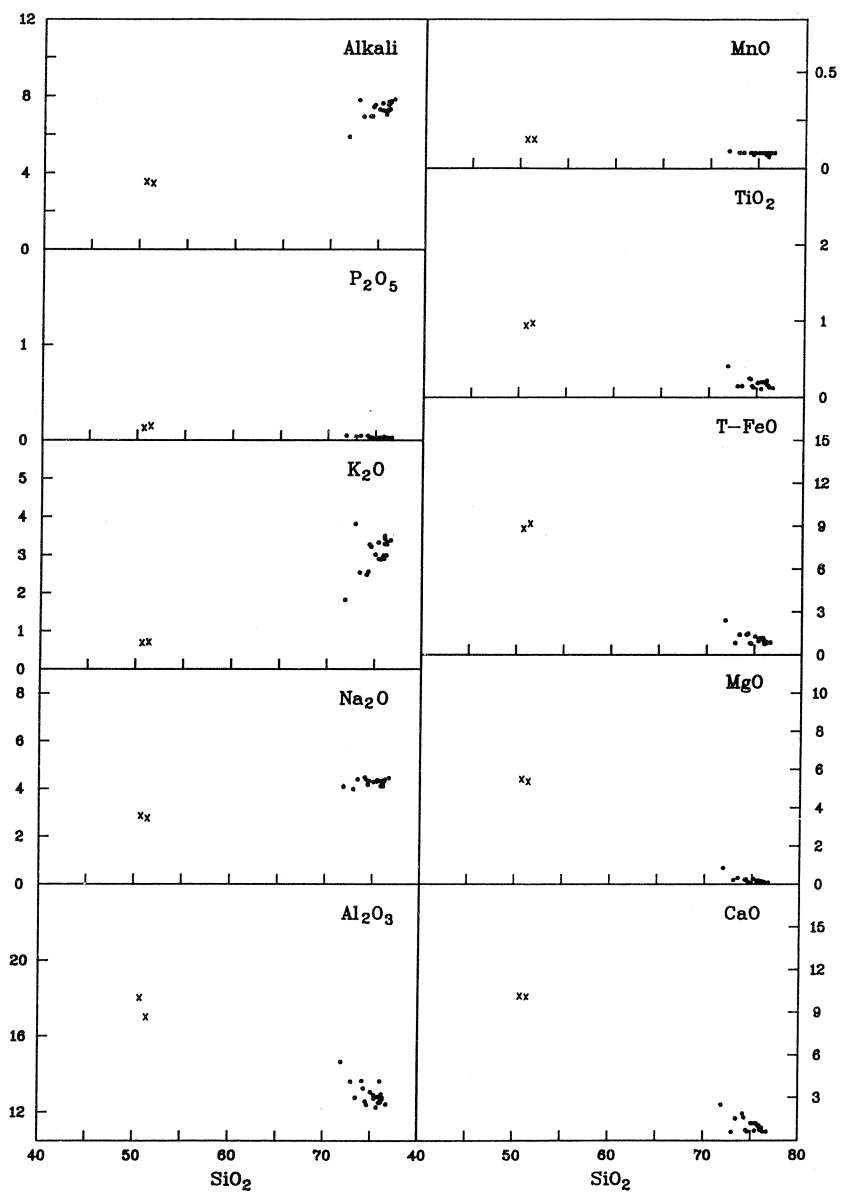
4.1. 全岩主要元素組成

神津島火山の流紋岩は日本の第四紀火山岩の中では最もSiO₂に富む岩石のひとつである。特徴は次のようにまとめられる。第1に紫蘇輝石流紋岩-カミングトン閃石流紋岩-黒雲母流紋岩の順にSiO₂が増加している。第2に黒雲母流紋岩は他よりFeO+Fe₂O₃, MgO, CaOに乏しく、K₂Oに富む。また、Al₂O₃もSiO₂が増加するにつれて減少する傾向が認められる。第3に砂糠山溶岩の一部である試料番号733193の岩石は同じ溶岩流の一部である731146および

第3表 神津島火山岩の全岩主成分化学組成

	1	2	3	6	7	8	9	10	11	12	13	14
	731121	731103	731104	731166	7311613	7311618	731146	7311410	733193	731148	731111	731111
SiO ₂	74.17	74.34	73.45	75.09	75.45	75.67	76.08	76.22	72.99	76.00	75.94	76.10
TiO ₂	0.25	0.24	0.15	0.19	0.20	0.20	0.16	0.15	0.15	0.18	0.20	0.16
Al ₂ O ₃	13.63	13.22	12.74	13.03	12.87	12.24	12.79	12.92	13.59	12.77	12.49	12.49
Fe ₂ O ₃	0.64	0.60	1.02	0.60	0.66	0.60	0.48	0.37	0.16	0.54	0.53	0.47
FeO	0.85	0.96	0.50	0.73	0.57	0.66	0.42	0.53	0.70	0.49	0.70	0.56
MnO	0.08	0.08	0.08	0.08	0.08	0.08	0.06	0.08	0.08	0.07	0.08	0.07
MgO	0.24	0.26	0.34	0.29	0.20	0.20	0.12	0.13	0.22	0.10	0.16	0.12
CaO	1.90	1.62	1.54	1.20	1.20	1.18	0.78	0.87	0.61	0.82	1.03	0.79
Na ₂ O	4.47	4.38	4.39	4.28	4.35	4.33	4.20	4.30	3.98	4.32	4.28	4.10
K ₂ O	2.48	2.56	2.54	3.02	2.90	2.88	3.50	2.99	3.81	2.90	2.99	3.43
H ₂ O+	0.71	0.76	2.07	0.77	1.06	0.78	0.48	0.92	2.94	0.69	0.82	1.30
H ₂ O-	0.20	0.16	0.80	0.23	0.18	0.16	0.20	0.16	0.26	0.22	0.24	0.23
P ₂ O ₅	0.05	0.03	0.05	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.04	0.03	0.03	0.03
Total	99.67	99.21	99.67	99.54	99.75	99.01	99.67	99.67	99.53	99.13	99.49	99.85

	17	19	21	22	23	24	25	27	29	30	31
	731144	731141	731124	731122	731115	7311312	731139	731138	731102	KA0127	735121
SiO ₂	74.51	75.86	76.32	76.71	76.32	75.44	74.65	76.06	51.44	50.73	71.93
TiO ₂	0.15	0.20	0.13	0.12	0.14	0.11	0.13	0.22	0.97	0.94	0.41
Al ₂ O ₃	12.55	12.79	12.66	12.41	12.75	12.69	12.38	13.62	17.00	18.03	14.63
Fe ₂ O ₃	0.22	0.65	0.48	0.41	0.53	0.34	0.39	0.21	9.39	8.60	1.28
FeO	0.62	0.61	0.47	0.50	0.35	0.63	0.42	0.57	0.74	1.09	1.26
MnO	0.07	0.07	0.08	0.08	0.08	0.08	0.08	0.08	0.15	0.15	0.09
MgO	0.13	0.16	0.09	0.09	0.09	0.10	0.08	0.08	5.36	5.49	0.85
CaO	0.73	1.02	0.64	0.62	0.63	0.69	0.65	0.73	10.09	10.14	2.50
Na ₂ O	4.16	4.10	4.38	4.44	4.38	4.29	4.32	4.25	2.76	2.86	4.08
K ₂ O	3.27	2.93	3.28	3.38	3.34	3.33	3.22	3.29	0.71	0.69	1.82
H ₂ O+	2.07	0.74	0.66	0.59	0.72	1.73	2.02	0.81	0.81	0.98	0.48
H ₂ O-	0.72	0.38	0.27	0.17	0.38	0.52	0.90	0.38	0.33	0.15	0.15
P ₂ O ₅	0.03	0.04	0.03	0.03	0.03	0.02	0.03	0.02	0.15	0.13	0.05
Total	99.23	99.55	99.49	99.55	99.74	99.97	99.27	100.32	99.90	99.98	99.53



第2図 神津島火山岩のSiO₂-主成分酸化物図
 黒点は流紋岩を示し、×は玄武岩を示す。

第4表 神津島火山岩の微量元素組成

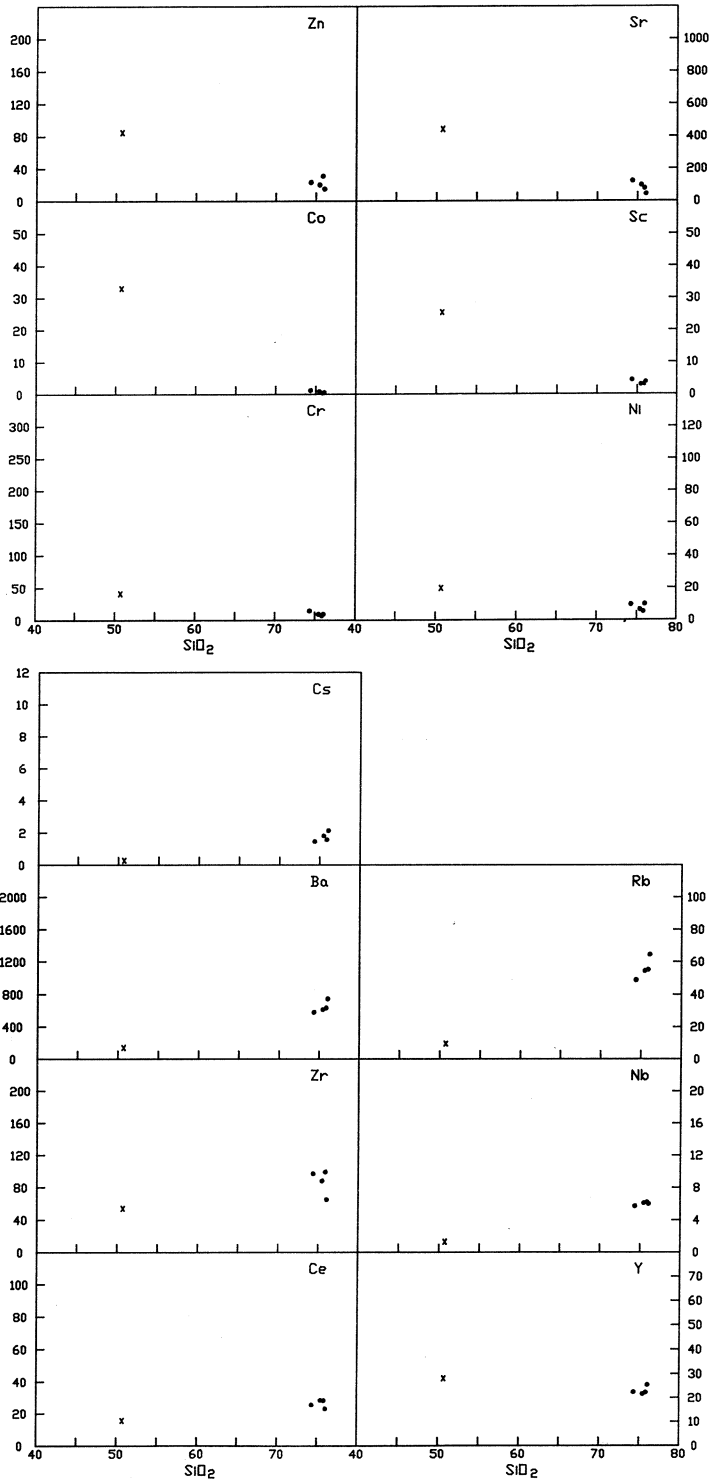
No.	2	7	19	27	30
	731103	7311613	731141	731138	KA0127
ppm					
Ba	579	614	633	746	142
Ce	25.7	28.5	28.3	23.1	15.7
Co	1.2	0.9	0.4	0.6	33.0
Cr	14.8	9.6	7.1	9.6	41.3
Cs	1.48	1.83	1.59	2.15	0.29
Nb	5.7	6.1	6.2	6.0	1.3
Ni	9.6	6.4	5.2	9.9	19.8
Rb	48.9	54.5	55.2	64.7	9.6
Sc	4.4	3.0	3.1	3.8	25.4
Sr	124	98.2	78.5	44.1	444
Y	22.5	21.6	22.3	25.5	28.1
Zn	23	20	31	15	85
Zr	97.5	88.2	99.2	65.1	54.1

7311410に比べて明瞭にSiO₂に乏しく、Na₂Oも若干少ないが、H₂O、Al₂O₃に富む。この岩石は同溶岩の最上部であり真珠岩となっている。ガラス質岩石は水和作用を受けると上記と同傾向の組成変化を生じることが知られている^{8,9)}。従って、試料733193は噴出時に海水と接する事によって真珠岩化し、そのために異常な値を示すと考えられる。このため、試料733193は後述の考察対象からは除外した。

今回2個の玄武岩質捕獲岩について分析を行った。その組成は高アルミナ玄武岩¹⁰⁾の領域にプロットされ、K₂O量はmedium-K¹¹⁾に相当している。また、TiO₂-P₂O₅-MnO図¹²⁾では、島弧玄武岩の領域にプロットされ、FeO*/MgO-SiO₂図¹³⁾ではソレアイトの領域に落ちる。

4.2. 全岩微量元素組成

神津島火山噴出物5個について微量元素組成を定量した。一般に、Ni、Cr、Co、Scといった元素はSiO₂含量の増加とともに減少するが、神津島火山噴出物についてもこの傾向が認められ、ほかの流紋岩に対して、紫蘇輝石流紋岩において、これら元素の濃度がわずかながら高い。Srも紫蘇輝石流紋岩から、カミングトン閃石流紋岩、黒雲母流紋岩へと減少する傾向がみられるが、これはAl₂O₃の減少によく対応している。Rb、Cs、BaといったLIL元素は、一般にK₂Oと同様にSiO₂含量の増加とともに増加するが、神津島流紋岩でもそのような傾向が認められる。HFS元素も通常、SiO₂含量の増加とともに増加することが多いが、神津島流紋岩においては増加傾向がはっきりせず、ほとんど同じか、Zr、Ceのように黒雲母流紋岩におい



第3図 神津島火山岩の SiO_2 -微量成分元素図
 黒点は流紋岩を示し、×は玄武岩を示す。

第5表 神津島流紋岩の斑晶斜長石組成 (屈折率, 湿式法による)

No.	Sample No.	Rock Name	Refractive Index		Chemical Analysis		
			An	Ab	An	Ab	Or
1	731121	(Hb)-Hy rhyolite	21-31	79-69	27.2	71.0	1.9
2	731103	(Hb)-Hy rhyolite	23-31	77-69	25.7	71.7	2.6
3	731104	(Hb)-Hy rhyolite	23-27	77-73	24.0	74.0	2.0
6	731166	Cum rhyolite	23-32	77-68	25.0	72.7	2.3
7	7311613	Cum rhyolite	20-33	80-67			
8	7311618	Cum rhyolite	23-28	77-72	26.0	72.3	1.7
9	731146	Bi rhyolite	19-30	81-70			
10	7311410	Bi rhyolite	12-23	88-77			
11	733193	Bi rhyolite	16-30	84-70			
13	7311111	Bi rhyolite	21-25	79-75			
14	7311111	Bi rhyolite	19-37	81-63	22.1	75.8	2.1
17	731144	Bi rhyolite	21-30	79-70	22.5	74.8	2.7
19	731141	Bi rhyolite	17-27	83-73	25.2	72.9	2.0
21	731124	Bi rhyolite	14-27	86-73	16.2	79.8	4.0
23	731115	Bi rhyolite	12-30	88-70	15.2	81.7	3.1
24	7311312	Bi rhyolite	12-27	88-73	16.6	80.0	3.4
25	731139	Bi rhyolite	14-31	86-69	16.6	80.1	3.3
27	731138	Bi rhyolite	17-35	83-65	24.6	73.4	2.0

An: anorthite, Ab: albite, Or: orthoclase

てむしろ減少する元素も認められる。

神津島流紋岩の微量元素組成に認められる変化は、一般に、これらの流紋岩中に含まれている斑晶鉱物の増減とよく対応しており、基本的にはこれら斑晶鉱物の分別作用が流紋岩類における組成変化を支配していると推定される。例えば、 Al_2O_3 や Sr の SiO_2 の増加に伴う減少は斑晶斜長石の減少によく対応している。一方、コンパティブル元素の減少は紫蘇輝石やカミングトン閃石の分別に対応している。Ce, Y が玄武岩と比較してもあまり増加していないのは、燐灰石の分別によるものかも知れない。Zr や Nb が紫蘇輝石流紋岩から黒雲母流紋岩へとあまり変化せず、最後に減少しているのは、鉄鉱やカミングトン閃石の分別に、さらに黒雲母やジルコンの分別が加わった結果であろう。

神津島火山噴出物におけるインコンパティブル元素組成についての深海性ソレイト (MORB) 規格化パターン¹⁴⁾を第4図に示す。神津島火山噴出物は、MORB 規格化値において、K, Rb, Ba といった LIL 元素に富み、一方、Ti, Nb, Zr といった HFS 元素が相対的に乏しい。

4.3. 斑晶斜長石の組成

第5表に屈折率、化学分析によって求めた斜長石の組成を示す。表から明らかなように、化学組成ではすべてオリゴクラスであるが光学的にはアンデシンにまで至る。また、黒雲母流

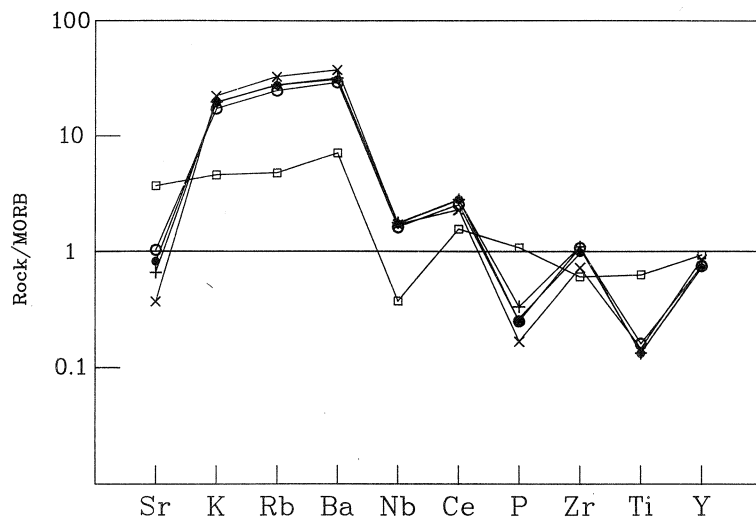
第6表 神津島流紋岩の石基化学組成

No.	1-GM 731121	2-GM 731103	3-GM 731104	6-GM 731166	8-GM 7311618	14-GM 731111	17-GM 731144	19-GM 731141	21-GM 731124	23-GM 731115	24-GM 7311312	25-GM 731139	27-GM 731138
SiO ₂	76.6	77.8	77.3	76.9	78.0	77.6	77.8	77.2	78.1	77.6	78.4	77.9	77.3
TiO ₂	0.3	0.4	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.1	0.1	0.3
Al ₂ O ₃	12.3	11.2	11.8	12.5	11.7	12.4	12.6	12.8	12.3	12.5	12.0	12.6	13.2
Fe ₂ O ₃	0.8	0.9	1.3	0.7	0.7	0.5	0.3	0.7	0.6	0.7	0.4	0.4	0.3
FeO	1.1	1.4	0.7	0.9	0.8	0.6	0.7	0.7	0.5	0.4	0.8	0.5	0.7
MnO	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
MgO	0.3	0.4	0.4	0.3	0.2	0.1	0.2	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
CaO	1.3	0.6	1.0	0.8	0.9	0.6	0.5	0.9	0.4	0.3	0.4	0.6	0.1
Na ₂ O	3.9	3.5	3.9	4.0	4.1	4.0	4.1	4.1	4.1	4.0	3.8	4.3	3.9
K ₂ O	3.2	3.6	3.2	3.5	3.3	3.9	3.6	3.2	3.7	4.1	3.9	3.5	4.0
P ₂ O ₅	0.1	-	0.1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Total	100.0	99.9	100.0	99.9	100.0	100.0	100.1	100.1	100.1	100.0	100.0	100.1	100.0

紋岩中のものは他に比べて Ab 成分に富み、光学的に決定した組成はその変化範囲がより広くなっている。

4.4. 石基組成

第6表に各流紋岩の石基の化学組成を示す。石基組成は全岩組成から、モード組成と斑晶斜長石の化学組成とを用いて計算した。その際、有色鉱物、不透明鉱物は量がきわめて少ないので無視した。得られた石基組成は、全岩組成に対して、SiO₂、K₂O に富み、Al₂O₃、CaO、Na₂O 等に乏しい傾向がある。



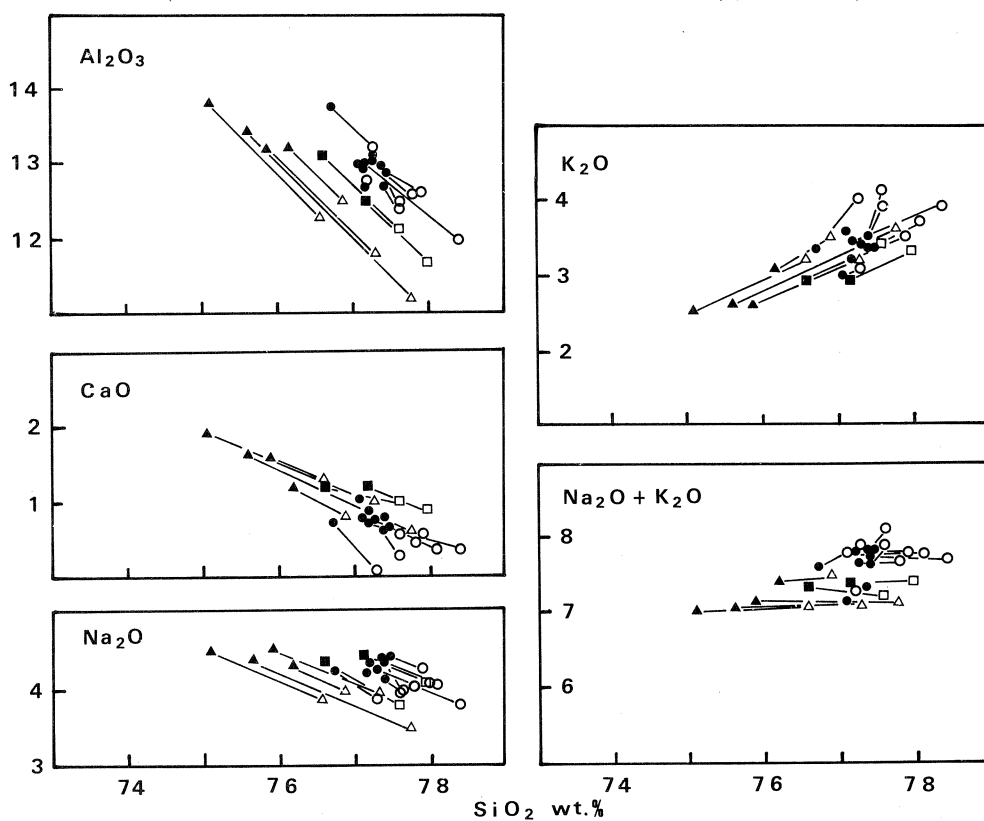
第4図 神津島火山岩類のインコンパティブル元素組成についての MORB 規格化パターン
 □: 高アルミナ玄武岩, ○: 紫蘇輝石流紋岩 (731103),
 ●: カミングトン閃石流紋岩 (7311613),
 +: 黒雲母流紋岩 (731141), ×: 黒雲母流紋岩 (731138)

§ 5. 考察

5.1. 流紋岩の組成変化

最初に、全岩と石基の化学組成変化について検討する。第5図に各酸化物の組成変化図を示す。全岩組成と石基組成はタイラインで結んである。図において全岩組成はスムーズなひとつの線上に並んでいるように見える。また、各々のタイラインは少数の例外を除きほぼ平行であり、その方向は全岩組成の変化の方向とは Al_2O_3 、 Na_2O やアルカリの図においては一致せず、 CaO と K_2O ではほぼ一致している。

全岩組成がスムーズな直線を描いていることや、先に述べたその変化傾向から判断して、これらの岩石が一連の分化物であると考えても問題はないが、各岩石中に現在含まれている斑晶をそのまま分別しても全岩組成の変化経路を説明することはできない。従って、Tsuya¹⁾が推



第5図 全岩組成-石基組成の変化図

○：黒雲母流紋岩，□：カミングトン閃石流紋岩，
△：紫蘇輝石流紋岩，黒：全岩組成，白ヌキ：石基組成

第7表 神津島流紋岩の各タイプの平均ノルムフェルシク鉱物組成

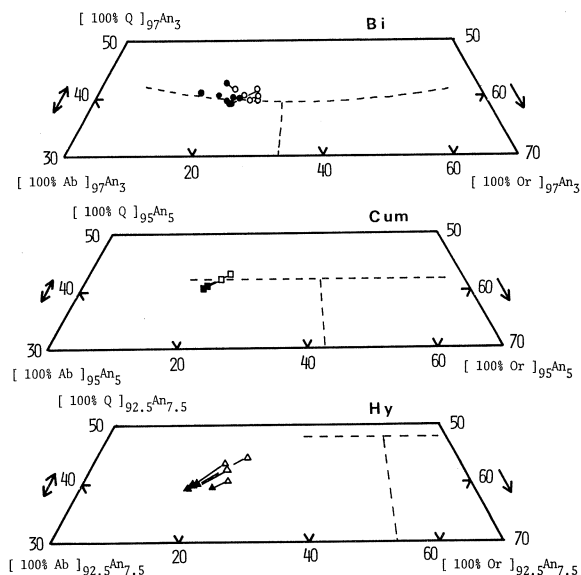
	Bi rhyolite stage I	Cum rhyolite stage I	Hy rhyolite stage I	Bi rhyolite stage II, III
Q	40.31	40.27	39.67	39.84
Ab	39.23	40.77	42.52	39.33
Or	20.46	18.97	17.69	20.84
An	4.02	5.87	7.91	3.78
Ab/An	9.41	6.55	5.04	10.45

Q : 石英, Ab : 曹長石, Or : カリ長石 (Q+Ab+Or= 100),
An : 灰長石 (Q+Ab+Or+An= 100)

定したように各々の岩石が親マグマから晶出分化作用によって形成されたと考えるならば、分化の生じた時点と斑晶ないし斑晶の一部が晶出した時点が異なっていた可能性が大きい。そのような現象は例えば、ソレイト質玄武岩においても推定されており、その場合、斑晶の少なくとも一部は岩石が分別した後に晶出したことが主張されている¹⁵⁾。神津島にみられる全岩組成変化経路と全岩-石基タイラインの斜交も同様の考えで説明可能である。つまり、現在含まれる斑晶相よりも Al_2O_3 , Na_2O と全アルカリが少ない固相の分別によって、全岩組成変化経路が形成された後に、主に曹長石成分に富んだ斜長石が斑晶相に加って、現在見られる斑晶相を形成したと考えることができる。全岩組成の分別に寄与した固相は、現在みられる斑晶相よりも低い Na_2O と Al_2O_3 量をもっていたと推定されることから、現在の斑晶相よりも灰長石成分に富んだ斜長石と、さらに Al_2O_3 を下げるに十分な苦鉄質鉱物を有していたと推定される。

5.2. 流紋岩の生成温度・圧力条件

次に、流紋岩における斑晶晶出時の温度・圧力条件について検討をおこなう。神津島の流紋岩はノルム $Q+Or+Ab+An > 95\%$ なので、これら4成分で代表し得る。第7表には平均ノルム組成を示す。表記の Q, Ab, Or, は $Q+Ab+Or=100$ とした時の各々の値を示し、An は上記の3成分に An を加えた時の An の割合を示す。第6図は上記4成分系の水蒸気圧 (P_{H_2O}) = 1 kb における相平衡図¹⁶⁾上に各分析値を示したものである。使用する図は第7表の An 含有量をもとに選んだ。黒雲母流紋岩とカミングトン閃石流紋岩の場合を見ると、大部分の石基組成は石英-斜長石の境界線上ないしその付近に示される。薄片中では斑晶斜長石と石英とが共存している事から両者が平衡状態で液から晶出していたと考え、その当時の P_{H_2O} は約 1 kb となる。一方、紫蘇輝石流紋岩に関しては、斑晶中に斜長石と石英が共存するにもかかわらず、全岩組成も石基組成も石英-斜長石境界線からはずれている。 $P_{H_2O} = 1$ kb とした時の各マグマの液相温度 (T_l) は同平衡図の原図より紫蘇輝石流紋岩とカミングトン閃石流紋岩で



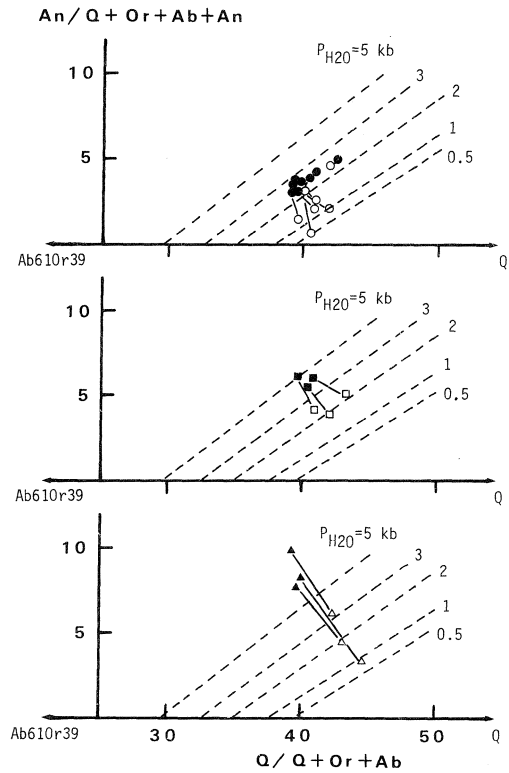
第6図 ノルム組成の $P_{H_2O} = 1 \text{ kb}$ における Quartz-Feldspar 相平衡図上へのプロット。
記号は第5図参照。

は平均値として $765 \pm 10^\circ\text{C}$ 、黒雲母流紋岩では $740 \pm 10^\circ\text{C}$ と推定される。第7図は Q-Or-Ab-An 系相関係図¹⁷⁾の An-Q-Ab₆₁Or₃₉ 面上での石英と斜長石境界の P_{H_2O} による変化を示したものであり、同時に分析値も示している。Aramaki¹⁷⁾ は南九州の試料を用いた熱水合成実験結果と第7図を用いて推定した結果とがほぼ一致する事を述べている。第7図から神津島での P_{H_2O} を推定すると、黒雲母流紋岩では $0.5 \sim 2.5 \text{ kb}$ 、カミングトン閃石流紋岩では $2 \sim 2.5 \text{ kb}$ 、紫蘇輝石流紋岩では $1 \sim 3 \text{ kb}$ 程度となる。黒雲母流紋岩の場合 P_{H_2O} の平均値は $1 \sim 1.5 \text{ kb}$ 程度であるので、先に求めた $T_1 = 740^\circ\text{C}$ という値は実際の値に近いものと思われる。それに対して他の流紋岩では平均的 P_{H_2O} は約 2 kb となる為、先に求めた T_1 は不正確にならざるを得ない。しかしながら、Aramaki¹⁷⁾ によるデータを、第6図の原図にプロットして求められる T_1 ($760 \sim 775^\circ\text{C}$) は熱水合成実験結果 ($770 \sim 780^\circ\text{C}$) にほぼ一致し、さらに、その実験に用いた試料の平均組成 (Q_{43.6} Ab_{33.9} Or_{22.5}) は神津島の紫蘇輝石流紋岩の石基組成 (Q_{42.9} Ab_{35.4} Or_{21.7}) に良く似ている事から、この紫蘇輝石流紋岩の T_1 は 765°C という値に近いものと思われる。一方、Piwinski and Wyllie¹⁸⁾ や Ewart *et al.*¹⁹⁾ 等は、紫蘇輝石、角閃石、黒雲母の順にそれら有色鉱物を含む酸性火成岩の温度が低下することを述べている。従って、カミングトン閃石流紋岩の T_1 は $765 \sim 740^\circ\text{C}$ の範囲内にあった可能性が大きい。

