

RESEARCH REPORT  
OF  
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE  
TOHOKU UNIVERSITY

# 核 理 研 研 究 報 告

第 24 卷      第 2 号

1991 年 12 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

## 刊 行 規 定

1. 「核理研研究報告」は核理研共同利用による実験報告及びそれに直接関連した研究報告等を掲載します。
2. 本誌掲載の論文に対しては原則として審査を行なっておりません。  
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24巻 第2号 目次

## I 原子核物理

- I-1 A Study of  $^{12}\text{C}(\gamma, nn)$  Reactions at  $E_\gamma=32\sim 100$  MeV .....227

(核理研, 教養部\*, メルボルン大\*\*)

伊藤祥子, 今野 収, 前田和茂\*, 松山日出人, 佐々木隆興,  
須田利美\*, 菅原康弘, 竹谷元伸, 寺沢辰生,  
M. N. Thompson\*\*

- I-2  $^{14}\text{N}(\gamma, d_0)$  及び  $^{14}\text{N}(e, d_0)$  反応の研究 .....235

(山形大教養部, 核理研\*)

上野博昭, 種市 宏, 高橋良雄, 庄田勝房\*

## II 物性物理

- II-1 電子線照射したシリコンの複原子空孔 .....245

(金研)

河裾厚男, 末澤正志, 長谷川雅幸, 山口貞衛, 角野浩二

## III 放射化学

- III-1 東北地方沿岸の褐藻類中の主要及び微量元素の存在量  
—各種放射化分析による定量 .....255

(理学部化学)

岩田吉弘, 内藤宏之, 鈴木信男

- III-2 標準添加内標準法による鉄鋼中の微量元素の光量子放射化分析(2) .....265

(金研, 核理研\*)

長谷川大輔, 原 光雄, 榎本和義\*

- III-3 東北日本, 寒風火山の微量元素組成 .....274

(秋田大教育学部, 教養部\*, 理学部地学\*\*)

林 信太郎, 吉田武義\*, 高嶋幸生, 青木謙一郎\*\*

- Ⅲ-4 東北本州弧, 八幡平火山群におけるマグマ組成の時空変化 .....286  
 (理学部地学, 教養部\*, 能代高校\*\*)  
 大場 司, 吉田武義\*, 渡部 均\*\*, 青木謙一郎
- Ⅲ-5 2・3のスウェーデン原生代花崗岩類の微量成分についての予察的研究 .....312  
 (教養部, 信州大理学部\*, 秋田大鉱山学部\*\*, 理学部地学\*\*\*)  
 蟹澤聰史, 吉田武義, 石川賢一, 黒田吉益\*, 山田哲雄\*  
 森清寿郎\*, 丸山孝彦\*\*, 青木謙一郎\*\*\*
- IV 加速器・測定装置
- IV-1 コヒーレントな横断放射の観測 .....331  
 (科研, 工学部応用物理\*, 核理研\*\*)  
 高橋俊晴, 柴田行男, 伊師君弘, 金井利喜, 荒井史隆,  
 木村真一, 蔦谷 勉, 大坂俊明, 池沢幹彦, 近藤泰洋\*  
 加藤龍好\*\*, 庭野 智\*\*, 吉岡正裕\*\*, 浦沢茂一\*\*  
 小山田正幸\*\*
- IV-2 金属板によるコヒーレント放射光のシールド効果 .....338  
 (科研, 工学部応用物理\*, 核理研\*\*)  
 柴田行男, 伊師君弘, 高橋俊晴, 荒井史隆, 金井利喜  
 木村真一, 蔦谷 勉, 大坂俊明, 池沢幹彦, 近藤泰洋\*  
 加藤龍好\*\*, 庭野 智\*\*, 吉岡正裕\*\*, 浦沢茂一\*\*  
 小山田正幸\*\*
- IV-3 Development of New Electron Counter System for High Resolution  
 Photon Tagging .....343  
 (核理研, 教養部\*, メルボルン大\*\*)  
 佐々木隆興, 伊藤祥子, 今野 収, 前田和茂\*, 松山日出人  
 須田利美\*, 竹谷元伸, 寺沢辰生, M. N. Thompson\*\*
- IV-4 コアモニタとデジタル・オシロスコープによるビーム電流測定 .....348  
 (核理研, サイクロトロンRIセンター\*)  
 榎本和義, 柴崎義信, 山寺 亮\*

IV-5 A New Networked Automatic Measurement System for Radiochemical Study  
in the Laboratory of Nuclear Science .....354

(核理研, 工学部材料物性\*, 教養部\*\*, 金研\*\*\*)

榎本和義, 牛野俊一\*, 武藤正勝, 吉田武義\*\*, 八木益男\*\*\*

Research Report of Laboratory of Nuclear Science  
Volume 24, Number 2, December 1991  
Contents

I Nuclear Physics

- I - 1 A Study of  $^{12}\text{C}$  ( $\gamma$ , nn) Reactions at  $E_{\gamma}=32\sim 100\text{MeV}$  .....227  
Sachiko Ito, Osamu Konno, Kazushige Maeda, Hideto Matsuyama,  
Takaoki Sasaki, Toshimi Suda, Yasuhiro Sugawara, Motonobu  
Takeya, Tatsuo Terasawa and M. N. Thompson
- I - 2 Study of  $^{14}\text{N}$  ( $\gamma$ ,  $d_0$ ) and  $^{14}\text{N}$  (e,  $d_0$ ) Reactions .....235  
Hiroaki Ueno, Hiroshi Taneichi, Yoshio Takahashi and Katsufusa  
Shoda

II Material Science

- II - 1 Divacancy in Electron Irradiated Silicon .....245  
Atuo Kawasuso, Masashi Suezawa, Masayuki Hasegawa, Sadaei  
Yamaguchi and Koji Sumino

III Radiochemistry

- III - 1 Elemental Abundances of Brown Algae Collected in the North-eastern  
Districts of Japan—Determination with Several Activation Analyses .....255  
Yoshihiro Iwata, Hiroyuki Naitoh and Nobuo Suzuki
- III - 2 Photon Activation Analysis of Trace Elements in Steels by the  
Internal Standard Method Coupled with the Standard Addition  
Method(2) .....265  
Daisuke Hasagawa, Mitsuo Hara, Kazuyoshi Masumoto and  
Masuo Yagi
- III - 3 Trace Element Abundances of the Rocks from Kampo Volcano,  
Northeastern Japan .....274  
Shintaro Hayashi, Takeyoshi Yoshida, Yukio Takashima and  
Ken-ichiro Aoki

III - 4	Temporal and Spatial Variations of Magmatic Composition in Hachimantai Volcanoes, northeast Honshu, Japan .....	286
	Tsukasa Ohba, Takeyoshi Yoshida, Hitoshi Watanabe and Ken-ichiro Aoki	
III - 5	Preliminary Study of the Trace Element Geochemistry of Some Proterozoic Granites, Sweden .....	312
	Satoshi Kanisawa, Takeyoshi Yoshida, Ken-ichi Ishikawa, Yoshimasu Kuroda, Tetsuo Yamada, Toshiro Morikiyo, Takahiko Maruyama and Ken-ichiro Aoki	
IV	Accelerator and Instrumentation	
IV - 1	Observation of Coherent Transition Radiation .....	331
	Toshiharu Takahashi, Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Toshinobu Kanai, Fumitaka Arai, Shin-ichi Kimura, Tsutomu Tsutaya, Toshiaki Ohsaka, Mikihiro Ikezawa, Yasuhiro Kondo, Ryukou Kato, Satoshi Niwano, Masahiro Yoshioka, Shigekazu Urasawa and Masayuki Oyamada	
IV - 2	Effect of Metallic Shield on Coherent Synchrotron Radiation .....	338
	Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Toshinobu Takahashi, Fumitaka Arai, Toshinobu Kanai, Shin-ichi Kimura, Tsutomu Tsutaya, Toshiaki Ohsaka, Mikihiro Ikezawa, Yasuhiro Kondo, Ryukou Kato, Satoshi Niwano, Masahiro Yoshioka, Shigekazu Urasawa and Masayuki Oyamada	
IV - 3	Development of New Electron Counter System for High Resolution Photon Tagging .....	343
	Takaoki Sasaki, Sachiko Ito, Osamu Konno, Kazushige Maeda, Hideto Matsuyama, Toshimi Suda, Motonobu Takeya, Tatsuo Terasawa and M. N. Thompson	
IV - 4	Electron Beam Current Monitoring with Core and Digital Oscilloscope .....	348
	Kazuyoshi Masumoto, Yoshinobu Shibasaki and Akira Yamadera	

IV-5 A New Networked Automatic Measurement system for Radio-  
chemical Study in the Laboratory of Nuclear Science .....354

Kazuyoshi Masumoto, Shin-ichi Ushino, Masakatsu Mutoh  
Takeyoshi Yoshida and Masuo Yagi



# I. 原 子 核 物 理

## 核理研研究報告 第24巻 第2号 目次

## I 原子核物理

- I-1 A Study of
- $^{12}\text{C}(\gamma, nn)$
- Reactions at
- $E_\gamma=32\sim 100$
- MeV .....227

(核理研, 教養部\*, メルボルン大\*\*)

伊藤祥子, 今野 収, 前田和茂\*, 松山日出人, 佐々木隆興,

須田利美\*, 菅原康弘, 竹谷元伸, 寺沢辰生,

M. N. Thompson\*\*

- I-2
- $^{14}\text{N}(\gamma, d_0)$
- 及び
- $^{14}\text{N}(e, d_0)$
- 反応の研究 .....235

(山形大教養部, 核理研\*)

上野博昭, 種市 宏, 高橋良雄, 庄田勝房\*

## II 物性物理

- II-1 電子線照射したシリコンの複原子空孔 .....245

(金研)

河裾厚男, 末澤正志, 長谷川雅幸, 山口貞衛, 角野浩二

## III 放射化学

- III-1 東北地方沿岸の褐藻類中の主要及び微量元素の存在量
- 
- 各種放射化分析による定量 .....255

(理学部化学)

岩田吉弘, 内藤宏之, 鈴木信男

- III-2 標準添加内標準法による鉄鋼中の微量元素の光量子放射化分析(2) .....265

(金研, 核理研\*)

長谷川大輔, 原 光雄, 榎本和義\*

- III-3 東北日本, 寒風火山の微量元素組成 .....274

(秋田大教育学部, 教養部\*, 理学部地学\*\*)

林 信太郎, 吉田武義\*, 高嶋幸生, 青木謙一郎\*\*

- III-4 東北本州弧，八幡平火山群におけるマグマ組成の時空変化 ……………286  
 (理学部地学，教養部\*，能代高校\*\*)  
 大場 司，吉田武義\*，渡部 均\*\*，青木謙一郎
- III-5 2・3のスウェーデン原生代花崗岩類の微量成分についての予察的研究 ……………312  
 (教養部，信州大理学部\*，秋田大鉱山学部\*\*，理学部地学\*\*\*)  
 蟹澤聰史，吉田武義，石川賢一，黒田吉益\*，山田哲雄\*  
 森清寿郎\*，丸山孝彦\*\*，青木謙一郎\*\*\*
- IV 加速器・測定装置
- IV-1 コヒーレントな横断放射の観測 ……………331  
 (科研，工学部応用物理\*，核理研\*\*)  
 高橋俊晴，柴田行男，伊師君弘，金井利喜，荒井史隆，  
 木村真一，蔦谷 勉，大坂俊明，池沢幹彦，近藤泰洋\*  
 加藤龍好\*\*，庭野 智\*\*，吉岡正裕\*\*，浦沢茂一\*\*  
 小山田正幸\*\*
- IV-2 金属板によるコヒーレント放射光のシールド効果 ……………338  
 (科研，工学部応用物理\*，核理研\*\*)  
 柴田行男，伊師君弘，高橋俊晴，荒井史隆，金井利喜  
 木村真一，蔦谷 勉，大坂俊明，池沢幹彦，近藤泰洋\*  
 加藤龍好\*\*，庭野 智\*\*，吉岡正裕\*\*，浦沢茂一\*\*  
 小山田正幸\*\*
- IV-3 Development of New Electron Counter System for High Resolution  
 Photon Tagging……………343  
 (核理研，教養部\*，メルボルン大\*\*)  
 佐々木隆興，伊藤祥子，今野 収，前田和茂\*，松山日出人  
 須田利美\*，竹谷元伸，寺沢辰生，M. N. Thompson\*\*
- IV-4 コアモニタとデジタル・オシロスコープによるビーム電流測定 ……………348  
 (核理研，サイクロトロンRIセンター\*)  
 榎本和義，柴崎義信，山寺 亮\*

IV-5 A New Networked Automatic Measurement System for Radiochemical Study  
in the Laboratory of Nuclear Science .....354

(核理研, 工学部材料物性\*, 教養部\*\*, 金研\*\*\*)

榎本和義, 牛野俊一\*, 武藤正勝, 吉田武義\*\*, 八木益男\*\*\*

Research Report of Laboratory of Nuclear Science  
Volume 24, Number 2, December 1991  
Contents

I Nuclear Physics	
I - 1	A Study of $^{12}\text{C}$ ( $\gamma$ , nn) Reactions at $E_{\gamma}=32\sim 100\text{MeV}$ .....227 Sachiko Ito, Osamu Konno, Kazushige Maeda, Hideto Matsuyama, Takaoki Sasaki, Toshimi Suda, Yasuhiro Sugawara, Motonobu Takeya, Tatsuo Terasawa and M. N. Thompson
I - 2	Study of $^{14}\text{N}$ ( $\gamma$ , $d_0$ ) and $^{14}\text{N}$ (e, $d_0$ ) Reactions .....235 Hiroaki Ueno, Hiroshi Taneichi, Yoshio Takahashi and Katsufusa Shoda
II Material Science	
II - 1	Divacancy in Electron Irradiated Silicon .....245 Atuo Kawasuso, Masashi Suezawa, Masayuki Hasegawa, Sadaei Yamaguchi and Koji Sumino
III Radiochemistry	
III - 1	Elemental Abundances of Brown Algae Collected in the North-eastern Districts of Japan - Determination with Several Activation Analyses .....255 Yoshihiro Iwata, Hiroyuki Naitoh and Nobuo Suzuki
III - 2	Photon Activation Analysis of Trace Elements in Steels by the Internal Standard Method Coupled with the Standard Addition Method(2) .....265 Daisuke Hasagawa, Mitsuo Hara, Kazuyoshi Masumoto and Masuo Yagi
III - 3	Trace Element Abundances of the Rocks from Kampo Volcano, Northeastern Japan .....274 Shintaro Hayashi, Takeyoshi Yoshida, Yukio Takashima and Ken-ichiro Aoki

III - 4	Temporal and Spatial Variations of Magmatic Composition in Hachimantai Volcanoes, northeast Honshu, Japan .....	286
	Tsukasa Ohba, Takeyoshi Yoshida, Hitoshi Watanabe and Ken-ichiro Aoki	
III - 5	Preliminary Study of the Trace Element Geochemistry of Some Proterozoic Granites, Sweden .....	312
	Satoshi Kanisawa, Takeyoshi Yoshida, Ken-ichi Ishikawa, Yoshimasu Kuroda, Tetsuo Yamada, Toshiro Morikiyo, Takahiko Maruyama and Ken-ichiro Aoki	
IV	Accelerator and Instrumentation	
IV - 1	Observation of Coherent Transition Radiation .....	331
	Toshiharu Takahashi, Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Toshinobu Kanai, Fumitaka Arai, Shin-ichi Kimura, Tsutomu Tsutaya, Toshiaki Ohsaka, Mikihiko Ikezawa, Yasuhiro Kondo, Ryukou Kato, Satoshi Niwano, Masahiro Yoshioka, Shigekazu Urasawa and Masayuki Oyamada	
IV - 2	Effect of Metallic Shield on Coherent Synchrotron Radiation .....	338
	Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Toshinobu Takahashi, Fumitaka Arai, Toshinobu Kanai, Shin-ichi Kimura, Tsutomu Tsutaya, Toshiaki Ohsaka, Mikihiko Ikezawa, Yasuhiro Kondo, Ryukou Kato, Satoshi Niwano, Masahiro Yoshioka, Shigekazu Urasawa and Masayuki Oyamada	
IV - 3	Development of New Electron Counter System for High Resolution Photon Tagging .....	343
	Takaoki Sasaki, Sachiko Ito, Osamu Konno, Kazushige Maeda, Hideto Matsuyama, Toshimi Suda, Motonobu Takeya, Tatsuo Terasawa and M. N. Thompson	
IV - 4	Electron Beam Current Monitoring with Core and Digital Oscil- loscope .....	348
	Kazuyoshi Masumoto, Yoshinobu Shibasaki and Akira Yamadera	

IV-5	A New Networked Automatic Measurement system for Radio-chemical Study in the Laboratory of Nuclear Science .....	354
------	--	-----

Kazuyoshi Masumoto, Shin-ichi Ushino, Masakatsu Mutoh

Takeyoshi Yoshida and Masuo Yagi

# I. 原 子 核 物 理



A study of  $^{12}\text{C}(\gamma, nn)$  reaction  
at  $E_\gamma = 32 \sim 100 \text{ MeV}$

S. Ito, O. Konno, K. Maeda<sup>†</sup>, H. Matsuyama,  
T. Sasaki, T. Suda<sup>†</sup>, Y. Sugawara, M. Takeya,  
T. Terasawa, M. N. Thompson<sup>††</sup>

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

<sup>†</sup>*College of General Education, Tohoku University,  
Kawauchi, Sendai 980, Japan*

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

## §1. Introduction

A series of  $(\gamma, N)$  and  $(\gamma, NN)$  measurements on light nuclei has been carried out using tagged photons. The main purpose of these experiments was to investigate the photonuclear reaction mechanism above the giant dipole resonance (GDR) and below the photopion threshold. The phenomenological quasi-deuteron model (QDM) has been found to provide a reasonable interpretation of most of our experimental results on  $(\gamma, p)$ ,  $(\gamma, n)$  and  $(\gamma, pn)$  reactions. The measurements of  $(\gamma, pp)$  reactions<sup>1,2)</sup> have been carried out to investigate the reaction mechanism further. Since a pp or nn-pair in a nucleus does not absorb the dominant E1 radiation, the main reaction process for  $(\gamma, pp)$  and  $(\gamma, nn)$  reactions must involve a photon interacting with a pn-pair in the nucleus, followed by re-scattering of photonucleons due to final state interaction (FSI).

Several  $(\gamma, pp)$  measurements have been done with tagged photons in this energy region. Both of the angular correlation of the two photoprotons and missing energy spectra are consistent with the quasi-deuteron calculations including FSI simulated by the cascade model<sup>1)</sup>.

In our previous  $(\gamma, pp)$  experiments<sup>1,2)</sup>, the photon energy had to be restricted to higher than 70 MeV because of the high proton detection threshold ( $\sim 20 \text{ MeV}$ ). On the

other hand, in a  $(\gamma, nn)$  measurement, the detection threshold for neutrons can be set much lower (to a few MeV), so that we can measure the  $(\gamma, nn)$  cross section over a wide photon energy range.

This paper reports the first measurement of the  $^{12}\text{C}(\gamma, nn)$  reactions using tagged photons. The purpose of this experiment is to get spectra over a wide missing energy range and to obtain the angular correlation between the two photoneutrons over a broad angular range. The results are compared with the results from  $(\gamma, pn)$  and  $(\gamma, pp)$  reactions.

## §2. Experimental arrangement

The measurements of the  $^{12}\text{C}(\gamma, nn)$  and  $^{12}\text{C}(\gamma, nnp)$  cross sections were performed at photon energies between 32 and 103 MeV by using the photon tagging system of the Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University. A schematic diagram of the experimental arrangement is shown in Fig. 1. The collimated photon beam had a diameter of about 40mm at the target position and the tagged photon intensity was typically  $2 \times 10^5$  /sec.

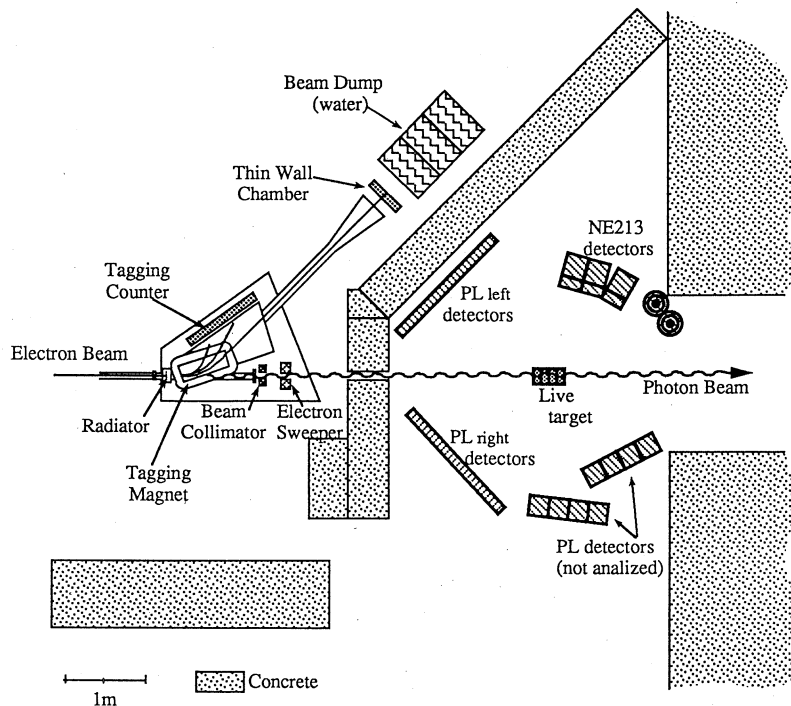


Fig. 1 Experimental arrangement for the  $^{12}\text{C}(\gamma, nn)$  and  $(\gamma, nnp)$  measurement.

Liquid scintillator NE213 was used as the  $^{12}\text{C}$  target, which acted also as the proton detector in the  $^{12}\text{C}(\gamma, nnp)$  measurement. Fig. 2 shows the live target, which consisted of four cells, each  $5.7\text{g}/\text{cm}^2$  thick. The use of liquid scintillator allowed separation of photoprotons from the background electrons by the pulse shape discrimination (PSD) method.

Photoneutrons were detected by groups of liquid NE213 and plastic scintillators, covering solid angles of  $150\text{msr}$  and  $1.1\text{sr}$ , respectively. The detection efficiencies were set to be equal for each group of neutron detectors. The arrangement is shown in Fig. 1 and sectional plans of the neutron

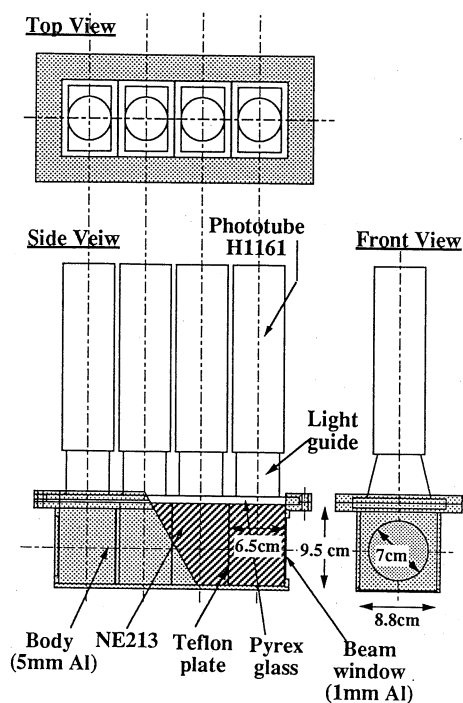


Fig. 2 Live target. Top, side and front views.