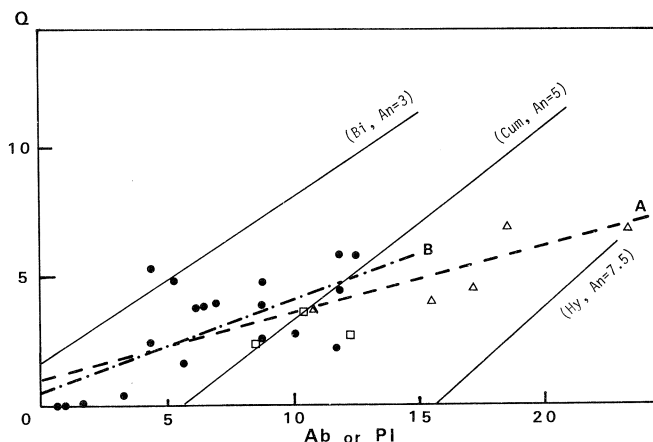
第8図は、マグマ中におけるAn量と P_{H_2O} が一定 (1kb) であり, Orの晶出がないとした場合に, それぞれの流紋岩組成の液から晶出してくる石英量とアルバイト量の関係を相平衡図¹⁶⁾を用いて算出した結果を示している。同図にはモード石英, 斜長石組成も同時にプロットしてある。図中のA線はモード組成の最小自乗法による回帰線を表し, B線は黒雲母流紋岩だけの場合の回帰線を示している。この結果を Ewart^{20,21,22)} による Taupo 地域の結果と比較すると, 次のような事が指摘される。第一に, モード石英斑晶量と斜長石斑晶量の間には比較的良好な相関関係がある。第二に, 最小自乗法で求めた回帰線は相平衡図から算出した線より低勾配である。第三に, Taupo 地域では紫蘇輝石流紋岩→角閃石紫蘇輝石流紋岩→黒雲母角閃石紫蘇輝石流紋岩の順に斑晶量が增大するが, 神津島では黒雲母流紋岩→カミングトン閃石流紋岩→紫蘇輝石流紋岩の順に斑晶量が増えている。

このうち, 第一の点については Ewart²²⁾ の考え方や, 先に示したような全岩化学組成上の特徴から判断して, 神津島の流紋岩の斑晶は捕獲結晶ではなく, これらの流紋岩質マグマから直接晶出したものであると推定される。紫蘇輝石流紋岩～カミングトン閃石流紋岩～黒雲母流紋岩がほぼ一本の単純なトレンドを形成していることから判断して, これらのマグマは共通の親マグマからの一連の結晶分別作用によって形成された可能性が大である。

第7図において, 黒雲母流紋岩の石基組成が比較的浅い限られた深さに対応しているのに対して, 紫蘇輝石流紋岩の石基組成が, 黒雲母流紋岩の石基が示す深さに対応するものから, より深い圧力に対応するものまで大きく変化しているのは, 紫蘇輝石流紋岩が3 kb以上の深さでの結晶分別により生じたのちも, 黒雲母流紋岩の石基に相当する深さに至るまで斑晶の晶出



第7図 $An/Q+Or+Ab+An-Q/Q+Or+Ab$ 図上へのノルム組成のプロット。記号は第5図参照。



第8図 Quartz-Feldspar 図
 縦軸はノルムおよびモード石英を，横軸にはノルム Ab および
 モード斜長石を示している。
 ●：黒雲母流紋岩，□：カミングトン閃石流紋岩，
 △：紫蘇輝石流紋岩

が続いたことを意味しているのであろう。ただし現在，紫蘇輝石流紋岩と呼ばれる岩石では晶出した斑晶を分別せずにそのまま保持していたために，石基組成のみが変化し，全岩は黒雲母流紋岩組成にはならなかったと考えられる。

第二の点について，Ewart²⁰⁾は次の三つの可能性を指摘している。a：より斑晶の多い溶岩中では連続的によりノルム Ab が増加する，b：斑晶晶出の間， P_{H_2O} は連続的に減少する，c：石英に対する長石の相対的晶出速度に与えるノルム An の影響。これらの可能性の内，b の可能性については既述の P_{H_2O} に関する事項から除外できる。第8図に見られる実際の斑晶モード組成変化と実験データから予想される晶出鉱物のモード組成変化との食い違いは，おそらく，早期晶出斜長石の分別とマグマからの斜長石と石英の晶出が同時に進行し，実際の斑晶モード組成には，早期に晶出した斜長石斑晶が加わっているためであろう。黒雲母流紋岩になると石英/斜長石比が大きくなっている事実はこの考えと調和的である。

三つのタイプの流紋岩が，以上に述べたような重複した結晶分別作用によって生じたと考えた場合，全岩組成の分別に寄与した，より深部における斑晶の晶出条件について次に検討する。今，島内で最も苦鉄質な流紋岩である紫蘇輝石流紋岩を親マグマと考えて，他の流紋岩を生じるにはどのような鉱物を取り去ればよいかを計算した。ただし，その際，カリ長石の晶出はなく， P_{H_2O} も一定であり，また常に水に飽和していたと仮定する。計算結果はカミングトン閃石流紋岩の場合は，石英2.1%，斜長石 ($Ab_{61}An_{39}$) 6.6%，第I期黒雲母流紋岩の場合は，石

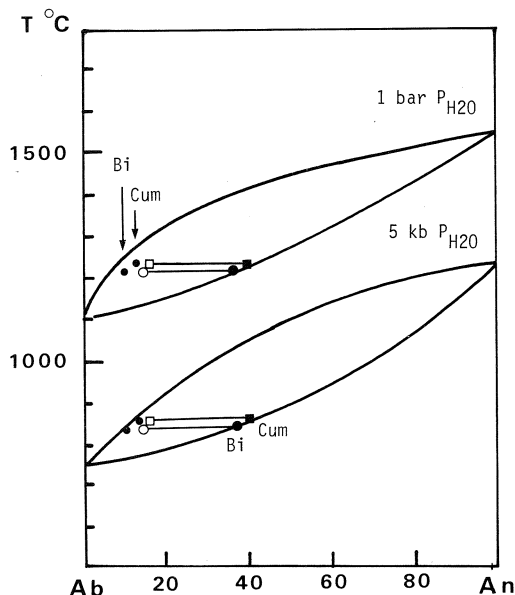
英4.6%, 斜長石 ($Ab_{63} An_{37}$) 12.4%を紫蘇輝石流紋岩から分別する必要がある。明らかに全岩組成の分別に寄与した斜長石の組成は第5表に示した実際に岩石中に見られる斑晶斜長石の組成に比べてAn成分に富んでおり、先の予想が裏付けられた。さて、算出された斜長石は本来、紫蘇輝石流紋岩組成の液ないし、それとその分化物の組成との間の組成をもった液と平衡共存していなければならない。今、仮に、ちょうど両者の中間組成の液を親マグマと考えて、その組成に相当するノルム斜長石組成と算出された分別斜長石組成をAb-An-

(H_2O)系^{23,24})に示した(第9図)。また、同図にはカミングトン閃石流紋岩と黒雲母流紋岩の全岩組成より求めたノルム斜長石の値も示している。図から明らかなように、分別に寄与した斜長石と平衡共存するには液の斜長石組成はAnに富みすぎる。また、

カミングトン閃石流紋岩と黒雲母流紋岩の全岩組成から求めた値は $P_{H_2O}=5\text{ kb}$ ではかなり液相線に近づくが、それでもAnに富む傾向がある。この事はEwart²⁵)による考え方をを用いると、少なくとも $P_{H_2O}=5\text{ kb}$ 以下の条件では、計算で求めた斑晶斜長石と、それが晶出したと推定される液との間に平衡関係が成り立たない。すなわち、紫蘇輝石流紋岩組成相当の親マグマからその他の流紋岩が分別し、その場合、 $P_{H_2O}=P_{\text{total}}$ であったと仮定すると、全岩組成の分別が起こった位置は5 kb (15~17km)以深であった事になる。

5.3. 神津島流紋岩の成因に関する制約

Onuma *et al.*²⁶)によれば、伊豆諸島に分布する流紋岩質岩には2つのタイプ、地内島タイプと新島・神津島タイプとが認められる。前者は玄武岩質マグマからの最終分化物の組成を示している。彼らは、地内島タイプ流紋岩の成因として、玄武岩質マグマからの最終生成物が固結して生じた珪長質(花崗岩質)地殻が、後から貫入してきた玄武岩によって加熱されて全溶融



第9図 Albite-Anorthite相平衡図上へのノルム組成のプロット

Bi: 黒雲母流紋岩,

Cum: カミングトン閃石流紋岩

小さい黒丸は全岩組成から算出したノルム斜長石組成。黒い四角と大きい丸は算出された分別斜長石組成、これとタイラインで結んだ白い四角と大きい丸はそれが晶出したと思われる液の組成。

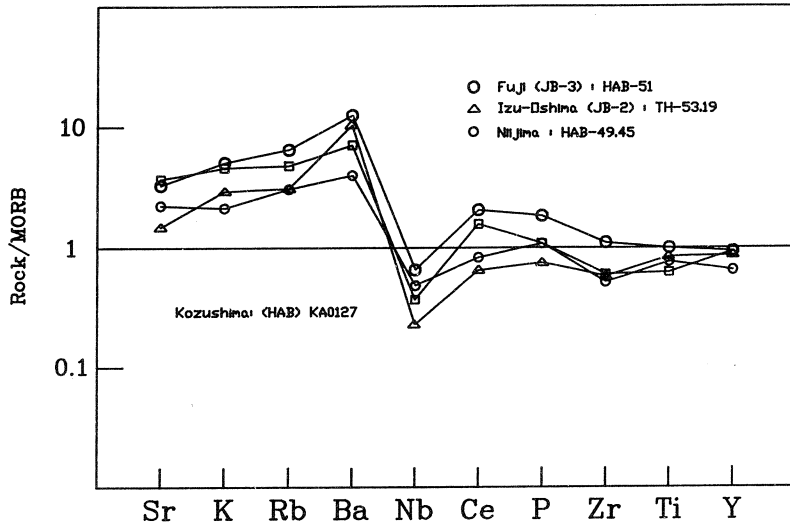
し、組成の非常に均一なこのタイプの流紋岩が生じたと考えている。一方、新島・神津島タイプの流紋岩は、この珪長質地殻が全溶融して生じた地内島タイプ流紋岩から斜長石が晶出分別して生じたものであるとしている。

今回の結果によれば、神津島に産する紫蘇輝石流紋岩からカミングトン閃石流紋岩～黒雲母流紋岩への分別は地下 15～17km 以深で起こっている。従って、紫蘇輝石流紋岩の形成はそれよりさらに深い所でなされたと推定される。神津島が位置する伊豆小笠原弧の地殻構造については詳しい研究がなされている²⁷⁾。それらのデータによれば、伊豆小笠原弧においては地震波縦波速度が 8.3～7.9km/s のマントルが深さ約 17～18km 前後以深に分布し、この上に 6.5～6.7km/s 層が深さ 10km 前後まで分布している。火山弧の前弧側には 5.4～4.9km/s 層が深さ 10～5 km 前後に分布し、火山弧の直下では深さ 7～5 km 以浅で 4.5～4.8km/s 層が分布している。これらの各層がどのような岩石に相当するのかを一義的に論ずることは難しいが、マントル直上の 6.5～6.7km/s 層は変ハンレイ岩～角閃岩類に相当し、一方、5.4～4.9km/s 層は塊状玄武岩～ドレライト類からなると考えるのが一般的であろう²⁸⁾。つまり、伊豆小笠原弧には東北本州弧などで上部地殻を構成している 5.7～6.1km/s 層を欠いていることが明らかである。すなわち、伊豆小笠原弧は海洋性地殻が発達したものであって、特に地殻深部において珪長質岩の存在を期待するのは難しい。

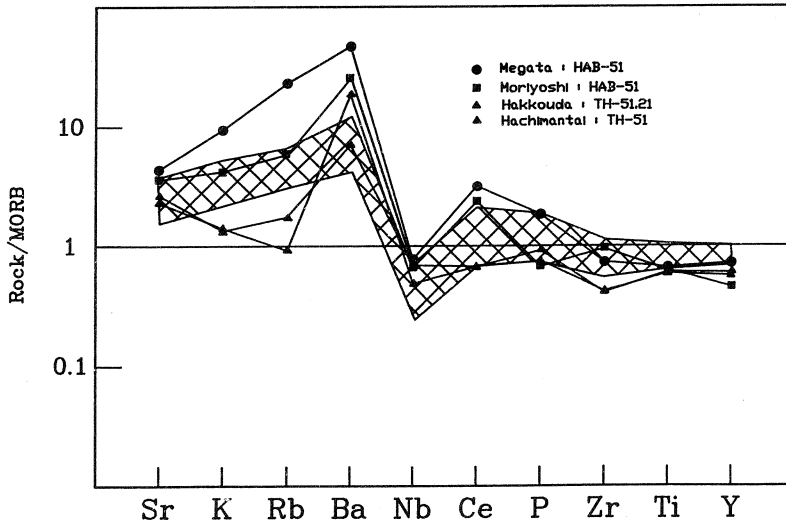
神津島流紋岩が分化作用を行なったと推定される 15～17km 以深という深さは伊豆小笠原弧における地殻最下部の地殻側に位置しており、もちろんハンレイ岩質岩層内に相当する。従って、神津島流紋岩ないしその親マグマの成因として珪長質地殻の全溶融²⁹⁾を考えることには無理がある。結局、これら流紋岩質マグマの成因としては、(1) 玄武岩質マグマからの最終化物か、(2) ハンレイ岩～角閃岩質下部地殻物質の部分溶融の産物、が可能性として考えられる。(2) の考えを採用した場合には、流紋岩類が示すインコンパティブル元素規格化パターンから判断して、溶融に関与した下部地殻は本来そこに存在していたと推定される海洋性下部地殻ではなく、伊豆小笠原弧の成長に伴ってウェッジマントルから供給された島弧性玄武岩質マグマに由来するものである必要がある。

5.4. 神津島の高アルミナ玄武岩について

神津島高アルミナ玄武岩のインコンパティブル微量元素についての MORB 規格化パターンを、富士⁷⁾と新島(吉田, 青木, 未公表)の高アルミナ玄武岩、および伊豆大島の低アルカリソライト⁷⁾のパターンとともに第10図(a)に示す。また、比較のために、東北本州弧第四紀玄武岩についてのパターンを(b)に示してある。神津島高アルミナ玄武岩は、MORBに



(a)



(b)

第10図 (a) 伊豆小笠原弧玄武岩質岩のインコンパティブル元素組成についてのMORB規格化パターン

□: 神津島高アルミナ玄武岩

(b) 伊豆小笠原弧玄武岩と東北本州弧玄武岩の比較
網目の範囲は伊豆小笠原弧玄武岩の範囲を示す。

比較して、Ba, Rb, K, SrといったLIL元素に富み、一方、Nb, Zr, TiといったHFS元素に乏しいという島弧玄武岩に特徴的に見られる性格を有している。これらの特徴は伊豆小笠原弧、火山フロント側の火山である伊豆大島の低アルカリソレイトから、背弧側に位置する富士火山の高アルミナ玄武岩に至るまで共通して認められる。第10図(a)に示されているように、伊豆小笠原弧においては、細かくみるといくつかの元素比に違いがあるものの、低アルカリソレイトから高アルミナ玄武岩まで互いにほぼ平行なパターンを示しており、前者は低濃度側に、後者は高濃度側にある。

伊豆小笠原弧からの低アルカリソレイト～高アルミナ玄武岩類を東北本州弧第四紀玄武岩類と比較してみると(第10図(b))、両者は概ね類似した規格化パターンを示しているが、LIL元素の規格化値に顕著な違いが認められる。また、伊豆小笠原弧では、低アルカリソレイトと高アルミナ玄武岩の規格化パターンがほぼ平行であるのに対して、東北本州弧では両者の間にLIL側で明瞭なパターンの違いが認められ²⁹⁾、両島弧系の間にマントル組成の性格の違いが存在していることを明瞭に示している。

なお、伊豆大島ソレイトと神津島高アルミナ玄武岩との間にはいくつかのLIL元素比の違いが認められるが、恐らくこれに関連して、伊豆諸島第四紀火山岩類におけるSr同位体組成³⁰⁾はわずかながら、背弧側で低くなっており、東北本州弧に認められると同じ傾向の島弧横断方向の組成変化を示している。従って、伊豆小笠原弧においても、火山フロント側の低アルカリソレイトと背弧側の高アルミナ玄武岩とが全く同じ起源物質から派生したという考えをとることはできず、伊豆小笠原弧における両者の起源物質の性格についてはさらに検討を進める必要がある。

謝 辞

光量子放射化分析にあたって、東北大学核理研の榎本和義博士、現在金研に移られた八木益男教授、ならびにライナック・マシングループの方々、東北大学サイクロトロンRIセンターの中村尚司教授、山寺亮博士をはじめ職員の方々には大変お世話になった。東北大学教養部蟹沢聰史教授、石川賢一博士、ならびに理学部大沼晃助教授、藤巻宏和助教授、長谷中利昭博士には、諸般にわたって御助力頂いた。岩石の主成分についての湿式分析は筆者の一人(H.T.)が東北大学在学中に、柴いく子氏および加藤祐三博士によって行われた。なお、本研究の一部には文部省科学研究費補助金(Nos. 01302019, 02453045)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) H. Tsuya : Bull. Earthq. Res. Inst. **7** (1929) 9.
- 2) 谷口宏充 : 火山 **22** (1977) 133.
- 3) 一色直記 : 神津島地域の地質 (地質調査所, 1982) p. 75.
- 4) 福山博之, 藤巻宏和, 倉沢 一 : 火山 **20** (1975) 175.
- 5) 谷口宏充 : 火山 **25** (1980) 217.
- 6) 一色直記, 小野晃司, 平山次郎, 太田良平 : 地質ニュース **133** (1965) 20.
- 7) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki : J. Jpn. Assoc. Min. Pet. Econ. Geol. **81** (1986) 406.
- 8) S. Aramaki and P. Lipman : Proc. Jpn Acad. **41** (1964) 467.
- 9) P. Lipman : U. S. Geological Survey Bull. **1201-D** (1965) 1.
- 10) H. Kuno : Bull. Volcanol. **20** (1966) 195.
- 11) J. B. Gill : *Orogenic andesites and plate tectonics*. (Springer-Verlag, 1981) P. 390.
- 12) E. D. Mullen : Earth Planet. Sci. Lett. **62** (1983) 53.
- 13) A. Miyashiro : Am. J. Sci. **274** (1974) 321.
- 14) J. A. Pearce : *Continental basalts and mantle xenoliths*, eds. C. J. Hawkesworth and M. J. Norry (Shiva, 1983) 230.
- 15) 佐々木寧仁, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研報 **18** (1985) 175.
- 16) R. S. James and D. L. Hamilton : Contr. Mineral. Petrol. **21** (1969) 111.
- 17) S. Aramaki : Amer. Mineral. **56** (1971) 1760.
- 18) A. J. Piwinski and P. J. Wyllie : J. Geol. **76** (1968) 205.
- 19) A. Ewart, W. Hildreth and I. S. E. Carmichael : Contr. Mineral. Petrol. **51** (1975) 1.
- 20) A. Ewart : Bull. Volcanol. **29** (1966) 147.
- 21) A. Ewart : New Zealand Jour. Geol. Geophys. **10** (1967) 182.
- 22) A. Ewart : New Zealand Jour. Geol. Geophys. **11** (1968) 478.
- 23) N. L. Bowen : Amer. J. Sci. **35** (1913) 577.
- 24) H. S. Yoder, D. B. Stewart and J. R. Smith : Carnegie Inst. Wash., Year Book **56** (1957) 206.
- 25) A. Ewart : Jour. Petrol. **4** (1963) 392.
- 26) N. Onuma, M. Hirano and N. Isshiki : J. Volcano. Geotherm. Res. **18** (1983) 511.

- 27) H. Hotta : J. Phys. Earth **18** (1970) 125.
- 28) 吉井敏剋, 伊東敬祐, 宇井忠英 : 上田ほか編, 変動する地球Ⅱ－海洋底－ (岩波書店, 1979) p. 302.
- 29) 中川光弘, 霜鳥 洋, 吉田武義 : 岩鉱 **83** (1988) 9.
- 30) K. Notsu, N. Isshiki and M. Hirano : Geochem. J. **17** (1983) 289.

ベントナイトへの放射性核種の吸着特性

選研

三村 均

§1. 緒 言

高レベル廃棄物固化体の処分では、岩盤で構成される天然バリアと、それを補完する工学バリアからなるマルチバリアシステムにより、廃棄物を生物圏から長期間隔離することが考えられている¹⁾。このシステムをわが国の地層に適用するに際して、微小クラックの少ない健全な岩盤に乏しい地層環境下では、緩衝材および埋め戻し材をはじめとする工学バリアへの依存度が高くなるものと考えられる。この工学バリアとしての緩衝材および埋め戻し材には、粘土鉱物（ベントナイト）が有望な候補に挙げられており²⁾、その熱的安定性および核種の吸着特性を評価しておくことが必要である。粘土鉱物に対する放射性核種の吸着特性に関しては数多くの報告がなされているが^{3,4)}、実験条件が不統一であり、核種によっては分配係数値にかなりの差が認められる。

本研究では、高レベル廃棄物中の主要核種である Cs, Sr, Co, Eu, U および Am のベントナイトへの吸着特性について、主に分配挙動および吸着機構の面から検討する。

§2. 実 験

2.1 ベントナイト

ベントナイトとして、主に MX-80 (Wyoming 産, MX と略す) を使用し、比較のためクニゲル V1 (クニミネ工業, V1 と略す) およびクニピア F (クニミネ工業, F と略す) を用いた。ベントナイトは200メッシュ以下の粉末とし、0.1 M (= mol · dm⁻³) NaCl で Na 形にコンディショニングした。吸着水量を一定に保持するため、飽和 NH₄Cl 溶液の入った密封容器中に予め2日以上静置し実験に使用した。MX は各種カチオン形 (H⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺ および Fe³⁺) にコンディショニングしたのもを用いた。また、上記のベントナイトを1200°C までの各温度で焼成した焼成体を使用した。

2.2 分配実験

分配実験はバッチ法により以下の手順で行った。ベントナイト0.16 g を、RI 溶液 48 cm³ に加え (液固比 V/m=300), 25°C で一定時間振とうする。なお、予め吸着率の時間変化を調

べ、各核種ともほぼ30分から4時間の振とうで吸着率がほぼ一定となることを確認し、24時間振とう後の吸着量を平衡吸着量とみなした。

液相を高速で遠心分離 (15,000 rpm, 10分) し、その γ 放射能を井戸型 NaI (Tl) シンチレーションカウンターで測定し、次式から分配係数 (K_d , cm^3/g) を算出した。

$$K_d = \{ (A_i - A_f) / A_f \} \times V / m \quad (\text{cm}^3/\text{g}) \quad (1)$$

A_i : 初期溶液の γ 放射能 (cpm/cm^3)

A_f : 振とう後の溶液の γ 放射能 (cpm/cm^3)

V : 溶液体積 (cm^3)

m : ベントナイト試料の重量 (g)

トレーサーは、 ^{137}Cs , ^{85}Sr , ^{60}Co , $^{152,4}\text{Eu}$, ^{237}U および ^{241}Am を用いた。 ^{85}Sr は東北大学核理研の LINAC 照射により、 ^{86}Sr を濃縮した SrCO_3 を用いて $^{86}\text{Sr}(\gamma, n)^{85}\text{Sr}$ 反応により製造した。また、 ^{237}U は U_3O_8 を用いて $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ 反応により製造し、 ^{237}U を TBP 抽出法で分離精製して使用した。溶液中の各核種の初期濃度は、トレーサー量 (2.1×10^{-9} M) の Am 以外は、いずれも 1 ppm とした。イオン強度は 0.1 とし、0.1M HClO_4 - NaClO_4 - NaOH 溶液で初期 pH を調整した。

Na 形 MX ベントナイト (以下 NaMX と略す) に対する各核種の吸着等温線は、0.1M ギ酸緩衝液で pH 3.9 に調整した酸性溶液中で、各核種の平衡濃度を $10^{-5} \sim 10^{-3}$ M の範囲で変化させ、ベントナイトへの平衡吸着量を求めて作成した。

§3. 結果及び考察

3.1 分配係数値に及ぼす遠心分離回転数の影響

粘土鉱物に対する核種の分配係数を測定する場合、主な誤差原因として、液相サンプリング時の遠心分離による、加水分解生成物および粘土粒子の沈降が挙げられ、これは溶液の pH による核種の化学形の変化および粘土の分散形に密接に関係している⁵⁾。

本実験では、予め、酸性、中性およびアルカリ性の各領域で、ベントナイトへの各核種の分配係数に及ぼす遠心分離回転数の影響を調べた。一例として、H 形 MX ベントナイトへのユウロピウムの分配係数値 (K_d) に及ぼす遠心分離回転数の影響を第 1 図に示す。酸性領域 (pH 2.1 および 3.9) では、 K_d は回転数に依存せずほぼ一定値を示した。この pH 領域では、粘土粒子は大きくこれが分散した懸濁液であるため、遠心分離により容易に沈降するためと考えられる。一方、中性領域では、回転数の増大とともに 5,000 rpm までみかけ上 K_d は増加し、

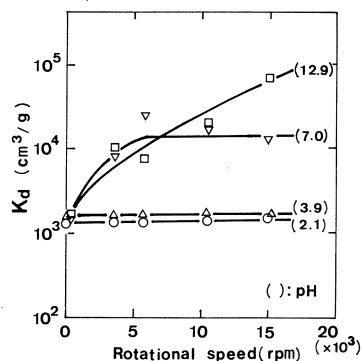
それ以上ではほぼ一定値に近づく。アルカリ性領域では、ほぼ回転数の増大とともに一様に K_d 値は増加した。なお、アルカリ性領域で行ったものについては、固液分離に孔径の異なるミリポアフィルター（孔径0.45~0.025 μm ）を用いて液相をろ過し、 K_d の変化を調べたところ、孔径の低下とともに K_d 値はわずかに増加する傾向が認められた。中性以上では、溶液はコロイド分散系となり、加水分解生成物が小さな粘土粒子に吸着して擬コロイドとなりこれが沈降していると考えられる^{6,7)}。また、アルカリ領域では、核種自身の真コロイド粒子が液中に生成している可能性があり、回転数15,000 rpm の遠心分離では完全に沈降しなかったものと考えられる^{6,7)}。

3.2 焼成温度による分配特性の変化

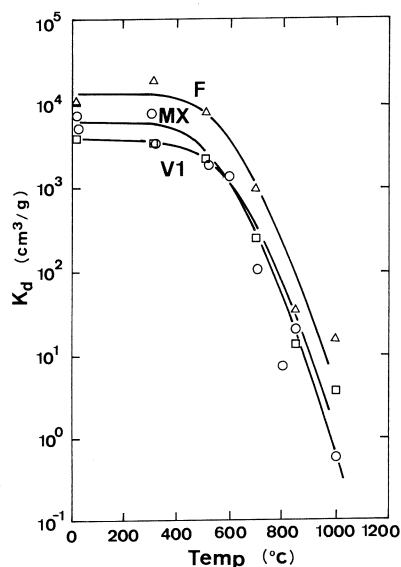
各種ベントナイトの焼成温度と Eu の分配係数 (K_d) との関係を示す。いずれの焼成体も、300°C まで K_d はほぼ一定であり 10^3 以上の高い値を示した。熱分析の結果、この焼成温度領域ではベントナイトからの層間水および吸着水の脱水が認められるのみで、粘土の層状構造が保たれイオン交換能は保持されていると考えられる。300°C 以上では、構造水の放出さらに熱分解が進行するため、 K_d は急激に低下している。300°C までの K_d 値の序列は $F > \text{MX} > \text{V1}$ であり、飽和吸着量もほぼ同様であった。

3.3 平衡 pH の影響

第3図の(a)および(b)には、ベントナイトへの各核種の分配係数と平衡 pH との関係を示す。Cs, Sr および Co の分配では(第3図(a)), pH の上昇につれ K_d 値は増加し、酸性領域 ($< \text{pH} 4$) では、 $\log K_d$ と pH の間にほぼ直線関係が認められ、イオン交換吸着が支配的と考えられる。pH 4 以上では、 K_d 値の急激な増加がみられ、Co では加水分解が進行し、ベントナイトのコロイド粒子表面への吸着が主と考えられる。一方、Cs および Sr などのイオン状核種での K_d の増加は、pH の上昇に伴い粘土粒子表面に付加的負荷電が増加したためと推定される⁸⁾。

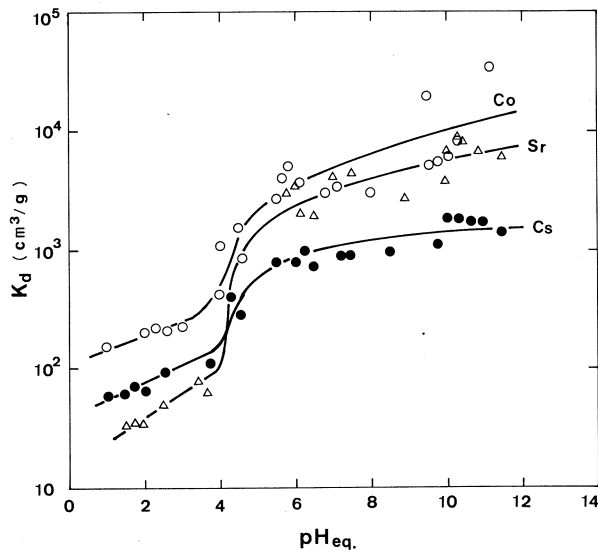


第1図 Effect of rotational speed on K_d for HMX.

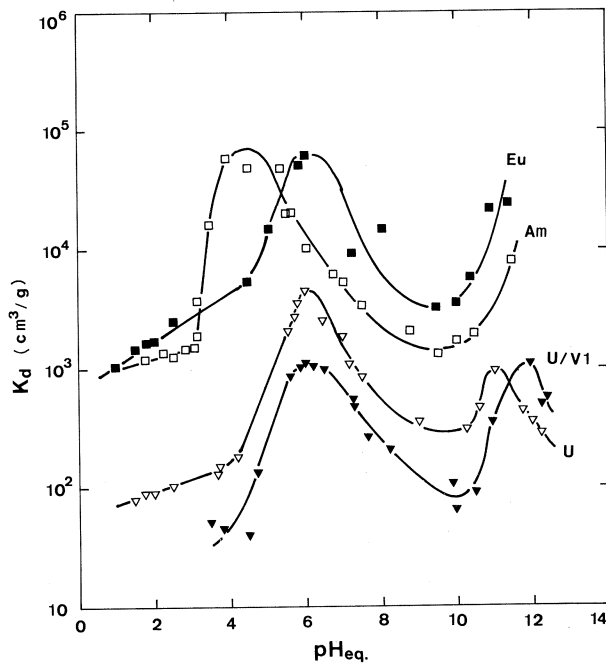


第2図 Effect of calcining temperature on K_d at pH 3.7.

U, Eu および Am の分配では (第3図(b)), 酸性から中性にかけての分配は前述の核種と



(a) Distribution of Cs, Sr and Co

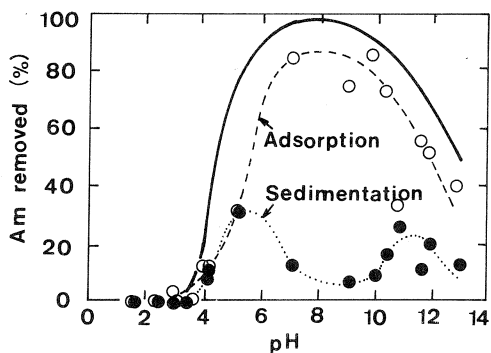


(b) Distribution of U, Eu and Am

第3図 Effect of equilibrium pH on K_d for NaMX or NaV1.

ほぼ同様の傾向を示すが、アルカリ領域ではpHの上昇とともに K_d 値がいったん低下し、再び増加する傾向が認められた。この原因を明らかにするため、粘土を添加せずにブランクテストを行い、pHによるこれら核種の器壁への吸着および遠心分離（回転数15,000 rpm, 10分）による沈降率の変化を調べた。一例として、Amのブランクテストの結果を第4図に示す。

ここで、実線で示した液中からのAmの除去率(%)は、器壁への吸着率(%)および沈降率(%)の和とした。pH4以下では、器壁への吸着および沈降いずれもほとんど認められない。器壁への吸着はpH4以上で急激に増加し、ほぼ中性で極大を示し、それ以上では徐々に低下した。一方、遠心分離による沈降はpH5~6およびpH10以上で顕著に認められ、pH11で沈降率は約20%に達した。



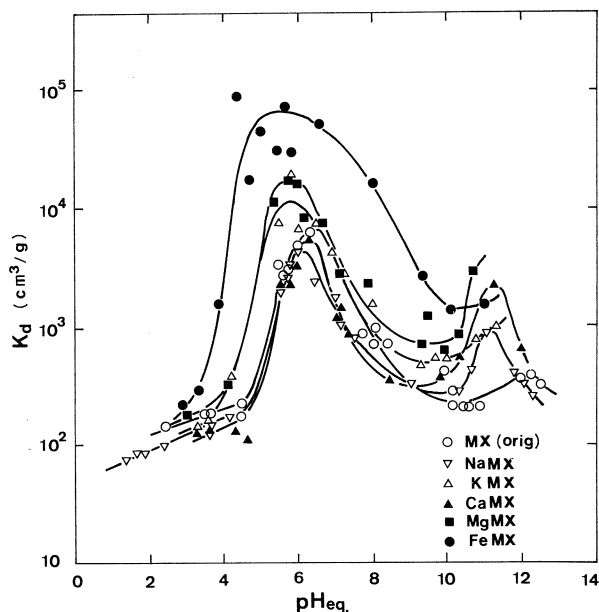
第4図 Percentage of Am removed from the aqueous phase.

他の核種でもほぼ同様の傾向を示す。以上のことから、U, Eu および Am の分配は、中性付近では粘土粒子および器壁への加水分解生成物の吸着が支配的と考えられる。また、中性から弱アルカリ領域 (pH 7~10) での K_d の低下は、加水分解生成物が中性もしくは負荷電を帯び⁹⁾、粘土粒子への吸着能が低下したためと考えられる。pH 11以上で K_d 値が再び増加するのは、加水分解生成物がより大きな真コロイドを形成するためと推定される^{6,7)}。

3.4 コンディショニング形の影響

ベントナイトが地下水と接触した場合には、地下水中のカチオン成分とベントナイト中の交換性カチオンとが置換し、ベントナイトのカチオン形が変化するため核種に対する吸着特性も変化する可能性がある。このため、ベントナイトのコンディショニング形による核種の分配挙動の変化を調べた。

第5図はウランの分配の例を示す。Fe形を除き、いずれのカチオン形でも、中性および高アルカリ領域で K_d 値に二つの極大が認められ、ほぼ同様の分配挙動を示した。ほとんどのカチオン形では、pH4以上で K_d 値が急激に上昇するのに対して、Fe形ではより低pH側 (pH 3付近) から急激な上昇が認められ、pH5~6付近で 10^4 以上のかなり高い K_d 値を示した。液中に溶出した Fe^{3+} がpH3付近から $\text{Fe}(\text{OH})_3$ に加水分解し、ウランはベントナイト粒子および加水分解生成物の両方に吸着したためと考えられる¹⁰⁾。なお、高アルカリ領域での K_d 値は、1価カチオン形より多価カチオン形の方がやや大きい、これは多価カチオン形ベントナ



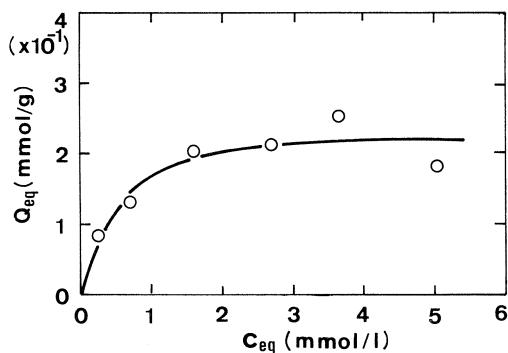
第5図 Effect of conditioning form on K_d .

イトの方が凝集しやすく¹¹⁾、沈降率が増加したためと考えられる。

他の核種についても分配を比較したが、Fe形以外は、酸性領域では $\log K_d$ と pH との間に直線関係が認められ、コンディショニング形による K_d 値の差はほとんど認められなかった。

3.5 吸着等温型および K_d 値の自己濃度依存性

一般に吸着量は濃度と温度の関数であり、温度が一定ならば濃度のみの関数となる。吸着現象は吸着等温線で示され、どのような吸着機構であるかを知るため等温線を求めることが必要である。一例として、第6図にベントナイトへのSrの吸着等温線を示す。Srの平衡吸着量は、平衡濃度とともに増加し、ある平衡濃度以上で飽和し、等温線の形からLangmuir型で吸着が進行していると推定される。他の核種でも同様の傾向が認められた。Langmuir型の吸着等温線は以下のように表せる。



第6図 Adsorption isotherm of Sr^{2+} for NaMX at pH3.9.

$$Q_{eq} = K Q_{max} C_{eq} / (1 + K C_{eq}) \quad (2)$$

Q_{eq} : 平衡吸着量 (mmol/g)

C_{eq} : 溶液中の核種の平衡濃度 (mol/l)

Q_{max} , K : Langmuir 定数

Q_{max} は飽和吸着量であり、酸性領域ではイオン交換が支配的であるためイオン交換容量 (CEC) に相当する。(2)式を変形して次式が得られる。

$$C_{eq}/Q_{eq} = 1/K Q_{max} + (1/Q_{max}) C_{eq} \quad (3)$$

C_{eq} と (C_{eq}/Q_{eq}) をプロット (Langmuir plot) して直線が得られる場合、(2)式が適用できる。また、その直線から $(1/K Q_{max})$ と $(1/Q_{max})$ を求め、 Q_{max} と K が算出できる。第7図に示すように、ベントナイトへの Sr 吸着に対する Langmuir plot には直線関係が認められる。このため、Sr はベントナイト層間へ単分子的に吸着が進行すると考えられる。第7図から Langmuir 定数 $Q_{max} = 0.28$ mmol/g, $K = 1.44 \times 10^3$ が得られた。

分配係数 (K_d) は、定義により固相中および液相中の核種の平衡濃度の比として次式のように表せる。

$$K_d = Q_{eq}/C_{eq} \quad (4)$$

(4)と(2)式から K_d と C_{eq} の関係式は以下ようになる¹²⁾。

$$K_d = K Q_{max} / (1 + K C_{eq}) \quad (5)$$

両辺の対数をとると、

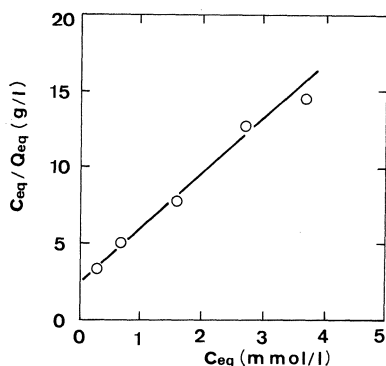
$$\log K_d = \log K Q_{max} - \log (1 + K C_{eq}) \quad (6)$$

ここで $C_{eq} \rightarrow 0$ とした場合、 $\log K_d$ は一定値に近づき、 $C_{eq} \rightarrow \infty$ とした場合には、 $\log K_d$ と $\log C_{eq}$ の間に傾き -1 の直線関係が得られる。なお、 $K_d = 1$ の場合、横軸との切片は Q_{max} (CEC) の値となる。

ストロンチウムに対して得られた Langmuir 定数を(5)式に代入すると次式が得られる。

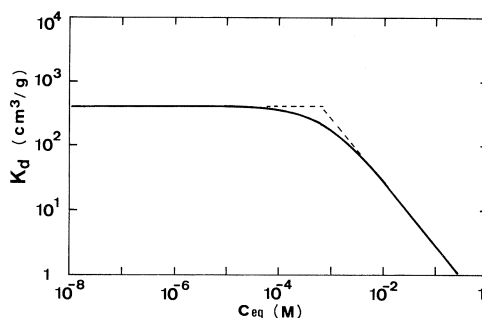
$$K_d = 4.03 \times 10^2 / (1 + 1.44 \times 10^3 C_{eq}) \quad (7)$$

この関係式を図示すると第8図が得られ、Sr 吸着における K_d と自己濃度依存性が推定できる。すなわち、低濃度領域 ($< 10^{-5}$ M) では、 K_d は平衡濃度に依存せず一定 ($K_d = 4.03 \times 10^2$) であるが、高濃度領域 ($> 10^{-2}$ M) では傾き -1 の直線関係が認められる。



第7図 Langmuir plot for strontium adsorption on NaMX.

他の核種についても同様に整理することができ、第1表には、各核種で得られたLangmuir定数 (Q_{max} および K) を示す。以上のように、予めLangmuir定数を算出しておくことにより、任意の核種濃度での K_d を見積ることができる。



第8図 Concentration dependence of K_d for strontium in NaMX.

第1表 Q_{max} and K evaluated from Langmuir plots.

Cation/Bentonite	pH _{eq}	Q_{max} (mmol/g)	K
Cs/NaMX	3.9	0.80	2.50×10^2
Sr/NaMX	3.9	0.28	1.44×10^3
Co/NaMX	3.9	0.27	1.10×10^3
Eu/NaMX	3.9	0.24	3.81×10^4
Eu/NaMX	4.8	0.23	3.88×10^4
Eu/NaV 1	3.9	0.17	2.96×10^4

§4. 結 論

ベントナイトへの核種の分配係数 (K_d) は、pH による核種の化学形および粘土粒子の分散系に大きく依存した。 K_d 値測定の際の遠心分離回転数の影響を調べたところ、酸性領域では回転数によらず K_d は一定であり、中性領域でも 5,000 rpm 以上で K_d はほぼ一定値に近づく。アルカリ領域では回転数の増加とともに K_d は一様に増大した。また、U および Eu などの加水分解しやすい核種のベントナイトへの分配は、pH 4 以下の酸性領域ではイオン交換吸着が支配的であった。それ以上では加水分解生成物の粘土および器壁への吸着が進行するため、みかけ上 K_d 値は急激に増加し、ほぼ pH 6 付近で極大を示した。さらに、アルカリ領域では加水分解生成物の沈降率が増加するため、再び K_d 値が極大をとる傾向がみられた。酸性領域では、ベントナイトのコンディショニング形の違いは、Fe 形を除き、 K_d 値にほとんど影響しない。

pH 4 以下の酸性領域では、ベントナイトへの各核種の交換吸着は Langmuir 型吸着で進行

した。Langmuir 定数 (Q_{max} および K) を得ることにより、 K_d と平衡濃度との関係式が求まり、 K_d 値の濃度依存性を推定することができる。

本研究を行うにあたり、御協力を頂い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は謝意を表す。また、ベントナイト試料を提供して頂いた(株) 間組 技術研究所および東北工業技術試験所 資源開発課の関係各位に厚く謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) 石原健彦, 大橋弘士: 放射性廃棄物処理処分の基礎 (現代工学社, 1987) p.260.
- 2) R. Pusch : Nucl. Tech. **45** (1979) 153.
- 3) M. Konishi *et al.* : J. Nucl. Sci. Technol. **25** (1988) 929.
- 4) 菅野卓治: 高レベル廃棄物処分における緩衝材の役割と性能 (1988).
- 5) U. Olofsson *et al.* : Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **26** (1984) 859.
- 6) 阪上正信, 市川富士夫: 溶液中の放射性核種の存在状態 (現代工学社, 1986) p.122.
- 7) U. Olofsson *et al.* : Scientific Basis for Radioactive Waste Management V (1981) 755.
- 8) 前野昌弘: 無機素材技術読本 (日刊工業新聞社, 1987) p.40.
- 9) B. Allard *et al.* : Scientific Basis for Radioactive Waste Management V (1981) 775.
- 10) V. Veselý and V Pekárek : Talanta **19** (1972) 220.
- 11) 日本粘土学会編: 粘土ハンドブック 第2版 (技報堂, 1987) 137.
- 12) 放射性廃棄物処理連絡会編: 陸地処分の工学バリア RWM-87009 (1987) 118.

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(2)

—20, 30, 60, 100MeV 照射における
ステンレス鋼中の残留放射能とその生成断面積—

金研, 核理研*

駒 義和・三頭聡明・八木益男

榎本和義*

§1. はじめに

核融合炉, 核分裂炉あるいは種々の加速器において, 構造材料はいずれも放射化される環境に曝されており, 保守管理, 廃棄処分時にはこれら放射化生成物からの被曝は必ず考慮されなければならない。被曝管理上, 構造材料中の残留放射能を少なくすることは重要な問題である。

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不足しているのが現状であり, 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。

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。

前回の報告¹⁾では, 低合金鋼の光量子反応での放射化に注目し, 標準試料の元素組成の公定値と, 誘導残留放射能成分との関係を考察した。今回は, 汎用的に使用されているステンレス鋼を試料とし, 合金の主成分でありなおかつ誘導残留放射能の寄与が大きいことが予想されるCrとNi, 微量成分として含まれるCoの相関を中心に検討した。

§2. 実験方法

2.1 照射試料

照射試料には, 出来るだけ工業用に広く用いられている製品を選んだ。購入時の組成表は第1表の通りである。

SUS410, 430はマルテンサイト系で430は時効硬化処理されており, Crのみが合金の主成分である。SUS304, 316, 347はオーステナイト系で, CrのほかにNiが添加されている。

試料は、50 μm 厚の箔の状態で購入した。直径1 cmに打ち抜き、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箔を同じく直径1 cmに打ち抜いて用いた。

試料、ビームモニター

共に石英管に常圧封入し照射ターゲットとした。

2.2 照射

照射は、20, 30, 60, 100MeVの4種類のエネルギーについて行った。それらの照射条件を第2表に示す。

2.3 γ 線スペクトル測定および生成核種の同定

γ 線スペクトルは、非破壊で、照射終了後約1カ月経過するまで

測定した。

生成核種は、その半減期と測定された γ 線のエネルギー²⁾により同定した。

2.4 照射が終了した時点での核種の生成量

多くの生成核種においては、(1)式で照射が終了した時の生成量を求めることができる。

$$A = C \cdot e^{\lambda t} / (a \cdot f) \quad (1)$$

ここで、生成量Aは、試料単位重量当りの崩壊数 [Bq/mg (sample)] とし、 λ は崩壊定数、 t は冷却時間、 c 、 a 、 f はそれぞれ測定された γ 線の強度 (count/s \cdot mg)、放出率、そのエネルギーにおける計数効率を表す。

照射によって生成する核種の中には、2世代あるいは3世代の親娘関係を持つものがある。

第1表 Chemical composition of the target materials (weight%).

	SUS304	SUS316	SUS347	SUS410	SUS430
C					<0.12
Si	<1	max 1	<1	<0.75	<0.75
Mn	<2	max 2	<2	<1	<1.00
P					<0.04
S					<0.03
Ni	8~11	10~14	9~13		
Cr	18~20	16~18	17~20	12~14	16~18
Mo		2~3			
Ta+Nb			>10		

第2表 Irradiating condition.

Energy(MeV)	Date	Time	Current
20	1989 10/30	15:16-20:16	~90 μA
30	1990 3/20	17:45-19:45	~90 μA
60	1989 10/16	12:20-13:20	~75 μA
100	1989 11/30	19:04-21:04	~30 μA

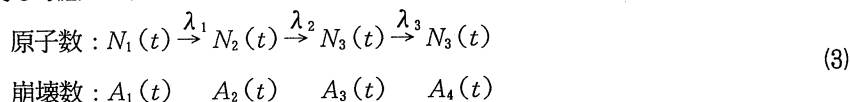
娘核は冷却中にも親核の崩壊によって生成するので、 γ 線スペクトル測定では、照射終了後に存在していたものと照射終了後に生成したものの和を観測している。

娘核が、直接生成する反応がある場合、その照射終了時の生成量 A_{20} は(2)式により求めた。

$$A_{20} = \exp(\lambda_2 t) \cdot \left[A_2 - \frac{\lambda_2 A_{10}}{\lambda_2 - \lambda_1} \{ \exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t) \} \right] \quad (2)$$

ここで、 A_{10} 、 A_{20} はそれぞれ親核と娘核の照射終了時の崩壊数、 A_2 は娘核の測定時の崩壊数、 λ_1 、 λ_2 はそれぞれ親核と娘核の崩壊定数である。

特定の核種の生成率を考察するためには、ターゲットから直接生成した量を、ある一定の照射時間に規格化して比較する必要がある。親娘関係がある場合では照射中における娘核の親核からの成長も考慮して、saturation factor を計算し、照射時間を規格化する。



2番目以降の核種の照射による生成または消滅は無視し、(3)で表される系列を考える。すなわち λ_1 はその核種が生成する断面積の和 σ と制動放射線束 ϕ の積であり、 λ_2 、 λ_3 は崩壊定数である。実験における照射時間を t 、規格化する照射時間を t_n とする。

第2世代については、その規格化した崩壊数を(4)式で求める。

$$A_{2n} = A_2 \cdot \frac{1 - \exp(-\lambda_2 t_n)}{1 - \exp(-\lambda_2 t)} \quad (4)$$

第3世代については、ターゲットから直接生成した成分を A_{31} 、親核の崩壊によって生成した成分を A_{32} 、両者の合計を A_3 とし、それぞれ、(5)~(7)式で求めた。

$$A_{31n} = A_{31} \cdot \frac{1 - \exp(-\lambda_3 t_n)}{1 - \exp(-\lambda_3 t)} \quad (5)$$

$$A_{31n} = A_{31} \cdot \frac{\lambda_2 \{ 1 - \exp(-\lambda_3 t_n) \} - \lambda_3 \{ 1 - \exp(-\lambda_2 t_n) \}}{\lambda_2 \{ 1 - \exp(-\lambda_3 t) \} - \lambda_3 \{ 1 - \exp(-\lambda_2 t) \}} \quad (6)$$

$$A_{3n} = A_{31n} + A_{32n} \quad (7)$$

2.5 標準反応による生成量の規格化

照射条件は、照射中の電流値の変動が無視できるとして、照射エネルギーと電流値、照射時間によって表現されるが、これらで生成量を規格化しても、異なった照射エネルギーにおける生成率を比較検討することはできない。

そのため、ここでは、当量光子の概念⁵⁾を利用して、標準とする断面積を定義し、観測された核種が生成する断面積を相対的に評価した。観測された核種が生成する断面積は $[m^2/mg]$ を単位とする生成断面積で表現する。生成断面積は、断面積と単位重量当たりのターゲット原子数の、その核種が生成する全ての反応についての総和であるとする。

$$\sigma_{\text{form.}} = \sum^n (\sigma_i \times N_i) \quad (8)$$

この量を導入することにより、2つ以上の元素で構成される場合、あるいは、不純物を含む場合に、それらの成分比をあらかじめ求めなくとも、放射性核種の生成率に対する情報を得ることができる。さらに、当量光子で規格化した制動放射線束が決定できれば、生成放射能の量も推測することができる。

標準となる断面積は、エネルギー k における断面積 $\sigma(k)$ の励起関数が既知であるとして以下のように求めた。

電子エネルギー k_{max} での、理論式もしくはモンテカルロ計算から導いた光子線束を $n_s(k, k_{\text{max}})$ 、実験での光子線束を $n(k, k_{\text{max}})$ とし、スペクトルの形状は同じであると仮定すると、

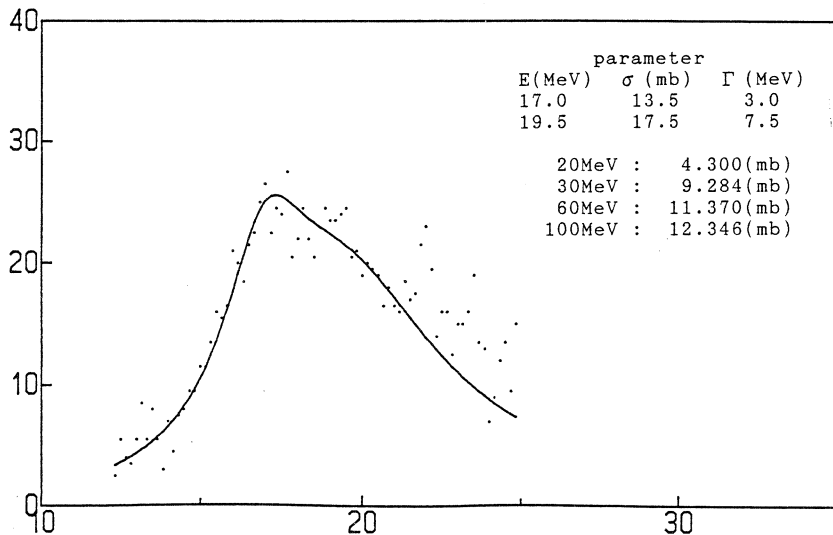
$$n(k, k_{\text{max}}) = f \times n_s(k, k_{\text{max}}) \quad (9)$$

となる。これを用いて電子エネルギー k_{max} での当量光子当たりの断面積 $\sigma_{\text{eq}}(k_{\text{max}})$ は、

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{eq}}(k_{\text{max}}) &= k_{\text{max}} \cdot \int_0^{k_{\text{max}}} \sigma(k) n(k, k_{\text{max}}) dk / \int_0^{k_{\text{max}}} n(k, k_{\text{max}}) k dk \\ &= k_{\text{max}} \cdot \int_0^{k_{\text{max}}} \sigma(k) n_s(k, k_{\text{max}}) dk / \int_0^{k_{\text{max}}} n_s(k, k_{\text{max}}) k dk \end{aligned} \quad (10)$$

と表される。

本研究では、励起関数は *Berman* らの巨大共鳴部分の測定データ³⁾を2成分の Lorentz カーブでフィッティングしたものを用い、制動放射線スペクトルは *Shiff* の理論式⁴⁾から計算した。



第1図 Experimental data of giant-resonance of Ni-58 and Lorentz curve.

第1図に ^{58}Ni の巨大共鳴部分の励起関数の測定データ, Lorentz カーブおよびそのパラメータを示す。

標準反応としては, 20から100MeVの照射エネルギーの範囲内で特定の同位体からの生成反応が支配的であり, どの試料でも共通の生成核種が測定可能である, という観点から, $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$ を選択した。 ^{57}Ni は, 60MeV程度以上の照射エネルギーでは, $^{60}\text{Ni}(\gamma, 3n)^{57}\text{Ni}$ などの反応によっても生成するが, その影響は小さく, CuなどNiより原子番号の大きい元素からの生成はほとんど無視できる。

生成断面積 σ_{form} は, 標準とする反応の断面積 σ_r と注目する核種を生成するターゲット元素の濃度 c が既知であれば, その元素の原子量 M から

$$\sigma_{\text{form.}} = \sigma_r \cdot c \cdot \frac{N_A}{M} \quad (11)$$

として求められる。

一方, 試料の成分比が未知であっても, 標準とする反応の生成断面積 σ_n を用いた,

$$\sigma_{\text{form.}} = \sigma_n \cdot \frac{A}{A_n} \cdot \frac{\{1 - \exp(-\lambda_n t)\}}{\{1 - \exp(-\lambda t)\}} \quad (12)$$

で表される式により, 着目する核種および標準となる反応の崩壊数, 崩壊定数からも求めることができる。ここで, 標準とする反応の生成断面積 σ_n は標準反応の断面積 σ_r と原子量 M_r から計算する。

$$\sigma_n = \frac{\sigma_r \cdot N_A}{M_r} \quad (13)$$

と等しいとする。

今回測定した生成断面積を照射エネルギー別に第3から6表に示した。

第3表 Photonuclear cross sections for main constituent nucleides of stainless steels at 20MeV irradiation ($\times 10^{-6} \text{mm}^2/\text{g}$).

Nuclide	SUS 304	SUS 410	SUS 430	SUS 316	SUS 347	Ni	Main Reaction
Cr-49	41	27	35	35	43		Cr-50 (γ, n)
Cr-51	2500 \pm 110	1700 \pm 22	2300 \pm 68	2400 \pm 48	2500 \pm 82		Cr-52 (γ, n)
Mn-54	310 \pm 16	56 \pm 3.7	130 \pm 18	450 \pm 26	400 \pm 28		Mn-55 (γ, n)
Mn-56	26	29	30	25	29		Fe-57 (γ, p)
Co-57	910 \pm 13	35 \pm 0.91	13 \pm 2.0	1200 \pm 180	1000 \pm 35	7000 \pm 380	Ni-58 (γ, p)
Co-58	56 \pm 4.6	4.3 \pm 1.1	4.8 \pm 1.6	54 \pm 4.7	20 \pm 3.4		Co-59 (γ, n)
Ni-57	420 \pm 30	16 \pm 0.62	2.7 \pm 0.12	570 \pm 10	480 \pm 7.4	4400 \pm 130	Ni-58 (γ, n)
As-74	1.3	3.2 \pm 0.33	1.4 \pm 0.68	4.1 \pm 0.03	3.0 \pm 0.50		As-75 (γ, n)
Nb-92m			3.9 \pm 1.1	160 \pm 5.3			Nb-93 (γ, n)
Nb-95			1.4	2.6 \pm 0.26			Mo-96 (γ, p)
Nb-95m			1.3				Mo-96 (γ, p)
Nb-96				0.97 \pm 0.21			Mo-97 (γ, p)
Mo-99	3.4 \pm 0.31	2.2 \pm 0.23	53 \pm 2.4	150 \pm 8.7	15 \pm 0.30		Mo-100 (γ, n)
Sb-122		0.57 \pm 0.01					Sb-123 (γ, n)

$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$: 4300 [μb]

第4表 Photonuclear cross sections for main constituent nucleides
of stainless steels at 30MeV irradiation ($\times 10^{-6} \text{mm}^2/\text{g}$).

Nuclide	SUS 304	SUS 410	SUS 430	Ni	Main Reaction
V-48	4.0 ± 0.74	5.8 ± 1.0	6.1 ± 0.34		Cr-50 (γ , d)
Cr-48	2.9	1.2 ± 0.14	0.76 ± 0.09		Cr-50 (γ , 2n)
Cr-51	6800 ± 110	7600 ± 110	6300 ± 100		Cr-52 (γ , n)
Mn-52	3.3 ± 1.0	4.7 ± 0.33	2.3 ± 0.55		Fe-54 (γ , d)
Mn-54	1100 ± 47	1100 ± 54	830 ± 26		Fe-56 (γ , d)
Mn-56	140 ± 8.2	260 ± 3.6	150 ± 4.3		Fe-57 (γ , p)
Fe-52	2.3	4.9 ± 0.30	2.9 ± 0.05		Fe-54 (γ , 2n)
Co-56	67 ± 9.3	1.8 ± 0.01	3.5	590 ± 14	Ni-58 (γ , pn)
Co-57	2400 ± 52	140 ± 4.2	23 ± 1.3	16000 ± 350	Ni-58 (γ , p)
Co-58	110 ± 5.3	16 ± 1.3	9.1 ± 2.0	300 ± 7.8	Ni-60 (γ , Pn)
Ni-56	9.8 ± 0.83	4.5		75 ± 6.1	Ni-58 (γ , 2n)
Ni-57	960 ± 280	68 ± 5.8	12 ± 4.4	9500 ± 173	Ni-58 (γ , n)
As-74	1.6	7.7 ± 1.7			As-75 (γ , n)
Nb-95			4.9 ± 1.8		Mo-96 (γ , p)
Nb-95m			5.2 ± 0.10		Mo-96 (γ , p)
Nb-96			4.0		Mo-97 (γ , p)
Nb-97			3.6		Mo-98 (γ , p)
No-99	3.8 ± 0.69	3.6 ± 0.42	64 ± 2.0		Mo-100 (γ , n)
Sb-122			0.79		Sb-123 (γ , n)

$^{58}\text{Ni} (\gamma, n) ^{57}\text{Ni} : 9285 [\mu\text{b}]$

第5表 Photonuclear cross sections for main constituent nucleides
of stainless steels at 60MeV irradiation ($\times 10^{-6} \text{mm}^2/\text{g}$).

Nuclide	SUS 304	SUS 410	SUS 430	Ni	Main Reaction
V-48	44 ± 3.1	31 ± 1.4	43 ± 3.3		Cr-50 (γ , d)
Cr-48	3.4 ± 0.32	2.9 ± 0.14	3.9 ± 0.18		Cr-50 (γ , 2n)
Cr-49		110	180		Cr-50 (γ , n)
Cr-51	8100 ± 220	5600 ± 110	7500 ± 150		Cr-52 (γ , n)
Mn-52	38 ± 0.96	42 ± 1.0	41 ± 1.5		Fe-54 (γ , d)
Mn-54	3200 ± 80	3200 ± 67	3300 ± 96		Fe-56 (γ , d)
Mn-56	180	220	220 ± 52		Fe-57 (γ , p)
Fe-52	12 1.0	16 ± 0.32	16 ± 0.45		Fe-54 (γ , 2n)
Co-55	14 ± 0.83	0.80			Ni-58 (γ , p2n)
Co-56	260 ± 2.9	18 ± 2.5	4.6	2600 ± 57	Ni-58 (γ , pn)
Co-57	2800 ± 160	110 ± 10	32 ± 3.5	19000 ± 890	Ni-58 (γ , p)
Co-58	170 ± 1.9	8.5		1200 ± 38	Ni-60 (γ , Pn)
Ni-56	29 ± 1.5	3.6 ± 0.64	5.8 ± 0.99	200 ± 9.7	Ni-58 (γ , 2n)
Ni-57	1100 ± 16	44 ± 0.92	12 ± 0.50	11000 ± 380	Ni-58 (γ , n)
As-74		64 0.87	2.4		As-75 (γ , n)
Nb-95			7.8 ± 1.7		Mo-96 (γ , p)
Nb-95m			6.5 ± 0.54		Mo-96 (γ , p)
Nb-96			5.0 ± 0.22		Mo-97 (γ , p)
Mo-99	3.7 ± 0.49	2.3 ± 0.23	6.4 ± 0.38		Mo-100 (γ , n)

$^{58}\text{Ni} (\gamma, n) ^{57}\text{Ni} : 11370 [\mu\text{b}]$

第6表 Photonuclear cross sections for main constituent nucleides of stainless steels at 100MeV irradiation ($\times 10^{-6} \text{mm}^2/\text{g}$).