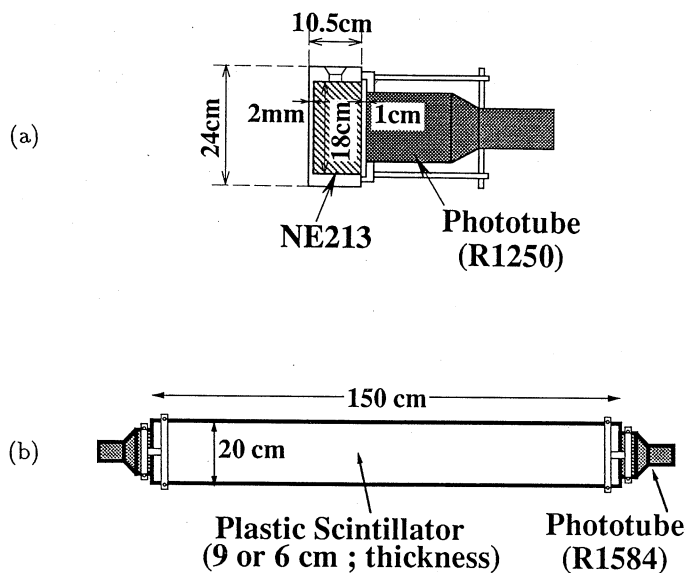


Fig. 3 Neutron detectors.

- (a) Liquid scintillator detector (NE213).  
 (b) Plastic scintillator detector (PL).

detectors are shown in Fig. 3. In this paper, only  $(\gamma, nn)$  events where one neutron was detected by a NE213 detector and the other neutron by a plastic detector (PL), are presented. The angular correlation between two photoneutrons was measured from 25 to 125 degrees by a combination of NE213 and  $PL_{left}$  and from 140 to 255 degrees by NE213 and  $PL_{right}$ . The PSD method was used to reject gamma rays in the NE213 detectors. The time of flight (TOF) method was used to determine the energy of photoneutrons and to reject the large numbers of prompt gamma events. The path length was about 1.5m. The timing resolution of the TOF method was 1.5 nsec (FWHM).

The trigger for data-taking was the coincidence of signals from a tagging counter and two neutron detectors (see Fig. 4).

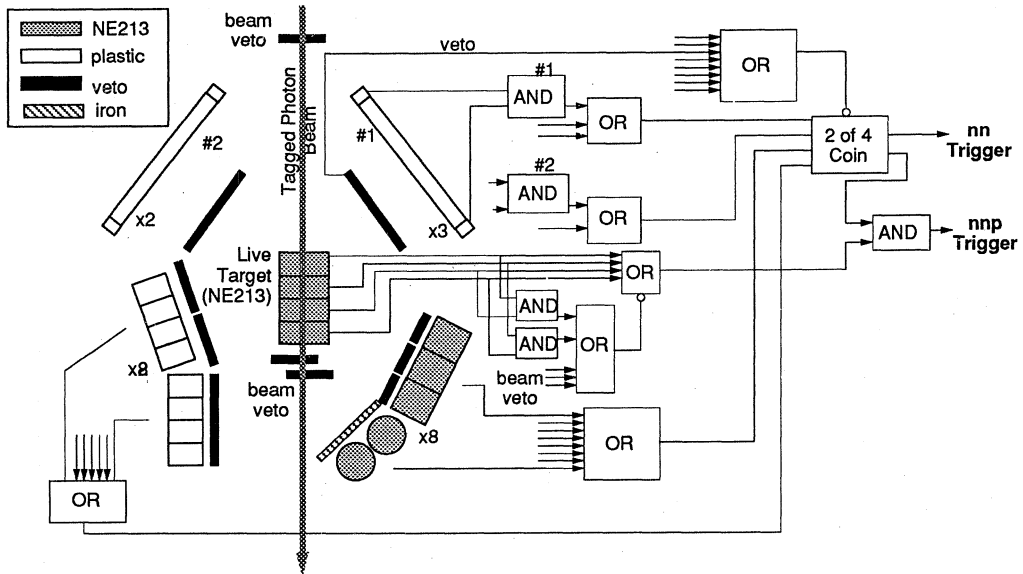


Fig. 4 Block diagram of the data acquisition.

### § 3. Results and Discussion

Those  $(\gamma, nn)$  events, where one neutron is detected by a liquid detector whereas the other by a plastic detector, were selected in the analysis. We analyzed events for photon energies above 41 MeV, corresponding to the minimum neutron energies in NE213 (7MeV) and in PL (5MeV). The  $Q$ -value of  $^{12}\text{C}(\gamma, nn)$  reaction is 31.8MeV.

A TOF spectrum measured by a NE213 neutron detector is shown in Fig. 5. True

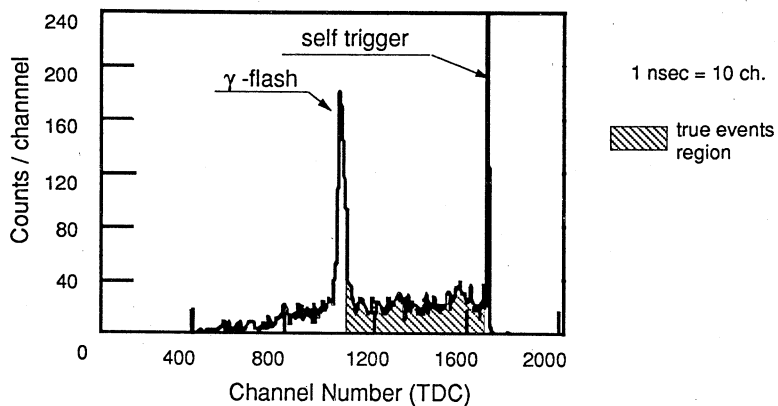


Fig. 5. TOF spectrum of events in a NE213 detector. For each measured event, the common start for the TDCs was taken from a electron detector, and the stop signal was taken from the neutron detector.

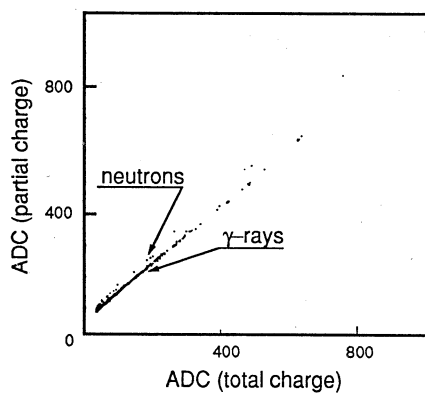


Fig. 6 Result of the PSD for the events in the true neutron region of the TOF spectrum shown in Fig. 5.

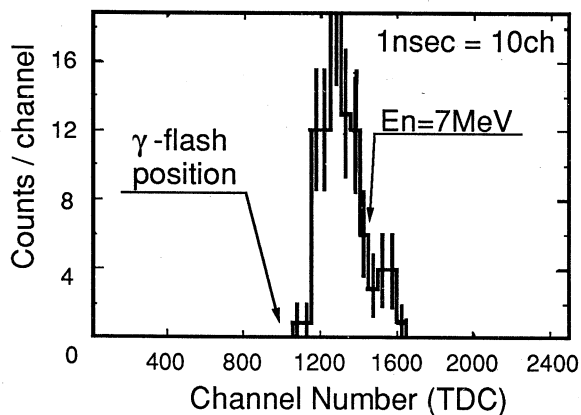


Fig. 7 TOF spectrum of the neutron events selected after PSD shown in Fig. 6 and in coincidence with tagging counters.

neutron events range over the shaded region. The result of the PSD of these events is plotted in Fig. 6. Neutron events can be clearly separated from gamma events. The TOF spectrum of the neutron events selected after PSD and in coincidence with tagging counters is shown in Fig. 7.

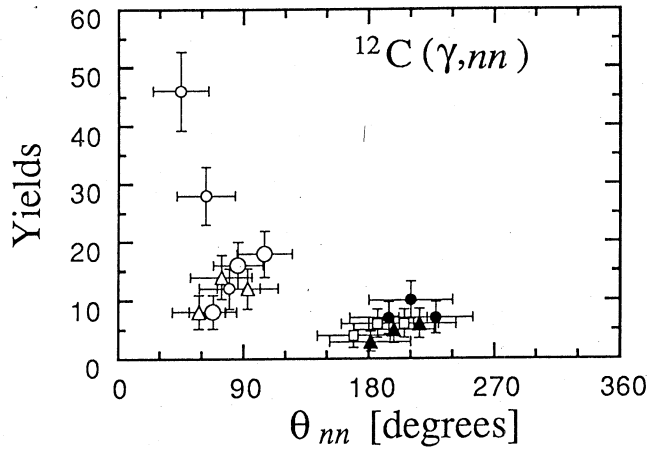


Fig. 8 Angular correlation for emission of two neutrons in  $^{12}\text{C}(\gamma, nn)$ .

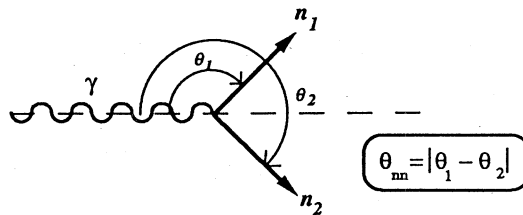


Fig. 9 Definition of the angle between two neutrons.

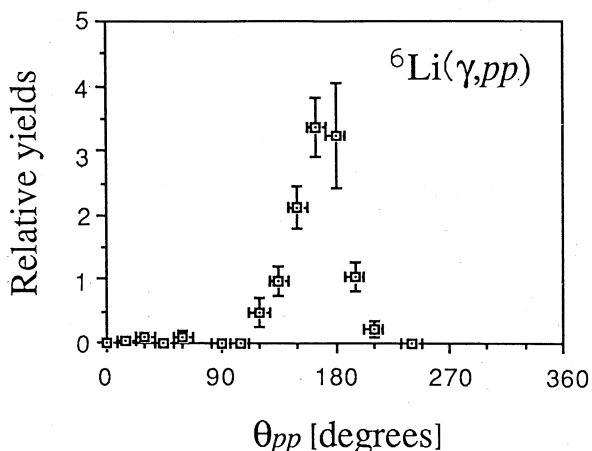


Fig. 10 Angular correlation for emission of two protons in  ${}^6\text{Li}(\gamma, pp)$ .

The angular correlation between two photoneutrons is shown in Fig. 8. The angle between two neutrons  $\theta_{nn}$  is defined as in Fig. 9. It turned out that many background events were counted by the plastic neutron detectors near the beam dump. It is difficult to say whether there is a peak around  $\theta_{nn} \leq 45^\circ$ , because the background contribution was not adequately controlled. It is worth noting that the yield for  $\theta_{nn} \approx 90^\circ$  is larger than the yield for  $\theta_{nn} \approx 180^\circ$ . This tendency is very different from the previous  ${}^6\text{Li}(\gamma, pp)$  results<sup>2)</sup> as shown in Fig. 10, which has a large bump at  $\theta_{pp} \approx 180^\circ$ . The same angular correlation was also found in  ${}^7\text{Li}$ ,  ${}^9\text{Be}(\gamma, pp)$ <sup>1,2)</sup>. One reason for the difference may be due to the different detection thresholds for protons and neutrons. The  $(\gamma, pp)$  measurements missed the data at low  $E_\gamma$  (tail of the GDR) where the reaction mechanism may be different. Although backgrounds are not rejected completely, Table. 1 shows the variation of the yields for  $\theta_{nn} \approx 90^\circ$  and  $\theta_{nn} \approx 180^\circ$  versus the threshold energy of the

Table. 1 Variation of the yields for  $\theta_{nn} \approx 90^\circ$  and  $\theta_{nn} \approx 180^\circ$  regions versus the threshold energy of neutron detection.

Energy threshold [MeV]		Yields	
NE213	Plastic (PL)	$\theta_{nn} \approx 90^\circ$	$\theta_{nn} \approx 180^\circ$
0	0	119	32
7	5	36	12
10	10	20	10
20	20	4	5

neutron detection. The yields for the two  $\theta_{nn}$  regions become comparable at  $E_{th} \sim 20\text{MeV}$ . Although the  $(\gamma, nn)$  result resembles the  $(\gamma, pp)$  result at  $E_{th} \sim 20\text{MeV}$ , it seems there are still some differences between the two reactions.

#### § 4. Conclusion

In summary, the angular distributions for the  $^{12}\text{C}(\gamma, nn)$  have been obtained in the energy range  $41\text{MeV} \leq E_{\gamma} \leq 103\text{MeV}$ . A larger yield was measured for  $\theta_{nn} \simeq 90^{\circ}$  rather than for  $\theta_{nn} \simeq 180^{\circ}$ , although the statistics and energy resolution were not good. The angular correlation for emission of two neutrons is substantially different from that for emission of two protons in the  $(\gamma, pp)$  reaction.

#### References

- 1) T. Suda *et al.* : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **24** (1991) 38.
- 2) S. Ito *et al.* : Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **23** (1990) 1.



$^{14}\text{N}(\gamma, d_0)$  及び  $^{14}\text{N}(e, d_0)$  反応の研究

山形大教養部, 核理研\*

上野博昭・種市 宏・高橋良雄

庄田勝房\*

## §1. はじめに

$Z=N$ の核の  $(\gamma, d)$ ,  $(\gamma, \alpha)$  反応はE1遷移が禁止されるために, E1遷移以外のE0, E2等の反応が現れる。我々の以前の $^{14}\text{N}(e, d_0)^{12}\text{C}$ の研究<sup>1)</sup>では, 角分布を多重極に分析することによって, E1成分( $c_1$ ), E2成分( $c_2$ )と, それ以外にE0を含む成分( $c_0$ )に分けて, 励起エネルギーの関数にして示した。それでは, E1成分, E2成分ともに共鳴の構造を示し, E0を含む成分も構造を持っている。E0遷移は  $(e, d_0)$  反応では起きるが,  $(\gamma, d_0)$  反応では起きないので,  $(\gamma, d_0)$  反応からE1及びE2相互作用の断面積を求め, 仮想光子理論<sup>2)</sup>で  $(e, d_0)$  反応に焼き直し, 残りの部分からE0相互作用の断面積を導き出すという方法で,  $^{14}\text{N}(\gamma, d_0)$  と  $^{14}\text{N}(e, d_0)$  反応のデータを同時に得て, E0相互作用を調べることを考えた。解析に関する理論の研究<sup>3)</sup>もある。

文献1)に出ている  $c_0$ の構造は, 励起エネルギーが約21MeVのところを山をもつので, このエネルギーと, その上下数MeVの範囲について調べる必要がある。そのうち, 山の位置を調べるためのエネルギー  $E_e=23\text{MeV}$  と, その上の位置を調べるために,  $E_e=26\text{MeV}$  の $^{14}\text{N}$ に対する  $(\gamma, d_0)$  と  $(e, d_0)$  の実験をしたので報告する。尚,  $E_e=21\text{MeV}$  についても, 近いうちに実験の予定である。

## §2. 実験および結果

$^{14}\text{N}$ 核のターゲットは, 厚さ $19.9\text{mg}/\text{cm}^2$ の窒化ホウ素(NB)の薄板を用いた。入射ビームは,  $(\gamma, d_0)$  反応では, ターゲット枠にTaのラジエーターを取りつけて  $(\gamma+e)$  のビームとし, ターゲットに当てた。放出された粒子は, 焦点面にSSDを取りつけたBDMで測定した。こうして得られた  $(\gamma+e, d)$  のデータから  $(e, d)$  のデータを差し引いて,  $(\gamma, d)$  のデータを得た。 $E_e=23\text{MeV}$  の  $(\gamma+e, d)$  の実験については簡単に報告<sup>4)</sup>してある。

$E_e=23\text{MeV}$ の角分布は  $\theta=42^\circ-138^\circ$ の間で11点測定した。また,  $E_e=26\text{MeV}$ は  $\theta=$

30°-140°の間で9点測定した。

データ処理は文献4)に出ている方法で行った。 $^{14}\text{N}(e, d_0)$ と $^{14}\text{N}(\gamma, d_0)$ の角分布を第1~第2図に示す。図中の $^{14}\text{N}(\gamma, d_0)$ の微分断面積は $d\sigma/d\Omega$  ( $\mu\text{b}/\text{Sr}$ )で、 $^{14}\text{N}(e, d_0)$ は $d^2\sigma/d\Omega \cdot dE$  ( $\text{nb}/\text{Sr} \cdot \text{MeV}$ )である。実線は4次までのルジャンドル級数( $\sum a_i p_i$ )に最小自乗法で合わせたものである。 $(e, d_0)$ と $(\gamma, d_0)$ の角分布を比較すると、形が違ってくる。また、どちらも $d$ のエネルギー( $E_d$ )とともに角分布の形が変化するの分かる。

### §3. 解析と考察

$^{14}\text{N}$ の $(\gamma, d_0)$ 反応及び $(e, d_0)$ 反応の角分布のルジャンドル級数の係数 $a_1 \sim a_4$ の $a_0$ に対する比を第3図に示す。 $(\gamma, d_0)$ では、 $a_1/a_0$ と $a_4/a_0$ は殆ど単調で構造を示さないが、 $a_2/a_0$ と $a_3/a_0$ は $E_d=10\text{MeV}$ 近傍に構造がある。 $(e, d_0)$ は、 $a_1/a_0$ と $a_3/a_0$ は殆ど単調で構造を持たないが、 $a_2/a_0$ と $a_4/a_0$ は $E_d=10\text{MeV}$ 近傍で構造を示す。

次に、Gibson等<sup>3)</sup>の理論で角分布を解析する。 $(\gamma, d_0)$ 反応をE1, E2相互作用のみで断面積を表すと、

$$\begin{aligned} d\sigma/d\Omega(E1) &= 2\pi\alpha\rho\kappa|M_1|^2\sin^2\theta, \\ d\sigma/d\Omega(E1-E2) &= 2\pi\alpha\rho\kappa^2\{2\text{Re}[M_1, M_2]\}\sin^2\theta\cos\theta, \\ d\sigma/d\Omega(E2) &= 2\pi\alpha\rho\kappa^3|M_2|^2\sin^2\theta\cos^2\theta \end{aligned} \quad (1)$$

となる。ここで、 $\alpha=e^2=1/137$ ,  $\kappa$ は光子の運動量である。これ等の式を簡略化して表すと、

$$A\sin^2\theta+B\sin^2\theta\cos\theta+C\sin^2\theta\cos^2\theta \quad (2)$$

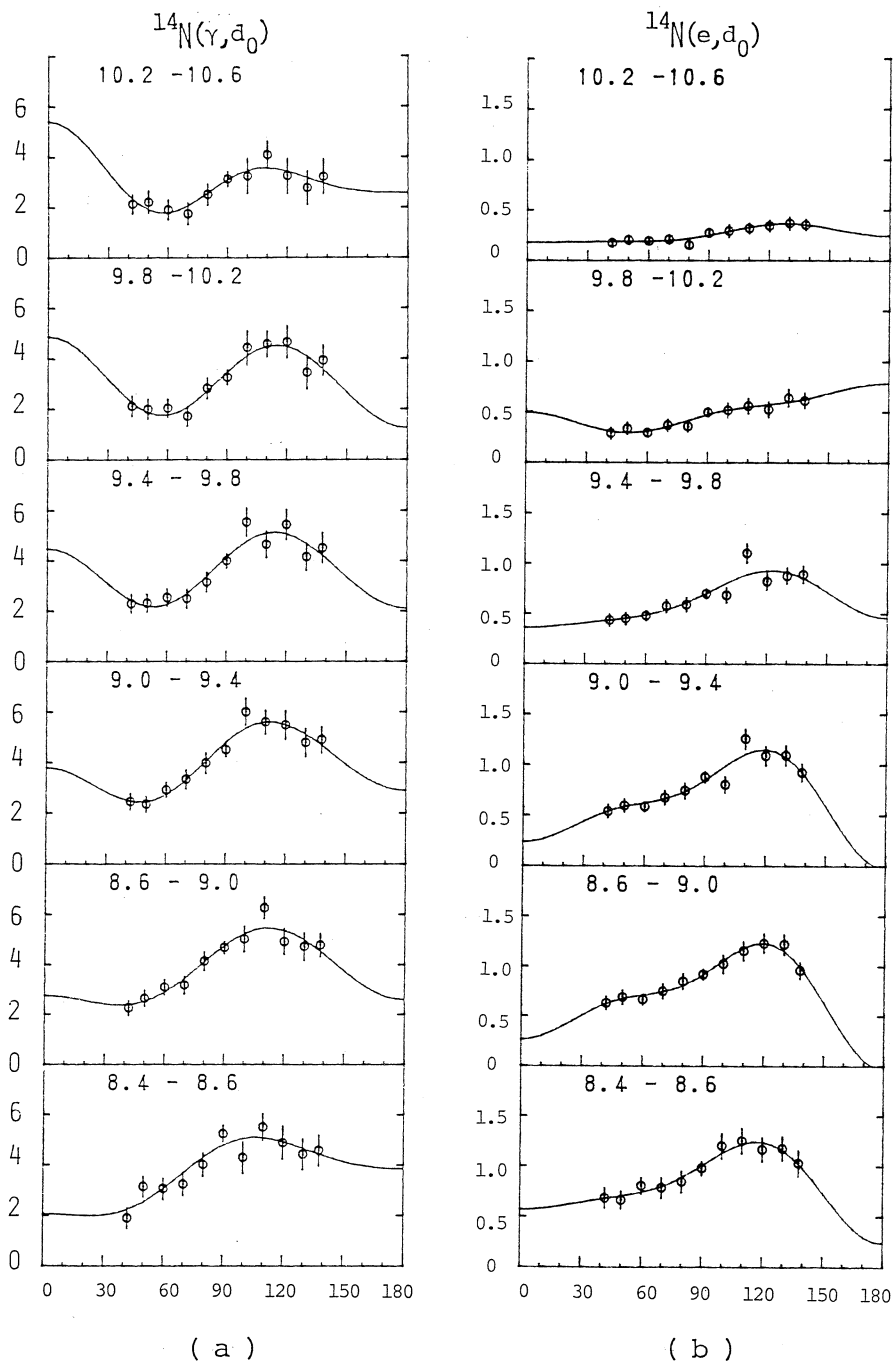
と書くことができる。

$(e, d_0)$ 反応にはE0成分も入り得るので、 $(\gamma, d_0)$ よりも複雑になる。その断面積を簡略化した式で書くと、

$$\bar{A}\sin^2\theta+\bar{B}\sin^2\theta\cos\theta+\bar{C}\sin^2\theta\cos^2\theta+\bar{D} \quad (3)$$