Nuclide	SUS 304	SUS 410	SUS 430	SUS 316	SUS 347	Ni	Main Reaction
V-48	130 ± 26	93 ± 4.8	110 ± 11	100 ± 10	130 ± 16		Cr-50 (γ , d)
Cr-48	5.9 ± 0.49	5.8 ± 0.09	5.9 ± 0.11	11 ± 3.5	9.2 ± 1.7		Cr-50 (γ , 2n)
Cr-51	8200 ± 210	5800 ± 110	7700 ± 180	7800 ± 350	8600 ± 150		Cr-52 (γ , n)
Mn-52	120 ± 4.8	130 ± 2.6	110 ± 6.4	110 ± 6.2	84 ± 9.2		Fe-54 (γ , d)
Mn-54	4000 ± 250	3800 ± 98	3600 ± 120	3800 ± 360			Fe-56 (γ , d)
Mn-56	260	230	240	240 ± 9.0	280		Fe-57 (γ , p)
Fe-52	20	22 ± 1.0	23 ± 1.6	16	20	10	Fe-54 (γ , 2n)
Co-55	20 ± 0.57	33 ± 0.79	24 ± 0.55	250 ± 2.8			Ni-58 (γ , p2n)
Co-56	320 ± 9.6	21	16	430 ± 8.2	380 ± 19	3400 ± 100	Ni-58 (γ , pn)
Co-57	2700 ± 130	120 ± 28	290	3700 ± 82	3100 ± 220	31000 ± 730	Ni-58 (γ , p)
Co-58	180 ± 20			180	130 ± 17	1400 ± 190	Ni-60 (γ , pn)
Ni-56	38 ± 6.6	8.4 ± 1.0	11 ± 0.22	45 ± 6.2	43 ± 4.4	290 ± 13	Ni-58 (γ , 2n)
Ni-57	1100 ± 7.7	44 ± 1.4	10 ± 0.89	1400 ± 33	1300 ± 34	12000 ± 190	Ni-58 (γ , n)
Nb-96			4.8 ± 0.48	16 ± 1.8			Mo-97 (γ , p)
Mo-99		3.2 ± 0.8	66 ± 6.6	180 ± 24	37 ± 8.6		Mo-100 (γ , n)

^{59}Ni (γ , n) ^{59}Ni : 11370 [μb]

§3. 結果と考察

3.1 成分表との相関

マルテンサイト系でNiを成分として含まないはずのSUS410とSUS430から、 ^{57}Ni や ^{56}Ni が生成していることがみとめられた。 ^{57}Ni 生成量からSUS410はおよそ3~4%, SUS430は約1%のNiを含むことが推測される。また、不純物としてのNiと主成分元素との相関はみとめられず、Niが混入した原因は統一的には説明できない。

Niが不純物として含まれていると、 ^{57}Ni , ^{56}Ni , ^{58}Co , ^{57}Co , ^{56}Co などの被曝量を増大させる原因となる放射性核種が生成するので、構造材料の製造や選定にはNiの混入の原因を解明することが望まれる。

また、 ^{57}Co と ^{57}Ni の生成断面積の比は、照射エネルギー、試料によらず約2.3で一定である。このことは、全ての試料において、直接 ^{57}Co を生成するターゲット元素はNiであることを示している。 ^{57}Co は ^{59}Co (γ , 2n) ^{57}Co でも生成するが、その寄与は認められなかった。

不純物としてのCoは、20および30MeVでは、 ^{56}Co の生成量に影響を与えている。

3.2 照射エネルギーと相関

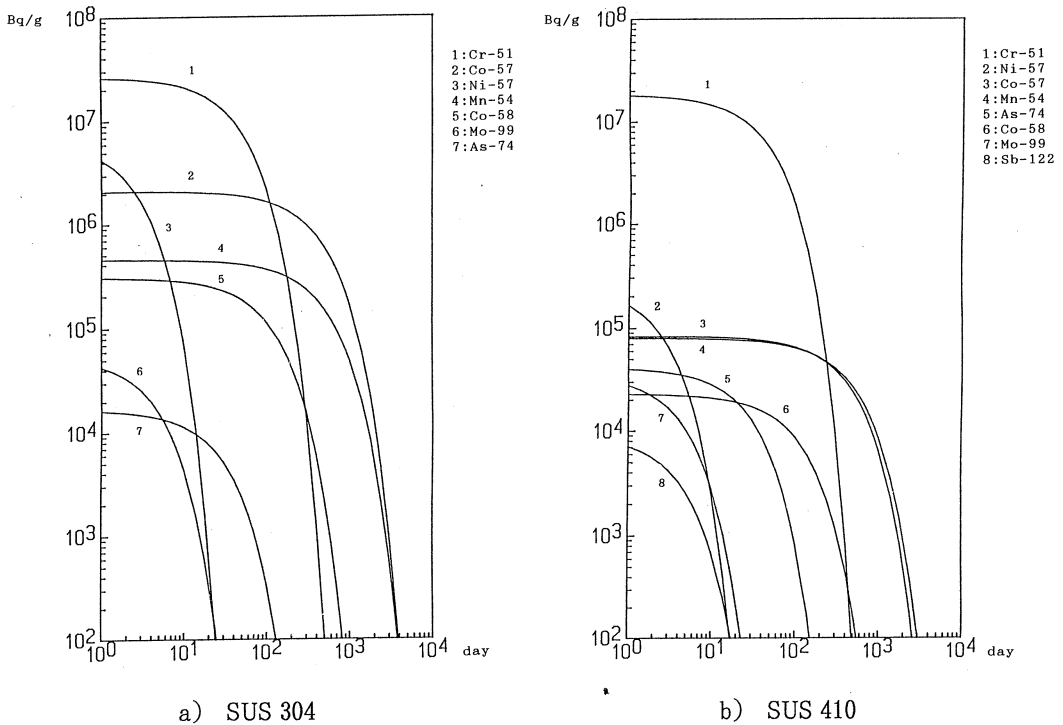
制動放射による放射化に重要な寄与をするのは巨大な共鳴であり、その中心エネルギーは10MeVから20MeV程度である。それゆえ、当量光子で規格化された断面積値は、20, 30, 60MeVまでは増大する傾向が見られるが、60MeVと100MeVの間では大きな違いは認められない。

3.3 1000時間放射での崩壊曲線

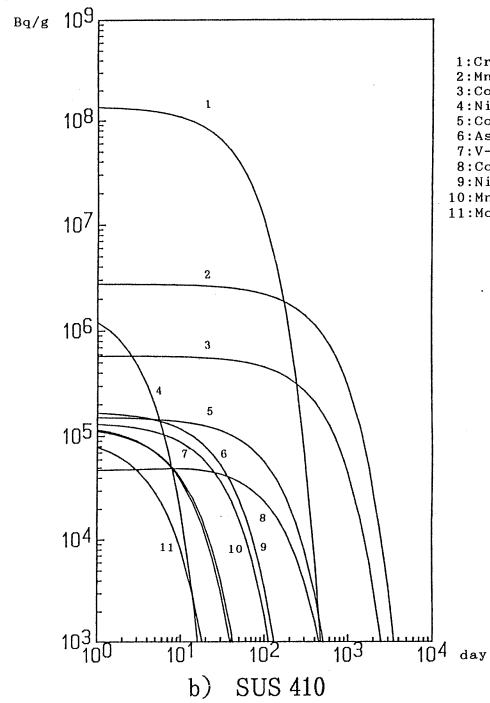
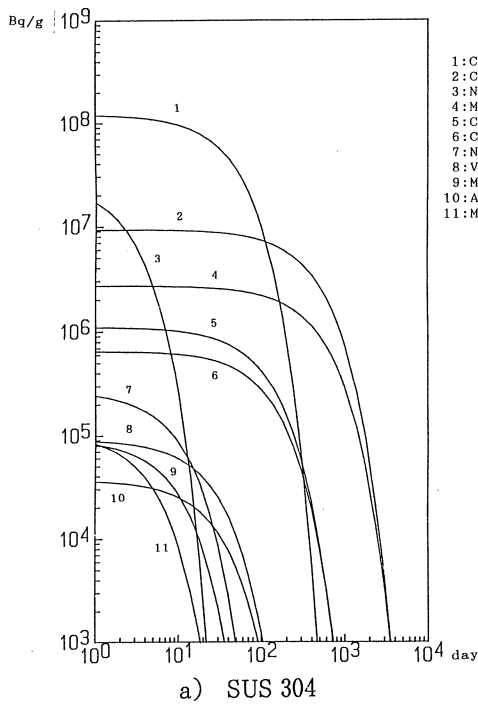
加速器構造材料の現実的な使用条件を模擬して、今回の実験で観測された放射性核種の崩壊曲線を計算した。生成核種に親娘関係がある場合には、娘核の照射中および冷却中の成長も考慮した。

照射エネルギー、試料別に崩壊曲線を第2から5図に示す。照射終了時には ^{51}Cr の強度が最も強く、1000日程度経過するとマトリックスのFeから生成する ^{54}Mn の影響が大きくなる傾向は、照射エネルギーと試料に拘らず共通している。

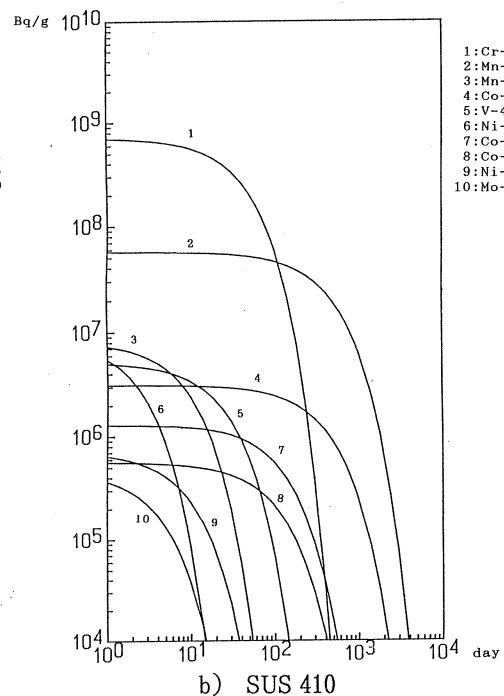
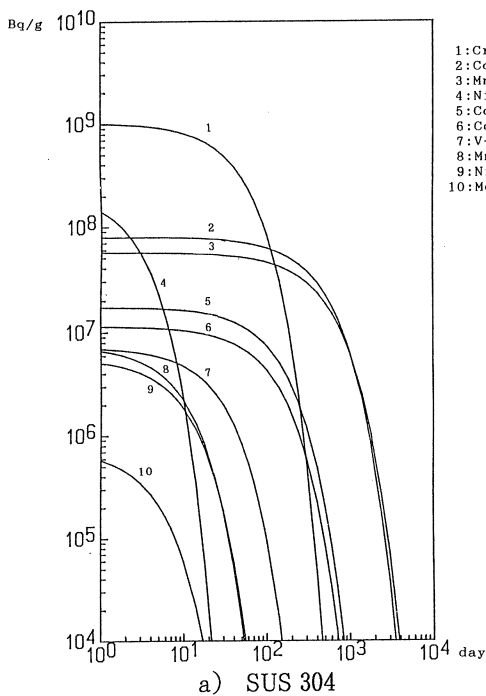
Niの含有量によって ^{57}Co の生成量は異なるが、直接生成した量と ^{57}Ni の崩壊によって生成した量の比は、SUS304の場合は1000時間照射で約2.5であり、照射中に親核から生成する量は無視できない。



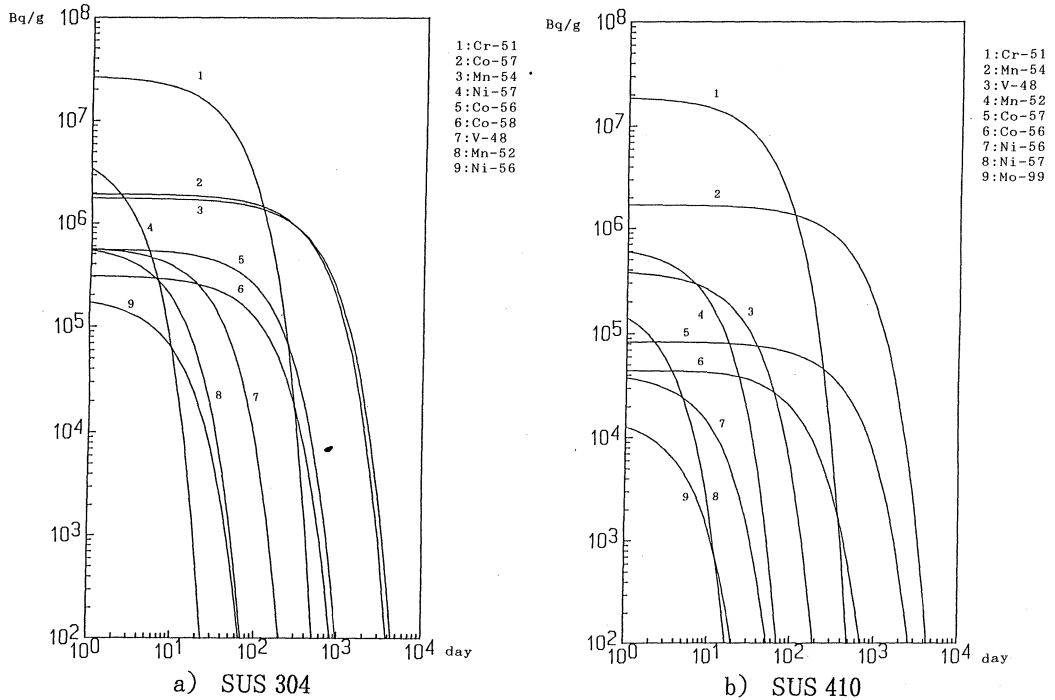
第2図 Decay curves of radionuclides produced in stainless steels irradiated for 1000h by 20MeV Bremstrahlung (Bq/g).



第3图 Decay curves of radionuclides produced in stainless steels irradiated for 1000h by 30MeV Bremstrahlung (Bq/g).



第4图 Decay curves of radionuclides produced in stainless steels irradiated for 1000h by 60MeV Bremstrahlung (Bq/g).



第5図 第5図 Decay curves of radionuclides produced in stainless steels irradiated for 1000h by 100MeV Bremstrahlung (Bq/g).

参 考 文 献

- 1) 三頭聡明・駒義和・八木益男・榎本和義：核理研研究報告22 (1) (1989) 62.
- 2) E. Browne, R. Firestone : "Table of Radioactive Isotopes" (John Wiley & Sons, 1986)
- 3) B. L. Berman, S. C. Fultz : Rev. Mod. Phys. 47 (3) (1975) 713.
- 4) L. I. Shiff : Phys. Rev. 83 (2) (1951) 252.
- 5) M. Barbier : "Induced Radioactivity" (North Holland Publ. Co., 1969)

ガンマ線による放射性廃棄物の消滅処理

サイクロトロンセンター, 追手門学院大*,
東大**, 動燃***

山寺 亮・程塚正敏・中村尚司
藤原一郎*・柴田誠一**
加瀬 健***

§1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の消滅処理のための基礎研究が様々な角度から始められている。

我々は、光核反応を用いた消滅処理について、その可能性を検討している。そのための基礎的データとして、今までに超ウラン元素の光核分裂反応断面積と核変換効率を求めてきた^{1,2)}。

ここでは、 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の断面積を求めたので報告する。

^{137}Cs と ^{90}Sr は使用済みの核燃料中の核分裂生成物質の中では、最も発生量が多く、また、超ウラン元素の消滅処理が実際に行なわれるようになると、さらに多量の ^{137}Cs と ^{90}Sr が発生することになる。寿命も30年と長く、廃棄物処理を考える上では最も重要な核種である。

消滅処理方法を検討するには、まず断面積のデータが必要になるが、 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の断面積データはまだ得られていない。

その理由は、普通の方法ではターゲットとして多量の ^{137}Cs が必要になるが、それ自身が放射性物質であり、取扱にかなりの危険を伴うこと。さらに、生成した ^{136}Cs は放射性が低いので、ターゲットの ^{137}Cs から分離しないと測定出来ないが、この2つの核種を化学的に分離することは不可能なこと、等による。

我々は、リコイル分離法を用いて、少量の ^{137}Cs ターゲットから ^{136}Cs を効率よく分離し、その放射能を測定して、 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の断面積を世界で初めて測定することが出来た。

§2. 実 験

2.1 照射試料

照射試料は、リコイル収率を求めるための厚さを変えた一連の $^{133}\text{CsCl}$ 試料と、 ^{137}Cs 試料である。

$^{133}\text{CsCl}$ 試料は、純度99.9%の塩化セシウムを真空中で純度99.999%のアルミニウム фоль

上に蒸着したもので、塩化セシウムの厚さは2.9から61.8 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ まで、厚さを変えて9種類用意した。

^{137}Cs 試料は4種類8個を作製した。まず、購入した硝酸塩を塩酸塩に変換した後、2つに分割し、一方はそのまま、もう一方には一定量の天然塩化セシウム ($^{133}\text{CsCl}$) を添加した溶液を作った。それぞれの溶液について、そのままアルミフォイル上にたらし乾燥させた試料と、真空中でアルミフォイル上に蒸着した試料を2個ずつ作った。蒸着は、内容積約2 lの自作の

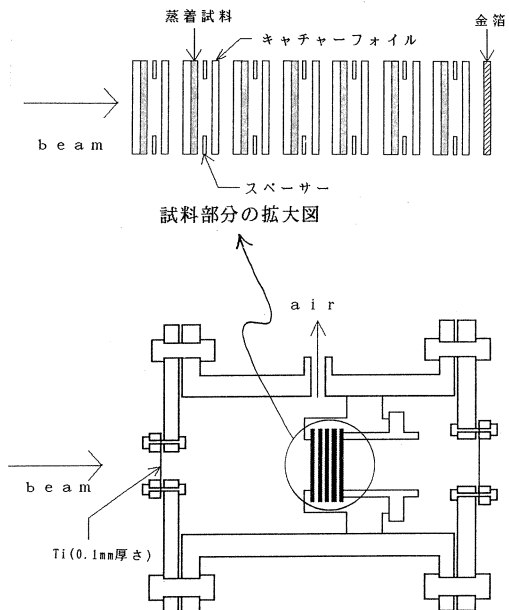
第1表 ^{137}Cs 試料の組成。

製 作 法	試 料 名	^{137}Cs の原子数 ($\times 10^{15}$)	^{133}Cs の原子数 ($\times 10^{15}$)
蒸 発	HC 1	4.32	6.64
	HC 2	3.23	10.4
	HCF 1	2.40	50.7
	HCF 2	3.76	37.9
蒸発乾固	H 1	10.0	27.7
	H 2	10.5	29.0
	H 4	9.49	11.7
	H 5	6.82	10.9

蒸着装置で行った。試料の組成を、第1表に示す。蒸着試料中の ^{133}Cs の量は直接には求められないので、蒸着前後の試料中の ^{137}Cs の放射能比から算出した。試料全量の約30%が、アルミフォイル上に蒸着された。

尚、 ^{137}Cs 試料の作製は、全て使い捨てのビニール製グローブボックス (H×W×D = 480×550×550) 内で行ない、使用後は放射性廃棄物として保管廃棄した。

製造した試料の配置と照射容器を第1図に示す。試料 (ターゲットフォイル) と、

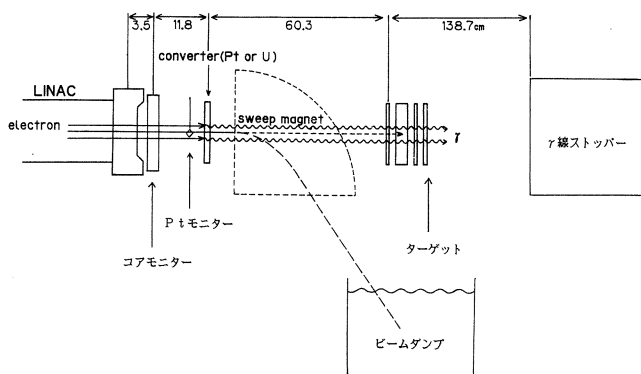


第1図 照射容器と試料の配置図。

キャッチャフォイルをリング状のスペーサーを介して並べ、最後に制動放射線束モニターの金箔を置いた。これらのセットをアルミニウム製照射容器に入れて真空封入した。

2.2 照 射

照射は第1実験室のレフトコースに新設した照射装置で行なった。実験配置を第2図に示す。



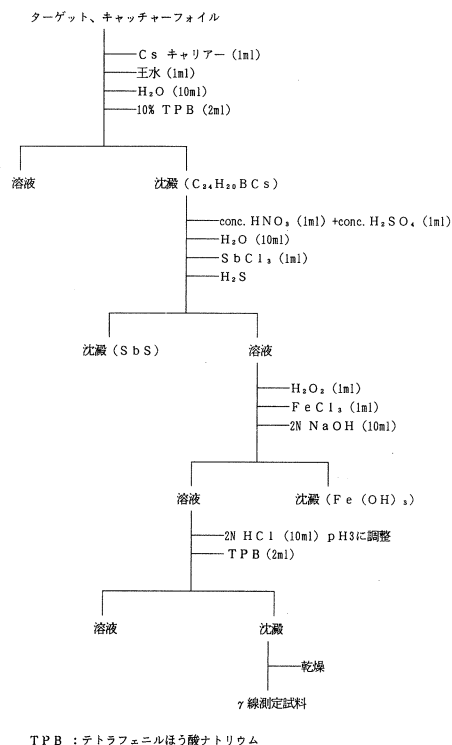
第2図 照射装置の図。

白金コンバータを通過した電子はそのすぐ後ろに置かれたマグネットによって、下方に曲げられ照射容器には入射しない。照射容器は、白金コンバータから約60 cm 後方に置かれ照射された。容器表面には水冷用銅パイプが巻かれ、更にブローアによって空冷された。

電子の加速エネルギーは60MeVで、コアモニターでの電流値は約70 μ A、照射時間は ^{133}Cs 試料では4.8時間、 ^{137}Cs 試料では15.7時間であった。

2.3 化学分離

照射試料はそのまま東北大学サイクロTRセンターに持ち帰り、開封して中のターゲットフォイルとキャッチャフォイルを取り出した。 ^{137}Cs ターゲット以外のフォイルは、第3図に示す方法で、セシウムを化学分離した。得られたテトラフェニルほう酸セシウムには、化学分離で用いた試薬類からカリウムが混在してきて



TPB : テトラフェニルほう酸ナトリウム

第3図 セシウム試料の化学分離スキーム。

いた。そこで回収率は、放射能測定後、再び試料を溶解して原子吸光分析を行ない、放射能測定後のロスはないものとして算出した。

回収率はいずれも90%前後の値で、 γ 線スペクトロメトリーの結果からはセシウム以外の不純物は見られなかった。

2.4 放射能測定

測定はTENNELEC社製およびORTEC社製ピュアGe検出器(FWHM1.9 keV, 相対効率30%)をNAIG社製NLAB-MCAシステムおよびPC9801パーソナルコンピュータに接続して行なった。生成核種の同定、定量及びデータ解析の一部は、NAIG社の γ 線核種分析用プログラムで行なった。

§3. データ解析

生成した ^{136}Cs の飽和放射能(A_s)は次式で与えられる。

$$A_s = N_t CR \int_{E_l}^{E_u} \sigma(E) \phi(E) dE = N_t CR \bar{\sigma} \int_{E_l}^{E_u} \phi(E) dE \quad (1)$$

ここで N_t : ^{137}Cs の個数

C : 電流値

$\sigma(E)$: $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応断面積

$\phi(E)$: 制動放射線スペクトル

E_u : 上限のエネルギー

E_l : 下限のエネルギー

R : リコイル収率

$\bar{\sigma}$: $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の平均断面積

$\phi(E)$ は、電磁カスケードモンテカルロコードEGS4³⁾で、本実験と同じ体系を入力して求めた、制動放射線のスペクトルである。電流値 C は制動放射線モニターとして用いた金の飽和放射能から求めた。

E_u と E_l を如何にとるかにより、反応断面積は大きく変わってくるが、ここでは巨大共鳴領域の核反応に有効に寄与する制動放射線による断面積として、それぞれ25MeVおよび9MeVにした。

§4. 実験の結果

第4図に化学分離後の ^{137}Cs キャッチャーフォイルの γ 線スペクトルを示す。668keVのピークは、 $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応によって生成した ^{132}Cs が、リコイルしてキャッチャーフォイルにトラップされたものである。

819keV及び1048keVのピークは $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応で生成した ^{136}Cs が、 ^{132}Cs と同様にしてキャッチャーフォイルにトラップされたものである。

662keVのピークは ^{137}Cs の汚染によるものである。この汚染の程度が、リコイル分離法の成否にかかっているが、図から明らかのようにその放射能強度は ^{132}Cs と同程度であって、668keVのピークの解析には支障を来していない。この実験は前年度齊藤⁴⁾らが行なっているが、その時は ^{137}Cs の汚染はピーク面積で ^{132}Cs の約 10^3 倍高かった。今回 ^{137}Cs の汚染を著しく減少できた最大の理由は、ターゲット容器を冷却した事である。塩化セシウムは大気中では550°C付近から蒸発を始める。本実験のように減圧下ではより低温から蒸発を開始する。ターゲット容器の冷却で、ターゲットの温度がどの程度下がったかは、測定していないので明らかではないが、汚染の程度を見る限り、蒸発防止にかなりの効果があった事は明らかである。

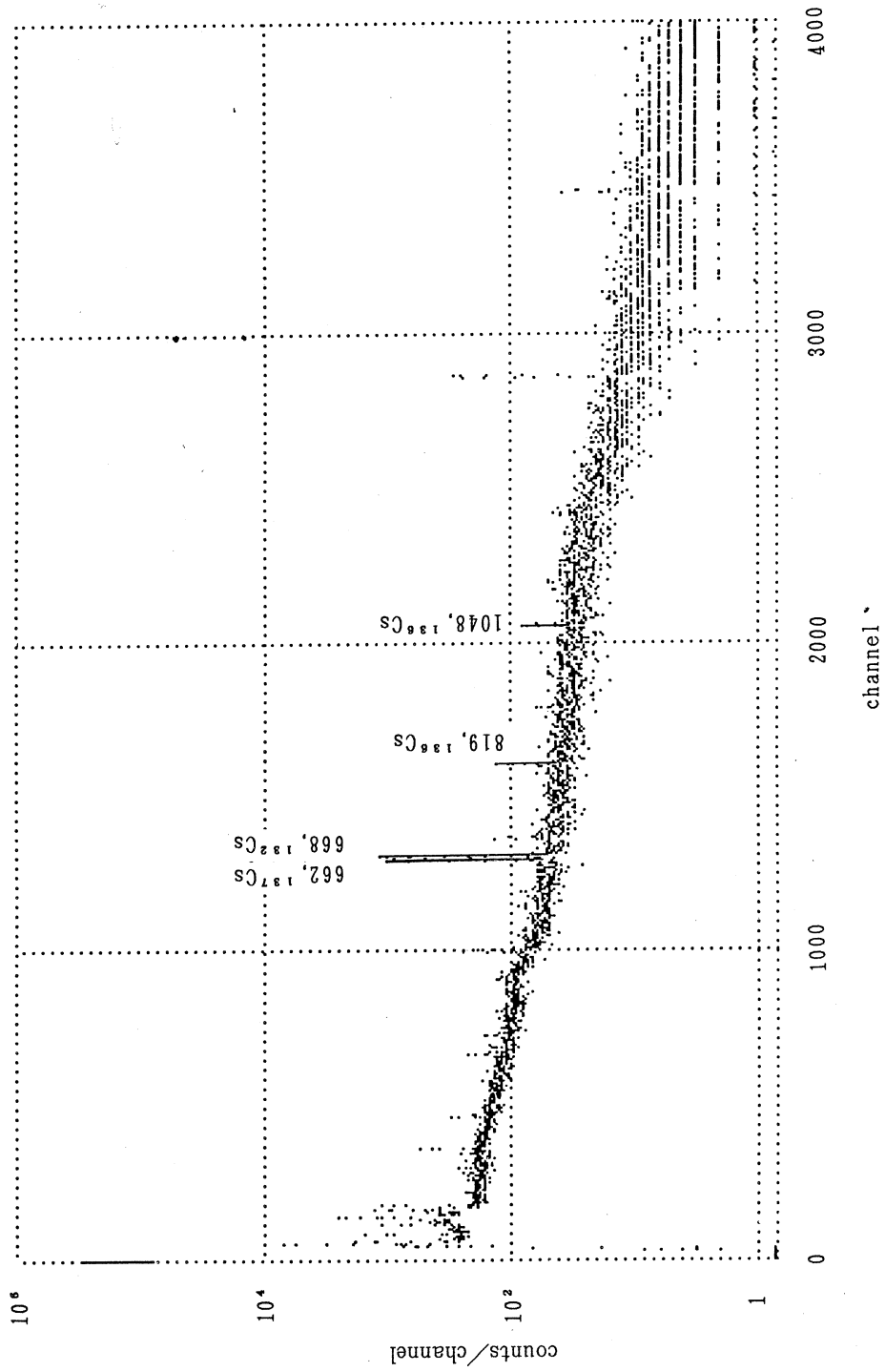
$^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の断面積を測定する方法として、ここでは内部標準法を用いた方法と、リコイル収率を求めてから算出する方法とをとった、以下それぞれの方法について述べる。

4.1 内部標準法による反応断面積

内部標準法は、誤差の原因となる照射と測定条件が相殺される等、誤差の小さい定量法として定評がある。さらに、 (γ, n) 反応によるリコイル収率が ^{136}Cs と ^{132}Cs とで等しいとすれば(リコイルエネルギーには約3%の差があるが、ここでは等しいとする)、リコイル収率も相殺されることになる。

内部標準法では、 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の断面積は、 $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応の断面積との比で得られるが、今、 $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応の平均断面積を106mb(積分範囲は、9~25MeV)とすれば、蒸着法で作製した試料では 139 ± 27 mbになった。この値はまだ精度が悪く十分満足できる値ではないが、初めて求められたもので、 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の概要を知る上でその価値は大きい。

溶液を滴下して作製した試料では、信頼するに足りる値は得られなかった。その最大の理由は、溶液法の場合には、測定された放射能が低く、統計誤差の大きな値しか得られなかった事による。溶液法では試料を均一に作ることは不可能で、目視でも試料の不均一性が観察された。 ^{137}Cs の (γ, n) 反応による ^{136}Cs のリコイルレンジは数 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ であるが、作製した試料も



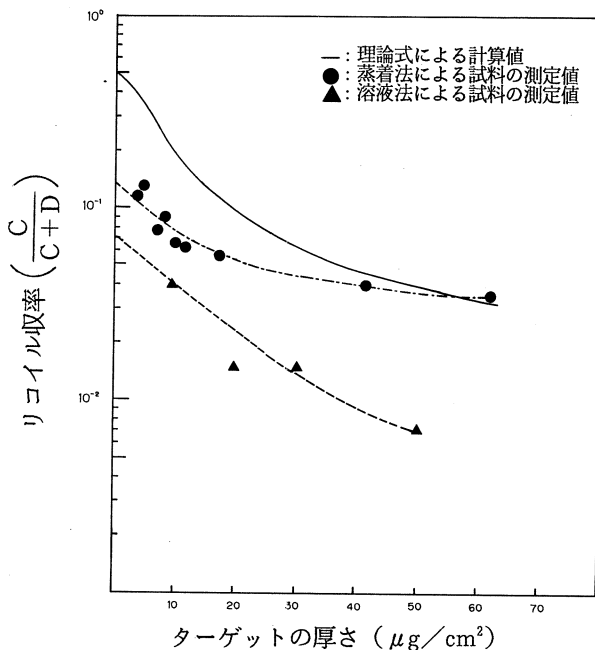
第4図 キャッチャーホールの化学分離後のγ線スペクトル。
 試料名 HCF 2 60MeV制動放射線15.7時間照射
 冷却時間4.4日, 測定時間85700秒。

ほぼこれに近い厚さである、従って、厚さが不均一だとリコイル収率は大きく減少する。

尚, $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応の平均断面積 $\bar{\sigma}$ は S. S. Dietrich⁵⁾ らの励起関数 $\sigma(E)$ を用いて (1)式で計算したものである。

4.2 リコイル収率から求めた反応断面積

第5図に $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応で求めたリコイル収率を示す。縦軸はターゲット中で生成



第5図 $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ 反応による ^{132}Cs のリコイル収率。

した ^{132}Cs の全量に対する、キャッチャーフォイルにトラップされた割合である。実線は試料がフォイル上に均一に分布しているとして理論的に予想される値であり、一点鎖線は蒸着法によって、鎖線は溶液法によって作られた試料による実験値である。蒸発法による値は、ターゲットが厚い領域では理論曲線とほぼ一致するが、ターゲットが薄くなると理論曲線よりかなり小さな値になる。更にリコイル収率のばらつきも大きくなる。これは、空気中の湿度などで塩化セシウムの結晶成長が促進され、試料の微視的な均一性が失われたことによると思われる。データのばらつきも大きく、このグラフから精度の高い反応断面積を導き出すことは不可能である。

溶液法の場合には、リコイル収率は蒸発法より更に $1/2 \sim 1/5$ 低い傾向を示している。この原因については、4.1で述べた。

4.3 リコイル分離法

一般に、分離法の良否は目的成分の回収率と分離能にかかっている。

回収率はここではリコイル収率のことである。第5図では厚さ $5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の蒸着試料の回収率は約0.1と求められている。回収率は最大の値を取ったとしても0.5でそれ以上は有り得ない、実験で求められた回収率はその約20%に達している。

分離能 (S) を次式で定義する。

$$S = \frac{C_{136}/T_{136}}{C_{137}/T_{137}}$$

C_{136} と T_{136} はそれぞれキャッチャーフォイルにトラップされた ^{136}Cs の量とターゲットで生成した ^{136}Cs の全量を示している、また C_{137} と T_{137} はそれぞれキャッチャーフォイル中の ^{137}Cs の汚染量とターゲット中の ^{137}Cs の全量を示している。H2 の試料について分離能を求めると 1.1×10^7 となって極めて高い分離能を示している。このことによって ^{137}Cs ターゲット中に生成したごく微量の ^{136}Cs の分別測定が可能になった。

§5. 結 論

リコイル分離法によって、 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)^{136}\text{Cs}$ 反応の断面積を求める方法を確立した。

反応断面積は $139 \pm 27 \text{mb}$ と計算された、これは世界で初めてのデータである。しかしこのデータはまだ精度が悪く、満足できるデータではないので、今後は精度向上を求めて実験を続ける。

本研究に当り、御協力を頂い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ーングループの皆様へ深く感謝します。

参 考 文 献

- 1) 加瀬 健：東北大学大学院工学研究科 修士論文 (1988).
- 2) A. Yamadera et al., CYRIC Annual Report (1987) 279.
- 3) W. R. Nelson, H. Hirayama and D. W. O. Rogers : SLAC-265 (1985).
- 4) 中村尚司：超ウラン元素を含む放射性廃棄物の光分解消滅のための基礎研究(3) PNC J4601 89-001.
- 5) S. S. Dietrich and B. L. Berman : "Atlas of Photoneutron Cross Sections Obtained with Monoenergetic Photons", UCRL=94820 (1986).

IV. 加 速 器 ・ 測 定 装 置

電子線検出用垂直ドリフトチェンバー (VDC) (II)

核理研, 教養部*

田所孝広・八田英之・谷内 努

高久圭二・松山日出人・野村昌弘

今野 収・玉江忠明・斎藤梯二郎

菅原真澄・須田利美*・宮瀬晴久*

§1. 序

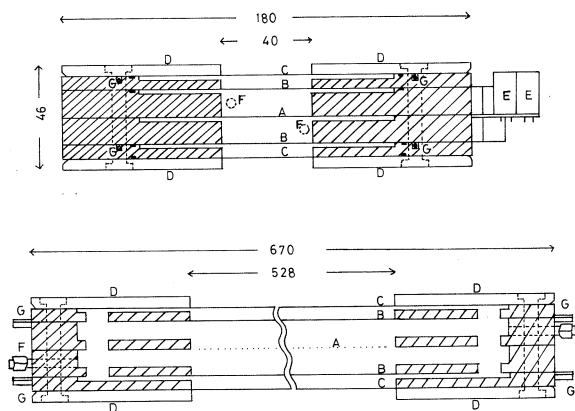
先に電子線検出用垂直ドリフトチェンバー (VDC) の試作品について報告したが¹⁾, その後大型 (80チャンネル) のVDCを製作し²⁾, LDM (=重収斂型電磁スペクトロメーター, $\rho = 1\text{ m}$, $\theta = 2\sqrt{2}\pi/3$) に装着してテストを行なったのでその結果を報告する。

大型VDCは, 大きさを除いて試作品とほぼ同じ構造を持ち, 信号検出にLecroy社の2735 DCチェンバーカードを用いた。

§2. 装置の構造及びLDM上の装置

第1図にVDCの構造を示す。本体の枠材はガラスエポキシ板, 補強枠は厚さ5mmのアルミニウムである。本体は, 信号面枠1面, 陰極面枠2面, スペーサー枠1面, 陰極面2面, ガス保持用面2面で形成している。

信号面は, パターンをエッチングした厚さ1.6mmのガラスエポキシプリント基板を厚さ12mmの信号面枠に埋め込んで製作してある。信号線は, $\phi = 20\ \mu\text{m}$ の金メッキタングステン線を6mm間隔で80本張り, 信号線と信号線の間には, 電場形成用として $\phi = 50\ \mu\text{m}$ の金メッキタングステン線を2mm間隔で2本ずつ計158本張ってある。また, 信号線の両



第1図 VDCの構造図。

A: 信号線及び電場形成用線

B: 陰極面 C: ガス保持用面

D: 補強枠 E: 2735DC用コネクタ

F: ガスコネクタ

G: H.V入力用コネクタ

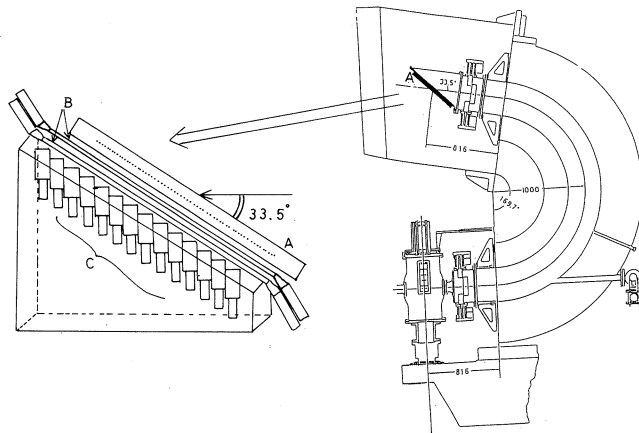
外側には、電場保持用として $\phi=50\mu\text{m}$ の金メッキタングステン線がそれぞれ8本と6本で計14本張っており、信号線以外はすべてアースにおとしてある。

陰極面には厚さ $25\mu\text{m}$ のアルペットを用い、ガス保持用面には厚さ $25\mu\text{m}$ のP. E. Tを用いてある。ガスコネクターにはニッタのC1N1/DT1/8を用い、ガス管には内径4mmのシリコンチューブを用いた。HV入力用コネクターにはマック8のJK-1を用いてある。

第2図にVDCをLDMに取り付けた様子を示す。図には、ドリフト時間を測定するための基準信号に用いるプラスチックシンチレーターと π 中間子識別のためのチェレンコフカウンターも示してある。

ガスは、 $\text{Ar} : \text{IsoC}_4\text{H}_{10} = 1 : 1$ の混合ガスを用い、流量はそれぞれ $20\text{cc}/\text{min}$ ずつ合計 $40\text{cc}/\text{min}$ である。

チェンバー本体のパラメーターを第1表に示しておく。



第2図 LDMにVDCを取り付けた様子。

A : VDC

B : プラスチックシンチレータ

C : チェレンコフカウンター

第1表 VDC・パラメーター

有効面積	40×482mm
信号線	20 μm Au-タングステン
電場形成用線	50 μm Au-タングステン
電場保持用線	50 μm Au-タングステン
信号線間隔	6mm
信号線の長さ	40mm
陰極面	25 μm アルペット
ガス使持用面	25 μm P. E. T
陰極面間隔	24mm

§3. 測定内容及びその結果

測定は、 ^{12}C 標的を用い、129MeV連続電子線を用いて次の項目について行なった。

(1) クラスターサイズ, (2) TDC スペクトル, (3) ADC スペクトル, (4) プラト特性, (5) 角度分布, (6) 弾性散乱スペクトル, (7) 位置分解能。

第3図以下に結果を示す。

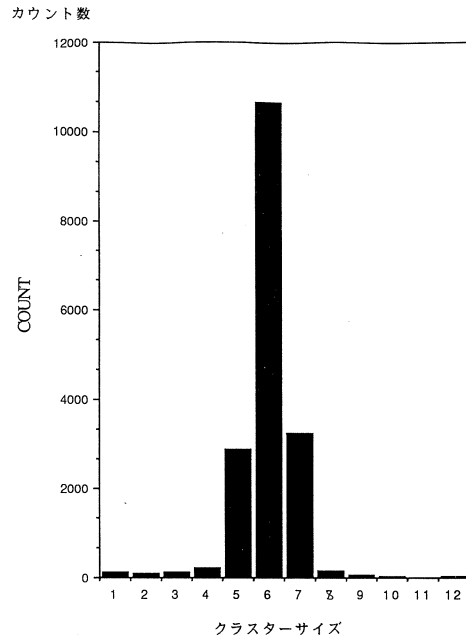
(1) クラスターサイズ (第3図)

クラスターサイズとは、1個の入射電子に対して何本の信号線が光ったかを表したものである。実験結果は、6本をピークに5~7本となっている。これは、今回の実験においてはVDCに対して電子が約 $33.5^\circ \pm 3^\circ$ の角度で入射してくること、信号線と陰極面の間隔が12mm、信号線と信号線との間隔が6mmであることから幾何学的に求まる値と一致している。5~7本以外のものはバックグラウンドと思われ、真の信号に対してバックグラウンドは約5%程度である。

(2) TDC スペクトル (第4図)

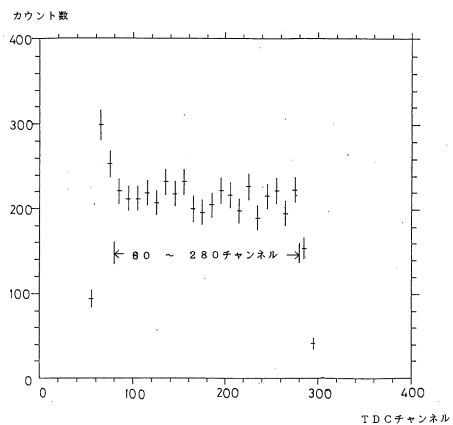
TDC スペクトルは、1本の信号線について、信号の基準となるプラスチックシンチレーターからの信号と信号線からの信号との時間差を多くの入射電子について測定したものである。

TDC スペクトルは、TDC チャンネル60~280チャンネルにおいて一定の値をとっている。これは、電子がドリフト空間内に一様に入射してくることを仮定す



第3図 クラスターサイズ。

横軸は、1個の入射電子に対して光った信号線の数。6本をピークに5~7本の所に集中している。



第4図 TDC スペクトル。

TDC チャンネルで80~280チャンネルにおいてカウント数が一定となっている。

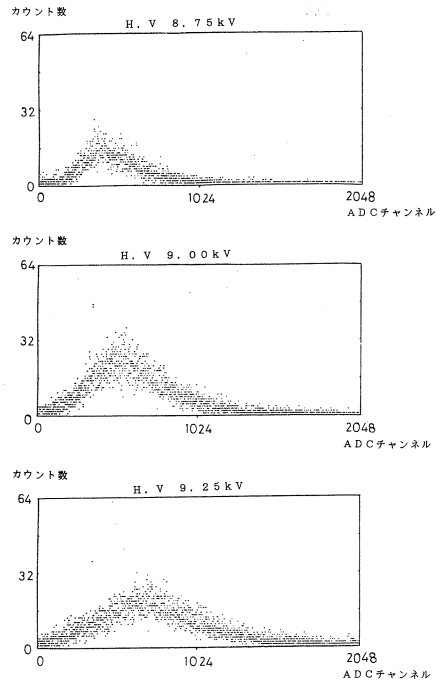
れば、ドリフト速度が一定となっていることを表している。このことを用いると、1次電離が生成した位置と、基準信号と信号線からの信号との時間差の間が1次の関係式で表され、時間差を測定することによって1次電離の場所が決定できる。

(3) ADCスペクトル (第5図)

ADCスペクトルは、信号線からの信号をチェンバーカードを通さずに、プリアンプ(富士通 MB43468)を通して測定した。

ゲートには、信号線自身の信号を用い、その幅は50nsecとした。

その結果、バックグラウンド及びノイズと電子が非常によく分かれていた。

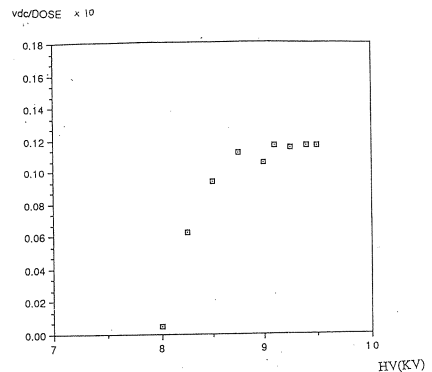


第5図 ADCスペクトル。
H. Vが、8.75kV, 9.00kV, 9.75 kVと上がるにつれて、ピークチャンネルも上がっていくことがわかる。また、ノイズはほとんど見られない。

(4) プラトー特性 (第6図)

プラトー特性の測定は、VDCにかける電圧を8.0~9.5kVまで変化させて行なった。

図は、VDCのクラスターサイズが5~7本であった事象数を標的に照射される電子の数で規格化したものである。結果は、8.5kV~9.5kVにおいてプラトーが非常に良くあらわれた。



第6図 プラトー特性。

横軸は、H. Vの値。縦軸はVDCのクラスターサイズが5~7本であったカウント数を標的に照射される電子の数で割った値を10倍したもの。プラトー特性がよくあらわれている。

(5) 入射電子の角度分布 (第7図)

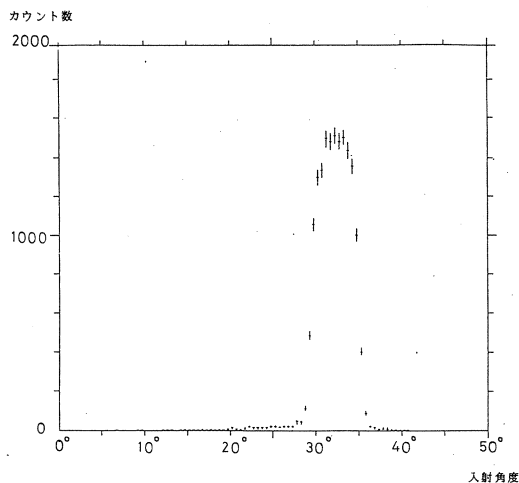
TDCチャンネルから求まる時間差には、ドリフト時間に回路系での時間の遅れなどを足した値となっているので、この時間の遅れをTDCスペクトルから求め、各信号線のTDCチャンネルの値からこの時間の遅れをひきドリフト時間を求めた。そして、求めたドリフト時間よりドリフト空間内での1次電離が生成した位置を求め、信号線が5~7本光った事象について最小2乗法を用いて入射電子角度分布を求めた。

その結果、角度分布は 31.75° を中心、に約 5.5° の広がりを持っており、この分布は標的とLDMのスリットの形状との関係を非常に良くあらわしている。しかし、入射電子の中心軌道における入射角が 33.5° であるのと比べると約 1.75° ずれており、原因としては、標的の位置のずれやVDCの位置のずれなどが考えられるが、断定できず問題として残っている。

(6) 弾性散乱スペクトル (第8図)

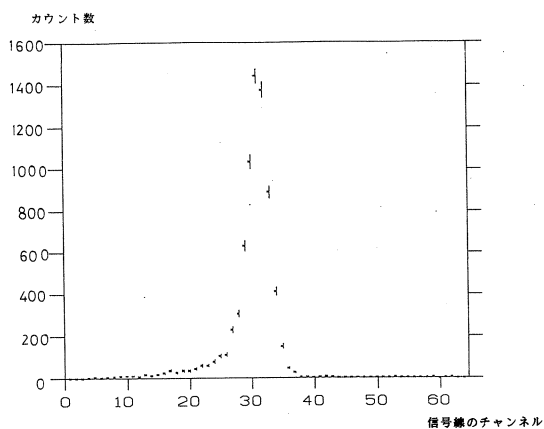
標的として ^{12}C を用い散乱角 30° における弾性散乱のスペクトルを第8図に示す。また、このときの平均ビーム強度は100nAである。

弾性散乱のピークが半値幅で5チャンネル(30mm)に広がっているが、これは、ビームのスポットの広がり及びエネルギーの広がりが原因であると思われる。



第7図 入射電子の角度分布。

角度分布は、 31.75° を中心、に約 5.5° の広がりを持っており、その形状はスリットの形をよく表している。



第8図 弾性散乱スペクトル。

標的として ^{12}C 、散乱角 30° 、平均ビーム強度100nA。

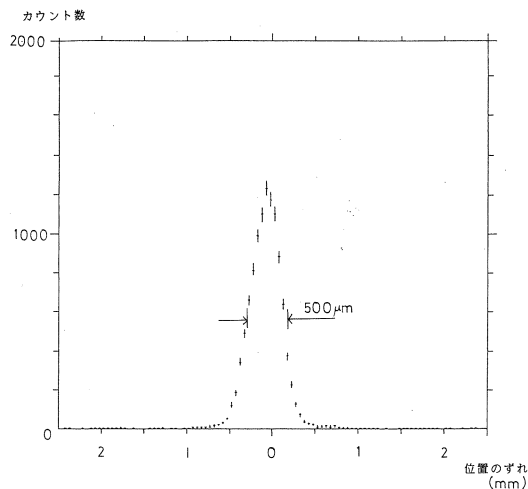
(7) 位置分解能 (第9図)

位置分解能は、次のようにして求めた。

まず、信号線が5～7本光った事象をとり出し最小2乗法を用いて直線を求めた。

次に、信号線と1次電離の生成した位置との距離と、等距離にある直線上の点を求めその点に対応する信号線面上の位置と信号線の位置とのずれの半値幅とした。

その結果、位置分解能は $500\ \mu\text{m}$ 以上であることがわかった。



第9図 位置分解能。

横軸は、直線で fit したときの位置のずれを表わしている。半値幅で約 $500\ \mu\text{m}$ であることがわかる。

§4. まとめ

最近 VDC を用いた (e, e', p) 同時計数実験を行なったが、VDC は正常に動作していることがわかり、今後すべての同時計数実験において MWPC から VDC へ移行できることが確かめられた。しかし、同時計数実験においては、ビーム強度 $\sim 100\text{nA}$ の連続ビームであるのに対し、 $10\ \mu\text{A}$ 程度のパルスビームを用いる (γ, π) 実験においてはまだ測定可能かどうかかわからない。今後、 $10\ \mu\text{A}$ 程度のパルスビームでの測定を行ないすべての実験グループが VDC へ移行できるようにしたい。また、角度のずれの原因を追求する必要がある。

参 考 文 献

- 1) 田所孝広他：核理研研究報告 22 (1989) 215.
- 2) 林栄精器製作.

パルスビーム・ストレッチャーRF系の研究

核理研

加藤龍好・小山田正幸・浦澤茂一

中里俊晴

§1. はじめに

本研究は、現在、東北大学理学部附属原子核理学研究施設で計画中の放射光・ストレッチャー共用リング計画¹⁾の準備研究として行なわれたものである。

ストレッチャー・リング²⁾でRF加速を行なう場合に問題となるのは、リング内の蓄積ビーム電流の急激な変化である。共用リングのストレッチャー・モードの場合、蓄積ビームの強度は入射時の $1.1\mu\text{sec}$ の間にゼロから200mAに増加し、次のビームの入射までの3.3msecの間に再びゼロとなる。この蓄積電流の変化はRF系の負荷変動となり、空洞内の加速電圧や加速位相を変化させるため、通常のRF系とはパラメータの最適化の過程が異なる。

本研究ではその最適化を位相空間におけるセパトリクスの変動を抑えることとし、その方法としてシャント・インピーダンス $0.6\text{M}\Omega$ の加速空洞2台を用い、RF入力結合器の結合係数を大きくとることを見いだした。これらの数値とビームのエネルギー幅、熱損失等の外的制約のもとに最適化を進めた結果、満足すべきパラメータを得た。

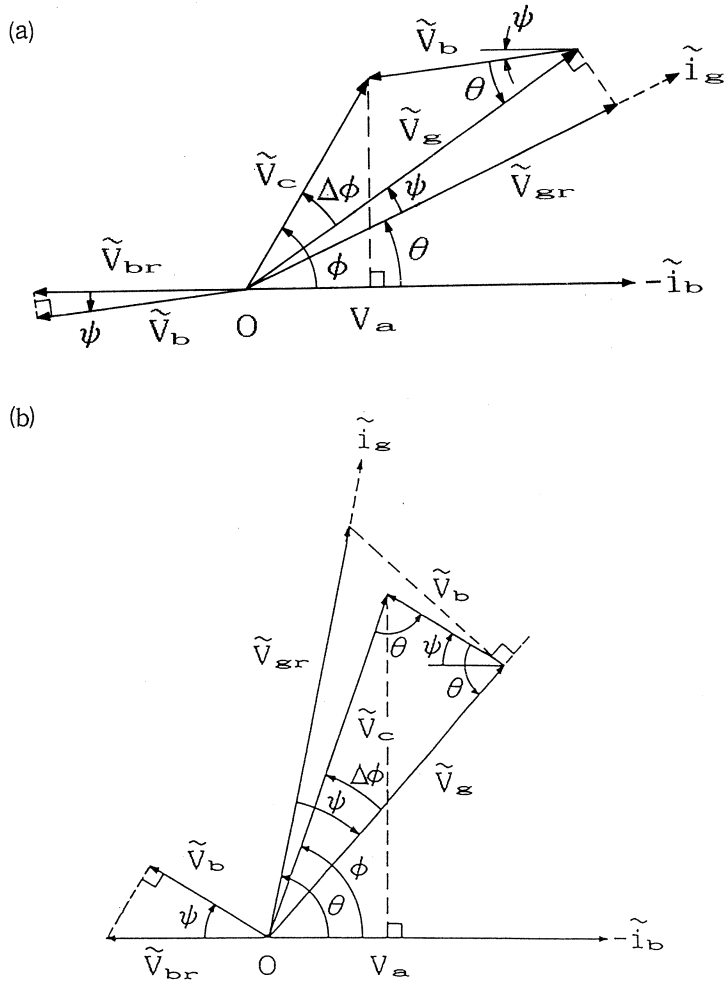
以下では、ビーム負荷の変動がRF系に与える影響について述べるとともに、パラメータ最適化の方法を検討し、RF電力変調などの手段を用いなくとも、ストレッチャー・リングでのRF加速が可能であることを示す。

§2. ビーム負荷変動

一般に、加速空洞内における複雑なビーム負荷の効果を視覚的に扱うために、第1図(a)に示すようなフェイザー図表³⁾が用いられる。ここで \sim (チルド)は、 \sim のついた量が複素量(フェイザー)であることを示している。例えば、

$$\tilde{V} = V \exp(j\omega t) \quad (2.1)$$

ただし、 $V = |\tilde{V}|$ である。このフェイザー図表で用いられている量はそれぞれ下記のように現わすことができる。



第1図(a) 加速空洞内での位相関係を表わすフェイザー図表。
 V_{gr} : 空洞に入力されるRFによって励振される電圧
 V_{br} : 空洞を通過するビームによって励振される電圧
 V_c : 空洞内の正味の加速電圧 V_a : 実際の電圧利得
 ψ : チューニング角 ϕ : シンクロトロン位相角
 θ : ビームの通過する位相と入力RFとの位相差
 (V_{gr} , V_{br} の r は on resonance の意味)。

(b) $V_c = V_s$ の条件を課した場合のフェイザー図表。
 このとき蓄積電流の変化に対し、空洞内電圧 V_c の変化が最小になる。これにより、位相空間でのセパトリティクス安定領域の大きさはほぼ一定となるが、負荷変動に伴い、シンクロトロン位相角 ϕ の変化 $\Delta\phi$ だけ、セパトリティクス全体が平行移動する。

$$V_{gr} = \frac{2\sqrt{\beta}}{1+\beta} \sqrt{R_a P_g} \quad (2.2)$$

$$V_{br} = \frac{1}{1+\beta} I_0 R_a \quad (2.3)$$

$$V_g = V_{gr} \cos \phi \quad (2.4)$$

$$V_v = V_{br} \cos \phi \quad (2.5)$$

ここで、

R_a : 加速空洞のシャント・インピーダンス

P_g : 加速空洞に入力される電力

I_0 : ビーム電流

β : RF 入力結合器の結合係数

ϕ : チューニング角

であり、 ϕ はシンクロトン位相角、 θ は加速空洞の基準面をビームのバンチが通過する位相と空洞に入力される電力によって加速空洞内に励振される RF 電磁波の頂点との位相差である。

負荷の変動幅はベクトル V_b の大きさに等しい。したがって V_b の V_g に対する比が小さくなるようにとれば、負荷変動の影響は少なくすることができる。ここで上式より、

$$V_b/V_g = (I_0/2\sqrt{P_g}) \sqrt{R_a/\beta} \quad (2.6)$$

となり、 V_b/V_g を小さくするためには、シャント・インピーダンス R_a を小さく、結合係数 β を大きく取ればよいことが明らかである。

問題を単純化するために、電圧利得 V_a を正味の空洞内電圧 V_c とシンクロトン位相角 ϕ とにわけて考える必要がある。

空洞内電圧 V_c を一周当たりの放射光損失 U_0 でわった値は超過電圧比と呼ばれ、円型加速器において加速ビームの位相空間での安定-不安定領域の境界（セパトトリクス）を与える。セパトトリクスは超過電圧比 q を用いて次のように現わすことができる。

$$(\Delta E/E_0)^2 = \frac{U_0}{\pi \alpha h E_0} \left\{ \tau - q \sin(\tau - \phi) + \sqrt{q^2 - 1} - 2 \cos^{-1}\left(\frac{1}{q}\right) \right\} \quad (2.7)$$

ここで、

$$q = eV_c/U_0 \quad (2.8)$$

ただし、

- E_0 : 中心軌道を通るビームのエネルギー
 ΔE : ビームのエネルギー幅
 α : ディラレーション係数
 h : ハーモニック数
 τ : 位相

である。

ここで電圧 V_c と位相角 ϕ の変動を位相空間内で考えると、電圧 V_c の変動は q の変化としてセパトリクスの大きさを変化させる。 q が大きくなるときには、位相安定領域の面積は増加し、 q が小さくなるときにはその面積は減少する。また、シンクロトン位相角 ϕ の変動はセパトリクス全体を位相軸方向に ϕ の変動分だけ平行移動させる。

したがって、負荷変動による位相安定領域の変化を抑えるためには、蓄積電流の変化する際に、空洞内電圧 V_c の変化が最小になること（すなわち $V_c = V_g$ ）が必要となる（第1図(b)）。この条件のもとで、シンクロトン位相角 ϕ の変化 $\Delta \phi$ が小さくなるよう他のパラメータを選択する。

§3. RF系パラメータ

3.1 加速RF周波数

ストレッチャー・モードでは、ビームの入射・取り出しが300ppsで繰り返される。このような運転条件に伴うリング周辺の放射化を防ぎ、かつ取り出しビーム電流を大きくするためには、入射・取り出しの効率を良くする必要がある。入射ライナックからの電子のバンチがリングのRFバケットにもれなく受け入れられるようにするには、リングの加速RF周波数を入射ライナックのそれと一致させることが必要となる。そのため、ここでは加速RF周波数を2856MHzとした。

3.2 シャント・インピーダンス

前節で述べたように、負荷変動の影響を少なくするためにはシャント・インピーダンス R_a はより小さいほうがよい。しかし、この選択に関しては空洞設計の側から次のような制約がある。

シャント・インピーダンス R_a を低くする方法としては、 R_a/Q を小さくすること、 Q_0 値を下げるのが考えられる。共用リングは、加速RF周波数がストレッチャー・モードのその1/6である蓄積リング・モードで使用されることもあり、このモード時にはストレッチャー用の加速空洞は共振周波数からデチューンされなければならない。しかし、負荷変動を抑える

ために結合係数 β を大きくとる必要性から、負荷 Q 値は Q_0 値よりも 1 桁程度低くなると考えられる。それゆえ Q_0 値を下げてシャント・インピーダンスを低くするとデチューンされにくくなる。したがって Q_0 値は可能な限り高くし、他の方法でシャント・インピーダンスを低く抑える必要がある。具体的な方法は空洞の加速ギャップを加速 RF の波長の半分よりも長めにとり、通過時間因子を小さくすることで、低いシャント・インピーダンスを実現することが考えられる。ただし通過時間因子を小さくし過ぎると空洞内の表面電場の最大値 E_{peak} とビームが空洞を通過するときの加速電場 E_{acc} との比 $E_{\text{peak}}/E_{\text{acc}}$ が大きくなり、局所的な発熱を増加させ冷却上好ましくない。

以上のことをふまえ、計算機コードを用いて加速空洞の設計を試みた結果、RF 系全体のシャント・インピーダンスは $1.2\text{M}\Omega$ が適当であることがわかった⁴⁾。実際には加速空洞の冷却を容易にするため 2 台の加速空洞を用い、加速空洞 1 台当たりのシャント・インピーダンスを $0.6\text{M}\Omega$ とする。

3.3 加速空洞への入力電力

現在入手可能な S バンド、CW のクライストロンの最大電力は 50kW である⁵⁾ が、導波管や HOM による損失を考えると加速空洞へ入力される実効電力は 30kW 程度となる。したがって、加速空洞への入力電力 P_g の選択範囲は 30kW 以下となる。

3.4 超過電圧比

超過電圧比 q は (2.8) 式で定義される。この q の選択範囲は以下に述べるようにふたつの観点からの制約を受ける。ひとつは入射ライナックからの電子ビームの位相空間上での広がりであり、他方は加速空洞の温度安定性の問題である。

入射ライナックからの電子ビームは、ECS⁶⁾ 通過後、ビームの中心位相に対し $\pm 50^\circ$ の点で $\Delta E/E_0 = \pm 0.1\%$ に広がる¹⁾。このビームをもれなく受け入れるためには (2.7) 式より q は 2.6 以上でなければならない。

また空洞内壁での電力損失を P_c とすると、

$$P_c = V_c^2 / R_a \quad (3.1)$$

となる。S バンド、CW、定在波型の加速空洞で温度の安定化が可能な P_c の上限は空洞 1 台当たり 2kW とされている⁷⁾。加速空洞 2 台を用いて RF 加速を行い、1 台当たりのシャント・インピーダンスを $R_a = 0.6\text{M}\Omega$ とし、放射光損失 U_0 を $22.1\text{keV}/\text{turn}$ とすると、(2.7)、(3.1) 式より超過電圧比 q の上限は 3.1 となる。したがって、

$$q = 2.6 \sim 3.1$$

が q の選択範囲となる。負荷変動により RF バケット側の位相が変化することを考慮すると、 q の値はこの範囲内でできるだけ大きいほうが望ましい。ここでは q を 3.0 とした。