となる。係数 $A, B, C$ は(3)式の係数 $\bar{A}, \bar{B}, \bar{C}$ に対応し、 $\bar{D}$ はE0成分を示す。E0-E1の干渉があると、それは $\bar{E}\cos\theta$ の形で(3)式に加わることになる。

$^{14}\text{N}(\gamma, d_0)$ の角分布の解析は、(2)式で合わせる。それぞれの $E_d$ で $A, B, C$ をパラメータとして、第1図(a), 第2図(a)に最適になるようにして合わせた。それを第4図(a), 第5図(a)に示す。図中の一山の曲線はE1成分(A項)で、二山の曲線はE2成分(C項)を表す。こ

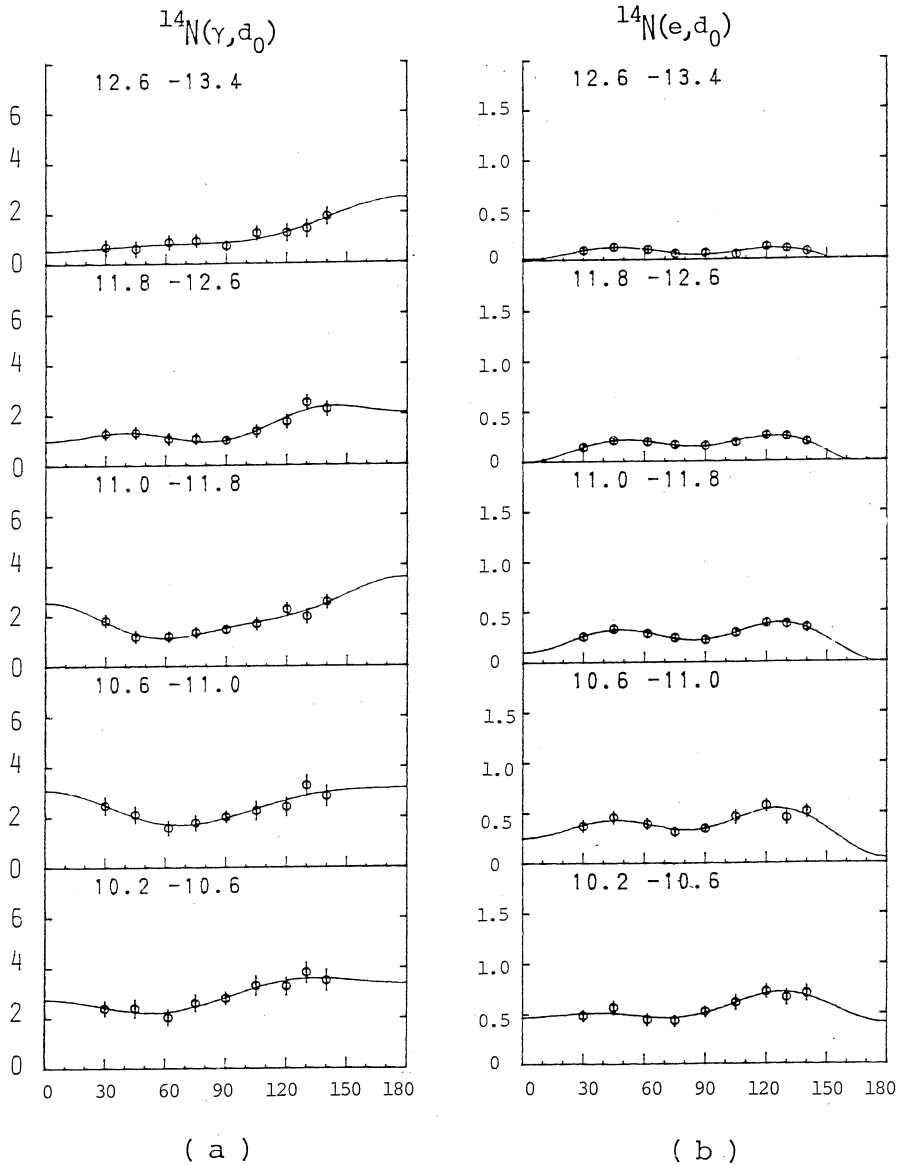


第1図  $E_0=23\text{MeV}$  における角分布。

$^{14}\text{N}(\gamma, d_0)$  は(a)で,  $^{14}\text{N}(e, d_0)$  は(b)。図中の数字の組は  $E_d$  (MeV) の範囲を示す。実線の曲線はルジャンドル級数 ( $\sum a_i p_i$ ) に最小自乗法で合わせたもの。縦軸の数値は(a)は  $d\sigma/d\Omega$  ( $\mu\text{b}/\text{Sr}$ ), (b)は  $d^2\sigma/d\Omega \cdot dE$  ( $\text{nb}/\text{Sr} \cdot \text{MeV}$ ) を表す。

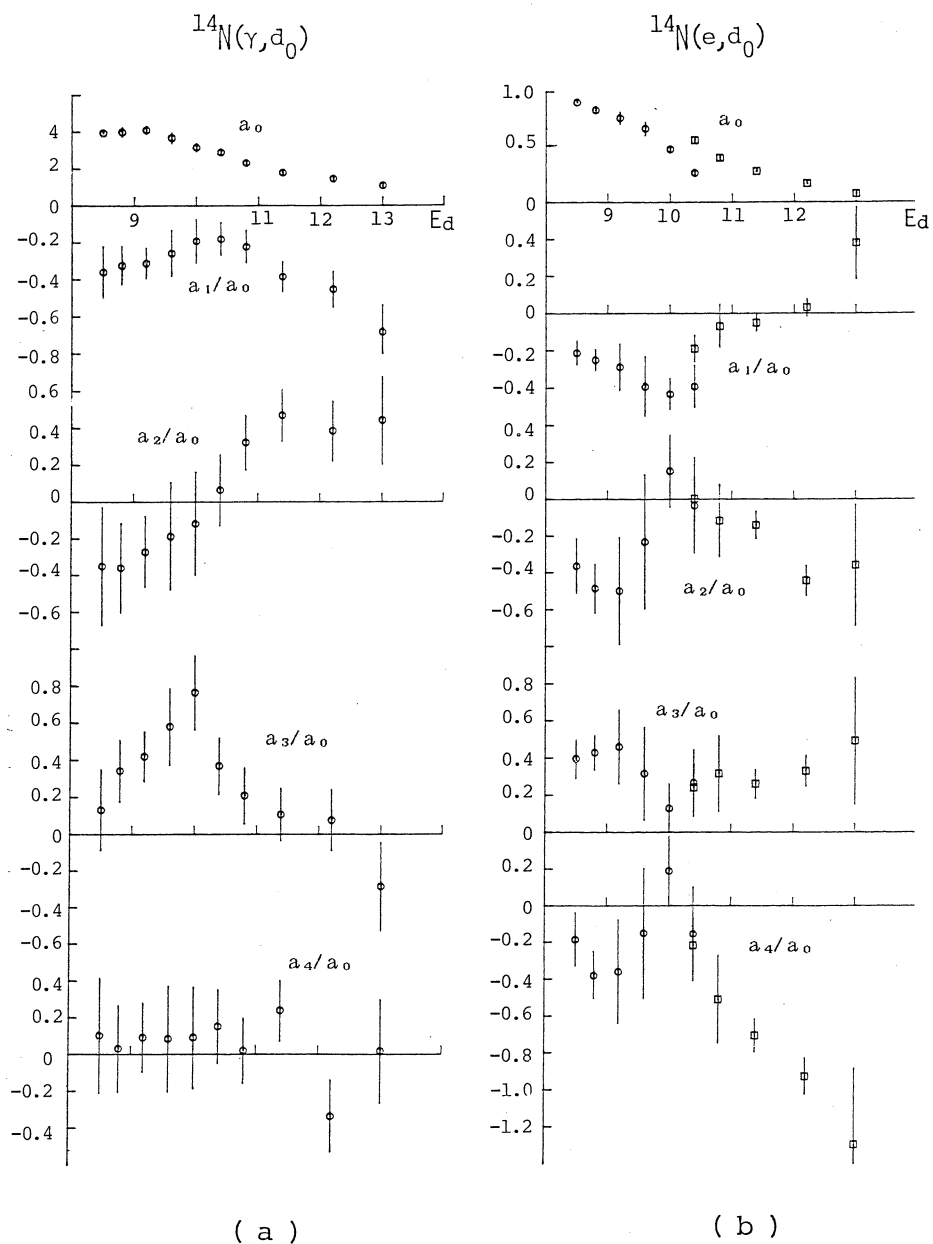
のようにして、E1, E2の相互作用の断面積を求めることができた。

$^{14}\text{N}(e, d_0)$ の角分布の解析は、 $(\gamma, d_0)$ で求めたE1, E2の断面積に、それぞれE1, E2の仮想光子数をかけて $(e, d_0)$ の断面積にする。それを、(3)式の $\bar{A}$ ,  $\bar{B}$ ,  $\bar{C}$ に代入して、図1(a), 図2(a)の角分布に合わせると、実験値よりも大きくなる。それで、同じ電子エネルギー

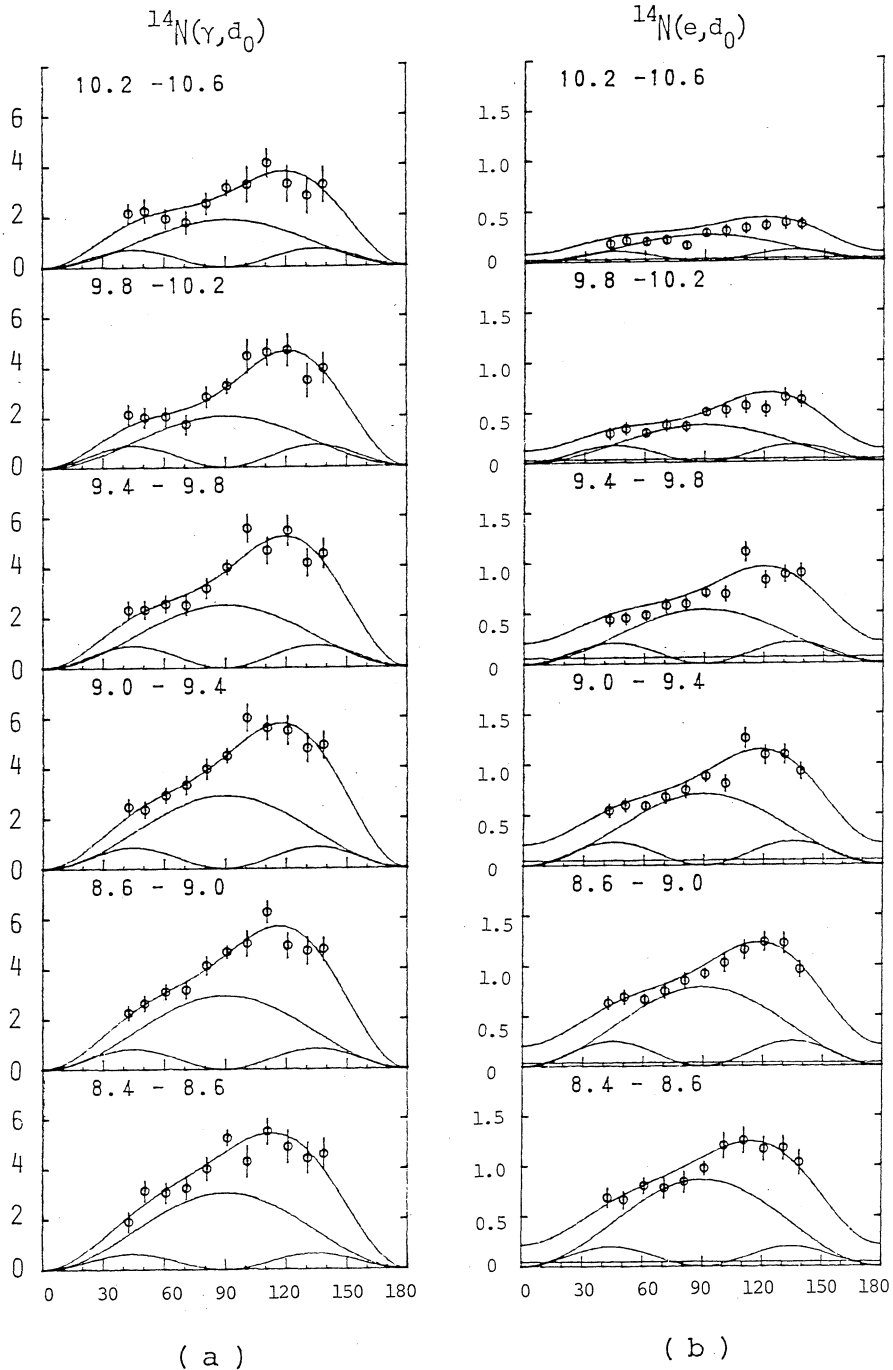


第2図  $E_e=26\text{MeV}$ の角分布。

(a)は $(\gamma, d_0)$ , (b)は $(e, d_0)$ の角分布。他は第1図と同じ。



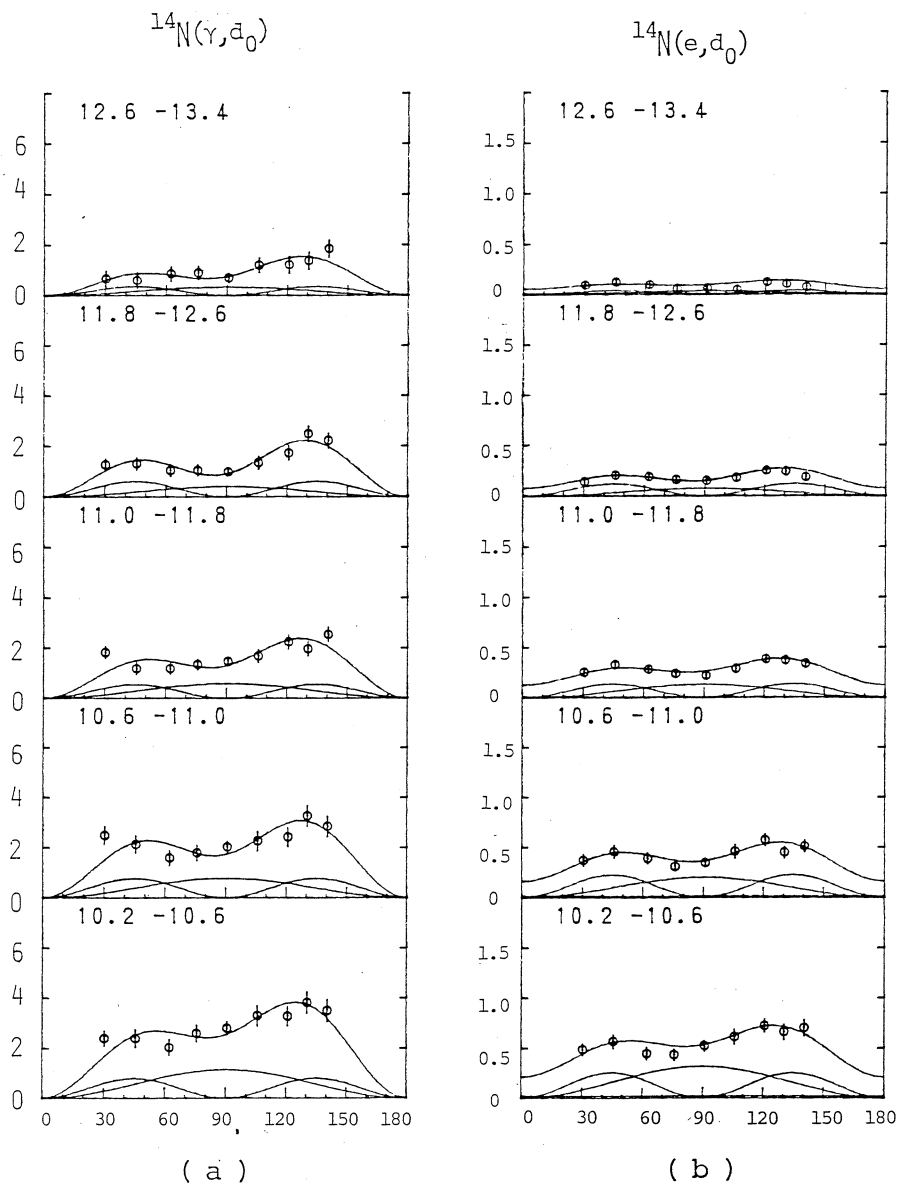
第3図 第2図～3図の角分布のルジャンドル級数の係数  $a_i$  の  $a_0$  に対する比を  $E_d$  (MeV) の関数にして示したものである。一番上のグラフは  $a_0$ 。(b)の○は  $E_e = 23\text{MeV}$ , □は  $E_e = 26\text{MeV}$  のデータを示す。



第4図  $E_0=23\text{MeV}$  の角分布。

(a)は第1図(a)の角分布を本文の(2)式で合わせたもの。図中の一山の曲線はA項, 二山の曲線はC項を示す。(b)は第1図(b)の角分布を(3)式で合わせたもの。合わせ方については本文を参照のこと。図中の一山の曲線はA項, 二山の曲線はC項, 水平の線はD項を表す。

の角分布には、共通因子を  $\bar{A}$ ,  $\bar{B}$ ,  $\bar{C}$  にかけて実験値より小さくし、 $\bar{D}$  を加えて第 1 図(b), 第 2 図(b)の角分布に合わせた。その結果を第 4 図(b), 第 5 図(b)に示した。一山, 二山の曲線は, それぞれ  $\bar{A}$  項,  $\bar{C}$  項を示し, 水平な線は  $\bar{D}$  項で,  $E_0$  成分を表す。23MeV の第 4 図(b)では, まだ計算値が実験値を越える角分布がある。 $E_d=10.2-10.6$  の角分布は  $\bar{D}$  部分が殆ど含まれていなくて実験値を越えているので, 計算値をもっと小さくする共通因子をかける必要がある。



第 5 図  $E_0=26\text{MeV}$  の角分布。他は第 4 図の説明と同じ。

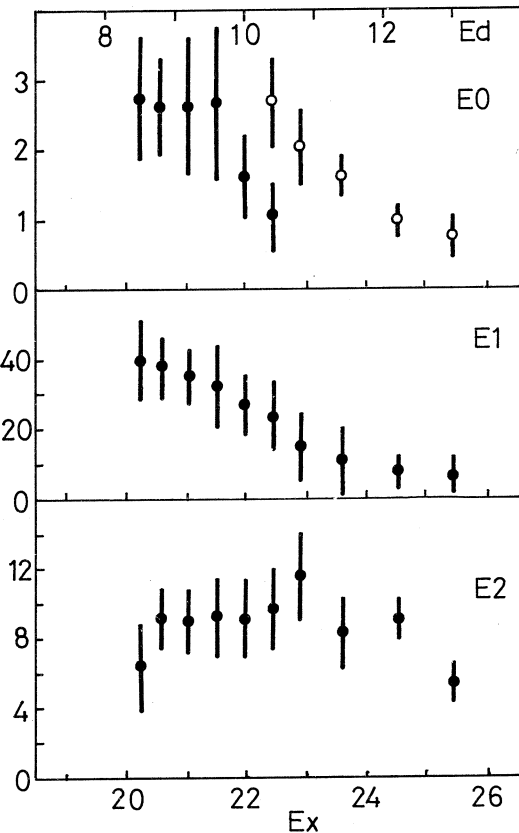
26MeVの第5図(b)は大体計算値と実験値は合っていると見てよい。

こうして分離されたE0, E1, E2成分を励起エネルギーの関数にすると、第6図のようになる。E1, E2は仮想光子があるので $(\gamma, d_0)$ の断面積として表せるが、E0は $(e, d_0)$ の断面積なので、入射電子エネルギーに依存するために、23MeVと26MeVの2つの曲線になり、継げないが、23MeVの曲線には、 $E_d = 8.8 - 10.0$ に肩があり、明らかに構造を示す。

以前の $^{14}\text{N}(e, d_0)$ の角分布の解析は、E0, E1, E2成分を3つのパラメータとして分離したが、今回の実験はE1, E2成分を $(\gamma, d_0)$ で決めて2つのパラメータを減らし、 $(e, d_0)$ をE0のパラメータだけで解析しており、一段進んだ実験といえる。

今後の課題は、一つには、23MeVの $\bar{D}$ にみえる構造が、もっと下の励起エネルギーではどうなっているかの実験データを得ること、E0の仮想光子を実験的に求めて、異なる電子エネルギーの

E0を一つの励起関数として表し、E0の共鳴を調べることである。



第6図 角分布より分けられたE0, E1, E2成分の全断面積を励起エネルギーの関数にして示す。E0は $(e, d_0)$ の断面積で、単位は $\sigma$  (nb/MeV), E1, E2は $(\gamma, d_0)$ の断面積で、単位は $\sigma$  ( $\mu\text{b}$ )。E0の●印は照射電子エネルギー23MeV, ○印は26MeVを示す。

この実験を行うに当って、御援助をいただきました核理研の方々に感謝いたします。



## 参 考 文 献

- 1) H. Taneichi, H. Ueno, K. Shoda, Y. Kawazoe and T. Tsukamoto : Nucl. Phys. **A 350** (1980) 157.
- 2) W. C. Barber and T. Wiedling : Nucl. Phys. **18** (1960) 575.
- 3) B. F. Gibson and H. T. Williams : Nucl. Phys. **A 163** (1971) 193.
- 4) 種市 宏, 上野博昭, 加藤静吾, 庄田勝房, 川添良幸, 塚本龍男 : 核理研研究報告 **14** (1981) 28.