3.5 シンクロトロン位相角 ϕ の変化

第1図(b)の V_c , V_b , V_g の関係から,

$$V_c^2 = V_g^2 + V_b^2 - 2 V_g V_b \cos \theta \quad (3.2)$$

ここで $V_c = V_g$ と (2.2) ~ (2.4) を用いると,

$$\cos \theta = \frac{I_0 \sqrt{R_a}}{4 \sqrt{\beta P_g}} \quad (3.3)$$

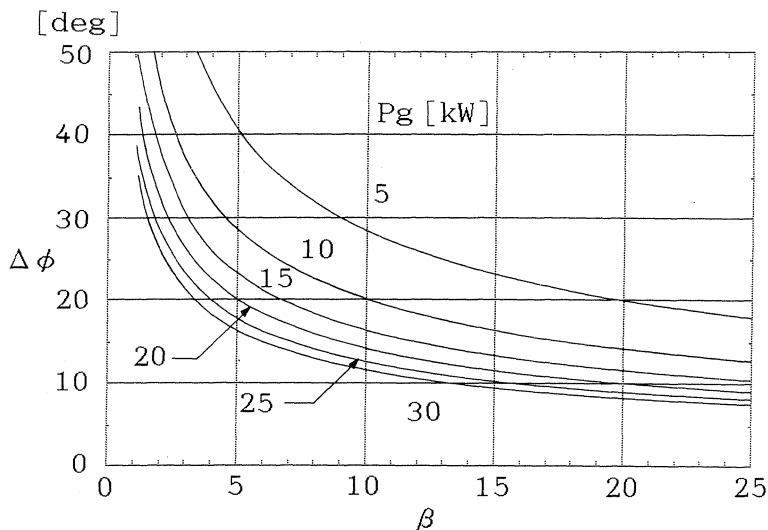
他方, $\Delta \phi + 2 \theta = \pi$ より,

$$\cos \theta = \sin (\Delta \phi / 2) \quad (3.4)$$

(3.3), (3.4) より, シンクロトロン位相角 ϕ の変化 $\Delta \phi$ は,

$$\Delta \phi = 2 \sin^{-1} \left\{ \frac{I_0 \sqrt{R_a}}{4 \sqrt{\beta P_g}} \right\} \quad (3.5)$$

となる。この $\Delta \phi$ を結合係数 β と加速空洞への入力電力 P_g の関数として示したものが第2図である。



第2図 $V_c = V_g$ の条件下でのシンクロトロン位相角 ϕ の変化 $\Delta \phi$ 。

$\Delta \phi$ (縦軸, 単位は deg.) を RF 入力結合器の結合係数 β (横軸) と加速空洞への入力電力 P_g (単位は kW) の関数として示してある。シャント・インピーダンス R_a は $1.2 \text{ M}\Omega$ 。蓄積電流の変化は 200 mA 。

3.6 チューニング角

第1図(b)よりチューニング角 ϕ は,

$$\phi = \phi + \theta - \pi \quad (3.6)$$

となる。ここでシンクロトロン位相角 ϕ は超過電圧比 q と次のような関係にある。

$$\cos \phi = 1/q \quad (3.7)$$

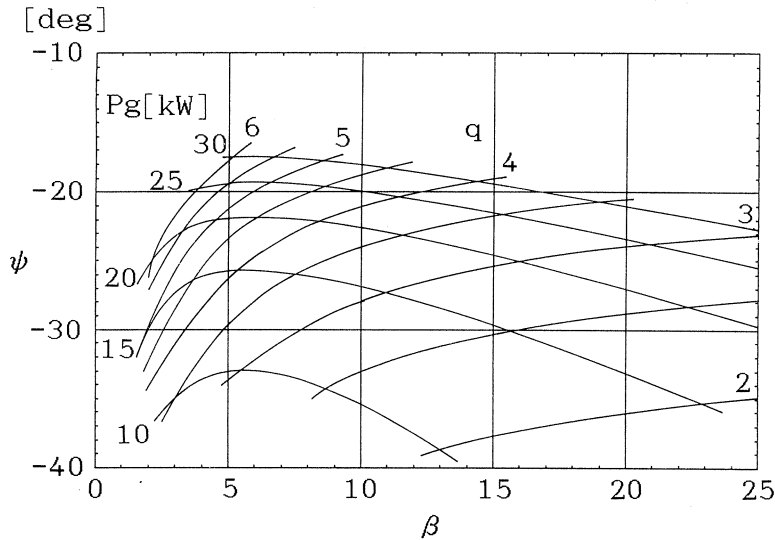
(3.6) 式に (3.4), (3.7) 式を用いて,

$$\phi = \cos^{-1} \left(\frac{1}{q} \right) + \cos^{-1} \left\{ \frac{I_0 \sqrt{R_a}}{4 \sqrt{\beta P_g}} \right\} - \pi \quad (3.8)$$

となる。他方, $V_c = V_g$ の条件に $V_c = qV_a$ と (2.2), (2.4) 式を用いると,

$$\phi = -\cos^{-1} \left\{ \frac{(1 + \beta) q V_a}{2 \sqrt{\beta R_a P_g}} \right\} \quad (3.9)$$

ここで, V_a はリング1周当たりの電圧利得である。第3図に (3.8), (3.9) 式を同時に満た



第3図 $V_c = V_g$ の条件下でのチューニング角 ϕ 。

この条件のもとでは, RF入力結合器の結合係数 β , 加速空洞への入力電力 P_g , 超過電圧比 q , チューニング角 ϕ のうち独立な変数は2個だけである。ここでは β を横軸にとり, q と P_g (単位は kW) を固定したときのチューニング角 ϕ (単位は deg.) を縦軸に示してある。ただし, ビームのエネルギー幅, 熱損失等の外的制約により, これらのうち実際に選択可能な ϕ は, q の値が 2.6~3.1 の範囲内のものである。シャント・インピーダンス R_a は 1.2 M Ω , 蓄積ビーム電流は 200 mA であり, 電圧利得 V_a が共用リング (ストレッチャー・モード) での1周当たりの放射光損失 22.1 keV に等しいとした。

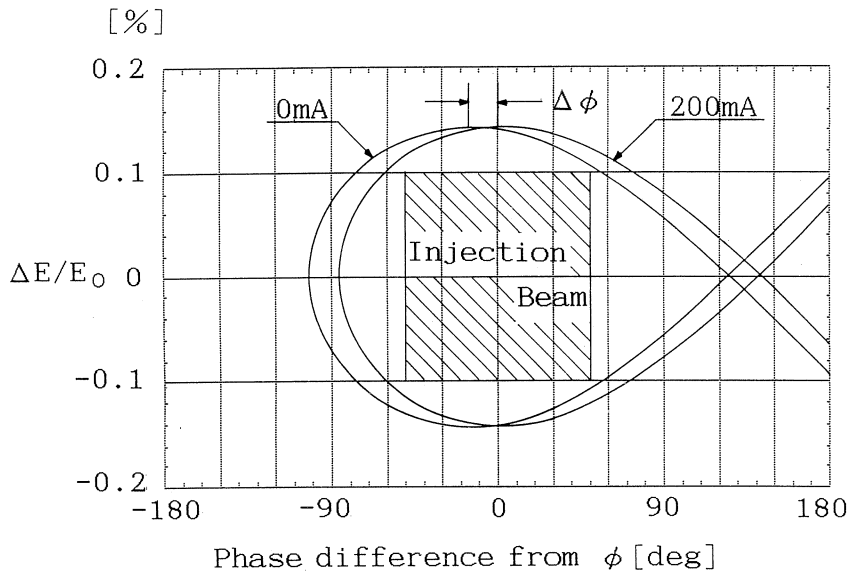
す ϕ を示す。これらのうち、 q の値が 2.6~3.1 の範囲にあるものが、実際に選択可能なチューニング角 ϕ となる。

以上の RF 系パラメータについての検討から、第 1 表に示されるようなパラメータ・セットの何れかを選択することが考えられる。シンクロトロン位相角 ϕ の変化を小さくするという点

第 1 表 共用リング（ストレッチャー・モード）の RF 系パラメータと最適運転条件。

名 称	記 号	数 値		
ビームエネルギー	E_0	1.0 GeV		
ビーム電流	I_0	200 mA		
RF 加速周波数	f_{RF}	2856 MHz		
ハーモニック数	h	1656		
シャント・インピーダンス	R_a	1.2 M Ω		
超過電圧比	q	3.0		
加速電圧	V_c	66.3 kV		
量子寿命	τ_q	0.5 sec		
シンクロトロン位相角	ϕ	70.5 °		
シンクロトロン振動周波数	f_s	18.3 kHz		
クライストロン最大出力	P_{kly}	50 kW		
空洞損失電力	P_c	3.7 kW		
シンクロトロン放射損失	U_0	22.1 keV		
空洞数	—	2		
最適運転条件	記 号	(A)	(B)	(C)
RF 入力結合器の結合係数	β	11	16	21
加速空洞 2 台への入力電力	P_g	15 kW	20 kW	25 kW
チューニング角	ϕ	-27 °	-25 °	-24 °
セパトリクスの変動	$\Delta \phi$	16 °	12 °	8 °

では (C) が望ましいが、クライストロンの出力に余裕を持たせることや RF 入力結合器による加速空洞内の電磁場の歪の影響等を考慮すると (A) が最適なパラメータということになる。このパラメータを選択したとき、クライストロンからの電力一定のもとでゼロから 200mA の電流変動に対して、空洞内の電圧 V_c の変動は無視でき、シンクロトロン位相角 ϕ の変化は 16° と小さい。また位相空間におけるセパトリクスの変動からみて、蓄積ビームのエネルギー振動幅は負荷変動がない場合のそれとほぼ同程度である（第 4 図）。



第4図 蓄積電流の変動によるセパトリクスの変化。

電流変動 200mA に対して、最適化されたパラメータ ($\phi = -27^\circ$, $\beta = 11$, $P_g = 15\text{kW}$, $R_a = 1.2\text{M}\Omega$, $q = 3$) を用いた場合。加速 RF 周波数は 2856MHz で、ビームのエネルギーは 1.0GeV。横軸は電流 200mA のときのシンクロトロン位相角 ϕ からの位相のずれ (単位は deg.) で、縦軸はエネルギー偏差 $\Delta E/E_0$ (単位は%)。斜線部は ECS 通過後のビームの位相空間上での広がり。

§4. まとめ

前述のようにビーム負荷自体が小さくなるように、シャント・インピーダンス R_a を小さく、結合係数 β を大きく取る方法と、負荷変動の前後での加速空洞内電圧 V_c の変化を最小にする方法の組合せにより、ビーム負荷の変動が RF 系に与える影響を小さく抑えることができるパラメータを得ることができた。この方法はクライストロンの出力の変調をせず、パラメータの選び方だけで実現できるという利点をもつ。

今日、世界的にみて高エネルギーの連続電子線を得るための電子加速器が多数計画建設されている。パルスビーム・ストレッチャーを用いて高エネルギーの連続電子線を得るためには、ストレッチャー・リングへの RF 系の導入が必要不可欠である。パラメータの最適化により RF 加速の可能性を示す本方法は、ストレッチャー RF 加速を早急に実現し得る有力な手段であると言えよう。

参 考 文 献

- 1) 東北大学「東北大学電子ライナック 放射光・ストレッチャー共用リング計画」(1989).
- 2) T. Tamae, M. Sugawara, K. 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. Instr. and Meth. A **264** (1988) 173.
- 3) P. B. Wilson : *High Energy Electron Linacs ; Applications to Storage Rings RF Systems and Linear Colliders*, SLAC-PUB-2884, (Feb. 1982).
- 4) 加藤龍好 : 修士論文 東北大学理学部 平成元年度.
- 5) Thomson-CSF, data sheet (ca2110-101) TH2110.
- 6) M. Sugawara, T. Ichinohe, S. Urasawa, M. Oyamada, T. Kubota, A. Kurihara, O. Konno, Y. Shibasaki, T. Terasawa, K. Nakahara, S. Nemoto, M. Muto, K. Shoda and Y. Torizuka : Nucl. Instr. and Meth. **153** (1978) 343.
- 7) H. S. Caplan and T. P. Dielschneider : *The RF System for EROS*, EROS/TM/PSR/RF/04, (Sep. 23 1985).

コヒーレント放射光のスペクトル

科研, 工学部応用物理*, 核理研**

伊師君弘・柴田行男・高橋俊晴・三代秀昭
蔦谷 勉・大坂俊明・池沢幹彦・近藤泰洋*
小山田正幸**・新村信雄**・浦澤茂一**
中里俊晴**・加藤龍好**

§1. 序

通常のシンクロトン放射光は、X線や真空紫外光の短波長のみならず、遠赤外線領域においても、分光研究で有用であることが現在よく知られている。放射光はその高輝度性により、測定光束を小さく絞れるので、特に固体の分光研究には、最適の光源である。わが国においては、分子科学研究所のUVSOR施設に、遠赤外分光研究用のポートが設置され、広く共同利用に供されている¹⁾。しかしながら、長波長領域におけるスペクトル強度は、波長の4/3乗で減少するので、測定できる波長に限界があり、例えば、分子研の装置では約3mm近辺にある。このため、波長1mmより長波長側では、更に強力な光源が望まれている。

我々は先に、原子核理学研究施設のライナックを用いて、短いバンチの加速電子から、コヒーレントなシンクロトン放射光が発せられることを確認して、報告した^{2,3)}。前回までの実験結果は以下のように要約される。

- 1) 電子ライナックからの放射光は、可視域では通常のインコヒーレントな放射光強度に等しいが、波長1mm近辺では桁違いに増強されている。通常の放射光に対するその強度比はバンチ内電子数 (10^6) の程度である。
- 2) 可視、近赤外領域では、電子ライナックからの放射光強度はビーム電流に比例しているが、サブミリ波、ミリ波領域ではビーム電流の二乗に比例している。
- 3) バンチ長を約2mmから15mmに長くしたとき、波長1mm近辺でのコヒーレント放射光の強度は約3桁減少する。
- 4) コヒーレント放射光は電子軌道面に強く偏光している。

即ち、ライナックからの電子線によるコヒーレント放射光は、通常の放射光の弱くなるミリ波領域に桁違いに強い強度を持ち、しかも高輝度性を有することが明らかにされた。従って、長波長領域の極めて優れた光源となり得る。しかしながら、我々の前回までの実験では、フィ

ルターの不備もあり、広い波長範囲にわたる強度スペクトルを測定することができなかった。そこで、今回はフィルターに留意して分光計を製作し、サブミリ波からミリ波領域におけるコヒーレント放射光のスペクトル強度の測定に重点を置いて実験を行なった。スペクトル分布は、以下に述べるような理由から、コヒーレント放射光の放射メカニズムを究明する上でも、極めて重要な情報を提供する。

電磁気学的な考察によれば、コヒーレント放射光のスペクトル強度は、バンチ内電子の分布関数のフーリエ変換によって与えられる³⁻⁶⁾。即ち、バンチ内の電子間の相互作用が無視し得る時、軌道の接線方向で測定した時のスペクトル強度 $I(\omega)$ はバンチ内の電子の空間的な分布関数 $S(r)$ によって、次のように与えられる。

$$I(\omega) = I_{\text{incoh}}(\omega) \{1 + (N-1) f(\omega)\} \quad (1)$$

但しここで、 ω は角振動数、 $I_{\text{incoh}}(\omega)$ は通常の放射光の強度、 N は1バンチ内の電子数で、形状因子 $f(\omega)$ は、電子の軌道方向に沿ったバンチ内電子の分布関数 $S(r)$ についてのフーリエ積分として、次のように書かれる。

$$f(\omega) = \left| \int \exp(i\omega r/c) \cdot S(r) dr \right|^2 \quad (2)$$

一方、Michel⁷⁾によって提案された、バンチ内にコヒーレントな領域の存在を仮定する放射光発射のメカニズムによれば、形状因子 $f(\omega)$ はバンチ長以上の波長では1であり、短波長側では、波長の3乗に比例して減少する。

コヒーレント放射光のスペクトルが、相互作用の無い電子によって電磁気学的に決定されているものか、Michelのメカニズムに依るのかは、未だ最終的な決着の付いていない問題である。本研究ではまず、第一の課題として、スペクトルの測定を行い、いずれのメカニズムによるかを、実験的に決定しなければならない。更に、若し前者のメカニズムによるのであれば、第二の課題として、形状因子 $f(\omega)$ を実験的に求め、(2)式に従って、バンチ内の電子の分布関数 $S(r)$ を決定することが可能であるか否かを検討する。

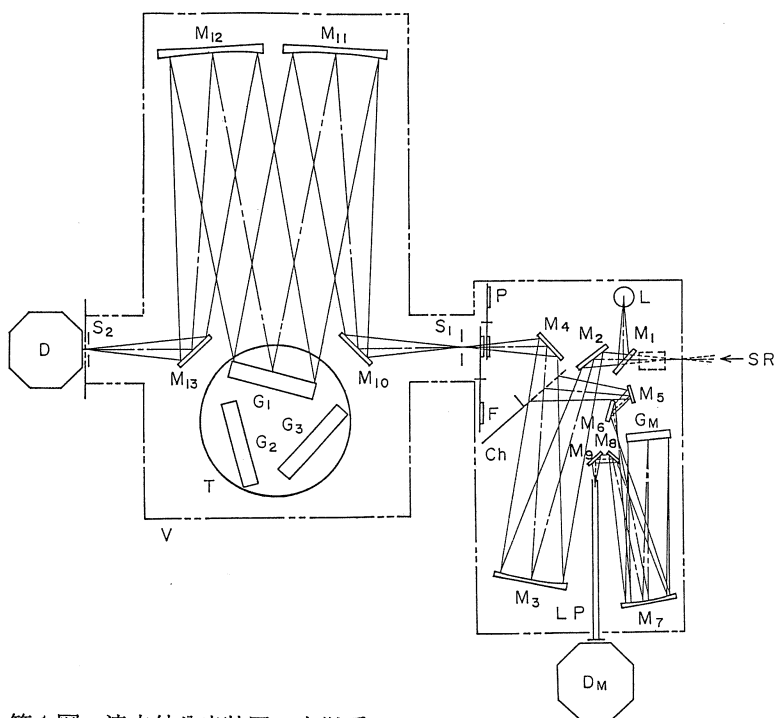
§2. 実験方法

2.1 分光装置の構成

前回の実験において、我々は市販の回折格子型の遠赤外分光装置を用いて、コヒーレント放射光のスペクトルの計測を試みたが、十分なスペクトルは得られなかった³⁾。その原因は、既存の分光装置は、短波長に強い成分を持つ高圧水銀灯を光源として用いているため、回折格子の高次光の除去は万全の対策がとられているが、コヒーレント放射光は、高圧水銀灯からの輻

射とは対照的に、長波長側に強いスペクトルの分布があるからである。即ち、短波長側の高次の回折光の除去と共に、長波長側の強い迷光を除去しなければならないことが判明したのである。そこで、今回我々は、光強度モニター、長波長カットのフィルターを有する回折格子型遠赤外分光装置を新たに製作した。その測定波長範囲は20~4000 μm で、水蒸気の影響を除くため光学系全体を真空容器に納めた。

製作した分光装置の光学系は、第1図に示されている。放射光が分光計に導入されるまでの実験配置は前回と同じである^{2,3)}。70mradで集光された放射光(SR)は、水晶の窓を通して前置室に導かれ、10Hzのチョッパー(Ch)を経て、フィルター(F)を通過する。偏光測定をする場合には、更に偏光器(P)が挿入された。チョッパーで反射された放射光は、強度モニターのための検出器(D_M)に導かれる。また、参照光源として、高圧水銀灯(L)が使えるようにしてある。

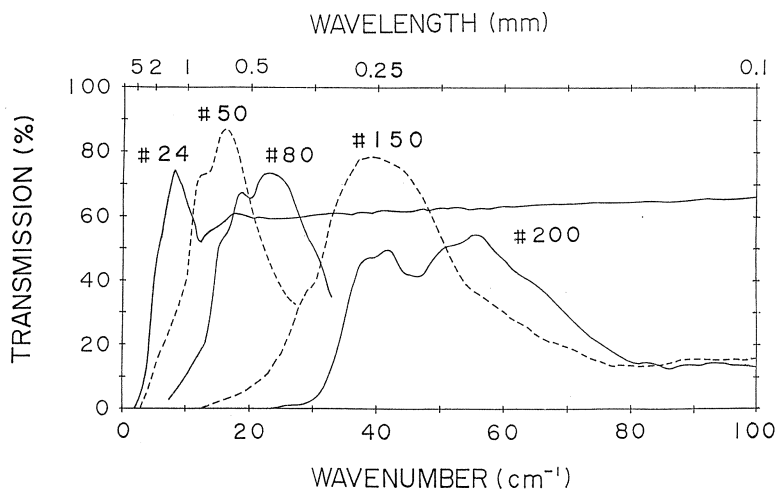


第1図 遠赤外分光装置の光学系。

M₁, M₂, M₅, M₆, M₈, M₉, M₁₀, M₁₃: 平面鏡, M₃, M₇, M₁₁, M₁₂: 凹面鏡, M₄: 粗面鏡(#400), L: 高圧水銀灯, Ch: チョッパーミラー, P: 偏光器/シャッター, F: フィルター, S₁: 入射スリット, S₂: 出射スリット, G₁, G₂, G₃: 回折格子, G_M: モニター用回折格子, LP: ライトパイプ, T: ターンテーブル, D: 信号検出器, D_M: モニター用検出器, V: 真空容器, SR: 放射光。

分光計は、平面回折格子への入射光間の角度が22度の、ツェルニー・ターナー型である。回折格子 (G_1 , G_2 , G_3) は、測定波長領域に従って、5つの異なった格子定数のものを用いた。分光計中のターンテーブル上には3個の回折格子がセットでき、その内の1個を選択して使用する。波長走査はパルスモーターで行なう。回折格子の有効面積は $154 \times 128 \text{mm}^2$ で、溝数は5, 2.5, 1.25, 0.625, 0.3125本/mmであり、5個の回折格子により波長範囲0.1から4 mm迄を分光した。検出器 (D) としては、液体ヘリウムによって冷却したシリコン・ボロメーターを用いた。このボロメーターには、測定波長領域に従った3種類のローパス・フィルターが備わっている。

透過フィルター (F) は、粉末フィルター、結晶水晶及び金属メッシュを適当に組合せて用いた。金属メッシュは、その透過率が第2図に示されているが、長波長側をカットするための



第2図 金属メッシュの透過率。
数値はメッシュの番数を示す。

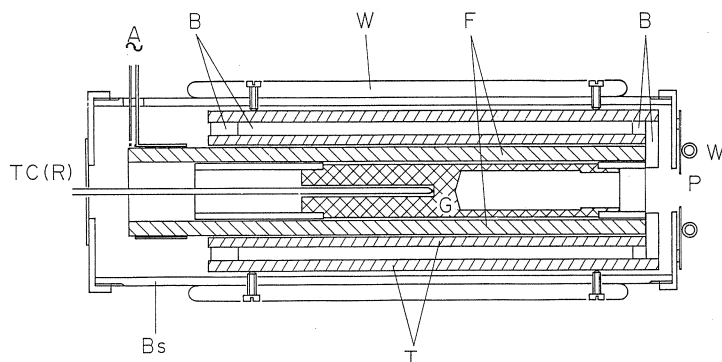
もので、コヒーレント放射光の測定には、特に必要なものである。実験で用いた測定波長範囲に対する回折格子と各種フィルターの組合せの一例を第1表に示す。透過フィルター、偏光器、回折格子の交換及び波長送りは、遠隔操作が可能である。分光計の制御及びデータの収集と整理は、パーソナル・コンピューター (NEC製 PC-9801) を使って行なった。

2.2 放射光の強度較正

放射光の測定と同じ配置の光学系を構成し、放射光の発光点に黒体輻射炉を置き、その強度を検出することによって分光装置の感度の較正を行なった。黒体輻射炉はその構造を第3図に示すように、シリコニット発熱体 (F) 中に格納されたグラファイト (G) の空洞であり、二

第1表 測定波長範囲における回折格子と各種フィルターの組合せ。

波長範囲 (μm)	回折格子 (本/mm)	フ ィ ル タ ー			
		ローパスフィルター	水 晶	金属メッシュ (番号)	検出器フィルター カットオフ波長 (μm)
100-125	5	NaCl+KCl+NaF+Cu ₂ O+ポリエチレン	結晶水晶	# 40	100
125-167	5	KBr+BaF ₂ +Cu ₂ O+ポリエチレン	結晶水晶	# 40	100
167-222	5	CaCO ₃ +KBr+BaF ₂ +Cu ₂ O+ポリエチレン	結晶水晶	# 40	100
222-333	2.5	CaCO ₃ +KBr+BaF ₂ +Cu ₂ O+ポリエチレン +TiCl+TII+NaF+ポリエチレン	結晶水晶	# 200	100
333-500	1.25	300 μm (カットオフ波長)	結晶水晶	# 80	286
500-1000	1.25	500 μm (カットオフ波長)	結晶水晶	# 50	286
1000-2000	0.625	1000 μm (カットオフ波長)	結晶水晶	# 24	286



第3図 黒体輻射炉。

F: シリコニット発熱体, G: グラファイト, T: 炉心管, B: 断熱材, 耐火ボード, Bs: 真鍮パイプ, TC: 熱電対 (白金-白金ロジウム), P: 視野絞り (口径12mm), W: 水冷用銅パイプ, A: 電源ケーブル。

重の炉心管 (T) 及び断熱材 (B) で保護され、全体は水冷された真鍮のパイプ (Bs) に納められている。黒体炉の有効口径は12mmであり、周囲からの熱放射が分光系に入射するのを抑制するために絞り (P) は水冷してある。黒体炉の温度は、白金-白金ロジウム熱電対 (TC) を用いて測定し、分光装置の感度較正は、黒体炉の温度1200°Cで行なった。波長1mm付近では黒体放射の強度が弱いため、測定回数を重ねてS/N比の向上を図った。較正の精度に由来する、放射光強度の測定値の絶対値の誤差は、波長1mmで因子1.5以内である。較正時の光路の真空圧力は、0.3mmHg以下であった。

2.3 ライナックからの放射光

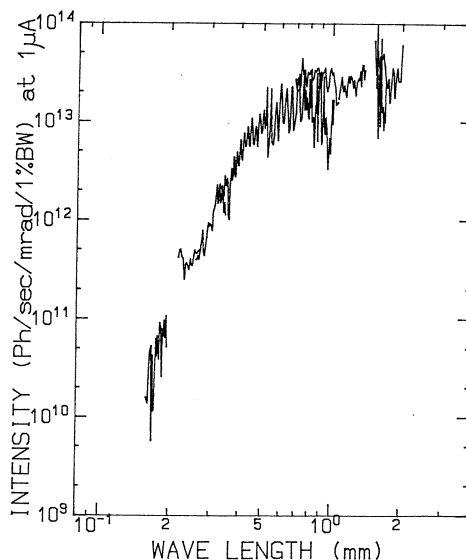
150MeVに加速された相対論的電子は、静磁場により、曲率半径2.44mで偏向された。ライナックの運転条件は次の通りである：電子ビームの繰り返し周期は300PPS、そのエネルギー

幅は0.2%, 各パルスの幅は $2 \mu\text{s}$ で, 更に各パルスには $1 / (2856 \cdot 10^6)$ 秒毎に1個のバンチが含まれる。ライナックの加速の条件から, 1つのバンチ長は約2 mmと見積もられている。電子ビームの平均電流が $1 \mu\text{A}$ の時, 1バンチ内に含まれる電子数は, 3.6×10^6 と見積もられた。

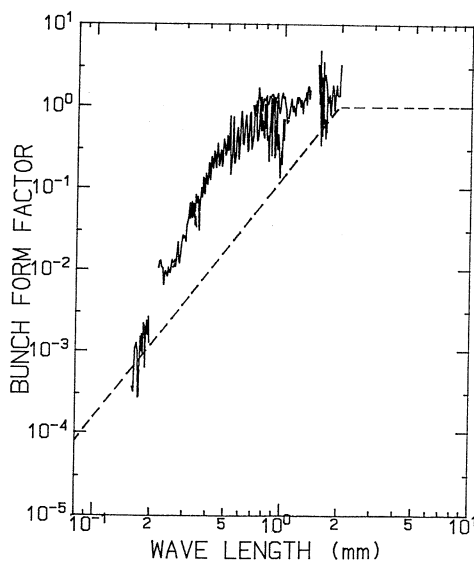
§3. 測定結果と検討

3.1 スペクトルと形状因子

第4図に黒体放射で較正されたコヒーレント放射光の測定スペクトルを示す。強度は波長約1 mm 近辺より短波長側で減少している。これから実験条件を考慮して算出した形状因子 $f(\omega)$ を第5図に示す。同図には, バンチ長2 mm に対する Michel のメカニズムによる形状因子が破線で示されている。第5図の形状因子は, 短波長側での減少の様子が極めて急激である。Michel のメカニズムによれば, 短波長側では, バンチ長に関係なく, 波長の3乗に比例して減少する筈である。しかし, 実験結果は波長範囲0.15~0.5mm で波長の約6乗に比例して減少しており, 両者の波長依存性は全く異なる。このことから, Michel のメカニズムは, 今の場合, 成り立っていない事が結論される。また, スペクトルは, バンチ内の電子間の相互作用が無視し得る場合の, 電磁気学的なメカニズムによって決定されるものとして良いと考えられる。



第4図 測定された放射光スペクトル。
得られた測定結果はコヒーレント放射光のビーム電流依存性に基づき, $1 \mu\text{A}$ のビーム電流に対応する強度に変換してある。



第5図 測定されたスペクトルから得られた形状因子。
破線はバンチ長2 mm に対する Michel の理論を示す。

3.2 バンチ形状

バンチ形状，即ち，バンチ内の電子の分布は，形状因子と(2)式の関係がある。即ち，バンチ内の電子の分布関数は実験的に求めた形状因子の逆フーリエ変換によって求められる。その結果を第6図に示す。図から明らかなように軌道方向に沿った電子の拡がりの半値幅（バンチ長）は約0.3mmである。この幅は，ライナックの加速条件から推定された約2mmのバンチ長に較べると，非常に短いものである。

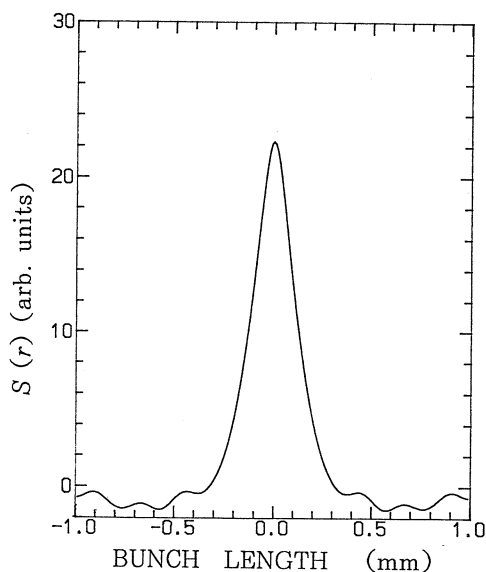
実験によって得られたスペクトルの曲線には，ノイズに起因すると思われるかなりの凹凸が見られる。その上，絶対強度については，

分光計の感度校正に由来する，約50%の誤差が含まれている。これらを考慮すると，バンチの形状については，最終的な結論が得られたものとするのは尚早であり，更に精度良い測定を繰り返すべきものと思われる。

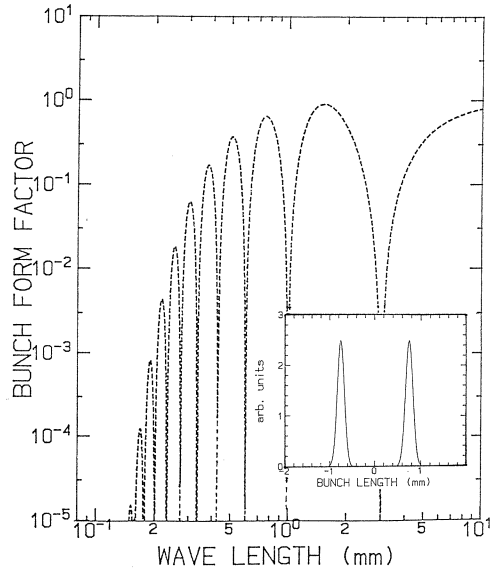
バンチの形状について尚，少なくとも，他の二つの可能性が残されている。一つは，(A)バンチ両端にスパイク状の分布を持つ場合，例えば，バンチが約0.15mm幅，中心間距離1.5mmで等しい強度を持つ2つのガウス型ピーク（第7図の挿入図）で構成されている場合であり，もう一つは，(B)バンチ内に1つのスパイク状の分布を持つ場合，例えば，約2mmのバンチ内に，突出した0.16mm幅のスパイク状の構造がある場合（第8図の挿入図）である。このような分布を仮定し，両者の場合についてのモデル計算の例を，第7，8図にそれぞれ示す。第6図のようなバンチ形状であるか，上記(A)，(B)のようなものであるかは，波長1mm近辺での形状因子の測定値の精度が，現在より更に向上すれば，実験的に決定することが出来るので，今後，それを決めるような研究が必要である。

§4. 結 論

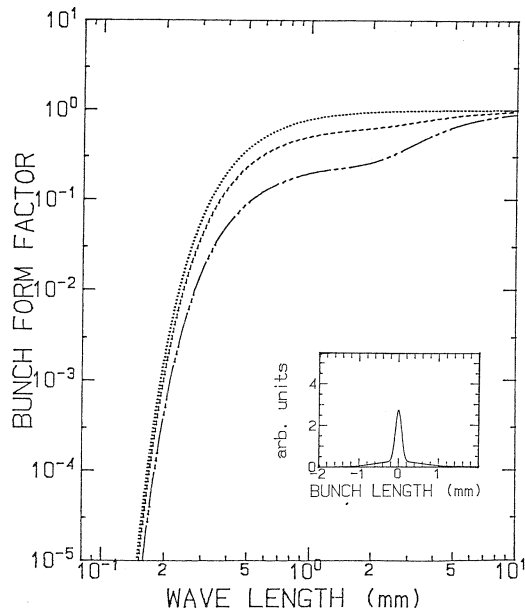
ライナックからの電子を用いて，コヒーレント放射光を発生させ，そのスペクトルを測定した。スペクトルは，波長1mm近辺より短波長側で急速に減少する。その波長依存性は，



第6図 実験から得られた形状因子から求めたバンチ内電子の分布関数。



第7図 バンチ内の電子分布を仮定して計算した形状因子。
中心間距離が1.5mmで等しい強度を持つ2個の0.15mm幅のガウス型ピークがある場合。挿入図はバンチの電子分布を示す。



第8図 バンチ内の電子分布を仮定して計算した形状因子。
幅2mmのガウス分布の中央に幅0.16mmの鋭いガウス型スパイクがあり、鋭いスパイク中に電子が100% (点線), 80% (破線), 50% (2点鎖線) 存在する場合。挿入図は鋭いスパイク中に電子が50%存在する場合のバンチ内電子分布を示す。

Michel の提唱したメカニズムでは説明出来ない。スペクトルの形状因子の逆フーリエ変換から求めたバンチ内電子の分布関数の形状は、単一ピークで、半値幅約0.3mmのガウス分布で近似できる。但し、この分布関数の形状については、今後尚、更に研究を要する。

分光装置の製作にあたっては、科研附属工場の皆様に大変お世話になりました。黒体輻射炉の製作においては、科研高橋昌明博士に教示を受けました。また、実験においては核理研のマシングループの方々に大変お世話になりました。以上の方々に心から感謝致します。

参 考 文 献

- 1) T. Nanba, Y. Urashima, M. Ikezawa, M. Watanabe, E. Nakamura, K. Fukui and H. Inokuchi : Int. J. Infrared and Millimeter Waves 7 (1986) 1769.
- 2) T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, O. Konno, A. Kagaya, R. Kato, T. Kamiyama, Y. Torizuka, T. Nanba, Y. Kondo, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka and M. Ikezawa : Phys. Rev. Lett. 63 (1989) 1245.
- 3) Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka, H. Mishiro, T. Takahashi, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, R. Kato and Y. Torizuka : 核理研研究報告 22 (1989) 151.
- 4) L. Schiff : Rev. Sci. Instr. 17 (1946) 6.
- 5) J. S. Nodvick and D. S. Saxson : Phys. Rev. 96 (1954) 180.
- 6) G. P. Williams, C. J. Hirschmugl, E. M. Kneedler, P. Z. Takacs, M. Shleifer, Y. J. Chabel and F. M. Hoffmann : Phys. Rev. Lett. 62 (1989) 261.
- 7) F. C. Michel : Phys. Rev. Lett. 48 (1982) 580.