## Ⅱ. 物 性 物 理

## 電子線照射したシリコンの複原子空孔

金研

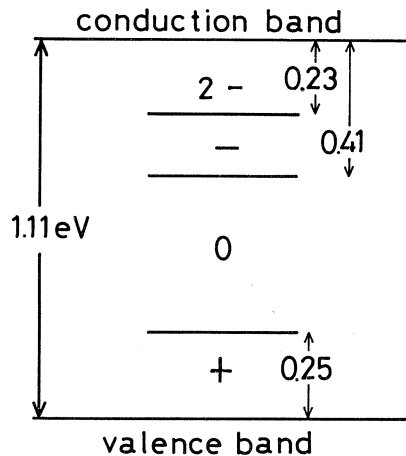
河裾厚男・末澤正志・長谷川雅幸  
山口貞衛・角野浩二

## §1. はじめに

シリコン (Si) の照射損傷の研究は1950年代に始まり, その初期の段階では特に電子線による照射誘起欠陥が各種の測定法を用いて詳細に調べられた<sup>1-4)</sup>。この種の研究では照射により「どのような欠陥が導入されるのか?」そして「どれ程の量導入されるのか?」の2点を知ることが重要である。

Si中の複原子空孔は室温での高速粒子線照射によって容易に作り出されることが見いだされた。複原子空孔とは, 規則正しく配列したSi結晶から隣合う2つのSi原子が抜けた状態である。その周囲の原子は系のエネルギーが最小になるように歪む。その歪み方が複原子空孔(以下  $V_2$  と略記)の荷電状態及び温度に依存することが知られている。これはヤーン・テラー効果により捕獲されている電子のエネルギー準位が分裂すること, 及びその分裂巾と熱エネルギーの大小関係で説明されている。

半導体中の不純物や欠陥の性質のうち最も重要なものの一つはそれが禁制帯中に持つエネルギー準位である。 $V_2$ のそれは第一図に示されている。これらの値は光伝導<sup>5)</sup>, 光吸収<sup>3)</sup>及びDLTS法<sup>6, 7)</sup>によって得られた。ここで, (2-), (1-), (0), (+) はそれぞれ  $V_2$  が (-2) 価, (-1) 価, 中性, (+1) 価に帯電していることを示す。これらの荷電状態のうち (+), (-) 状態においては  $V_2$  の所に不対電子が存在するので  $V_2$  まわりの原子配置や電子状態が電子スピン共鳴 (ESR) 法<sup>1)</sup> や電子・核二重共鳴 (ENDOR) 法<sup>3)</sup> により詳しく調べられた。しかし, 不対電子を持たない (0) 及び (2-) 状態の  $V_2$  の微



第1図 複原子空孔が禁制帯中に有する荷電状態及びそのエネルギー準位。

構造や電子状態はまだ解明されていない。それらを解明するために本研究では陽電子消滅法を採用した。

陽電子消滅法は最初主に金属中の格子欠陥研究の為に用いられ、1975年頃から半導体中の欠陥研究にも使われるようになった。陽電子が発生してから電子と対消滅するまでの時間を陽電子寿命という。陽電子が格子欠陥に捕獲されその付近の電子と対消滅するとき、欠陥周りの電子密度は一般に完全結晶のものとは異なっているので、その寿命も完全結晶中のそれとは異なってくる。特に、欠陥が空孔型の場合その付近における電子密度がバルク中のものより小さいので陽電子寿命は長くなる。また、原子空孔クラスターが大きくなるとそれは長くなる。Si中の種々の欠陥による陽電子寿命の測定値が表1<sup>9)</sup>に示されている。陽電子寿命測定で得られるパラメータには寿命 $\tau$ の他に捕獲率 $\kappa$ がある。これは単位時間にどれほどの陽電子が捕獲されるかという量で、通常欠陥濃度 $C$ に比例( $\kappa = \mu C$ )している。従って、その欠陥に固有の捕獲率は $\mu$ で表現される。これを比捕獲率という。

第1表 種々の欠陥の寿命値。

Defect	bulk	V <sub>1</sub>	V <sub>2</sub>	V <sub>4</sub>	V <sub>5</sub>	VO	V <sub>2</sub> O	VP
Lifetime (ps)	220	260—270	310—325	390—450	480—520	225	270	250

第1図から知られるようにフェルミ・レベルを制御する事によりV<sub>2</sub>の各種の荷電状態が実現される。陽電子は正の電荷を有するからV<sub>2</sub>による捕獲率はその荷電状態に依存することが予想される。そこで本研究では、まず各種の荷電状態による陽電子寿命を測定することにした。フェルミ・レベルを決定するためにホール効果も測定した。また、V<sub>2</sub>による光吸収スペクトルも測定した。

## §2. 実験方法

試料は全てFZ-Siでフェルミ・レベルを制御する目的から各種のドーパ量のもの(第2表)を用いた。照射は15MeVの電子線(照射温度:室温)により行われた。照射量は $0.15 \sim 3.0 \times 10^{17} \text{ e}^- / \text{cm}^2$ である。(第2表)

ホール効果測定はvan der Pauw法を用いて行われ、照射前後の自由電子濃度及びフェルミ・レベルが決定された。赤外吸収測定(測定波数範囲:  $4000 - 250 \text{ cm}^{-1}$ , 測定温度: 6 K)は

FTIR を用いて行われ、これにより複原子空孔に由来する光吸収ピークの照射量依存性が求められた。陽電子寿命測定は通常のスペクトロメータにより10~300Kの温度範囲で行われた。

第2表 試料及び照射量。

P-dope ( $\text{cm}^{-3}$ )		B-dope ( $\text{cm}^{-3}$ )		fluence ( $\times 10^{17} \text{e}^- / \text{cm}^2$ )
$1.5 \times 10^{16}$	$7.0 \times 10^{14}$	$8.0 \times 10^{15}$	$6.0 \times 10^{14}$	
...	PW1	...	BW1	3.0
...	PW2	...	BW2	2.0
PH1	...	BH1	...	1.5
...	PW3	...	BW3	1.0
PH2	PW4	BH2	...	0.3
PH3	PW5	BH3	...	0.15

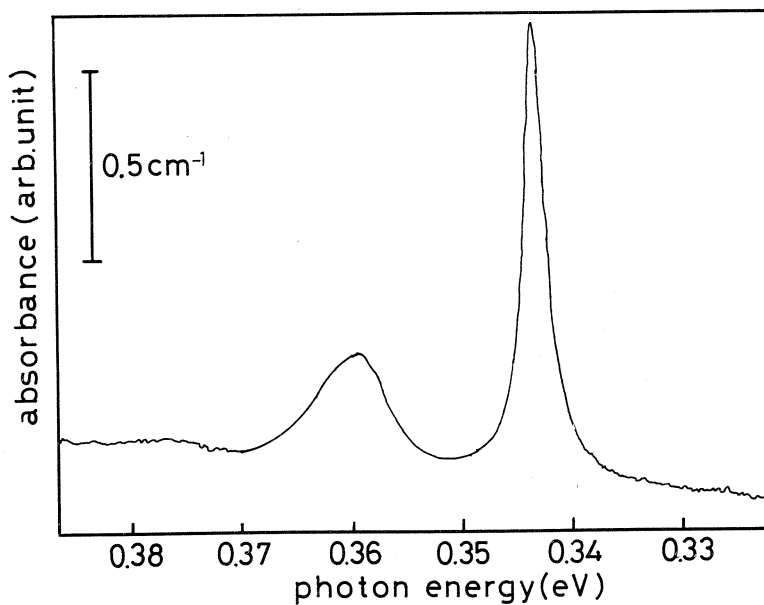
### §3. 結果及び考察

第3表はホール効果測定により決定された複原子空孔の荷電状態を示す。6 Kのものは高温に於けるフェルミ・レベルを外挿することにより推定された。第2 - A図は6 Kでの赤外吸収スペクトルを、又第2 - B図はその吸収係数の照射量依存性を示す。第2 - A図の光吸収係数は  $V_2^-$  に付随した電子の遷移により引き起こされる。この図より試料 PW, BW では吸収係数が照射量にほぼ比例して増加するのに対し試料 PH では照射量が小さい時急激に増加した後、

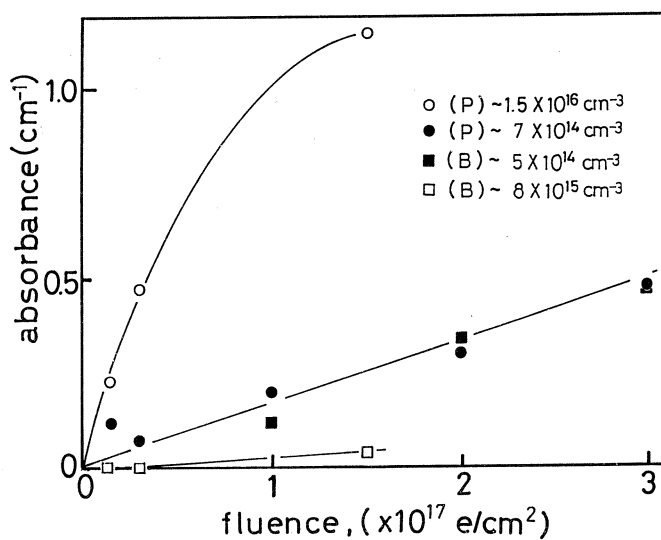
第3表 各荷電状態の存在比。

(単位: %)

Sample	(R T)				(6 K)			
	2 -	1 -	0	+	2 -	1 -	0	+
PH 1	50	50	0	0	100	0	0	0
PH 2	76	24	0	0	100	0	0	0
PH 3	83	17	0	0	100	0	0	0
PW 1 - 3	0	0	100	0	0	0	100	0
BW 1 - 3	0	0	100	0	0	0	100	0
BH 1	0	0	10	90	0	0	0	100
BH 2, 3	0	0	0	100	0	0	0	100



第2 - A図 複原子空孔に由来する赤外吸収スペクトル0.34eV ピーク。  
(試料 PH 1 のもの)



第2 - B図 0.34eV ピークの光吸収係数の照射量依存性。

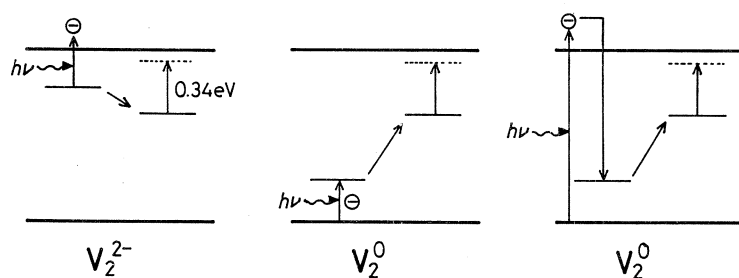
照射量が増加すると飽和する傾向にあること、また、試料BHでは低照射量領域では全く観察されず、 $1.5 \times 10^{17} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ で僅かに見られるだけであること、また、同程度の照射量での吸収係数は試料PHとPW, BWで大きく異なること、等が知られる。

この結果と第3表を比較することにより、 $V_2^+$ では本測定波長範囲に於ける光吸収は起こらないと結論される。また、PW, BWの場合は $V_2$ の濃度は照射量に比例して増加するがPHの場合は調べられた照射量の範囲で飽和する傾向にある。従って、 $V_2$ の濃度は次式で与えられる。

$$C(\phi) = \eta \cdot \phi \quad \text{PW, BW}$$

$$C(\phi) = \frac{B}{\eta} (1 - \exp(-\beta \phi)) \quad \text{PH}$$

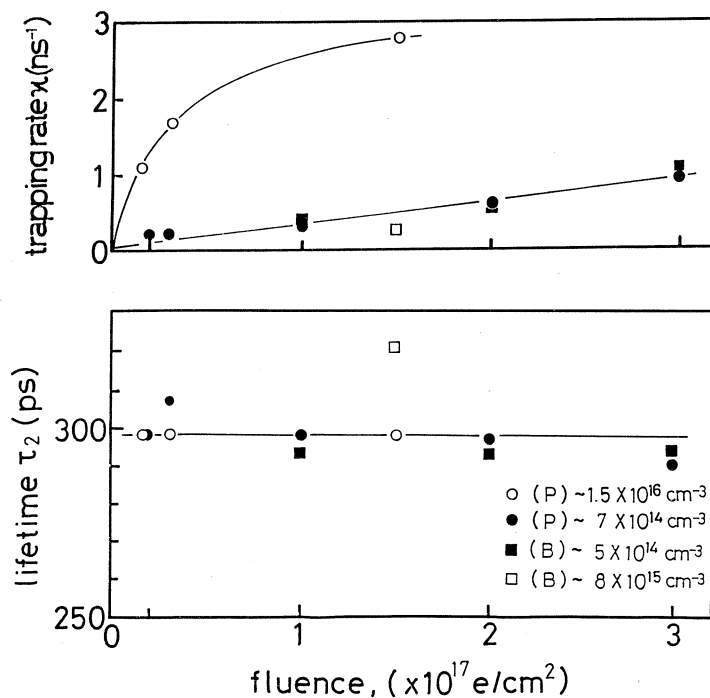
ここでB及び $\beta$ の値は光吸収測定の結果から求められた。一方、 $\eta$ は室温に於ける自由電子の減少率から求められた。この様に試料によって $V_2$ の生成は異なった振る舞いを示す。ところで本実験で用いた不純物添加量はあまり多くないので、形成される複原子空孔量は少なくとも照射初期時には試料毎にあまり変わらないと考えられる。従って観測された光吸収係数の大きな違いは吸収機構の違い<sup>10)</sup>によって説明される。即ち、第3図に示す様に $V_2$ の吸収は荷電状



第3図 Svensson等によって提案された0.34 eVピークの光吸収機構の荷電状態による違い。

態が(1-)の時にのみ起こる。そして、光照射前に欠陥が(2-)の状態にあるなら一個の電子を伝導帯に励起することによって(1-)が生成される。また、中性状態ならば価電子帯から一個電子が励起されるか、伝導帯に励起された自由電子を一個捕獲することによって(1-)が生成される。この様に(1-)状態の生成機構の違いは分光器の光源によって生成される(1-)の状態の割合を変化させることになる。これが、吸収係数の大きな違いになって現れると考えられる。

第4図は陽電子消滅パラメータの照射量依存性を示す。これより $V_2$ での寿命値300psはその荷電状態に依らず一定であることが知られる。これに対し、試料PHの捕獲率は試料PW, BWのそれに比べ数倍大きな値を持ち、それは調べられた照射量の範囲で飽和する傾向にあるが後者のものは直線的に増加している。また、BWでは実効的に捕獲が起こらないことを示している。この振る舞いは光吸収の結果と良く似ている。このことから光吸収で同定された $V_2$



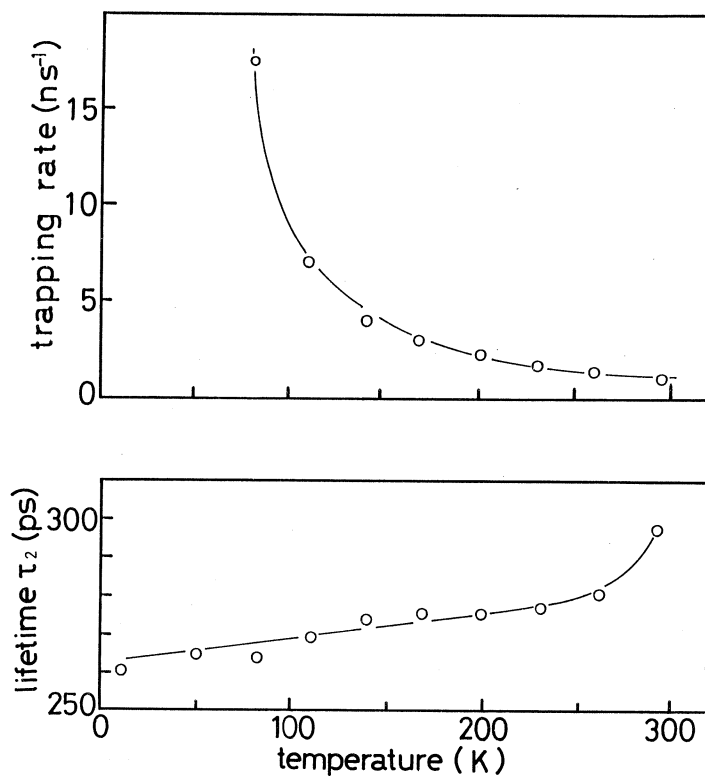
第4図 複原子空孔の陽電子捕獲率（上）と寿命値（下）の照射量依存性。

の生成は陽電子消滅によっても同じように現れることが知られる。そこで、光吸収によって決定された  $V_2$  の濃度を用いて一個の  $V_2$  の陽電子捕獲断面積を求めると第4表のようになる。この結果より  $V_2$  が負に帯電した方が陽電子を捕獲しやすいことが知られる。この結果は負に帯電した  $V_2$  と陽電子との間に存在するクーロン引力相互作用により説明する事が出来る。中性状態の場合はその値が幾何学的に見積もられた  $V_2$  の大きさとほぼ同じであることからそれらに間に長距離相互作用が存在しないことが知られる。また、(+) 状態の場合に捕獲が実効的に起こらないことからそれらには長距離斥力相互作用が存在することを意味する。従って、このクーロン力の有無が図4に示された捕獲率の大きな違いになっていると考えられる。

第4表  $V_2$  の陽電子捕獲断面積（室温）。

charge state	cross section ( $\times 10^{-14} \text{cm}^2$ )	trapping radius ( $\text{\AA}$ )
2 -	49.0	12.5
1 -	12.1	6.2
0	1.9	2.4
1 +	no trap	no trap





第5図  $V_2^{2-}$  の陽電子捕獲率（上）と寿命値（下）の温度依存性。

今回特に  $V_2^{2-}$  の温度依存性も調べた。その結果が第5図に示されている。図より、捕獲率は低温になるにつれて増加していくことが知られる。この温度依存性は陽電子が捕獲される際に放出されるべきエネルギーが幾つものフォノン生成により放出されるいわゆる多フォノン過程によって説明される。また、第5図より陽電子寿命が低温になるに従って約260psまで減少することが知られる。この値は、第1表に示す単一原子空孔のものとほぼ同じである。ところで、単一原子空孔は移動の活性化エネルギーが小さいため80K付近でも長距離拡散をするので、本実験のような室温における照射の場合にはこれは既に焼鈍されているか、複原子空孔になっている。従って、以上の結果は低温に於いては陽電子からみると複原子空孔が単一原子空孔と同じ作用を持つのであると解釈される。換言すると、陽電子の感じる電子密度が低温では複原子空孔と単一原子空孔とで同じであるということである。ところで、寿命300psを示す複原子空孔の室温に於ける電子密度は260psを示す単一原子空孔のそれよりも小さい。上記の結果を説明するには低温に於いては複原子空孔の体積が単一原子空孔と同じ電子密度になるように収縮するか、陽電子が1つの原子空孔付近に局在するかの何れかであると考えられる。前者を breathing mode relaxation という。

#### §4. 結 論

リン及びボロンを添加した Si を 15MeV 電子線照射して形成された複原子空孔を陽電子寿命、光吸収等で測定した結果、以下の結論を得た。

- (1) 15MeV の電子線照射により生成される複原子空孔濃度を陽電子寿命及び光吸収で求めた。その結果それが添加不純物の種類及び量に依存することを見いだした。即ち、リン濃度が  $1.5 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$  の場合、複原子空孔濃度は照射量が小さいとき急激に増加しそれ以降は飽和する傾向にある。一方リン及びボロン濃度がそれぞれ  $6.0, 7.0 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$  の場合、それは照射量に対し直線的に増加する。これは、光吸収と陽電子寿命測定のどちらにも同様に現れる。これらの現象は陽電子寿命及び光吸収が複原子空孔の荷電状態に強く依存しているとして説明される。
- (2) 複原子空孔に捕獲された室温での陽電子寿命値は 300ps でこれは荷電状態に依らない。
- (3) 複原子空孔の陽電子捕獲断面積は荷電状態に依って異なり負に帯電した方が中性の場合より大きな値になる。また、正に帯電した場合は陽電子を捕獲しない。これは、正、負に帯電した複原子空孔と陽電子の間にそれぞれクーロン引力、斥力が働くこと、そして、中性のそれとの間には長距離相互作用が存在しないことを意味する。
- (4)  $V_2^{2-}$  の捕獲断面積は低温になるに従って増加する。これは、陽電子の  $V_2$  の捕獲は連続した素過程の結果として起こり、各素過程で対応するエネルギーのフォノンが放出されるというフォノン・カスケード機構に支配されていることを示唆する。
- (5)  $V_2^{2-}$  に捕獲された陽電子の寿命は低温になるに従って単一原子空孔と同一の寿命値まで減少する。これは、複原子空孔周りの原子が低温になると空孔内部方向に緩和する breating か、陽電子の局在性が変化する為と考えられる。

本研究で用いた試料の電子線照射は、核理研の榎本和義博士及びマシソン・グループの方々によってなされた。衷心より感謝致します。

#### 参 考 文 献

- 1) G. D. Watkins and J. W. Corbett : Phys. Rev. A **543** (1965) 138.
- 2) H. Y. Fan and A. K. Ramdas : J. Appl. Phys. **30** (1959) 1127.
- 3) L. J. Cheng, J. C. Coreli, J. W. Corbett and G. D. Watkins : Phys. Rev. **152** (1966) 761.

- 4) G. D. Watkins and J. W. Corbett : Phys. Rev. **134** (1964) A 1359.
- 5) A. H. Kalma and J. C. Corelli : Phys. Rev. **173** (1968) 734.
- 6) A. O. Evwaraye and Edmund Sun : J. Appl. Phys. **47** (1976) 3776.
- 7) G. A. Samara : Phys. Rev. **B 39** (1989) 12764.
- 8) C. A. Ammerlaan, G. D. Watkins, Phys. Rev. **B 5** (1972) 3988.
- 9) S. Dannefaer : *Proc. Int. Conf. on the Science and Thechnorogy of Defect Ccntrol in Semiconductor (1989)*
- 10) J. H. Svensson, B. G. Svensson and B. Monemar : Phys. Rev. **B 38** (1988) 4192.