エネルギー分析電磁石系によるバンチ圧縮の研究

核理研, 科学計測研究所*, 工学部応用物理**

中里俊晴・小山田正幸・新村信雄

浦沢茂一・加藤龍好・池沢幹彦*

大坂俊明*・柴田行男*・伊師君弘*

蔦谷 勉*・高橋俊晴*・三代秀昭*

近藤泰洋**

§1. はじめに

コヒーレント放射光の存在が核理研で初めて確認され^{1,2)}, その後の実験でコヒーレント放射光の強度はバンチの長さに強く依存することが明らかになった。^{3,4)} これは古典電磁気学的な予測どおりの性質で, バンチが短いほど放射光スペクトルの短波長の成分が増大する。バンチ長を自由に変化させることは, コヒーレント放射光の基礎的研究に必要な技術であるが, 特により短いバンチを得ることはその実用化のために重要な意義がある。

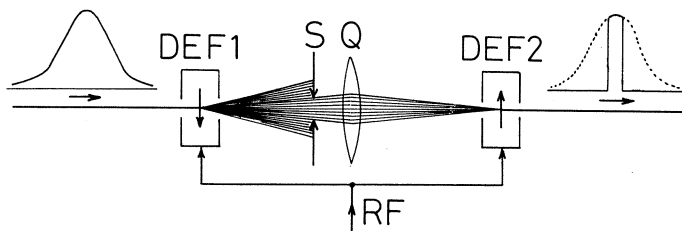
短いバンチを造るには, 1) ビームチョップによる方法, 2) バンチコンプレッサによる方法が考えられる。以下それぞれの方法についての検討と, より簡単に実験ができる後者の試験結果について述べる。

§2. バンチ圧縮法

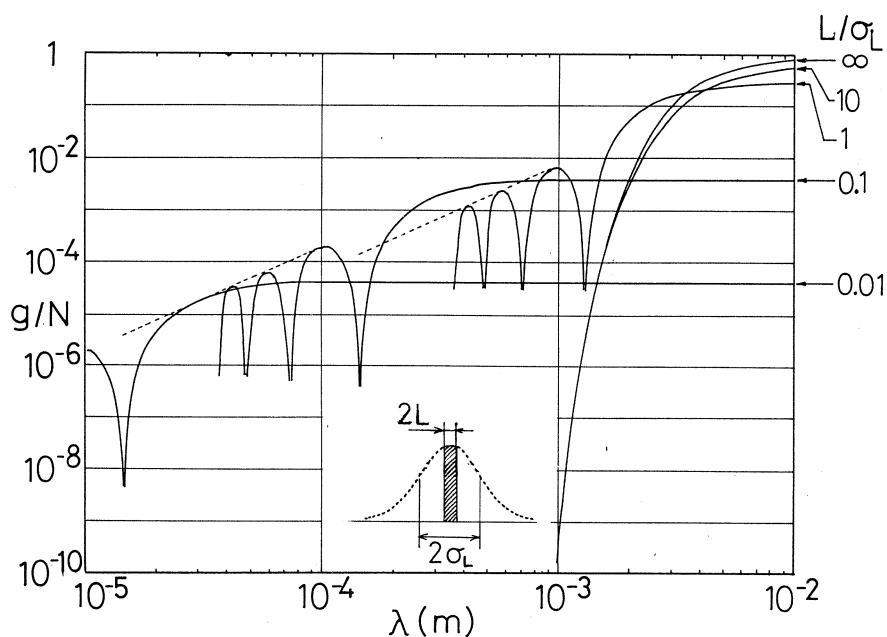
2.1 ビームチョップ

ビームチョップはバンチまたは連続電子線の一部を時間的に切出すもので, 短いパルスが得られる。この方法の原理を第1図に示す。空間電荷の影響が無視できる場合, スリットの幅を狭くするかまたは両ディフレクタの電圧を上げることによって, チョップされたビームのパルス幅は, 原理的には限りなく短くできるのがこの方法の特長である。ビームチョップはライナック入射系近くの低エネルギー部に設置すれば, ディフレクタの電圧が比較的小さくて済む。

ビームチョップはバンチ幅が短くできる反面, その幅に応じてビーム電流が減少する欠点がある。コヒーレント放射光の強度はビーム電流の2乗に比例するため, ビーム電流減少の影響は無視できない。第2図はビームチョップによって得られるコヒーレント放射光の増強因子, 即ちバンチ形状因子, を計算したものである。これから分かるようにビームチョップによって



第1図 ビームチョッパの原理。ビームは左から右に進み、RFディフレクタ(DEF1)で横に振られ、時間差が横方向の位置に変換される。その一部をスリット(S)で切り取り、四極電磁石(Q)で下流のディフレクタ(DEF2)に収束させる。DEF2はDEF1と同じ加速電圧で逆位相の偏向を行ない、DEF1によるエミッタンスの増加分を補償して元の軌道に戻すためのものである。



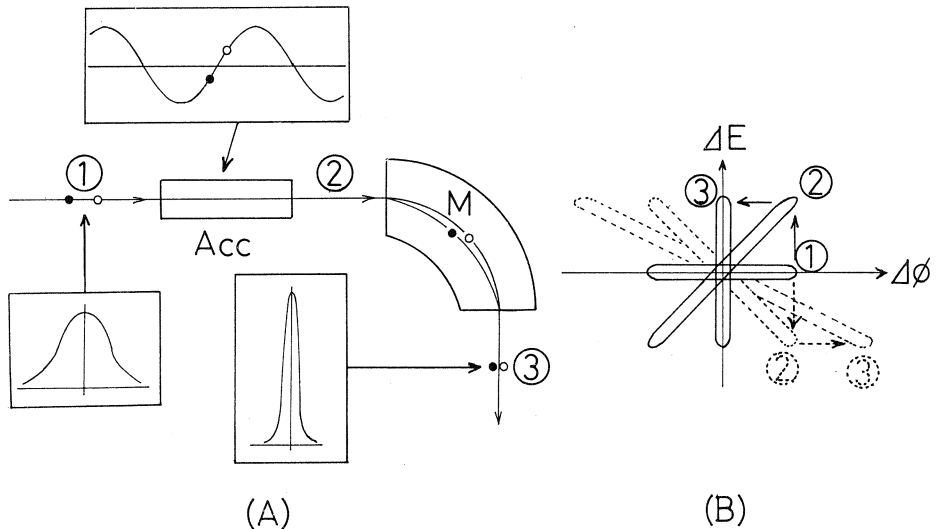
第2図 ビームチョッパによって得られる短バンチによるコヒーレント放射光の増強因子(g)と波長(λ)の関係。 $g = (\text{コヒーレント放射光の強度}) / (\text{インコヒーレント放射光の強度})$ である。 N はビームチョッパへ入射前のバンチ中の電子数で通常 $10^6 \sim 10^{11}$ である。 g/N はバンチ形状因子に相当する。ビームチョッパに入射するバンチ形状は、図中に示したような幅 $2\sigma_L (= 1.5\text{mm})$ のガウス型と仮定している。この図はガウス型バンチの中央部 $2L$ をビームチョッパで切出した場合の増強因子の計算値で、この値に電子数 N と通常の放射光のスペクトル(特性波長よりも十分長い波長 λ では $\lambda^{-2/3}$ に比例する)を掛けた値がコヒーレント放射光のスペクトルとなる。

コヒーレント放射光の強度は減少するものの、より短波長まで干渉の影響が現れないようなスペクトルが得られることが分る。

現在のライナック技術によれば、電子数 5×10^{11} 程度のバンチが 720 pps の繰り返しで加速できる⁵⁾。これによると、従来のインコヒーレント放射光、例えば KEK の PF に比べて（バンチ形状因子を 1 と考えれば） 1.5×10^8 倍程度強いコヒーレント放射光が得られることが期待できる。従って、ビームチョッパによって第 2 図のようにスペクトルが数桁減少しても、 $10 \mu\text{m}$ 以上の波長領域で従来の放射光よりも $10^2 \sim 10^6$ 倍強い放射光が得られる。

2.2 バンチコンプレッサ

エネルギー分散のある系を電子ビームが通過すると、第 3 図のように位相空間内で運動量の差に応じた位相の変化が生じる。入射するバンチが長く、かつその中の電子の運動量差が小さい場合、加速管の加速電圧と位相及び電磁石系のパラメータを適当に選ぶことによってバンチを短くすることができる。これはエネルギー圧縮系 (ECS)⁶⁾ の逆過程に相当し、実際にリアコライダ計画等で具体的に検討⁷⁾ されている。



第 3 図 バンチコンプレッサの原理 (A) と位相の回転 (B)。

(A) エネルギー幅 (ΔE) が小さく、長いバンチが図の左から右に入射するものとする。白丸はバンチの先頭部、黒丸が後尾とする。加速管 (Acc) で図のような勾配をもった位相で加速すると、バンチの先頭部はエネルギーが高く、後尾は低くなる。電磁石 (M) を通過するときは、エネルギーが高い電子は外側の、低いものは内側の軌道を通るので、エネルギーが高い先頭部の電子は相対的に遅れ、後尾の電子は進むことになる。パラメータを適当に選択すれば、先頭と後尾の電子はほぼ同じ位相に集り、バンチ長が短くなる。

(B) 加速 RF に対する位相 ($\Delta \phi$) とエネルギー (ΔE) 空間上における加速電子の分布。①②③はそれぞれ (A) の①②③の各点におけるバンチの位相空間内での分布を示している。バンチが短くなるときには、実線で示したように位相空間内での分布が 90° 回転する。加速管 (Acc) での加速位相が逆になると、破線のようにバンチが長くなる。

この方法はビームチョッパとは異なり、ビーム電流を減少させることなくバンチを短くできるのが特長である。しかし、コンプレッサに入射する電子のエネルギー差が大きい場合には、バンチ長をあまり短くできない欠点がある。ビームチョッパとバンチコンプレッサはお互いに相補的な性質を持っているため、組合せて使用することにより強力で短いバンチが期待できる。

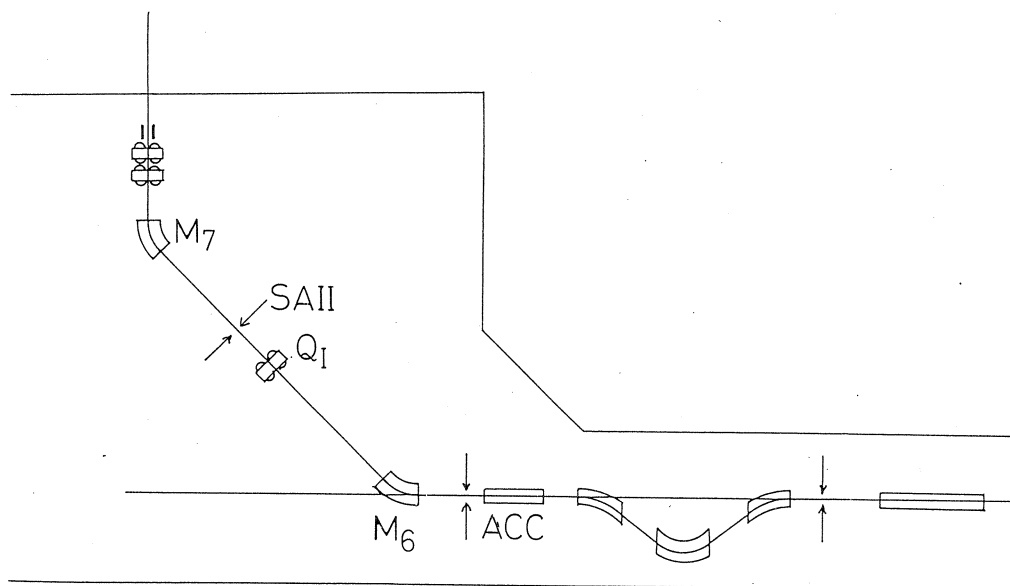
この実験では核理研Ⅱ系のエネルギー分析電磁石系の性質を利用してバンチコンプレッサの試験を行なった。

§3. エネルギー分析系によるバンチ圧縮法

核理研Ⅱ系のエネルギー分析系⁸⁾は、バンチコンプレッサの電磁石系と同じ構造をもっている(第4図)。この系のデバンチング係数 κ は $-7^\circ/\%$ である。但し、 κ は次の式で与えられる。

$$\kappa [\text{deg}/\%] = \frac{-360 \times \Delta s / \lambda_{\text{RF}}}{100 \times \Delta p / p} \quad (1)$$

ここで、中心軌道の粒子の運動量を p 、これに対して Δp の運動量差を持つ粒子が系を通過した後の中心軌道長の差を Δs 、加速RFの波長を λ_{RF} (核理研では105mm)とする。マイナ



第4図 核理研Ⅱ系のエネルギー分析系。45°偏向電磁石(M₆, M₇)と四極電磁石(Q₁)及びスリット(SAⅡ)からなる90°無分散偏向系である。

ス記号は加速 RF の位相を基準にするために付加してある。これは、エネルギー分散 0.7% のバンチは 5° (長さで約 1.5mm) 伸縮することを意味しており、この伸縮量は核理研ライナックのバンチ長とほぼ同程度である。従って予めバンチ内に適当なエネルギー差をつけることによりバンチが短くなる可能性がある。

この実験ではライナックの A1~A8 及び B1~B8 の合計 16 本の加速管を使用し、A1~B6 は加速位相の頂点になるように、B7・B8 はバンチ内にエネルギー勾配ができるような位置に調整した。このとき加速 RF 位相の中でのバンチの広がりを $\Delta\phi$ 、運動量とエネルギーの広がりをそれぞれ Δp 、 ΔE とすると、バンチ内の運動量またはエネルギー勾配は次の式で表される。

$$(\Delta p / \Delta \phi) / p \approx (\Delta E / \Delta \phi) / E = \frac{-E_{B7} \sin \phi_{B7} - E_{B8} \sin \phi_{B8}}{E_{A1-B6} + E_{B7} \cos \phi_{B7} + E_{B8} \cos \phi_{B8}} \quad (2)$$

ここで E_{A1-B6} は加速管 A1~B6 による加速電圧の総和、 $E_{B7} \cdot E_{B8}$ 及び $\phi_{B7} \cdot \phi_{B8}$ はそれぞれ加速管 B7・B8 の加速電圧と加速位相である。但し、ここでは加速電圧に対するビーム負荷の影響とビームエネルギーに対する電子の静止質量は無視している。この式から分るように、 $E_{B7} \cos \phi_{B7} + E_{B8} \cos \phi_{B8}$ の値が一定になるように ϕ_{B7} と ϕ_{B8} を変えると、ビームの中心エネルギー (分母) を変えずにエネルギー幅 (分子) を変化させることができる。第 1 表の実験パラメータを使って位相 ϕ_{B7} と ϕ_{B8} を調整することにより、バンチの広がりを 5° と仮定すると、バンチ内に最大 $\pm 0.8\%$ エネルギーの勾配を持たせることができる。

デバンチング係数の値とこのエネルギー勾配を比較すれば、第 3 図 (B) のように加速管 B7 と B8、及び II 系のエネルギー分析系をバンチが通過する間に、位相空間内で 90° 以上回転できることが分る。また、ちょうど 90° 回転させるためにはエネルギー勾配の値をデバンチング係数の逆数即ち $-0.14\% / \text{deg}$ に選べばよい。

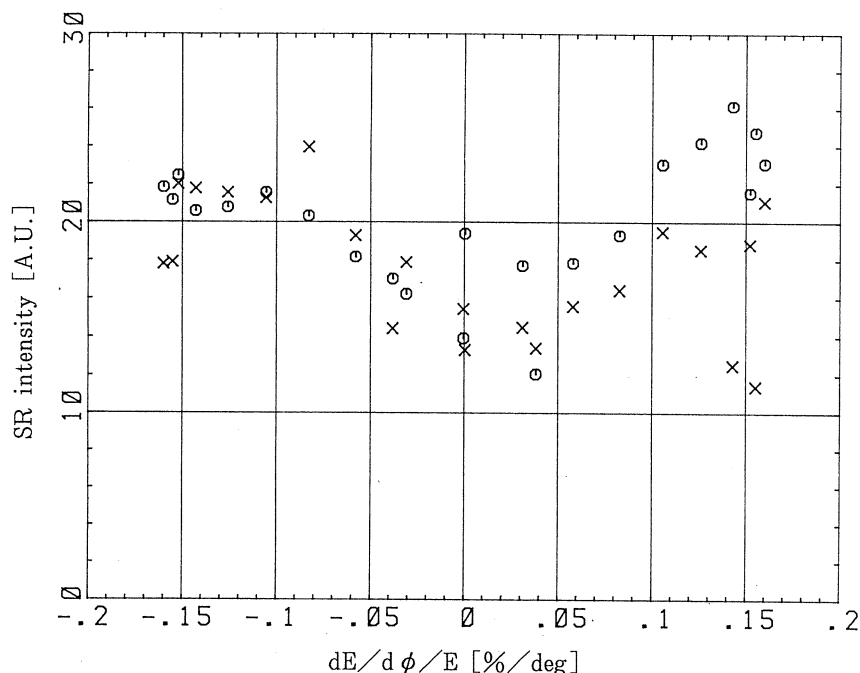
第 1 表 実験時の加速管の運転パラメータ

E_{A1-B6}	130.4 MV
$E_{B7} = E_{B8}$	10.4 MV
$E_{B7} \cos \phi_{B7} + E_{B8} \cos \phi_{B8}$ $= 2 E_{B7} \cos 40^\circ$	16.0 MV
$E_{B7} \sin \phi_{B7} + E_{B8} \sin \phi_{B8}$	± 13.4 MV
$(\Delta p / \Delta \phi) / p$	± 0.092 1/rad $\pm 0.16\%$ /deg

実際にバンチ長の変化を直接観測するのは困難なので⁹⁾、この実験ではコヒーレント放射光の強さの変化を観測して長さの変化を定性的に推定することにした。

§4. 実験結果

バンチに与えたエネルギー勾配とコヒーレント放射光強度の関係の測定結果を第5図に示す。放射光はバンチ長の影響を受けやすい短波長（0.3mm）の光強度と、比較的受けにくい長波長（2.4mm）の光強度を同時に測定しており¹⁰⁾、第5図の縦軸はの前者を後者で規格化した値である。従ってこの値が大きいほどバンチが短くなっていると考えられる。



第5図 バンチに与えたエネルギー勾配 ($(\Delta E/\Delta \phi)/E$) とコヒーレント放射光強度の関係。○印と×印のデータは異なるシリーズのものである。

バンチ圧縮の原理から、バンチは勾配 $-0.14\%/deg$ のときに最短に、勾配 $+0.14\%/deg$ のときに最長になるものと期待される。データはいずれも、勾配 $-0.14\%/deg$ のときに極大値を示しており、このときバンチが短くなったと推定できる。しかし、勾配 $+0.14\%/deg$ 付近では不安定な結果を与えており、最小値とは言いにくい形をしている。むしろ勾配 $-0.14\%/deg$ のときよりも大きい値を示すものもある。いずれのシリーズも10分程度の時間内に測定を行なったが、ライナックの運転パラメータの時間変動がデータのばらつきに影響しているものと考えられる。

この実験で全てのバンチが同じ位相で加速されているかどうか疑問が生じた。実際、加速管のダミーロード部のRF波形（ビームローディング波形）を観測しながら移相器を動かすと、

バーストの中で負荷波形が一様に変化せず、ある点では負荷が増えるのに別の点では逆に減少する場合がある。これは個々のバンチが同じ位相で加速されていない傍証である。そこで、各加速管のダミーロード部での RF の位相と、参照 RF との位相差がどのように時間変化をするかを文献 11) と同じ方法で測定し、バンチャーの位相の時間変化と比較した。その結果、 $3 \mu \text{sec}$ の間にクライストロン 2, 3 号機が約 20° 、4 号機が約 30° の位相変動をしていることが明らかとなった。従って、各バンチ内のエネルギー勾配は当初考えたように一様ではなく時間的に変動していることが分った。

このことから、第 5 図の結果は様々なエネルギー勾配を持ったバンチの平均的な性質を観測したことになる。また、第 3 図 (B) の①でエネルギーの広がり ΔE が大きい場合は位相空間内で回転してもバンチが短くならない場合もある。クライストロンの位相変動が少なくなるように RF 系、主にクライストロンパルサの PFN、を調整する必要がある。

§5. まとめ

短い波長のコヒーレント放射光を得るために、ビームチョッパとバンチコンプレッサについて検討し、双方の性質が相補的であることが分った。バンチコンプレッサの試験を核理研 II 系のエネルギー分析系を利用して行なったが、バンチ長が期待どおりに明確な変化をする現象は観測できなかった。良い結果が得られなかった原因は、ライナックのクライストロン出力 RF の位相変動により、各バンチが同じ位相で加速されていないためであると考えられる。このことはコヒーレント放射光発生用のライナックは RF 系が厳密に調整されていなければならないことを示唆している。しかし、エネルギー勾配を変化させることによって、わずかではあるがコヒーレント放射光の強度に変化が生じたのも事実であり、今後のライナックの調整結果によってはバンチ長が短くなることも期待できる。

本研究を遂行するために、核理研マシングループをはじめ関係者の皆様のご協力を賜わりましたことに、心から感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, O. Konno, A. Kagaya, R. Kato, T. Kamiyama, Y. Torizuka, T. Nanba, Y. Kondo, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka and M. Ikezawa : Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 1245.
- 2) Toshiharu Nakazato, Masayuki Oyamada, Nobuo Niimura, Shigekazu Urasawa,

- Osamu Konno, Akira Kagaya, Ryukou Kato, Takashi Kamiyama, Yoshiharu Torizuka, Takao Nanba, Yasuhiro Kondo, Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Toshiaki Ohsaka and Mikihiro Ikezawa : 核理研研究報告 **22** (1989) 123.
- 3) Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Toshiaki Ohsaka, Hideaki Mishiro, Toshiharu Takahashi, Mikihiro Ikezawa, Yasuhiro Kondo, Toshiharu Nakazato, Masayuki Oyamada, Nobuo Niimura, Shigekazu Urasawa, Ryukou Kato, Takashi Kamiyama and Yoshiharu Torizuka : 核理研研究報告 **22** (1989) 151.
- 4) T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, R. Kato, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka, T. Takahashi, H. Mishiro, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nanba and Y. Torizuka, : Proc. of the 7th Symp. on Accelerator Science and Technology, Osaka, Dec. 12-14, (1989) 195.
- 5) S. Takeda, K. Tsumori, N. Kimura, T. Yamamoto, T. Hori, T. Sawai, J. Ohkuma, S. Takamuku, T. Okada, K. Hayashi and M. Kawanishi : IEEE Trans. Nucl. Sci. **NS-32** (1985) 3219.
- 6) M. Sugawara, T. Ichinohe, S. Urasawa, M. Oyamada, T. Kubota, A. Kurihara, O. Konno, Y. Shibasaki, T. Terasawa, K. Nakahara, S. Nemoto, M. Muto, K. Shoda and Y. Torizuka : Nucl. Instr. and Meth. **153** (1978) 343.
- 7) S. A. Kheifets, R. D. Ruth and T. H. Fieguth : SLAC-PUB-5034 (1989).
- 8) 三菱電機技報 : **42** (1968) 320.
- 9) 加藤龍好, 小山田正幸, 中里俊晴, 浦澤茂一, 加賀谷聡, 栗原亮, 高橋重伸, 柴崎義信, 佐藤勇, 中原和夫 : 核理研研究報告 **21** (1988) 346.
- 10) 伊師君弘, 柴田行男, 高橋俊晴, 三代秀昭, 蔦谷勉, 大坂俊明, 池沢幹彦, 近藤泰洋, 小山田正幸, 新村信雄, 浦澤茂一, 中里俊晴, 加藤龍好 : 核理研研究報告 **23** (1990) 131.
- 11) H. Kobayashi, H. Ohashi, T. Ueda, T. Kobayashi, M. Kishimoto, C. Tsukishima and Y. Tabata : Proc. of the 12th Linear Accelerator Meeting in Japan, (1987) 1.