# Ⅲ. 放 射 化 学

# 東北地方沿岸産の褐藻類中の主要及び微量元素の存在量—各種放射化分析による定量

理学部化学

岩田吉弘・内藤宏之・鈴木信男

## §1. 序

海藻は海水中の多種類の微量元素を濃縮しており、この濃縮機構の解明、環境指標への適用には海藻中の元素存在量の集積が必要である。このとき海藻中の多種類の元素の存在量の、採取地、採取時期による変動、あるいは個体差を明らかにすることが肝要である。これまでもいくつかの成書、総説に海藻中の元素存在量が示されているが<sup>1-3)</sup>、このような立場で研究した例はほとんどない。我々は、これまでに光量子放射化分析を用い、海藻の処理法及び分析法の検討を行い、宮城県女川町竹ノ浦で採取した2種類の海藻試料13個体中の9から15元素の存在量を示した<sup>4)</sup>。本研究では東北地方太平洋岸に広く分布しているホソメコンブをとりあげ、各種放射化分析を中心に用い、35元素の定量法を確立した。さらに多年度にわたり東北地方各番でホソメコンブを繰り返し採取、分析し、主要から微量元素の17元素の存在量を明らかにした。この分析には、生物体類似の元素組成を持つ合成標準試料を用いる光量子放射化分析<sup>5)</sup>とアルファ粒子放射化分析<sup>6)</sup>、並びに微量金属の分離濃縮を併用する中性子放射化分析<sup>7)</sup>を用いた。

## §2. 実 験

### 2.1. 海藻の採取と前処理

ホソメコンブ (*Laminaria religiosa*, 褐藻綱コンブ目こんぶ科) は1984から1990年に宮城県女川町竹ノ浦、宮城県牡鹿町新山浜、岩手県三陸町小壁浜、青森県八戸市金浜で約50個体を採取した。海水で洗浄後、1個体ずつポリエチレン袋に入れ、直ちにドライアイスで凍結した。48時間真空凍結乾燥し、高純度アルミナ製あるいは高純度チッ化ケイ素製ボールミルで粉碎後、85°C 2時間オープン乾燥し、分析に供した<sup>4)</sup>。

### 2.2 生物体類似多元素標準試料 (SyRM) の調製

アクリル酸とアクリルアミド及び架橋剤のメチレンビスアクリルアミドを含む水溶液に正確に既知量の21元素の標準溶液を添加後、重合反応で均一にゲル化する。これを真空凍結乾燥し、海藻類似の元素組成を持つ SyRM を調製した<sup>8)</sup>。

### 2.3 非破壊光量子放射化分析

約300 mg の海藻試料と SyRM を10 mm  $\phi$  の錠剤に加圧成形し、高純度アルミニウム箔で包装し照射試料とした。海藻試料を SyRM ではさみ、石英間に封入して東北大学電子ライナックからの30 MeV 制動放射線（電流値約70  $\mu$ A）を2から3時間照射した。

### 2.4 非破壊アルファ粒子放射化分析

約300 mg の海藻試料と SyRM を10 mm  $\phi$  の錠剤に加圧成形し、高純度アルミニウム箔で包装し照射試料とした。回転照射台を用い、8から12個の照射試料を同時に東北大学サイクロترونからの18 MeV アルファ粒子（電流値約1  $\mu$ A）を30分照射した<sup>6,9,10</sup>。

### 2.5 抽出分離固化濃縮—中性子放射化分析

1 g の海藻試料を濃硝酸で加熱分解後、微量金属をジエチルジチオカルバミン酸を用いて、所定の pH でベンゼンに抽出分離する。抽出で得られたら有機相にポリスチレン0.1 g を加え真空凍結乾燥し、錯体をポリスチレンへ固化濃縮する。これを日本原子力研究所 JRR - 2 気送管（熱中性子束、 $5.4 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ）で10分間放射化した<sup>7)</sup>。

## §3. 結果と考察

放射化分析に用いる標準試料は分析目的元素を正確かつ均一に含み、しかも分析試料と元素組成が類似していることが重要である。特にアルファ粒子放射化分析などの荷電粒子放射化分析では、照射試料の元素組成によって照射粒子の飛程が異なる。本研究では海藻類似の標準試

第1表 Elemental composition of synthetic multi-element reference material having similar composition to marine macro-algae.

	(%)*		(mg/g)*		( $\mu$ g/g)*
H	6.7	Na	32.6	V	2.72
C	39.9	Mg	10.5	Cr	0.673
N	304	Al	0.158	Mn	3.13
O	32.0	P	1.31	Fe	38.9
		S	1.3	Co	0.238
		Cl	58.3	Ni	1.04
		K	64.4	Cu	1.27
		Ca	10.9	Zn	24.8
		Br	0.858	As	125
		I	2.24	Rb	11.7
				Sr	510

\* Based on dry weight

料 (SyRM) を化学合成した。SyRM の元素組成の一例を第 1 表に示す。主要から微量の正確な濃度の 25 元素から成り, その組成は表 3 に示す海藻の元素組成に類似している。この SyRM を光量子放射化分析並びにアルファ粒子放射化分析の標準試料に用いることで, 11 元素の定量が可能となった。中性子放射化分析の標準試料には, ポリアクリルアミドのマトリックス中に正確な量のバナジウム, クロム, マンガン, 鉄, コバルト, ニッケル, 銅及び亜鉛を 10 0-500  $\mu\text{g/g}$  含む SyRM を調製し, 用いた。定量に用いた核反応を第 2 表に示す。 $\gamma$ -線スペクトルは Ge 半導体検出器に 4096 チャンネル波高分析器を接続して, 照射後繰り返し測定した。定量は海藻試料と SyRM からの光電ピーク面積を比較して行った。

女川湾で 1984 年 7 月 30 日に採取したホソメコンブ中の主要及び微量元素の乾燥重量あたりの

第 2 表 Radioisotopes and  $\gamma$ -ray energy used for analysis.

Element	Nuclear reaction	Half life	Energy (KeV)
30MeV bremsstrahlung from a LINAC			
Na	$^{23}\text{Na} (\gamma, n) ^{22}\text{Na}$	2.60 y	1275
Mg	$^{25}\text{Mg} (\gamma, p) ^{24}\text{Na}$	15.0 h	1369
Cl	$^{35}\text{Cl} (\gamma, n) ^{34\text{m}}\text{Cl}$	32.0 min	145
Ca	$^{44}\text{Ca} (\gamma, p) ^{43}\text{K}$	22.2 h	618
As	$^{75}\text{As} (\gamma, n) ^{74}\text{As}$	17.8 d	596
Br	$^{79}\text{Br} (\gamma, 2n) ^{77}\text{Br}$	57.0 h	239
Rb	$^{85}\text{Rb} (\gamma, n) ^{84}\text{Rb}$	32.8 d	883
Sr	$^{88}\text{Sr} (\gamma, n) ^{87\text{m}}\text{Sr}$	2.81 h	388
I	$^{127}\text{I} (\gamma, n) ^{126}\text{I}$	13.0 d	389
18MeV alpha-particle from a cyclotron			
P	$^{31}\text{P} (\alpha, n) ^{34\text{m}}\text{Cl}$	32.0 min	145
K	$^{41}\text{K} (\alpha, n) ^{44\text{m}}\text{Sc}$	2.44 d	271
Ca	$^{40}\text{Ca} (\alpha, p) ^{43}\text{Sc}$	3.89 h	373
Thermal neutron from a reactor			
V	$^{51}\text{V} (n, \gamma) ^{52}\text{V}$	3.76 min	1434
Mn	$^{55}\text{Mn} (n, \gamma) ^{56}\text{Mn}$	2.58 h	847
Fe	$^{59}\text{Fe} (n, \gamma) ^{59}\text{Fe}$	44.6 d	1099
Co	$^{59}\text{Co} (n, \gamma) ^{60\text{m}}\text{Co}$		
	$^{60\text{m}}\text{Co-IT} \rightarrow ^{60}\text{Co}$	5.27 y	1173
Cu	$^{63}\text{Cu} (n, \gamma) ^{64}\text{Cu}$	12.7 h	1346
Zn	$^{64}\text{Zn} (n, \gamma) ^{65}\text{Zn}$	244 d	1116

存在量を第3表に示す。光量子放射化分析でナトリウム, マグネシウム, 塩素, カルシウム, ヒ素, 臭素, ルビジウム, ストロンチウム及びヨウ素, アルファ粒子放射化分析でリン, カリウム及びカルシウム, 中性子放射化分析でバナジウム, マンガン, 鉄, コバルト, 銅及び亜鉛が精度よく定量できた。中性子放射化分析は第一遷移金属に対し高感度な分析法であるが, 海藻中の存在量が微量なこと, また第3表に示すように多量のアルカリ金属, ハロゲンを含むため, これらの元素から発生する強い放射線が海藻中の微量金属からの $\gamma$ -線の測定を妨害する。本研究では放射化前に, 微量金属を選択的に分離濃縮することで6元素の定量が可能となった。クロム, ニッケルの定量は黒鉛炉偏光ゼーマン原子吸光法, 希土類元素はシュウ酸カルシウムへの共沈分離を併用する中性子放射化分析<sup>11)</sup>, 硫黄は同位体希釈不足当量法<sup>12)</sup>, 水素, 炭素, 窒素は有機微量分析で求めた。種々の放射化分析法を中心に用いることで, 35元素の定量が可能となった。このように海藻中の多元素を分析したのは本研究が初めてである。

我々はホイソメコンブ中のいくつかの元素存在量には個体差また採取時期による差があることを示した<sup>4)</sup>。本研究では, 海藻中の元素存在量の変動を明らかにし, その代表的な値を知る

第3表 Elemental abundance in a *Laminaria religiosa* sample\*

	Found (mg/g)**		Found ( $\mu$ g/g)**		Found (ng/g)**
H	49	V	2.53 $\pm$ 0.14	La	42.2 $\pm$ 0.2
C	346	Cr	0.125 $\pm$ 0.003	Ce	145 $\pm$ 2
N	19	Mn	5.61 $\pm$ 0.20	Pr	9.88 $\pm$ 0.49
		Fe	19.4 $\pm$ 1.6	Nb	17.1 $\pm$ 0.5
Na	34.8 $\pm$ 1.3	Co	0.0178 $\pm$ 0.0010	Sm	4.01 $\pm$ 0.15
Mg	9.67 $\pm$ 0.43	Ni	0.195 $\pm$ 0.005	Eu	1.43 $\pm$ 0.01
P	1.53 $\pm$ 0.2	Cu	0.66 $\pm$ 0.08	Tb	0.673 $\pm$ 0.013
S	7.56 $\pm$ 0.12	Zn	17.0 $\pm$ 0.2	Dy	5.84 $\pm$ 0.27
Cl	122 $\pm$ 4	As	58.0 $\pm$ 1.3	Ho	0.670 $\pm$ 0.051
K	137 $\pm$ 47	Br	1000 $\pm$ 60	Er	4.52 $\pm$ 0.31
Ca	12.2 $\pm$ 0.4	Rb	45.5 $\pm$ 2.2	Yb	6.88 $\pm$ 0.07
		Sr	629 $\pm$ 36	Lu	1.38 $\pm$ 0.06
		I	4460 $\pm$ 170		

\* 30 July '84. Miyagi, Japan.

\*\* Based on dry weight, n=3.



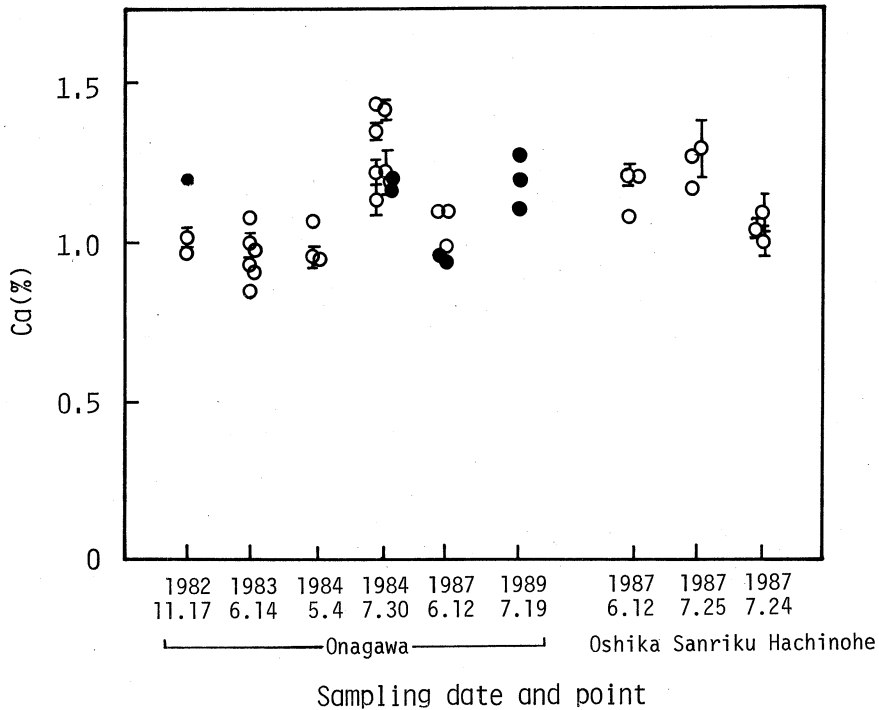
ために、多年度にわたりで東北地方各地で約50個体のホソメコンブを採取、17元素の分析値を集積した。分析結果の一例として1987年6月から7月に東北地方各地で採取したホソメコンブの分析値を第4表に示す。各地で採取した3から5個体中の元素存在量を光量子放射化分析、アルファ粒子放射化分析、ならびに中性子放射化分析を用い調べた。採取した1個体ごとに分析し、その結果を採取地ごとにまとめた。表の±以下の値は個体間の存在量の変動を表わす。主要、少量元素に比べ微量元素の存在量に個体差、採取地による差が大きいように見える。採取時期による差を含め、これら元素存在量の変動を知るために、いくつかの元素の存在量を採取日、採取地ごとにプロットした。カルシウムの例を第1図に示す。1個体を1回分析した結果は黒塗りのプロットで、3回分析した結果は、バーで表わす3回の分析値に対する標準偏差と

第4表 Elemental abundances of *Laminaria religiosa*\* collected at several sampling points of Tohoku area.

	Hachinohe <sup>a</sup>	Sanriku <sup>b</sup>	Oshika <sup>c</sup>	Onagawa <sup>d</sup>
Major and minor elements (%)				
Na	3.69±0.14	3.89±0.12	4.64±0.55	4.16±0.15
Mg	1.02±0.02	1.15±0.03	1.00±0.09	1.13±0.09
P	0.102±0.012	0.111±0.008	0.125±0.55	0.160±0.022
Cl	2.83±0.30	10.6±1.0	17.1±2.9	11.4±2.6
K	8.49±0.54	9.61±0.36	8.81±2.77	10.9±1.2
Ca	1.04±0.05	1.24±0.06	1.02±0.08	1.17±0.08
Trace elements (μg/g)				
As	55.7±4.9	59.4±12.3	57.5±7.5	49.9±1.7
Br	647±198	769±166	893±104	766±206
Rb	35.7±5.0	38.8±12.1	41.9±3.9	39.2±8.2
Sr	494±17	785±50	697±66	665±80
I	4210±860	5290±2050	4880±690	5290±1680
V	1.96±0.15	1.21±0.09	1.85±0.07	1.96±0.16
Mn	3.51±0.26	2.29±0.13	4.64±1.46	2.44±0.40
Fe	15.5±3.3	9.54±0.07	29.8±1.7	16.5±1.6
Co	0.0210±0.0038	0.0109±0.0010	0.0308±0.0037	0.0221±0.0019
Cu	0.42±0.11	0.29±0.03	0.45±0.14	0.42±0.06
Zn	9.29±0.40	7.82±0.77	17.7±1.4	10.5±1.9

a, 1987. 7. 24. n=3, b, 1987. 7. 25 n=3. c, 1987. 6. 12. n=3, d, 1987. 6. 12. n=3-5,

\* Hosomekonbu.

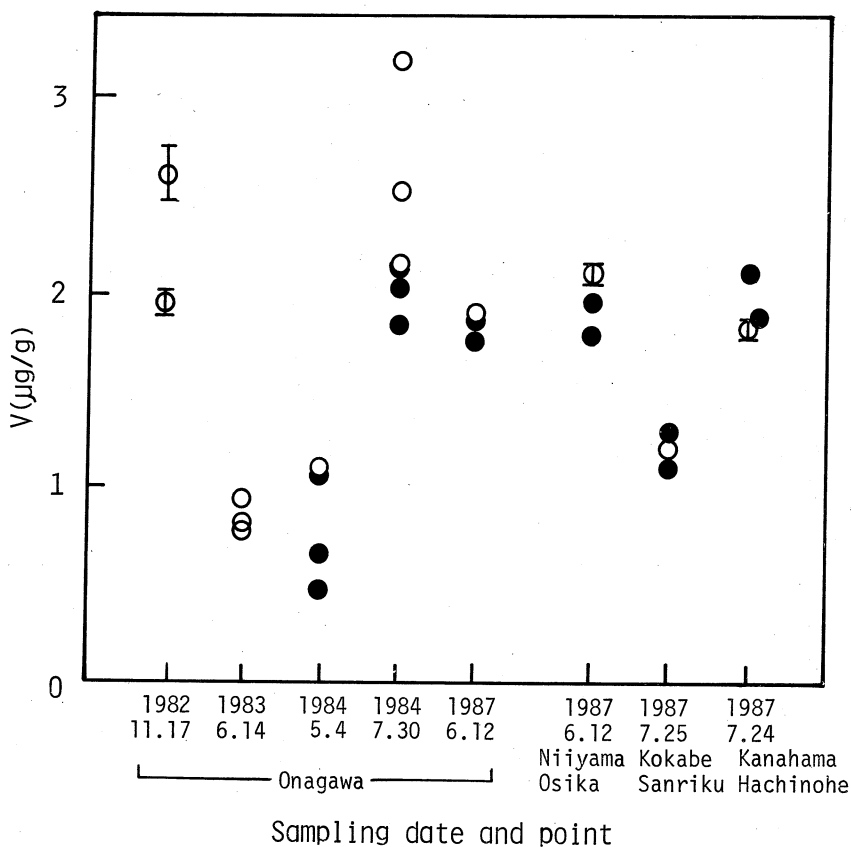


第1図 Concentration of calcium of *Laminaria religiosa* collected in Tohoku area.  
 Bar denotes the standard deviation of the determined values.  
 ○, 1 determination. ●, 3 determination.

ともに白抜きのプロットで示す。カルシウムはホソメコンブ中に乾燥重量あたり約1%存在している。また個体差は小さく、採取地、採取日による違いも小さいという傾向がある。この傾向は、ナトリウムやマグネシウムでも見られた。

第2図にバナジウムが存在量を示す。バナジウムはホソメコンブ中に0.4から3  $\mu\text{g}/\text{g}$ と微量しか存在せず、その存在量の変動もカルシウムより大きい。しかし採取地、採取日ごとのにまとめた存在量の差は小さいように見える。このような存在量の変動の傾向にはマンガンやヨウ素などいくつかの微量元素にも見られ、これが海藻の生長に伴うものか、あるいは採取地の海水の成分の違いによるものか興味深い。この問題の解決には、通年にわたり繰り返し採取するとともに、海水中の化学成分の分析が必要と思われる。

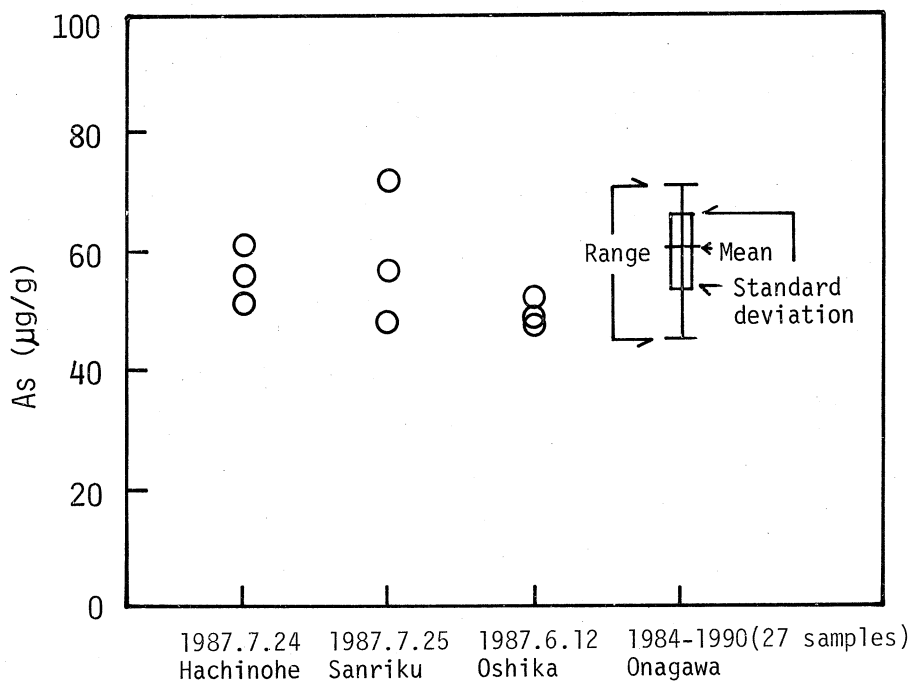
第3図にヒ素の存在量を示す。ヒ素はホソメコンブ中に約60  $\mu\text{g}/\text{g}$ 含まれる微量元素であるにもかかわらず、その個体差あるいは採取地、採取日による違いが少ない。第3図の右に示



第2図 図 Concentration of vanadium of *Laminaria religiosa* collected in Tohoku area.  
 Bar denotes the standard deviation of the determined values.  
 ○, 1 determination. ●, 3 determination.

す女川で6年間にわたり採取したホソメコンブ27個体中のヒ素の存在量の変動は45から70  $\mu\text{g/g}$ で、他の3ヶ所のホソメコンブの存在量もその範囲内であった。海水中のヒ素の存在量は0.5から3.7  $\mu\text{g/l}$ と報告されており<sup>1)</sup>、ホソメコンブはヒ素を海水から数千倍高濃縮している。また、我々は、同位体希釈不足当量法を用いてこのホソメコンブ中のヒ素のほとんど全てが有機体であることを確かめている<sup>13)</sup>。ヒ素の濃縮のメカニズム、あるいは生体内での代謝、機能について興味もたれる。

第5表に東北地方各地で採取したホソメコンブ中の主要、少量及び微量元素の存在量をまとめた。先に述べた通り個体差及び採取地、採取日によって存在量の変動が大きい元素があるため、存在量は平均値、最小値、最大値並びに相対標準偏差をもって示した。これまでの海藻中の多元素の存在量をこのように明らかにした研究はこれが初めてである。第5表のようにホソ



第3図 Concentration of arsenic of *Laminaria religiosa* collected in Tohoku area.

メコンブ中の元素存在量は、特に微量元素で変動が大きく、このように海藻中の元素存在量を明らかにするためには、多数の試料の分析が必要であることがわかった。

#### §4. まとめ

光量子放射化分析をはじめとする各種放射化分析を組み合わせることで海藻中の35元素の分析が可能となった。

また、東北地方各地で多年度にわたって採取した約50個体のホソメコンブを分析し、17元素の存在量並びにその変動を明らかにすることに成功した。

本研究を進めるにあたり、御協力を賜った東北大学理学部原子核理学研究施設の榎本和義先生並びにマシングループの皆様に深く感謝致します。

第5表 Elemental abundances\* of *Laminaria religiosa*.\*\*

	Average	Range	RSD <sup>a</sup> (%)	n <sup>b</sup>
Major and minor elements (%)				
Na	4.14	2.86-5.80	15.1	48
Mg	1.07	0.879-1.28	8.4	48
P	0.141	0.0702-0.258	34.7	14
Cl	13.0	6.79-20.4	25.4	48
K	9.53	5.62-12.2	18.6	14
Ca	1.08	0.851-1.44	13.0	48
Trace elements ( $\mu\text{g/g}$ )				
As	59.7	4306-72.7	23.8	47
Br	882	418-1420	27.7	48
Rb	39.6	189-59.7	23.2	48
Sr	636	360-843	17.0	48
I	3450	883-7610	47.0	47
V	1.68	0.445-3.20	39.5	27
Mn	4.10	1.98-6.53	33.4	26
Fe	23.8	9.54-64.3	49.5	26
Co	0.051	0.0112-0.196	91.3	26
Cu	0.54	0.27-1.1	36.8	26
Zn	14.9	7.01-41.1	51.1	26

\* Based on dry weight.

\*\* Hosomekonbu, Sampling location : Onagawa, Oshika, Sanriku and Hchinohe.

a Relative standard deviation. b Number of *Laminaria religiosa* samples.

### 参 考 文 献

- 1) H. J. Bowen : *Environmental Chemistry of the Elements* (Academic Press, 1979).
- 2) R. Elsler : *Trace Metals Concentrations in Marine Organisms*(Pergamon Press, 1982).
- 3) 山 県 登 : 公衆衛生院研究報告 25 (1976) 225.
- 4) 岩田吉弘, 井村久則, 鈴木信男 : 核理研研究報告 18 (1985) 119.
- 5) 鈴木信男, 井村久則, 岩田吉弘 : 核理研研究報告 16 (1983) 126.
- 6) N. Suzuki, Y. Iwata and H. Naitoh : CYRIC Annual Report 1989, Tohoku Univ.p115.

- 7) N. Suzuki, Y. Iwata and H. Imura : *Intren. J. Environ. Anal. Chem.* **30** (1987) 289.
- 8) N. Suzuki, Y. Iwata and H. Imura : *Anal. Sci.* **2** (1986) 335.
- 9) K. Masumoto and M. Yagi : *J. Radioanal Nucl. Chem.* **78** (1983) 223.
- 10) K. Masumoto and M. Yagi : *J. Radioanal Nucl. Chem.* **109** (1987) 449.
- 11) Y. Iwata, H. Imura and N. Suzuki : *Anal. Chim. Acta* **239** (1990) 115.
- 12) Y. Iwata, H. Imura and N. Suzuki : *Anal. Chim. Acta* **219** (1989) 97.
- 13) H. Jiton, H. Imura and N. Suzuki : *Anal. Chim. Acta* **228** (1990) 85.

## 標準添加内標準法による鉄鋼中の 微量元素の光量子放射化分析(2)

金研, 核理研\*

長谷川大輔・原 光雄・榎本和義\*

### §1. 序 論

誘導放射能の特性および物質中の微量元素の定量に関する研究を行うには放射化分析法は極めて有効な方法である。その放射化分析での定量法の一つとして、先に八木・榎本によって開発された標準添加内標準法がある<sup>1)</sup>。この標準添加内標準法は、試料自身に定量目的元素の既知量を加えたものを比較標準として利用するため、照射や測定時のマトリックス効果が相殺されるという特色と、試料と比較標準のそれぞれの被照射線量は試料中に存在する特定元素を内標準に利用するため、定量にかかわる系統誤差の主要要因はほとんど除去されてしまうという特色をあわせ持っている。また、あらゆる放射化分析での多元素同時定量に適用でき、標準試料の調製、検定等において特に優れている。

本研究では、前回<sup>2)</sup>に引き続き鉄鋼試料中（高速度鋼，高純度鉄，低合金鋼）の放射化されやすい微量元素を標準添加内標準法を用いて定量を行い、これにより各種鉄鋼材料の誘導放射能の特性とそれに及ぼす主要合金元素や微量元素の種類および濃度の関係が詳細に検討されるよう行ったものである。

### §2. 実 験

#### 2.1 試料と試薬

試料は日本鉄鋼協会の高速度鋼シリーズA (JSS 606~611) と、低合金鋼シリーズA (JSS 150~155) および高純度鉄2種、3種 (JSS 002, 003) を用いた。試料は高速度鋼シリーズでは厚さ約0.3mmの薄板に圧延加工し、他はチップ状のものをそのまま用いた。また、各定量目的元素の標準添加用の標準溶液としては、市販の原子吸光分析用標準溶液を用いた。

#### 2.2 照射試料の作製

薄板およびチップ状の試料から約500mg取ってエッチングした後、テフロン製のつぼ内で高純度鉄、低合金鋼シリーズでは1:1硝酸5ml、高速度鋼シリーズでは王水5mlに溶解した。溶解する際、標準添加試料には定量する元素の標準溶解の一定量と共に内標準としてのセリウ

ムも加えた。この溶液を一旦蒸発させた後、4 M硝酸とテトラエチルシリケートを各5 ml加えゲル状にした。これを電子レンジ内で蒸発乾固させた後、電気炉中で、2時間加熱(400°C)し脱水粉末化させた。

その粉末の一部(約200mg)を取り、高純度アルミニウム箔で包み直径10mmのペレット状に成型した(各試料3個ずつ作製)。また、試料自身には、標準溶液の添加を行うことなく、同様に処理した。

できあがった試料は、一端を封じた石英管に交互に封入し、石英綿をつめて固定した後、導入端を常圧で封じ、照射アンプルとした。

### 2.3 照射

照射は電子加速エネルギー20MeVおよび30MeV、平均電流約70および約120  $\mu$ A程度の電子線を厚さ2 mmの白金板で制動放射線に転換したものを利用しておこなった<sup>3)</sup>。照射時には、石英照射アンブルを水冷式照射ホルダー内の白金コンバーターの後方に固定し、20MeV照射では4時間、30MeV照射では2時間照射した。

### 2.4 放射能測定

照射終了後、各試料は新しい高純度アルミニウム箔で再包装し、放射線測定用のサンプルホルダーに装着した。 $\gamma$ 線測定は、高純度ゲルマニウム検出器を多重波高分析器に接続し、マイクロロボット、パーソナルコンピューターを用いた自動測定システムを用いて行った<sup>4)</sup>。

測定は、照射の翌日から約10日にわたり繰り返し行った。定量には $\gamma$ 線のSN比が最適になっているものを用い、結果として約3日後と10日後の値を用いた。

## §3. 結果と考察

### 3.1 定量に用いた核種

定量元素及び内標準元素から生じる放射性核種のうち、本定量に用いたものは①20および30 MeVの制動放射線で主に( $\gamma$ , n)反応によって生じ、生成収率の大きいもの。②半減期が比較的長い(>1 day)もの。③検出しやすい $\gamma$ 線を放出するもの。という条件を満たすものを選んだ。定量に用いた核種、核反応を第1表に示す<sup>5)</sup>。

### 3.2 妨害となる核反応・核種

妨害となる核反応、核種を第2表に示す。妨害となる核反応としては、目的核と同一の核種が異なる元素から生成するものと、ほぼ同エネルギーの $\gamma$ 線を放出する異なった核種が生成するものがある。



第1表 定量に用いた核種と核反応。

標的核種 (天然存在比%)	核反応	生成核種	半減期	$\gamma$ 線エネルギー (keV)	Q値 (MeV)
$^{46}\text{Ti}$ (73.7)	( $\gamma$ , p)	$^{47}\text{Sc}$	3.341d	159	-11.5
$^{52}\text{Cr}$ (83.79)	( $\gamma$ , n)	$^{51}\text{Cr}$	27.704d	320	-12.0
$^{55}\text{Mn}$ (100)	( $\gamma$ , n)	$^{54}\text{Mn}$	312.2d	834	-10.2
$^{59}\text{Co}$ (100)	( $\gamma$ , n)	$^{58}\text{Co}$	70.916d	811	-10.5
$^{58}\text{Ni}$ (68.27)	( $\gamma$ , n)	$^{57}\text{Ni}$	1.503d	1377	-12.2
$^{75}\text{As}$ (100)	( $\gamma$ , n)	$^{74}\text{As}$	17.78d	596	-10.2
$^{90}\text{Zr}$ (51.4)	( $\gamma$ , n)	$^{89}\text{Zr}$	3.268d	909	-12.0
$^{93}\text{Nb}$ (100)	( $\gamma$ , n)	$^{92\text{m}}\text{Nb}$	10.15d	934	- 8.8
$^{100}\text{Mo}$ (9.6)	( $\gamma$ , n)	$^{99}\text{Mo}$	2.7477d	140	- 8.3
$^{123}\text{Sb}$ (42.7)	( $\gamma$ , n)	$^{122}\text{Sb}$	2.70d	564	- 9.0
$^{140}\text{Ce}$ (88.5)	( $\gamma$ , n)	$^{139}\text{Ce}$	137.7d	166	- 9.2
$^{54}\text{Fe}$ (5.8)	( $\gamma$ , pn)	$^{52}\text{Mn}$	5.591d	744,935,1434	-18.7

第2表 妨害となる核反応・核種。

対象核種	妨害核反応			Q値 (MeV)
$^{51}\text{Cr}$ (320keV)	$^{56}\text{Fe}$ (91.7)	( $\gamma$ , $\alpha$ n)	$^{51}\text{Cr}$	-19.7
$^{54}\text{Mn}$ (834keV)	$^{56}\text{Fe}$ (91.7)	( $\gamma$ , pn)	$^{54}\text{Mn}$	-20.4
$^{92\text{m}}\text{Nb}$ (934keV)	$^{54}\text{Fe}$ (5.8)	( $\gamma$ , pn)	$^{52}\text{Mn}$ (936keV)	-20.9
$^{58}\text{Co}$ (811keV)	$^{60}\text{Ni}$ (26.1)	( $\gamma$ , pn)	$^{58}\text{Co}$	-20.0
	$^{58}\text{Ni}$ (68.3)	( $\gamma$ , 2n)	$^{56}\text{Co}$ (812keV)	-22.5

これらは、照射時に Ni, Feを各々照射し、ピーク面積比から妨害の寄与分を求め、それを差し引くことにより補正した。また、20MeV照射における定量においては、妨害核種が生成するための Q値が20MeV近傍にあり、妨害の影響のないことが認められたので補正は行わなかった。

### 3.3 定量計算

定量計算は、

$$W_A = W_A^* / [(R^*/R) - 1]$$

という簡単な式で表される<sup>1)</sup>。ここで  $W_A(g)$  は定量目的元素の濃度、 $W_A^*(g)$  は添加した元

素の量である。また、 $R$ および $R^*$ は定量に使用した $\gamma$ 線と内標準 $\gamma$ 線との分析試料でのピーク面積比と、標準添加試料のそれである。

### 3.4 定量結果

定量は、高速度鋼シリーズはJSS 606-8, 611-8, 高純度鉄はJSS 002-2, 003-1, そして低合金鋼シリーズではJSS 152-9, 154-9で行った。定量値は、1シリーズ3個の試料の平均値を標準偏差で示した。定量結果および日本鉄鋼協会の標準値、さらにはその元素の検出限界(バックグラウンドの3 $\sigma$ を与える濃度)を第3表から第8表に示す。

#### 3.4.1 高速度鋼シリーズ

内標準元素としてマトリックスに含まれるCrを用いて定量を行った。

第3表 高速度鋼シリーズ(JSS606-8)の定量結果と公定値との比較。

(20MeV)							
元素名	濃度 ( $\mu\text{g/g}$ )				相対偏差 (%)	公定値 ( $\mu\text{g/g}$ )	検出限界 ( $\mu\text{g/g}$ )
	No. 1	No. 2	No. 3	平均			
Ti	572	536	598	569 $\pm$ 28	4.9	—	29
Mn	3253	3302	3164	3240 $\pm$ 74	2.3	3100	17
Co	1197	1187	1198	1194 $\pm$ 18	1.5	1200	5
Ni	571	613	588	591 $\pm$ 20	3.4	700	6
Mo	5902	5921	5781	5868 $\pm$ 218	3.7	5800	8
(30MeV)							
Ti	558	622	633	604 $\pm$ 38	6.3	—	12
Mn	2876	3147	2974	2999 $\pm$ 420	14.0	3100	3
Co	1166	1265	1279	1237 $\pm$ 155	12.5	1200	3
Ni	598	595	618	604 $\pm$ 61	10.1	700	5
Mo	6067	5409	5280	5585 $\pm$ 559	10.0	5800	10

a) JSS609 定量元素はTi, Mn, Co, Ni, Moの5元素である。20MeV照射における分析結果は、Niを除く各元素とも誤差の範囲内で標準値と良い一致をみることができ、また精度もよい。Niは標準値よりも若干低めに定量され、30MeV照射の結果においても同様の傾向がみられた。また、この試料中にTiの存在が確認され相対誤差7%以下と精度よく定量された。30MeV照射における分析結果でも標準値とよい一致をみることができたが、MnやCoの場合

Mnでは定量値の70%, Coでは5%が妨害によるものの為その補正によって精度が若干悪くなる (Mn: 20MeVで2.3%, 30MeVで10.2%, Co: 1.3%→3.8%) 傾向がみられた。

第4表 高速度鋼シリーズ (JSS611-8) の定量結果と標準値との比較。

(20MeV)							
元素名	濃度 ( $\mu\text{g/g}$ )				相対偏差 (%)	公定値 ( $\mu\text{g/g}$ )	検出限界 ( $\mu\text{g/g}$ )
	No. 1	No. 2	No. 3	平均			
Ti	931	970	1123	1008±102	10.1	—	54
Mn	2963	2912	3157	3011±150	2.3	3000	22
Co	4043	3950	4052	4015±51	1.3	4000	8
Ni	1246	1259	1278	1261±39	3.1	1300	8
(30MeV)							
Ti	1080	1216	1201	1166±162	13.9	—	26
Mn	2576	3146	2991	2904±295	10.2	3000	3
Co	3844	3804	3806	3818±144	3.8	4000	4
Ni	1162	1120	1132	1138±52	4.6	1300	8

b) JSS611 定量元素はTi, Mn, Co, Niの4元素である。20MeV照射, 30MeV照射とも誤差の範囲内で標準値と良い一致がみられ, また精度も補正の影響を受けたと思われる30MeVでのMnを除き5%以下と良かった。この試料においてもTiの存在が確認され定量を行った結果, 20MeV, 30MeVにおいてもほぼ同様な値が得られた。

検出限界については, 30MeV照射におけるTi, Mnのそれが20MeV照射に比べ大幅に小さくなる傾向がみられる。ただし, Mnについては妨害反応の寄与による見かけ上のものである。ほかの元素については, この試料において照射エネルギーによる顕著な差はないと思われる。

### 3.4.2 高純度鉄2種・3種

内標準元素としてCeを用いて定量を行った。

a) Cr, Mnの定量 30MeV照射における鉄から生じる妨害核種の量 (Cr: Fe 1gで300ppm, Mn: Fe 1gで10000ppmに相当) に比べ試料中のCr, Mnの含有量が妨害核種の生成量の誤差の範囲内 (Crで17ppm, Mnで100ppm) に含まれるほど微量なので定量できなかった。また, 20MeV照射でも定量できなかったが, これは従来無視できるFeからの妨害がMn, Cr

第5表 高純度鉄第3種 (JSS003-1) の定量結果と標準値との比較。

(20MeV)							
元素名	濃度 ( $\mu\text{g/g}$ )				相対偏差 (%)	公定値 ( $\mu\text{g/g}$ )	検出限界 ( $\mu\text{g/g}$ )
	No. 1	No. 2	No. 3	平均			
Cr		***				13	
Mn		***				18	
Co	22.57	24.40	23.94	$23.64 \pm 0.89$	3.8	25	3.1
Ni	35.59	34.56	36.53	$35.56 \pm 3.51$	9.9	33	1.2
Zr	1.01	1.10	0.96	$1.00 \pm 0.06$	6.0	(< 1)	0.3
Mo	4.85	4.37	4.25	$4.49 \pm 0.39$	8.7	4	0.8
(30MeV)							
Cr		***				13	
Mn		***				18	
Co	25.29	30.39	28.40	$28.03 \pm 2.45$	8.7	25	2.6
Ni	31.92	33.23	33.79	$32.98 \pm 1.70$	5.2	33	0.8
Zr	0.99	0.93	0.96	$0.96 \pm 0.10$	10.4	(< 1)	0.1
Mo	5.79	4.38	5.56	$5.24 \pm 0.69$	13.1	4	0.5

\*\*\* : can not determine

の含有量が微量のために影響を受けているのか、または $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ ,  $^{54}\text{Fe}(n, \alpha)^{51}\text{Cr}$ などの二次反応などによる妨害なのか検討する必要がある。

b) Coの定量 Coの定量では30MeV照射において $^{60}\text{Ni}(\gamma, pn)^{58}\text{Co}$ による妨害を受けるが、試料中に含まれるNiの量が微量(2種で5ppm, 3種で33ppm)のため定量において無視できる。その結果2種, 3種とも定量値と良い一致をみることができた。

c) Niの定量 2種の方は含有量が検出限界に近いことで計数誤差が大きくなり、その結果定量値の精度が20MeVで48.8%, 30MeVで21.3%と悪かった。一方, 3種の方はそれに比べ含有量も多く計数誤差も小さく、定量値, 精度とも良い値が得られた。

d) Moの定量 2種, 3種とも含有量が少ないが20MeV照射においては、精度の良い定量ができている。一方, 30MeV照射では全体のコンプトンバックグラウンドが上がってしまうために計数誤差が大きくなり精度が悪くなったり(2種), 定量できなかつたり(3種)した。

e) Zrの定量 この元素は、標準値が与えられていなかったが2種, 3種とも定量できた。

第6表 高純度鉄第2種 (JSS002-2) の定量結果と標準値との比較。

元素名	(20MeV)				相対偏差 (%)	公定値 ( $\mu\text{g/g}$ )	検出限界 ( $\mu\text{g/g}$ )
	濃度 ( $\mu\text{g/g}$ )						
	No. 1	No. 2	No. 3	平均			
Cr		***				2	
Mn		***				2	
Co	30.69	27.78	30.88	29.78 $\pm$ 1.60	5.4	29	5.4
Ni	5.73	6.42	5.43	5.86 $\pm$ 2.86	48.8	5	1.3
Zr	0.42	0.37	0.39	0.39 $\pm$ 0.03	8.2	(< 1)	0.1
Mo	0.77	0.81	0.80	0.79 $\pm$ 0.05	6.3	(< 1)	0.2
(30MeV)							
Cr		***				2	
Mn		***				2	
Co	34.41	28.64	29.81	30.95 $\pm$ 3.10	10.0	29	3.7
Ni	5.92	5.52	5.37	5.59 $\pm$ 1.19	21.3	5	0.8
Zr	0.51	0.37	0.41	0.43 $\pm$ 0.06	14.4	(< 1)	0.1
Mo		ND				(< 1)	0.5

\*\*\* : can not determine  
ND : not detect

20MeV照射では9%以下と精度がよかったが、30MeV照射においてはコンプトンバックグラウンドが上がってしまったため精度が若干悪くなった。

f) その他 極微量元素の定量として上記の元素のほかに Ti, As, Nb, Sbの定量を試みたが測定対象のガンマ線ピークは検出できなかった。

検出限界については、20MeV照射に比べ30MeV照射の方が若干良くなるが、双方に大きな差はない。含有量が少ないため30MeV照射ではコンプトンバックグラウンドが上がり、かえって検出限界が悪くなるもの(2種のMo)もあった。

### 3.4.3 低合金鋼シリーズ

内標準元素としては、CeのほかにJSS 152では試料中に含まれているNi, Moを、JSS 154ではCr, Mn, を用いクロスチェックを行った。また低合金鋼の定量結果はマシンタイムの都合により20MeV照射のみである。

a) JSS 152 低合金鋼は通常1%から数%のCr, Mn, Ni, Moなどの添加元素を含むもの

第7表 低合金鋼シリーズA (JSS152-9) の定量結果と標準値との比較。

(20MeV)							
元素名	濃度 ( $\mu\text{g/g}$ )				相対偏差 (%)	公定値 ( $\mu\text{g/g}$ )	検出限界 ( $\mu\text{g/g}$ )
	No. 1	No. 2	No. 3	平均			
Ti	35	37	28	33 $\pm$ 4	12.6	—	6
Cr	5228	4992	4773	4998 $\pm$ 209	4.2	5000	116
Mn	4023	4125	4270	4139 $\pm$ 162	3.9	4300	88
Co	158	146	155	153 $\pm$ 6	3.9	—	12
As	163	169	173	168 $\pm$ 5	3.8	—	12
Sb	34	32	34	33 $\pm$ 1	3.3	—	2

であるが鉄鋼協会配布の分析表ではそれら主要元素についてにはしか分析結果を載せていない。そこで、分析表に載っている元素以外の微量元素についても定量を行った。定量元素はTi, Cr, Mn, Co, As, Sbの6元素である。Cr, Mnについては、分析の結果標準値と誤差の範囲内で良い一致をみることができ、また精度も相対偏差5%以下と良かった。Ti, Co, As, Sbについても試料中に存在することが確認され、定量を行った。その結果Tiについては定量値が検出限界の5倍程度と少なかったので若干精度が悪くなっているが、他の3元素については相対偏差4%以下の精度の良い定量ができた。

b) JSS 154 JSS 152同様、分析表に載っていない元素についても定量を行い、定量元素は

第8表 低合金鋼シリーズA (JSS154-9) の定量結果と標準値との比較。

(20MeV)							
元素名	濃度 ( $\mu\text{g/g}$ )				相対偏差 (%)	公定値 ( $\mu\text{g/g}$ )	検出限界 ( $\mu\text{g/g}$ )
	No. 1	No. 2	No. 3	平均			
Ti	48	43	39	43 $\pm$ 5	11.3	—	8
Co	88	87	84	86 $\pm$ 3	3.0	—	6
Ni	4914	4991	5055	4987 $\pm$ 100	2.0	5200	10
As	39	40	39	39 $\pm$ 1	1.8	—	3
Mo	4087	3558	3527	3724 $\pm$ 314	8.4	3700	4
Sb	10	9	9	9 $\pm$ 1	5.4	—	1

Ti, Co, Ni, As, Mo, Sbの6元素である。分析表に載っているNi, Moについて, Niのほうは標準値より若干低めに定量されたが相対偏差は2%と良かった。一方, Moでは標準値と誤差の範囲内で定量値が一致しており精度も良かった。Ti, Co, As, Sbも試料中に存在することが確認され定量を行った。Tiでは定量値が検出限界の約5倍程度と少なく, その結果, 相対偏差11.3%と若干精度が悪くなった。その他の3元素については相対偏差6%以下と精度よく定量できた。

#### §4. 結 論

標準添加内標準法を用い鉄鋼中の微量元素の光量子放射化分析を行った結果, 精度の良い定量が行えることが確認できた。また, 今回の低合金鋼の結果の様に分析表に載っているような主要元素以外の微量の元素が数多く検出され, かつ精度よく定量が行うことができた。また, 20MeV照射における定量は30MeV照射に比べ妨害反応等が無視できるので有効であるが, 今回の高純度鉄の様に含まれる元素が極微量の場合には感度の低下が定量を不可能にしてしまうことがあるので, 照射時間を十分に長くし核種の生成量を増やすなど工夫が必要と思われる。

以上の様に, 鉄鋼試料の光量子放射化分析はマトリックスである鉄から生成される放射能が低く抑えられるため試料中の微量元素の分析を行うのに非常に有効である。それ故, 今後低放射化材料開発におけるそれら材料中の微量元素の研究, 評価等にこの標準添加内標準法が役立つことが期待される。