V . 加速器稼動狀況,放射線安全管理報告

平成元年度マシン報告

核理研マシングループ

栗原 亮・浦沢茂一・大沼忠広
小山田正幸・柴崎義信・高橋重伸
中里俊晴・武藤正勝

概況

4月の工事期間中に、冷却系の冷水製造装置（新冷凍機）の試運転と調整を行った。冷凍機を安定に運転するには、冷却系の冷却水温度が低温のときに、冷却機を止めずに運転する必要がある。そこでクーリングタワー経路にバイパス（8月工事）を設けて、バイパスバルブの開閉を制御し、冷却水温度の低下を避ける方法をとった。冷却機負荷の急激な変化を抑えるため、加速管からの戻りラインの加温ヒーターの一部を制御した。その結果、負荷の急激な変化を抑え、180MeV 運転時に30kW/hr の省エネルギー運転が可能になった。また、冷凍機の始動時の潤滑油温度の確保のために、マシン停止時は冷却系のノーヒューズブレイカを入れておくことにした。切る時には、マシングループが行う。

さらに、励振系のRFパワーの点検をおこない、RFドライバー出力のパワーアップを計った。これにより、I系の実験は調整がしやすくなり、RI照射の50MeV から60MeV へのエネルギー上昇が可能になった。

11月16日クライストロンパルサー5号機（KP # 5）からRFパワーの出力が30分おきに増減する現象が発生した。最初この現象から、RF入力接栓付近の故障だと思われた。しかし、クライストロンの集束コイルを検査した結果冷却水の水漏れと判明した。急遽交換の集束コイルを発注し、1月末に納入された。新しい集束コイル設置後の2月9日に総合運転をおこない、III系で218MeV の加速エネルギーを得て、故障前の性能と同等なことを確認した。

1月11日にKP # 1、ヒーター回路のスライダック部で放電がおこった。原因はパルスタンクに水が混入し、接続端子部分が腐食し正常なパルス経路が変わったことである。

KP # 1のクライストロンを3月に新品と交換し、現在支障なく稼働している。

直流電流などはソフトウェアによる電流設定、極性の変更に対応できる機種に順次更新している。ライナックの制御は従来の1対1のハードワイヤー制御から、中間にコンピュータを介在してネットワーク間の通信でおこなう方法に移行していく過渡期である。ソフトウェアのバグは付きものだが、プログラムがストップしない方策を考慮し、円滑な調整やリアルタイム性に

優れたシステムを構築する必要がある。

クライストロンパルサーの安定運転に重要な放電管である FT175は、安定に動作しており、放電管 KU275からの変更を予定している。

マシンタイム実施状況

今年度は、防水工事により例年より1ヶ月遅れで実験開始になった。また、11月に発生した、クライストロン集束コイルの水漏れにより、復旧までの間、最大エネルギー162MeVに制限されたため、数種の実験が延期された。表1にマシンタイム実施状況を示す。

保守

真空系はⅡ系差動排気（下流側）の性能低下がみられ、対策として、ターボポンプ交換（ダクト含む）と周辺の整備を行った。

ここ数年間不安定ながらも使用してきた、精密磁場測定装置（NMR）が非常に不安定になったため、2月工事に同装置の更新と制御プログラムが完成した。使用方法は、実験種類の選択メニュー画面で入力したエネルギー値を偏向電磁石磁場測定メニュー画面で測定開始を選択すると、自動追尾方式（NMR周波数）で現在の磁場を測定し、表示する。

今年度は、パルスタンク内に水が混入する事故が多く、早めに発見し対応すれば、復旧工事期間の短縮化がはかれる。

スリット製作は、集束コイルとNMRへの振替額が多く実現できなかった。

次年度の計画は、真空系はスリット製作、イオンポンプの性能が劣化したため加速管列B部のイオンポンプとその電源の更新、Ⅰ系スイッチマグネットM5電源の安定度が低下しているためその更新を考えている。

ビームトランスポート系の直流電源の更新は、入射部のG1、G2、G3電源の更新で終了する。

基本的な設備や装置にもかなり傷みや老朽化が、目立ってきた¹⁾。例えば上記の集束コイルなどは、予備品があれば、1週間程度で復旧できる見通しである。集束コイルは、複数個準備をして水漏れに対応したい。大きな設備に対しては、少なくとも、復旧まで3ヶ月停止の覚悟が欲しい。

平成元年度の主な工事は、以下のとおりです。

4月工事

- パルサー関係 集束コイル電源 KP # 5 に取り付け
 冷水系 LDM フロースイッチ交換配線, ダミーロード B 部 1, 2, 3, 4, S
 DII フロースイッチ交換, ACCB10水ジャケット接合部外れ交換, 配管室ダ
 ミーロード B 部配線更新
 RF系 RF ドライバー調整, GPIB テスト, 電圧対出力の特性試験, 在庫品のパ
 ワーテスト 5 本共使用可。現在は三菱電機製を使用。
 モニター関係 B12出口のビームポジションモニター (BSCR) のスクリーン修理, ビュー
 イングポート交換
 真空系 II, III, IV 系のイオンポンプ (IP21~24) 過電流安全装置テスト
 純粋製造 BF, WG, ACC系補給, 冷水系の水入れ替え
 制御系 Q マグネットロータリーエンコーダー方式テスト, ECS 配線・TV配線確
 認
- 6月工事
- 冷却系 VAPO 洗浄 KP # 1, 2, 3, 4, 5, タワー清掃, ACCヒーター
 制御コントローラ交換
 パルサー関係 集束コイル電源 KP # 2 交換, パルサー高圧デバイダー全数点検
 制御系関係 移相器制御テスト
- 8月工事
- 冷却系 三方弁据え付け工事, クーリングタワー清掃, V ベルト交換東側, 純粋
 製造装置再生と電気調整
 真空系 II 系真空ダクト内部点検
 パルサー関係 集束コイル電源 KP # 5 交換, KP 整備インターロック関係, KP # 2 高圧
 マグネットコンタクター ON 用リレー交換
 モニター関係 ECS モニターセット, CM モニターセット
 制御系 アナライザー系電源のコントロールの 2 重化, 操作性の改善, 位相器ドラ
 イブプログラム改修
- 10月工事
- 冷却系 三方弁調整, K 室に温度センサー取り付け 3ヶ所, 三方弁の温度記録,
 KP # 3 フロースイッチ交換 微調整を行う。
 真空系 II 系ターボポンプ据付 (ダクト含む), リークバルブ取り付け

RF系	WG系SF6ガス漏れハンテング, RFドライバ故障表示回路点検
パルサー関係	集束コイル電源 KP # 5 交換, KP # 3パルストランス断水リレーテスト, KP EOL 抵抗まわり点検, ガングリッド・ナノセックパルサー点検, K PのPFN回路点検
制御系	II系手動シーケンサー整備
モニター関係	ECSモニターセット, コアモニターセット
12月工事	
パルサー関係	ガングリッド回路点検整備 (ナノセックパルサー)
モニター関係	BSCR ND用ITV交換, BSCR・CMテスト, ラダー工事 (増設) 冷却 系 (重工側・電気側) 従来のラダー間, エアシリンダー故障のため交換
RF系	加圧系 (WG) 空気引口をクイックカップリングに変更
冷却系	制御回路一部変更 (重工側)
2月工事	
冷却系	ACCデミネライザポンプ交換
パルサー関係	集積コイル取付 KP # 5, KPトリガ回路交換
制御系関係	制御ループ試験, NMR設置, Qマグネット制御を制御卓に変更
モニター関係	CMテスト
3月特別工事	
パルサー関係	KP # 1クライストロン交換

参 考 文 献

- 1) 栗原 亮・浦沢茂一・大沼忠広・小山田正幸・柴崎義信・高橋重伸・中里俊晴・武藤正勝:
核理研研究報告 22 (1989) 133.

表1 平成元年度マシンタイム実施状況。

分野	責任者	前期採択シフト数	備考	後期採択シフト数	備考
核物理	成 百 能	6			
	庄 田 勝 房	16		14	* 4 シフト繰り越し
	山 屋 堯	/		4	* 4 シフト繰り越し
	前 田 和 茂	/		18	
	寺 沢 辰 生	/		(18)	
	須 田 利 美	4		/	
	M. Thompson	13		4	
	菅 原 真 澄	15	9 シフト後	6	
	斎 藤 二郎	13	期繰り越し	12	
玉 江 忠 明	/		8		
物性・放射線化学	角 野 浩 二	2		2	
	三 頭 聡 二	/		1	
N D	梶 谷 剛	(12)		(10)	* 4 シフト繰り越し
	小野寺 重 文	(7)		(7)	N D
	神 垣 和 夫	(6)		(17)	取り消し
	富 吉 昇 一	(15)		17	*
	山 田 昌 衛	(19)		(10)	
	山 口 貞 信	/		(7)	取り消し
	新 村 夫 剛	19		(17)	
	梶 谷 剛	(19)		/	
R I	吉 原 賢 二	} 3	2 シフト後 期繰り越し	} 2	* 2 シフト繰り越し R I
	莊 司 信 男	2		2	
	鈴 木 謙 一	} 3		} 2	
	青 木 田 武 義				
	吉 田 次 正	1		} 1	
	床 加 三 藤 頭	2		} 2	
	原 頭 光 和 義				
	栴 本 木 益 尚	} 3		2	
	八 中 村 寺 亮	} 3		2	
	山 坂 本 冶 浩	2		3	
	鍛 金 沢 東 正	/		2	
	藤 川 辰 一	} 3		} 2	
	秋 葉 健 一				
	加速器・測定器	池 沢 幹 彦		6	
菅 原 真 澄		3		/	
山 屋 堯 生		4		/	
上 野 博 照		2+1(SSTRテスト)		/	
寺 沢 辰 生		4	4 シフト後	/	
斎 藤 二郎		/	期繰り越し	5	* 2 シフト繰り越し
今 野 収		/		2	* 1 シフト繰り越し
合 計		130		120	

* 印合計17シフトは平成2年度前期に繰り越しとなる。
前年度繰越の12シフトは前期マシンタイムで消化した。

核理研における作業被曝（1976～88年度）について

放射線安全管理室

榎本和義・新村信雄

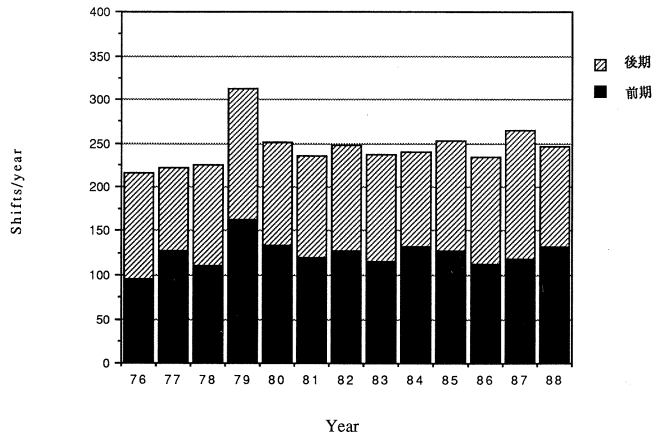
§1. 序

本施設は1966年に創設され、翌67年に現在の300MeV電子ライナックが完成した。その前半ともいえる75年度までの9年間の個人被曝については既に核理研研究報告第9巻第1号¹⁾に報告されており、当時高エネルギー大出力加速器の保守に苦勞した様子が伺える。報告では作業被曝の低減化対策として、(1)加速器の故障修理は翌朝まで待つ、(2)RI製造では照射装置の遮蔽強化と照射業務の利用者肩代わり、(3)ND実験用遮蔽体の設置、(4)グループ間の被曝の均等化が挙げられている。これらはいずれも放射線取扱の原則の実践であり、これらによりかなりの効果を上げる事ができた。しかし、(2)や(4)のような被曝線量の分散化は本来の低減化対策とはなりえていないといえよう。その後、マシングループを始め、各実験グループの努力により被曝低減化の努力は重ねられ、現在に至っている。とくに、76年度以降の対策は前述の初期の対策に比べ作業被曝のそもそもの原因となる故障を減らすための装置の改良、工夫、各種モニターの設置、マシン運転の安定化など質的に高いものといえる。そこで、本報告では76年度以降の個人被曝線量を集計し、その低減化対策の効果について報告することにした。この間の記録は主に核理研研究報告²⁻²⁰⁾を参考にした。

§2. マシントイム実施状況

第1図に76～89年度の共同利用実験に利用されたマシントイム実験状況をシフト数で示した。68年度の共同利用開始以来78年度までは年間2000～2700時間と緩やかに増加してきた。79年度は維持費増が認められ312シフト（3800時間）の実験が行われた。実施に当たっては1週間の連続運転が始めて実施された。しかし、翌年は電力料金の大幅値上げのため、マシントイムは250シフト（3000時間）に抑えられることになった。81年度からは夏期の実験割当停止が行われた。以後、250シフトが実験に配分されている。

この間のマシンに関係する大きな出来事としては76年度のECS完成、81年度のSSTR完成があげられる。これらの完成により原子核実験は大きな変化があった。77年度には300MeV電子ライナック改造費が認められた。また、事故としては76年度の導波管気密窓冷却部破損によ



第1図 マシントイム実施状況 (1 shift=12 hr)

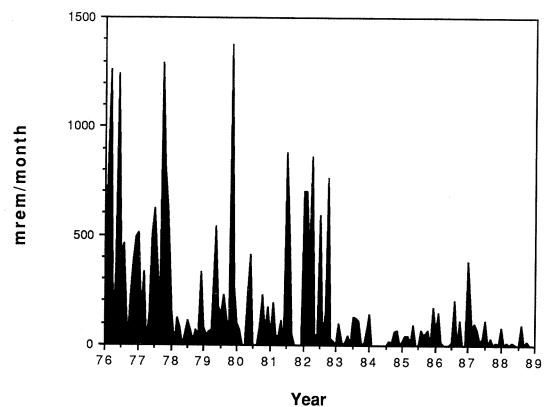
るB部、ECS、Ⅱ、ⅢおよびⅣ系の浸水が最大のものであり、復旧に当たって施設職員全員が被曝することとなった。また、78年度には宮城県沖地震が発生したが、幸いマシンの被害は軽微であった。いずれも長期のマシン停止を伴うものであったが第1図から明らかなように共同利用実験への実質的影響はなかった。

76～88年度の以上の概略をもとに以下に各グループごとの被曝線量の推移について述べていく事にする。

§3. 月別被曝線量

3.1 マシングループ

第2図にマシングループの76年4月から88年3月までの月毎の被曝線量の推移を示す。82年度まで幾つかの大きなピークがある。76年度の最初のピークはECSの据付、次のピークは前節で述べた導波管気密窓冷却部破損による浸水事故時の復旧作業によるものであり、いずれもピークで1.3 rem/月を記録している。77年度は年度当初のⅠ系ダクト、ECS系の改修工事で0.5 rem/月、後半



第2図 マシングループの月別被曝線量

のⅡ、Ⅲ系ビームダクトの一部更新、ECS系、Ⅱ系のビームモニター（BeO, SOR, SEM）整備で最高1.3rem/月となっている。この2年間の工事で修理作業の主な原因であった真空リークを防止するための主な措置が施されたといえる。78, 79, 80年度にかけては80年2月の1.4rem/月が最も高いが、これはECS系の真空リーク修理によるものであり、この年のマシンタイム増のため若干余裕に欠けたのではと思われる。0.5rem/月前後の被曝は春期、夏期工事による計画的なもので、1週間の連続運転が故障の増加ひいては作業被曝の増加に直接結びつくことはなかったと言える。81年度後半から82年度にかけてECS系の真空リークが頻発し修理のための被曝が増加した。しかし、83年1月にダクトの改造を行った結果、その後ほとんどトラブルは発生しなくなった。86年度にはECS電磁石電源が更新され、一層の安定運転ができるようになった。83年度以降作業被曝は減少している。おもな被曝を伴う故障は86年度後半に発生したⅡ系のエネルギー分析ダクトの水冷管の水漏れによるリークによるもので、87年4月にアルミ合金製ダクトに交換された。

83年度以降作業被曝は減少理由として、SSTRによる連続ビームを使った実験が次第に増加し、ECSの使用頻度が減ったことも一因になっていると思われるが、制御関係の充実などもその大きな要因となっていることが見逃せない。第1表に83年度以降のマシン関係の主な改良や更新を挙げた。なかでも、パルスの間引運転は加速器立ち上げ時の真空リークを低下させ、

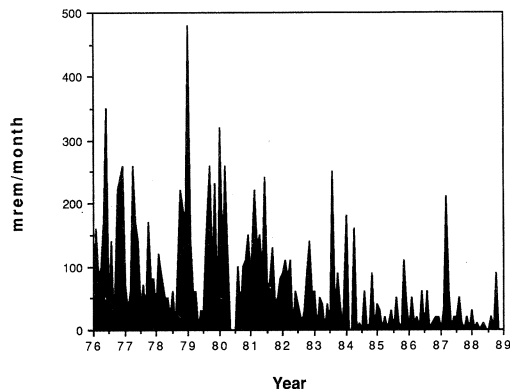
第1表 マシン関係の主な改造と更新

年度	事 項
83	de Qing 回路取付け (86年度まで) ガングリッド高圧のフィードバック回路取付け 加速部のQマグネット電源更新
85	加速管列のビームロスモニタ設置 ビームスクリーンモニタの取付け ビーム調整時のパルスの間引運転
86	実験室、本体室、制御室間の光ファイバーループ設置 加速系のステアリングコイル電源更新
87	Ⅱ系ダクトのアルミ化 IVR 駆動装置のDCサーボモーター化 加速系のフォーカスコイル電源更新
88	RF窓交換 I系3方向分岐ダクトのアルミ化

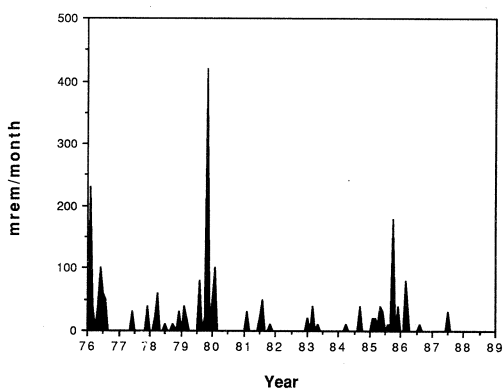
またロスモニターやスクリーンモニターの設置によってビームをよりよく監視できるようになった。フィードバックによるガンエミッションの安定化⁵⁾や各種電源などの更新は加速器の安定運転に大いに貢献している。ビームダクトのアルミ合金化は残留放射能の低減に効果的で、作業被曝の低減化に役立つと期待される。このように83年度を境に故障修理から故障防止に対策が移ってきていることは、放射被曝の低減のみならず、新しい技術の導入という点においても非常に評価される。

3.2 RI グループ

RI グループの月別被曝線量を第3図に示す。縦軸は500mrem/月を最大値として示した。100mrem/月を越えるピークが数多く見られる。76年度のピークは前述のRF窓冷却部破損による浸水事故時の復旧作業の応援によるものである。77年度まではビーム引出ダクトのフランジでのリークが原因の一つであり、水冷の絞りダクトに交換することでトラブルを減らすことができた。79, 80, 81年度にも真空リークが多かったが、そのほとんどはRIコースビーム引出窓のピンホールにより真空リークが発生した時のTi窓交換作業によるものであった。この間、新たに交換しても1日に2度も真空リークが生じるなど、窓材の選定には苦慮したが、たまたま米国製のTiフォイルを使ったところ好結果が得られ今日までそれが使用されている。また、窓の交換は半年に1回、最近は1年に1回の割でマシンの長期停止期間に定期的に行われている。82年度以降の幾つかのピークはそれらの作業によるものである。RIグループの場合、照射した試料の取り出し時に被曝が避けられない状態にある。これらの、低減化のためには遠隔操作による試料の自動交換装置の開発が不可欠といえよう。



第3図 RIグループの月別被曝線量



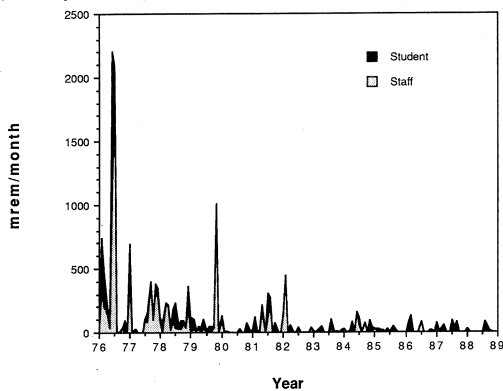
第4図 NDグループの月別被曝線量

3.3 NDグループ

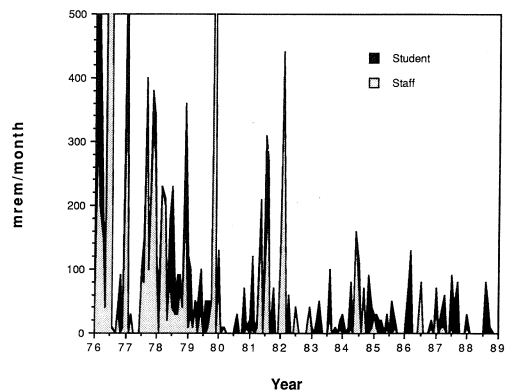
NDグループの月別被曝線量をRIグループと同じスケールで表すと第4図のようになる。76年度はRIグループ同様、RF窓冷却部破損による浸水事故時の復旧作業によるものである。その後の被曝はRIグループに比べて極めて少なく、生体遮蔽体設置の効果が明らかである。79年2月に400mrem/月、86年1月に200mrem/月のピークがみられるがこれらはいずれもターゲット交換作業によるものである。なお、このターゲットの冷却水は86年度に第二実験室内で閉回路となったが、この工事で若干の被曝がみられる。このようにターゲット破損以外大きなトラブルもなく安全に実験が進められてきた事が分かる。

3.4 原子核グループ

原子核実験グループは職員と学生からなりそれらを区別して表すことにした(第5図)。76年度はマシングループと同様の理由によるもので、最高2.2rem/月を記録している。77、79、82年度に500mrem/月を越えるピークがあるがこれらはECS系の真空リークの復旧によるものである。81年度にSSTRが完成し、翌年からそれを使った実験が始まった。被曝線量を見やすくするため、RIやNDグループと同じスケールで表示したのが第6図である。83年度を境に被曝線量が著しく減少している事が分かる。実験種目の変化とともに作業形態も変化してきているといえよう。



第5図 原子核グループの月別被曝線量
(max=2500merem/month)



第6図 原子核グループの月別被曝線量
(max=500mrem/month)

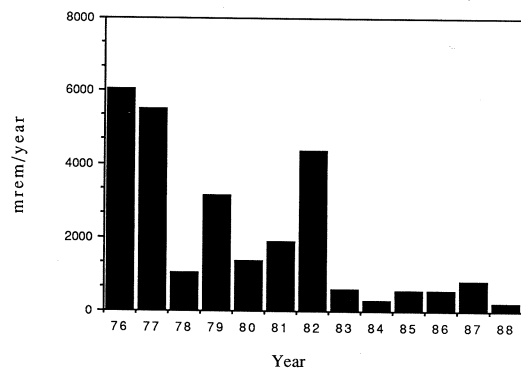
3.5 その他のグループ

その他のグループとしては、計測グループおよび84年度まで電気、空調グループがあるが、

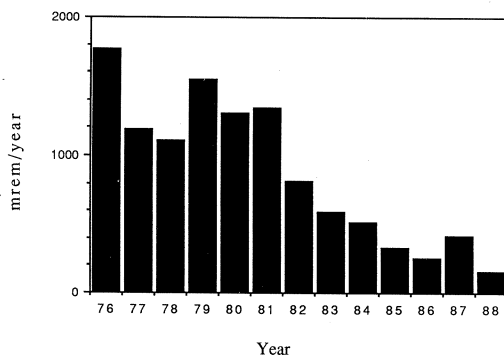
それぞれ被曝線量は他のグループに比べて極めて低くここでは省略することにした。

§4. 年間集積線量

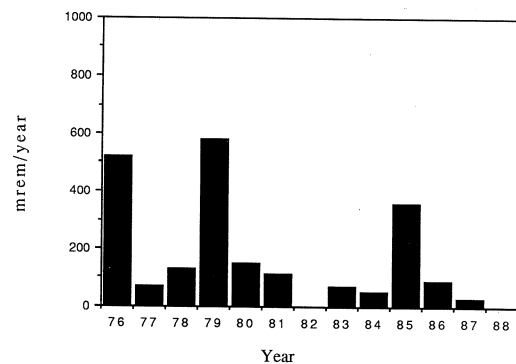
年間の集積線量を各グループ毎に第7から10図に示した。マシンと原子核グループほぼ同様の推移を示しており、原子核のスタッフがマシングループに協力してきた事が分かる。83年度以降の顕著に減少した様子がよく分かる。RIグループの場合、月毎のグラフでは極端に高いピークはなかったが、年間の集積にすると被曝線量が高いことが分かる。とくに81年度までスタッフ一人当たり500mrem/年を越えている。しかし、これも真空リークの減少によって、修理の際の被曝が減少したため次第に減少傾向を示している。NDグループではターゲットの交換工事が主要な被曝の原因であるため、他のグループとは違う周期性がある。しかし、被曝線量は79年度に比べ85年度では減少しており、もし次に交換を行う事になっても更に減ることが期待される。



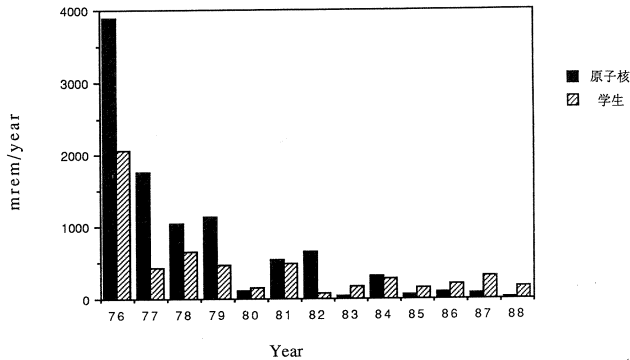
第7図 マシングループの年間集積線量の推移



第8図 RIグループの年間集積線量の推移



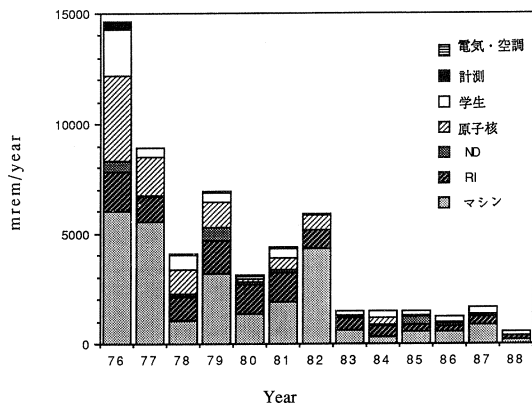
第9図 NDグループの年間集積線量の推移



第10図 原子核グループの年間集積線量の推移

最後に、全グループの集積線量をまとめたのが第11図である。76年度の14.6remは特別として、77～82年度で、平均5.5rem、83～87年度で平均1.5rem、そして88年度には0.55remと約1桁減少してきたことは特記すべきことと言えよう。

以上、核理研の過去十数年間の被曝線量の集計結果を報告してきた。当初、「なるべく被曝を少なく修理、工事などの作業を行うためにはどうすべきか」という点から出発した被曝低減化対策は、「故障を未然に防ぐためにはどうするか」という積極的対策がとられるようになり、試行錯誤のなかから大きな成果として実を結んできたと言っていることができる。放射線安全管理の目標は被曝線量の低減化にあることは言うまでもない。その点、本施設においてその成果が大いに挙がっていることは、各グループの努力と協力によるものであり安全管理室として感謝する次第である。



第11図 施設放射線業務従事者の総年間集積線量の推移

参 考 文 献

- 1) 核理研放射線小委：核理研研究報告 9 (1976) 209.
- 2) 理学部安全管理室，核理研放射線小委：核理研研究報告 9 (1976) 213.

- 3) 今野収, 浦澤茂一, 一戸隆, 栗原亮, 根本重伸, 柴崎義信 : 核理研研究報告 11 (1978) 174.
- 4) 核理研放射線小委 : 核理研研究報告 11 (1978) 179.
- 5) 武藤正勝, 一戸隆, 栗原亮, 高橋重伸, 柴崎義信, 金森浩, 浦澤茂一 : 核理研研究報告 16 (1983) 333.
- 6) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 9 (1976) 337.
- 7) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 10 (1977) 173.
- 8) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 10 (1977) 311.
- 9) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 11 (1978) 167.
- 10) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 11 (1978) 295.
- 11) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 13 (1980) 207.
- 12) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 14 (1981) 119.
- 13) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 15 (1982) 183.
- 14) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 16 (1983) 193.
- 15) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 17 (1984) 243.
- 16) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 18 (1985) 217.
- 17) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 19 (1986) 185.
- 18) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 20 (1987) 251.
- 19) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 21 (1988) 127.
- 20) 核理研マシングループ : 核理研研究報告 22 (1989) 133.

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（1989年1月～12月）の題目を収録しました。

I 原子核物理

1. A Review of Photonuclear Cross Sections Measured under the Tohoku-Melbourne Collaboration.
M. N. Thompson : proc. Workshop on Photonuclear Reactions using Continuous Electron Beam, Sendai, 1989, ed. T. Terasawa, Supplement to Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University **22** (1989) 1.
2. Results of Tagged Photon Experiments at KAKURIKEN.
K. Maeda : *ibid.* p. 18.
3. (e, e' p) Experiments using the SSTR.
T. Tamae : *ibid.* p. 53.
4. ^{12}C (e, e' n) Experiment.
T. Takahisa, T. Sato, S. Suzuki, T. Tohei, T. Nakagawa, Y. Kobayashi and K. Abe : *ibid.* p. 59.
5. Status of the $^4\text{He}(\gamma, n)^3\text{He}$, $^4\text{He}(\gamma, np)$ Experiment.
A. D. Bates, O. Konno, K. Maeda, D. McLean, I. Nomura, R. P. Rassool, T. Suda, Y. Sugawara, T. Terasawa and M. N. Thompson : *ibid.* p. 63
6. ^6Li (γ , p) Experiment.
I. Nomura : *ibid.* p. 68.
7. The Tohoku University Stretcher-Storage Ring Project.
M. Sugawara : *ibid.* p. 112.
8. Photonuclear Reactions in Light Nuclei at Intermediate Energies.
M. N. Thomsom : Proc. 7th Seminar on Electromagnetic Interactions in Nuclei at Low and Intermediate Energies, USSR Acad. of Science (1989).

9. Recent Results with Sendai Tagger.

T. Terasawa : Proc. Workshop on Nuclear Physics with Real Photons below Pion Threshold, Gent, ed. D. Ryckbosh, (Rijksuniversiteit, Gent, 1989) p. 43.

10. Photoneutron Cross Sections Measured by the Tohoku-Melbourne Group.

M. N. Thompson : *ibid.* p. 51.

II 物性物理

1. Defects with Deep Levels Induced by Plastic Deformation and Electron Irradiation in EL 2-free GaAs.

T. Wakamiya, M. Suezawa and K. Sumino : Radiation Effects and Defects in Solids **111–112** (1989) 425.

2. Impurity-diffusion of Copper in Aluminum.

S. I. Fujikawa and K. I. Hirano : Defect and Diffusion Forum **66–69** (1989) 447.

III 放射化学

1. Solvent Extraction of Several Metal Ions with Mercaptotroponone.

M. Yamashita and N. Suzuki : J. Radioanal. Nucl. Chem. (A) **133** (1989) 333.

2. Substoichiometric Speciation for Inorganic Arsenic and Methylated Arsenic and Its Application to Samples of Marine Organisms.

F. Jitoh, H. Imura and N. Suzuki : Anal. Chim. Acta **228** (1990) 85.

3. A New Detection Method of ^{99}Tc by Nuclear Excitation.

T. Sekine, K. Yoshihara, Zs. Nemeth, L. Lakosi and A. Veres : J. Radioanal. Nucl. Chem. (A) **130** (1989) 269.

4. Specific Radiation and Recoil Energy Effects in Recoil Implantation Reaction of ^{51}Cr in Metal Acetylacetonates.

A. Miyakawa, H. Takeya, T. Sekine and K. Yoshida : J. Radioanal. Nucl. Chem. (L) **136** (1989) 151.

5. Recoil Implantation Reaction in Tris (β -diketonato) -Metal (III)
 — Characteristic Feature for the Substitution Reaction of the Central Metal Atom by the Recoil Atom.
 T. Sekine and K. Yoshida : Proc. Int. Symp. Advanced Nuclear Energy Research — Near-Future Chemistry in Nuclear Energy Field, (Ibaraki, Japan, 1989) p. 108.
6. Measurement of ^{103m}Rh Produced by the $^{103}\text{Rh}(\gamma, \gamma')$ ^{103m}Rh Reaction with Liquid Scintillation Counting.
 T. Sekine, K. Yoshihara, I. Pavlicsek, L. Lakosi and A. Veres : J. Radioanal. Nucl. Chem. (L) **137** (1989) 57.
7. Energy Dependence of the Formation Yield of $^{51}\text{Cr}(\text{acac})_3$ in Recoil Implantation Using a Thin Film Technique.
 A. Miyakawa, T. Sekine and K. Yoshihara : Radiochimica Acta **48** (1989) 11.
8. Recoil Implantation Reaction in Binary Mixtures of Catcher Complexes and in Mixed Ligand Catchers.
 T. Sekine, M. Sano and K. Yoshihara : Radiochimica Acta **48** (1989) 17.
9. 北上山地, 折壁複合深成岩体の累帯構造.
 氏家真澄 : 岩鉱 **84** (1989) 226.
10. Genesis of the Extremely Low-K Tonalites from the Island Arc Volcanism.
 S. Kanisawa and T. Yoshida : Bull. Volcanol. **51** (1989) 346.
11. 東北本州弧第四紀火山岩類の研究.
 吉田武義 : 地質学論集 **32** (1989) 353.
12. 上部マントルかんらん岩中のクロムスピネルの主成分と微量成分について.
 青木謙一朗, 吉田武義 : 岩鉱特別号 **4** (1989) 163.
13. Petrology and Geochemistry of Pleistocene Dacitic and Rhyolitic Pyroclastic Flows from Southern Part of Northeast Honshu, Japan.
 K. Aoki, T. Yoshida and J. Y. Zhe : J. Min. Pet. Econ. Geol. **84** (1989) 1.
14. 日本海東緑久六島の鮮新世アルカリ玄武岩.
 福留高明, 吉田武義, 長尾敬介, 板谷徹丸, 田上誠二 : 岩鉱 **85** (1990) 10.

15. ゼイライトによる放射性セシウムとストロンチウムの除去.

三村 均, 山岸 力, 秋葉健一 : 日本化学会誌 **1989** (1989) 621.

IV 加速器・測定器

1. Observation of Coherent Synchrotron Radiation.

T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, O. Kommo, A. Kagaya, R. Kato, T. Kamiyama, Y. Torizuka, T. Nanba, Y. Kondo, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka and M. Ikezawa : Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 1245.

2. A New Strong Radiation Source by an Electron Linear Accelerator — Coherent Synchrotron Radiation.

T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, R. Kato, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka, T. Takahashi, H. Mishiro, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nanba and Y. Torizuka : Proc. 7th Symp. Accelerator Science Technology (Osaka, 1989) p. 195.

編 集 委 員

齋 藤 悌二郎 (委員長) 寺 沢 辰 生
新 村 信 雄 榭 本 和 義

核 理 研 究 報 告 第23卷 第1号

1990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 23 Number 1 June 1990

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