#### 参 考 文 献

- 1) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **83** (1984) 319.
- 2) 長谷川大輔, 原 光雄, 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **23** (1990) 222.
- 3) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **100** (1986) 287.
- 4) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **109** (1987) 237.
- 5) E. Browne, R. B. Firestone : "Table of Radioactive Isotopes," ed. by V. S. Shirley (Wiley-Interscience Publication, New York, 1986)

## 東北日本，寒風火山の微量元素組成

秋田大教育学部・教養部\*・理学部地学\*\*

林信太郎・吉田武義\*・高嶋幸生

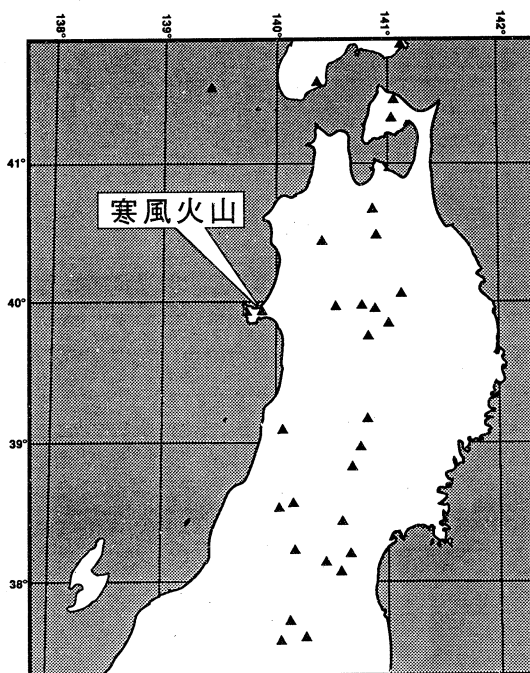
青木謙一郎\*\*

### § 1. はじめに

同一火山において異なる初生マグマに由来したと推定される岩石系列が共存する例は東北日本の脊梁火山列では古くから知られ、その成因的な関係が議論されてきた<sup>1-3)</sup>。

最近背弧側の火山でも複数の岩石系列が共存している例が見い出されてきた<sup>4,5)</sup>。これらの発見は背弧地域のカルクアルカリ安山岩の成因を考える上で重要である。

寒風火山(第1図)は東北日本男鹿半島中央部に位置する体積約0.6km<sup>3</sup>の小さな成層火山である。本火山は、大部分が最近2万年間に形成された若い火山である。本火山では、このような短い期間にすくなくとも3つのタイプの系統の異なるマグマが活動したことが林ら<sup>6)</sup>の主成分元素の検討から明らかになっている。本論文では寒風火山産の岩石を微量元素組成の観点からさらに詳しく検討する。



第1図 寒風火山の位置図。



## § 2. 地形および地質の概略

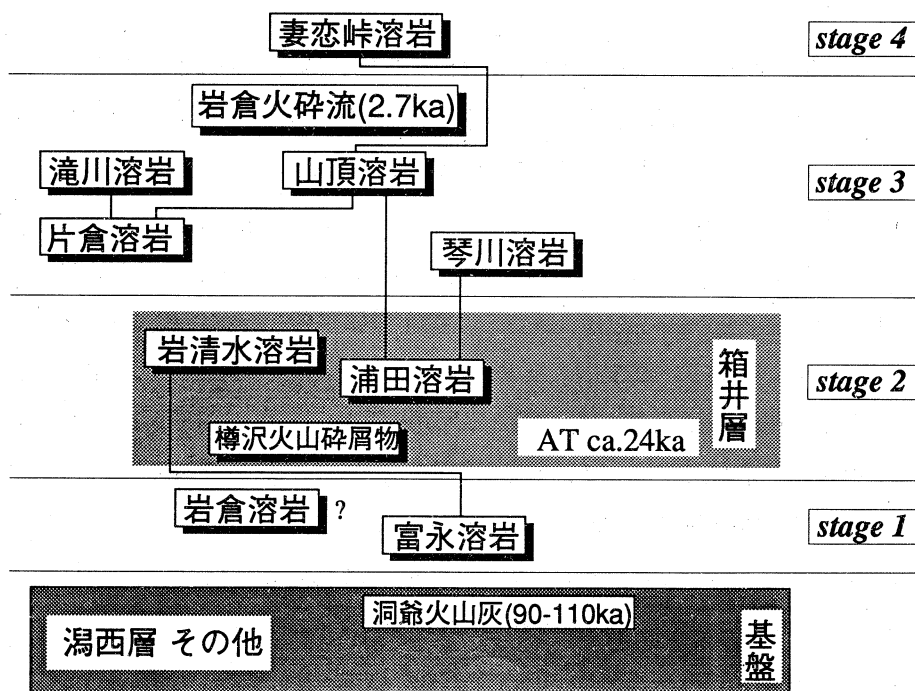
寒風火山は男鹿半島中央部に位置する、基底部の直径 5 km, 比高300mほどの小規模な成層火山であり、全体になだらかな姿をし、山頂部は地滑べりのため二分されている。

寒風火山の地質に関してはいくつかの研究があるが<sup>7,8)</sup>、ここでは林<sup>6)</sup>に基づいてその概略を述べることにする。第2図に本火山の層序を示した。

寒風火山は第三系や第四系の堆積岩類を基盤としている。寒風火山は鳥海帯の他の火山に比べて若く、その主要な部分は最近 2 万年間に形成された。本火山最古の溶岩は、2 万年よりも古い洞爺火山灰層<sup>9)</sup>の上位にあることから10万年前より最近に活動を開始したことが明らかである。寒風火山の活動は大きく 4 期に区分できる。

第 1 期は 2 万年前以前の陸上溶岩の活動期である。噴出物はカルクアルカリ安山岩質の分厚い陸上溶岩である。第 1 期噴出物の露出は火山体南西部に限られる。

第 2 期は箱井層<sup>10)</sup>(2 万年前後の砂, 泥を主体とした湖成層; 広域火山灰 AT が含まれる)と互層関係にある、浅い水域に定置した溶岩の活動期である。噴出物は第 1 期と同じくカルクアルカリ質の玄武岩質安山岩である。この時期の噴出物は火山の西麓や北麓に分布し、スパイラルを持つ厚い溶岩や、薄い水中溶岩、水底火砕流などからなる。



第 2 図 寒風火山の層序。

箱井層下底部には角閃石ハンレイ岩を含む二次堆積した火山砕屑物が含まれる（樽沢火山岩類）。これらの火山砕屑物は寒風火山に近い部分でもっとも多量に産し、離れた部分ではすくない。また、寒風火山近くの露頭では本質物質を多く含む。したがって、これらの火山岩類は寒風火山の活動と関連して噴出し堆積したと考えられる。岩石はアルカリ岩質<sup>6)</sup>で寒風火山の他の噴出物に比べて特異な組成を持っている。

第3期にはカルクアルカリ系列の玄武岩質安山岩や安山岩が噴出した。分厚い陸上溶岩5ユニットが噴出し、山体中央部の高まり——主成層火山体——をつくった。この時期までに寒風火山の主要な部分が形成された。第3期の末期に噴出したと推定される小規模な火砕流の放射年代は2700 YBPである。

第4期は玄武岩質溶岩の活動期である。主成層火山体中央部の滑落によってできた鞍部から噴出した溶岩が、第1火口を埋めている。なお、噴火と確実に認定し得る文書記録は残されていない。

### § 3. 岩石記載

本火山の岩石は記載岩石学的に3つに区分できる。以下に各タイプの岩石の記載岩石学的特徴について述べる。

#### 3.1 第1期～第3期に活動したカルクアリカリ安山岩（第1表のAおよびA'）

岩型としては両輝石安山岩、含角閃石両輝石安山岩、角閃石両輝石安山岩、含かんらん石両輝石安山岩、含かんらん石角閃石両輝石安山岩がある。

斑晶：斜長石（～3 mm）は自形柱状で塵状包有物を含まない清澄なものが多い。普通輝石（～1 mm）、斜方輝石（～1 mm）は自形柱状。不透明鉱物（～0.2 mm）は自形あるいは不規則な粒状。角閃石（～2 mm）は約半数のサンプルに認められ、自形長柱状でオパサイト化を受けている。かんらん石（～0.5 mm）は少数のサンプルに少量認められた。輝石や不透明鉱物に取り囲まれる。また、まれにアパタイトが認められる。

石基：細粒半晶質で斜長石、斜方輝石、不透明鉱物、普通輝石、ガラスからなる。

#### 3.2 第4期の玄武岩～玄武岩質安山岩（第1表のB）

岩型は含斜方輝石かんらん石単斜輝石玄武岩および含かんらん石角閃石両輝石安山岩である。

斑晶：斜長石（～3 mm）は自形柱状で塵状包有物を含むものが多い。単斜輝石（～6 mm）は自形短柱状。かんらん石（～2 mm）は自形あるいは半自形。不透明鉱物（～0.2 mm）は自形あるいは不規則な粒状。玄武岩中には完全にオパサイト化された角閃石と考えられる鉱

第1表 寒風火山産岩石のモード組成。

(vol.%)	1	2	3	4	5	6	7	8
	stage 1				stage 2			
	A		C		A			
石基	60.0	66.0	71.6	71.7	75.9	66.4	59.1	64.3
斜長石	31.5	24.6	14.4	10.3	10.4	10.6	34.1	25.8
かんらん石	—	0.1	0.4	—	tr.	—	0.3	—
単斜輝石	5.7	4.6	4.8	5.7	4.4	7.0	3.1	6.3
斜方輝石	1.4	2.1	—	—	—	—	2.7	1.1
角閃石	0.5	1.7	7.5	11.1	8.0	14.4	—	1.2
磁鉄鉱	0.9	0.9	1.4	1.2	1.3	1.6	0.9	1.4

(vol.%)	9	10	11	12	13	14	15	16	17
	stage 3					stage 4			
	A		A'		B				
石基	60.9	61.6	58.8	72.9	69.2	70.8	62.8	72.1	65.7
斜長石	33.1	32.0	35.6	20.0	26.0	24.2	26.4	18.1	26.8
かんらん石	—	—	—	—	—	tr.	3.2	2.2	0.3
単斜輝石	3.3	3.6	3.9	4.0	2.5	3.0	7.4	7.5	4.9
斜方輝石	2.4	2.1	1.3	1.3	1.4	1.3	tr.	tr.	1.2
角閃石	tr.	—	—	1.5	0.1	0.2	0.1*	0.1*	0.7
磁鉄鉱	0.3	0.8	0.4	0.4	0.7	0.6	0.2	0.1	0.4

A : カルクアルカリ岩系の玄武岩質安山岩, A' : カルクアルカリ岩系の安山岩,

B : 第4期の玄武岩, C : 第2期のアルカリ岩。

\* : 完全にオパサイト化されている。

- |                       |                       |                       |
|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| 1. 岩倉溶岩 (870726-5)    | 2. 富永溶岩 (850414-1)    | 3. 樽沢火山岩類 (TAR115)    |
| 4. 樽沢火山岩類 (TAR182)    | 5. 樽沢火山岩類 (TAR108)    | 6. 樽沢火山岩類 (TAR164)    |
| 7. 浦田溶岩 (870726-2)    | 8. 岩清水溶岩 (880114-2)   | 9. 琴川溶岩 (850503-8)    |
| 10. 琴川溶岩 (870702-1)   | 11. 山頂溶岩 (850804-1)   | 12. 澁川溶岩 (870626-4)   |
| 13. 片倉溶岩 (870626-3)   | 14. 片倉溶岩 (870701-1)   | 15. 妻恋峠溶岩 (850823-01) |
| 16. 妻恋峠溶岩 (850602-01) | 17. 妻恋峠溶岩 (850823-13) |                       |

物の集合体が認められる。安山岩中には縁辺部をオパサイト化された角閃石 (~1 mm) が認められる。玄武岩中の斜方輝石は単斜輝石に取り囲まれる。

石基 : 細粒半晶質で斜長石, 単斜輝石, 不透明鉱物, 斜方輝石 (±), ガラスからなる。

### 3.3 第2期のアルカリ岩 (第1表のC)

14~20%ものマフィック鉱物斑晶を含む特異なアルカリ岩、化学組成は玄武岩質であるが7~14%もの角閃石斑晶を含む。

斑晶：角閃石（~5 mm）は自形柱状でオパサイト化は全く受けていない。まれに4 cmに達する巨晶が含まれている。斜長石（~2 mm）は自形柱状で塵状包有物を含むものがある。単斜輝石（~3 mm）は自形短柱状。不透明鉱物（~1.5mm）は自形あるいは不規則な粒状。かんらん石（±；~1.5mm）は自形で角閃石のリムを持つ場合がある。

石基：細粒半晶質で、単斜輝石、角閃石、斜長石、不透明鉱物、ガラスからなる。

#### § 4. 試料の分析方法および分析結果

寒風火山の代表的な噴出物17個について分析を行った。試料は鉄乳鉢あるいはアルミナ製の乳鉢を用いて荒く粉碎した後、メノウ乳鉢あるいはメノウ製のボールミルを用いて微粉碎した。主成分元素の定量は秋田大学地学教室の蛍光X線分析装置（PW1400、フィリップス社製）を用いガラスビード法で行った。Na, Mg, Si, Al, Pの5元素については30kV, 60mAで、K, Ca, Ti, Mn, Feの5元素は45kV, 40mAで分析した。標準試料の湿式分析値を用いて検量線を求めた。また、光量子放射法を用いて、Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Zn, ZrおよびYの12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理学部原子核理学研究施設の電子ライナックを利用し、30MeVの加速電子を用いた。これらの分析結果を第2表に示す。

#### § 5. キャラクターゼーション

寒風火山の噴出物は $K_2O-SiO_2$ 図上で3つに区分できる。この区分は§ 3で述べた記載岩石学的に分類された3グループと一致する。

##### 5.1 第1期~第3期に活動したカルクアルカリ安山岩（第2表のAおよびA'）

$K_2O-SiO_2$ 図（第5図）でMedium-K領域<sup>11)</sup>の上部にプロットされる。 $SiO_2$ 量54~56%の玄武岩質安山岩と $SiO_2$ 量60~62%の安山岩に区分され、 $SiO_2$ で4%のギャップがある。

$(Na_2O+K_2O)-SiO_2$ 図<sup>12)</sup>（第3図）上では非アルカリ岩の領域に入り、 $SiO_2-FeO^*/MgO$ 図<sup>13)</sup>（第4図）上では大半がカルクアルカリ安山岩の領域に入る。

##### 5.2 第4期の玄武岩~玄武岩質安山岩（第2表のB）

$K_2O-SiO_2$ 図でMedium-K領域とHigh-K領域の境界付近にプロットされ、 $(Na_2O+K_2O)-SiO_2$ 図上では非アルカリ岩とアルカリ岩の境界にプロットされる。

第2表 寒風火山噴出物の全岩化学組成。

	stage 4																
	stage 1				stage 2				stage 3				stage 4				
	A				C				A				A'				
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17
wt%	54.53	54.74	46.43	48.47	49.17	49.71	54.56	55.12	54.17	54.31	56.13	59.65	60.87	61.51	51.84	52.21	55.37
SiO <sub>2</sub>	0.69	0.69	1.23	1.17	1.10	1.02	0.65	0.68	0.64	0.69	0.59	0.55	0.48	0.45	0.81	0.80	0.67
TiO <sub>2</sub>	19.02	18.80	19.42	19.68	19.13	18.59	19.66	18.91	20.00	19.53	19.59	18.16	17.66	17.89	18.62	18.81	18.23
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	8.04	8.08	11.25	9.26	9.83	9.94	7.94	7.77	7.77	8.16	7.25	6.07	5.82	5.75	8.88	8.80	7.52
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> *	0.19	0.20	0.17	0.16	0.17	0.17	0.20	0.19	0.20	0.20	0.19	0.15	0.16	0.14	0.20	0.22	0.18
MnO	4.09	4.18	5.91	5.28	4.68	5.05	3.98	4.05	3.73	3.98	3.42	3.03	2.62	2.27	5.73	5.21	4.34
MgO	8.44	8.42	11.61	11.91	11.33	10.43	8.34	8.44	8.61	8.54	7.66	6.78	6.07	5.64	8.90	9.03	7.61
CaO	3.24	3.19	2.48	2.48	2.85	3.26	2.98	3.11	3.21	2.97	3.40	3.53	4.02	4.02	3.22	3.20	3.75
Na <sub>2</sub> O	1.44	1.43	1.24	1.40	1.53	1.61	1.35	1.47	1.30	1.29	1.42	1.86	2.06	2.11	1.49	1.47	1.72
K <sub>2</sub> O	0.31	0.28	0.27	0.19	0.20	0.22	0.35	0.26	0.37	0.33	0.35	0.21	0.24	0.23	0.31	0.26	0.27
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>																	
ppm	48.4	48.8	34.6	31.2	34.1	36.9	45.1	45.9	46.5	44.0	47.7	47.2	49.8	52.1	43.5	42.8	44.6
Ce	18.5	18.6	34.2	25.8	26.1	28.0	15.7	17.6	15.8	16.0	13.3	13.3	13.6	11.1	32.8	29.7	20.5
Co	41.2	42.2	59.9	58.5	42.0	25.3	36.5	44.6	32.5	33.4	36.5	39.2	36.4	31.4	85.7	87.1	69.7
Cr	2.6	2.2	1.0	1.2	1.5	1.7	1.3	2.5	2.4	2.3	1.3	4.0	4.5	2.2	1.8	2.3	3.3
Cs	3.7	2.8	1.9	2.3	2.3	2.3	3.4	3.1	3.5	3.7	3.9	3.8	3.7	4.0	4.1	3.1	4.1
Nb	23.5	14.3	59.2	12.8	13.9	15.9	16.1	24.5	20.6	16.8	18.2	13.7	14.2	10.2	45.4	39.2	30.4
Ni	52.2	49.5	21.2	27.9	31.5	33.5	49.4	49.8	49.0	49.6	53.7	64.3	74.0	68.3	40.8	40.8	56.5
Rb	19.0	25.1	47.9	44.1	38.9	34.9	12.5	19.6	10.6	17.3	5.2	20.0	9.2	10.1	19.1	19.9	20.4
Sc	817	813	695	683	734	723	867	802	958	854	875	715	650	653	678	666	644
Sr	23.9	23.5	28.0	27.3	26.0	26.3	25.4	23.7	25.1	24.5	22.2	18.0	17.7	12.3	22.2	22.1	20.7
Y	76	48	80	93	59	29	79	53	81	78	68	36	52	39	61	77	58
Zn	103	106	57	59	65	72	100	98	105	99	114	112	116	122	87	87	103
Zr																	

主成分元素は水抜き100%に再計算してある。\*：全鉄。A：カルクアルカリ岩系の玄武岩質安山岩，A'：カルクアルカリ岩系の安山岩，B：第4期のアルカリ岩，C：第2期の玄武岩，C'：第2期のアルカリ岩。サンプル番号は第1図におなじ。

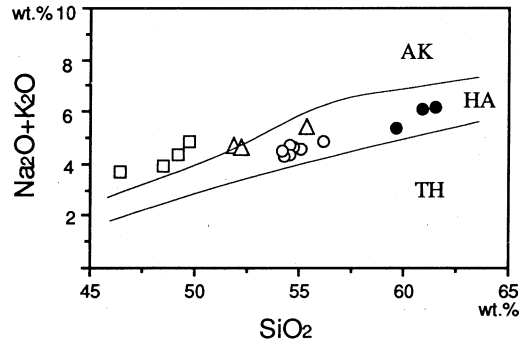
## 5.3 第2期のアルカリ岩 (第2表のC)

SiO<sub>2</sub>量46~50%で, Gill<sup>11)</sup>の分類を外挿するとHigh-K領域に入る。斑晶鉍物をできるだけ取り去った試料ではHigh-K安山岩領域に近い位置にくる<sup>6)</sup>。(Na<sub>2</sub>O + K<sub>2</sub>O) - SiO<sub>2</sub>図上ではアルカリ岩の領域に入る。

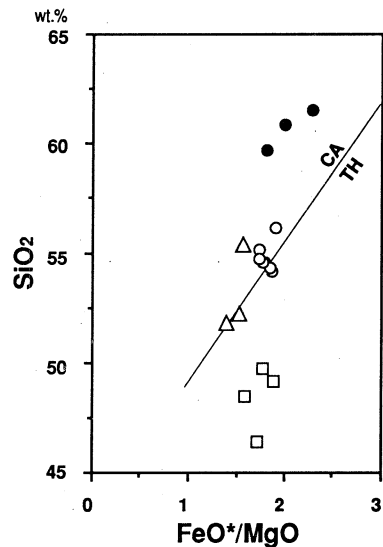
## § 6. 主成分元素組成

林ら<sup>6)</sup>は寒風火山噴出物を複数の親マグマに由来する3つのグループに区分した。これら3つのグループの岩石はK<sub>2</sub>O-SiO<sub>2</sub>図およびNa<sub>2</sub>O-SiO<sub>2</sub>図上で鋸歯状に配列する(第5図)。カルクアルカリ安山岩の内, SiO<sub>2</sub>に乏しいものは第4期の玄武岩よりもK<sub>2</sub>O, Na<sub>2</sub>Oが低い。寒風火山噴出物にはK<sub>2</sub>OやNa<sub>2</sub>Oに著しく富んだ鉍物は含まれていないので, K<sub>2</sub>OやNa<sub>2</sub>Oにより富んだ玄武岩から, K<sub>2</sub>O, Na<sub>2</sub>Oにより乏しい安山岩を結晶分化作用によって導くことはできない。したがって, カルクアルカリ安山岩と第3期の玄武岩は親マグマを異にしていると考えられる。また, 第2期に産出するアルカリ岩の内, SiO<sub>2</sub>にもっとも富んだ50%前後のものと, 第3期の玄武岩を比較すると, K<sub>2</sub>O, Na<sub>2</sub>O共にアルカリ岩の方が高い。したがってアルカリ岩も異なった親マグマに由来すると考えられる。

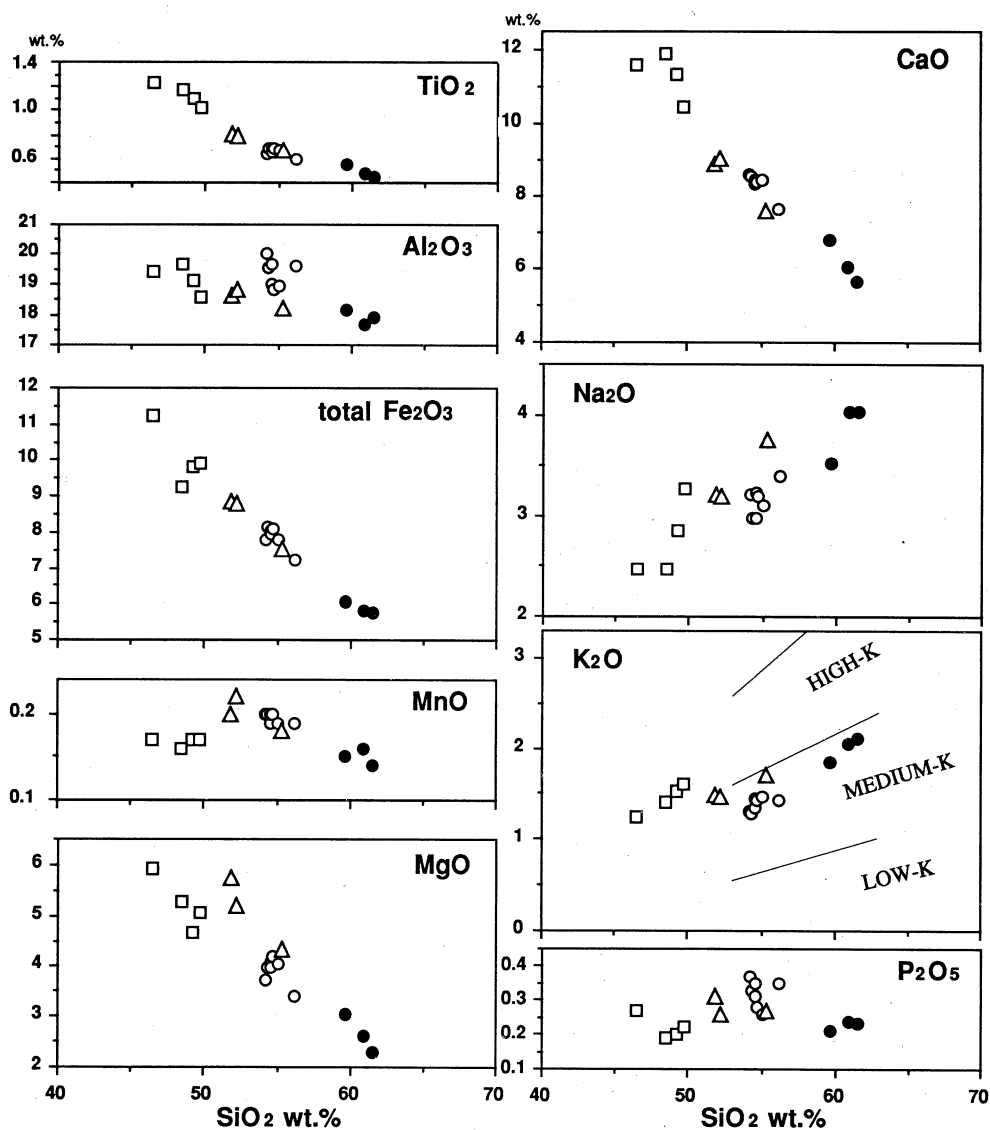
この3つのグループの岩石が異なる親マグマから導かれたことはTiO<sub>2</sub>とK<sub>2</sub>Oの関係(第6図)からもわかる。例えばおなじK<sub>2</sub>O量で比較した場合, TiO<sub>2</sub>量はカルクアルカリ安山岩, 第4期の玄武岩, 第2期の

第3図 Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O-SiO<sub>2</sub>図。

白丸: カルクアルカリ岩系の玄武岩質安山岩, 黒丸: カルクアルカリ岩系の安山岩, 白抜き三角: 第4期の玄武岩, 白抜き四角: 第2期のアルカリ岩。AK, HA, THはそれぞれKuno<sup>12)</sup>によるアルカリ岩領域, 高アルミナ玄武岩領域, ソレアイト領域を示す。

第4図 SiO<sub>2</sub>-FeO\*/MgO図。

記号は第3図におなじ。TH, CAは各々Miyashiro<sup>13)</sup>によるソレアイト岩系, カルクアルカリ岩系の領域を示す。



第5図 寒風火山噴出物のハーカー変化図。

図中の記号は第3図におなじ。K<sub>2</sub>O-SiO<sub>2</sub>図中にはGill<sup>11)</sup>による High-K, Medium-K, Low-Kの各領域を示した。

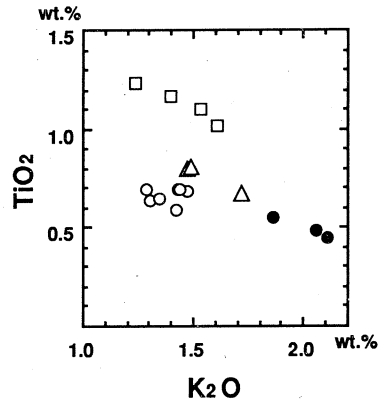
アルカリ岩の順に増加している。各グループの示すトレンドは食い違っており、各々のマグマは異なったTiO<sub>2</sub>/K<sub>2</sub>O比を持った親マグマに起源することを示す。

以上のように主成分元素の観点からは、寒風火山の岩石がすくなくとも3つの成因を異にするグループに区分されることがわかる。

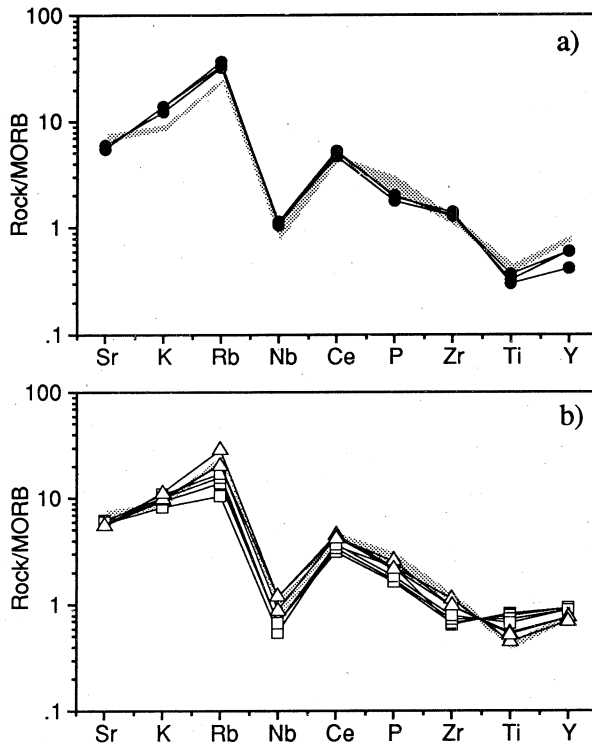
§ 7. 微量元素組成

第7図に寒風火山噴出物のインコンパティブル元素についての MORB 規格化パターンを示す。寒風火山噴出物は全体によく似通ったパターンを示している。いずれも東北日本背弧側で見られる典型的なパターン<sup>14)</sup>であり、著しい Nb の負異常や、HFS に対する LIL 元素の濃集を示している。

今回分析した微量元素のうちコンパティブル元素である Co, Cr, Ni, Sc は一連の結晶分化作用の産物においては通常 SiO<sub>2</sub> の増大と共に指数関数的に減少する。



第6図 TiO<sub>2</sub>-K<sub>2</sub>O 図。  
図中の記号は第3図におなじ

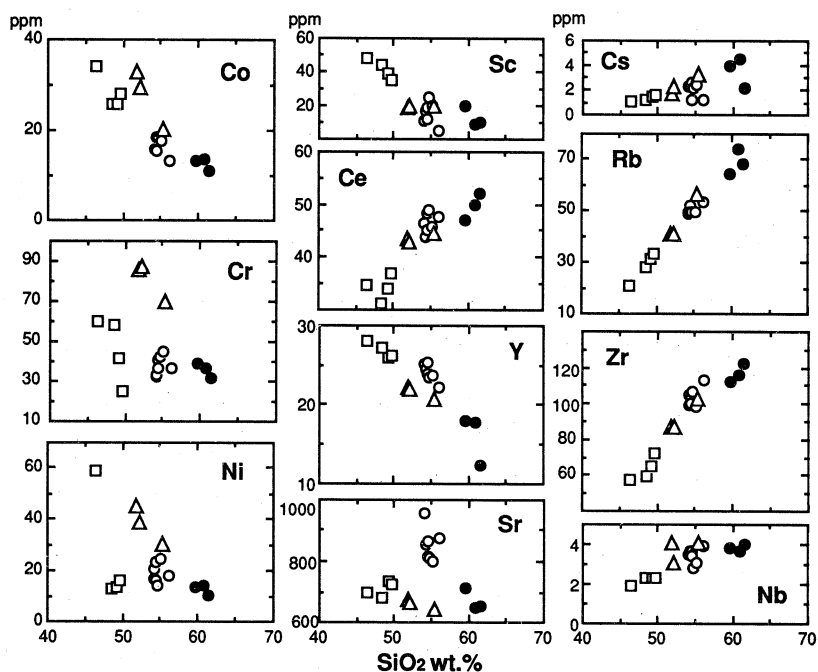


第7図 寒風火山噴出物の MORB 規格化パターン。  
a) 網目部分：カルクアルカリ岩系の玄武岩質安山岩の占める領域、黒丸：カルクアルカリ岩系の安山岩。  
b) 網目部分：カルクアルカリ岩系の玄武岩質安山岩の占める領域、白抜き三角：第4期の玄武岩、白抜きの四角：第2期のアルカリ岩。



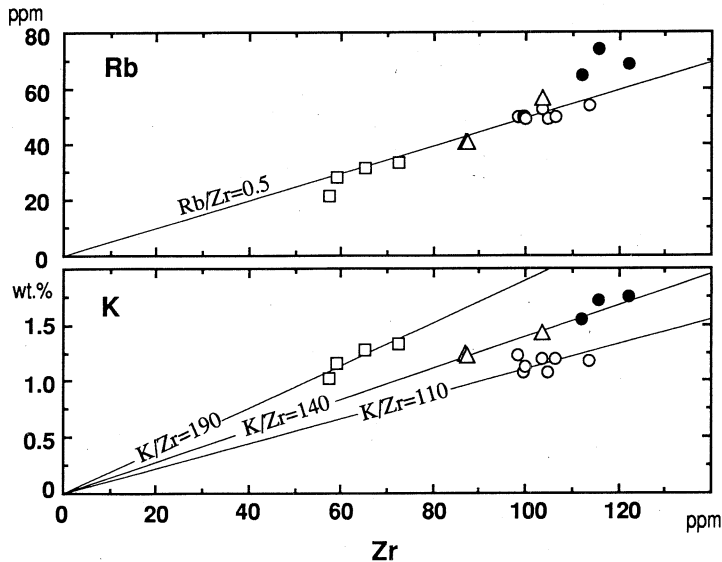
Co, Cr, Ni の 3 元素は各タイプの岩石の間でその挙動が異なる。すなわち、カルクアルカリ安山岩, 第 4 期の玄武岩, 第 2 期のアルカリ岩は各々異なるトレンドを描いており, 互いに食い違っている。SiO<sub>2</sub> にもっとも富むアルカリ岩の Co, Cr, Ni の 3 元素の量は第 2 期の玄武岩よりも乏しく, Ni, Cr についてはカルクアルカリ系列の玄武岩質安山岩よりも低い。また, 第 2 期の玄武岩とカルクアルカリ系列の安山岩を比較すると, Co, Cr, Ni の 3 元素に関しては, 玄武岩の方がこれらの元素に相対的に富んだトレンドを描いている。

さらに詳しく見るとカルクアルカリ系列の岩石を玄武岩質安山岩 (第 8 図中の白丸) と安山岩 (第 8 図中の黒丸) の 2 グループに区分することができる。例えば, Sc は両グループとも SiO<sub>2</sub> の増加に伴って急激に減少するトレンドを示しているが, 二つのトレンドはほぼ平行に並び明らかに食い違っている。同様な傾向は Co, Cr, Ni などの他のコンパティブル元素や Ce, Zr などのインコンパティブル元素でも認められる。これらの違いはインコンパティブル元素どうしの比にも表れている。第 9 図にあるようにカルクアルカリ系列の玄武岩質安山岩と安山岩は K/Zr 比, Rb/Zr 比が異なっている。すなわち, カルクアルカリ系列の玄武岩質安山



第 8 図 SiO<sub>2</sub>-微量元素変化図。

白丸：カルクアルカリ岩系の玄武岩質安山岩, 黒丸：カルクアルカリ岩系の安山岩, 白抜き三角：第 4 期の玄武岩, 白抜き四角：第 2 期のアルカリ岩



第9図 Rb-Zr, K-Zr 図。  
図中の記号は第8図におなじ。

岩は  $K/Zr$  比が約110,  $Rb/Zr$  比が0.5前後であるのに対して, 安山岩は  $K/Zr$  が約140,  $Rb/Zr$  比が0.6前後とやや高い。このようなカルクアルカリ系列の玄武岩質安山岩から安山岩を結晶分化作用で導くモデルとして, 大量の角閃石の分別を考慮することができる。しかし, この様な角閃石の分別モデルでは角閃石への分配係数の高い  $Sc$  が, 安山岩でより高い事実を説明できない。したがって, カルクアルカリ系列の玄武岩質安山岩と安山岩はその起源を異にすると考えられる。以上のように本火山に産出する岩石には, 単純な結晶分化作用では関連づけられない, 系統の異なる, 4つのグループが存在する。

このような系統の異なる4つのタイプのマグマは最近2万年間の短い期間に噴出している。2万年前後の第2期にはカルクアルカリ系列の玄武岩質安山岩とアルカリ岩が, それに引き続く第3期にはカルクアルカリ系列の玄武岩質安山岩と安山岩が, 最新期の第4期には  $K_2O$  にとんだ玄武岩が活動している。

この様に複数の系統の異なるマグマが短期間の間に活動する現象は, 渡島大島火山や利尻火山でも見いだされている。渡島大島火山や利尻火山では異なった系統のマグマが一輪廻の噴出で噴出している例が知られている<sup>14,15)</sup>。この様に背弧側の火山で異なった系統のマグマが密接に共存することは背弧側の火山に産するカルクアルカリ安山岩の成因を明らかにする上で重要である。

光量子放射化分析を行うにあたって、東北大学原子核理学研究施設の榊本和義博士ならびにライナックマシングループの方々には大変お世話になった。秋田大学鉱山学部資源素材工学科の丸山孝彦教授、山元正継助教授には、諸般にわたってご協力頂き、また常日頃議論していただいている。秋田大学教育学部地学教室の白石建雄教授には寒風火山近辺の第四紀層について御教示いただいた。また、同教室の武藤哲男技官には岩石薄片多数を制作していただいた。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金（63740460, 01302109, 02201206, 03201203）を使用した。以上の方々ならびに当局に深く感謝します。

### 参 考 文 献

- 1) Y. Kawano, K. Yagi, and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ., Series 3, 7 (1961) 1.
- 2) A. Fujinawa : Lithos **22** (1988) 135.
- 3) 酒寄淳史 : 火山 **36** (1991) 79.
- 4) 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **21** (1988) 268.
- 5) 小林哲夫, 吉田武義, 福岡孝昭, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **20** (1987) 216.
- 6) 林信太郎, 稲葉玲子, 進藤紀幸 : 秋田大学教育学部紀要 **41** (1990) 103.
- 7) 丸山孝彦, 山元正継, 吉岡修司 : 秋田大学鉱山学部資源地学研究施設報告 **53** (1988) 1.
- 8) 中尾忠司 : 北海道大学理学部卒業論文(手記) 1980.
- 9) 町田洋, 新井房夫, 宮内崇祐, 奥村晃史 : 第四紀研究 **26** (1987) 129.
- 10) 白石建夫, 竹内貞子, 林信太郎, 林聖子 : 第四紀研究 **27** (1988) 187.
- 11) J. B. Gill : *Orogenic andesite and plate tectonics*. (Springer-Verlag, 1981) p. 239.
- 12) H. Kuno : Bull. Volcanol. **29** (1966) 195.
- 13) A. Miyashiro : Am. J. Sci. **274** (1974) 321.
- 14) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki : J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. **81** (1986) 406.
- 15) M. Yamamoto : J. Fac. Sci. Hokkaido Univ. Series. IV, **21** (1984) 77.

## 東北本州弧，八幡平火山群における マグマ組成の時空変化

理学部地学，教養部\*，能代高校\*\*

大場 司・吉田武義\*・渡部 均\*\*

青木謙一郎

### § 1. はじめに

東北本州弧，脊梁火山列に属する八幡平火山（39°57'N，140°51'E）は脊梁山脈上の岩手・秋田県境にまたがる位置にある。本火山は多数の火山体から構成され，東西約25km，南北約20kmの一つの火山群をなしている。本火山の研究としては，河野・青木<sup>1)</sup>，Masuda and Aoki<sup>2)</sup>，吉田ら<sup>3)</sup>などがある。八幡平火山群は，ソレアイト系列岩とカルクアルカリ系列岩が共存する代表的な脊梁火山列火山であり，両系列岩の成因を論じるには最適のフィールドである。本火山群において，ソレアイト，カルクアルカリ両系列岩の時空分布を詳しく検討した結果，本火山群における両系列岩の時空分布の詳細が明らかになったとともに，ソレアイト，カルクアルカリ両系列岩が明瞭に二分できるものではなく，両者の中間的な性格を有するものも含めて多数の組成変化トレンドが存在することが明らかになった。個々の組成変化トレンドはほぼそれぞれ異なる噴出中心をなす各山体に対応しており，本火山群の一部においては，火山群西側でのカルクアルカリ系列岩の活動から火山群東側でのソレアイト系列岩の活動へと時空的にも両岩系が漸移的に変化していることが明らかになった。

本報告では，八幡平火山群を構成するこれらソレアイト～カルクアルカリ岩系岩の地質学的，地球化学的漸移関係を，火山群全域から採集された試料についての光量子放射化分析法や蛍光X線法などによる分析結果にもとづいて明らかにする。

### § 2. 八幡平火山群

#### 2.1 地 形

八幡平火山は多数の火山体から構成される一つの火山群をなす。すなわち，八幡平（最高峰：1,614m）を中心に，西側へ国見台，秋田焼山が並び，東方には源太森，茶臼岳（1,578m）が並ぶ。茶臼岳からは北東に恵比須森，大黒森，屋ノ棟森，西森山，前森山という標高1,400～1,300mの山列が連なる。八幡平と茶臼岳にはさまれてやや北方には，安比岳（1,493m）が，

また八幡平南方には、畚岳 (1,578m)、諸桧岳 (1,516m)、嶮岨森 (1,448m)、大深岳といった山列が連なる。

八幡平の山頂付近は非常になだらかであり、4×3 km ほどの広さの台地状地形が見られる。山頂付近には火口湖と思われる沼がいくつか点在している。山頂から西側のアスピーテライン付近には保存のよい溶岩流の地形が見られるが北方の倉形沢付近や南西の伝左衛門沢付近は開析が進んで火山原地形はほとんど見られない。

茶臼岳付近はかなり侵食、崩壊が進んでいるが、源太森から黒谷地付近には溶岩地形がみられ、また、源太岩付近や大黒森付近でも溶岩流の地形が見られる。茶臼岳から南東方向に大長根と呼ばれるなだらかな尾根があるが、古い山体の一部が侵食されずに残ったものであろう。

茶臼岳の北東方向には西森山、前森山が連なっている。西森山の北側には溶岩流の地形がみられる。山麓部は広く平坦な地形が広がっている。前森山は成層火山体を成し、北側の山麓部には何枚もの溶岩流の地形が明瞭に残っている。

焼山-茶臼岳-前森山の火山列から少し北にはずれたところに安比岳があるが、その北方にはなだらかな斜面が南北約7 km にわたって広がっている。この緩斜面は安比岳から北へ流れた溶岩の原面と、桂久保山の溶岩原面からなる。

八幡平から南には畚岳、諸桧岳、嶮岨森、大深岳が並んでいる。畚岳は溶岩流や火口などの地形がよく残っている。しかし、そのほかの諸桧岳、嶮岨森、大深岳はあまり火山原地形が明瞭ではない。

下倉山は、南側が崩壊しているが、北側はよく溶岩地形が残っている。

八幡平の南西、焼山の南には沢が深く刻まれて開析の進んだ地域が広がっている。V字に刻まれた侵食谷の深さが数百 m にも及んでいる。この地域はそのような沢が数多くあるために複雑に入り組んだ地形をしている。この地域は玉川溶結凝灰岩の分布する地域である。

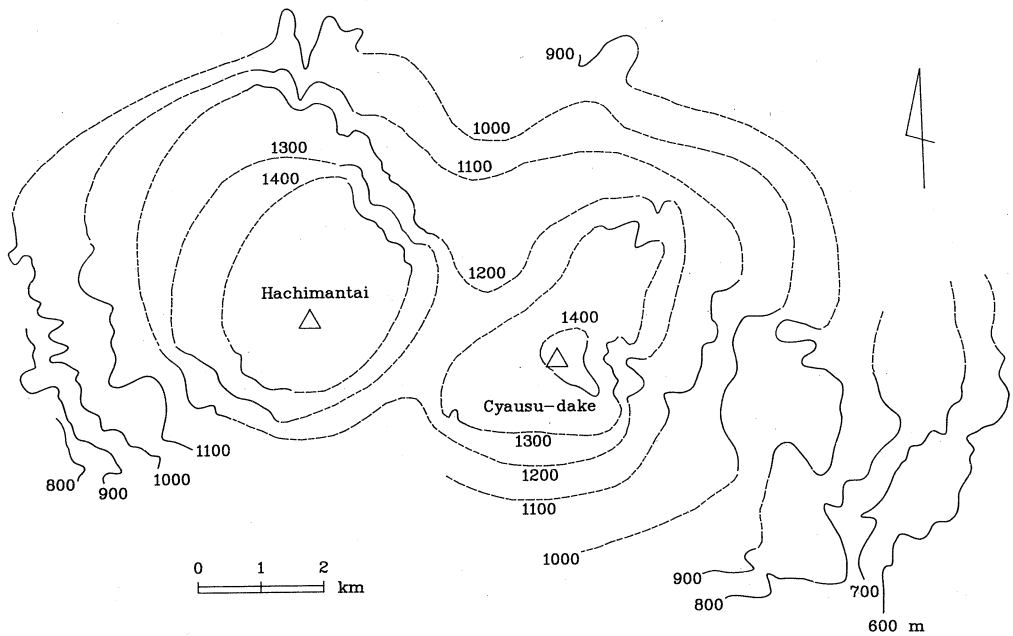
茶臼岳地域は開析がかなり進んでいる。一方、八幡沼や畚岳などの火口はよく保存されている。八幡平火山群を構成する各山体は比較的なだらかで、特に八幡平と諸桧岳は偽アスピーテ地形を示す。また、爆裂火口も多数存在し、各所に温泉、熱水変質帯があり、本地域は大きな地熱地帯になっている。そのため、地滑り地形、滑落ブロックも多い。

## 2.2 基 盤

八幡平火山群噴出物が直接おおう基盤は、中新世の熊沢川層<sup>4)</sup>、小志戸前層、山津田層<sup>5)</sup>、ならびに玉川溶結凝灰岩類<sup>6)</sup>と呼ばれる鮮新世末～更新世初期の大規模火砕流堆積物である。八幡平火山群の分布地域内で基盤は、西で高く、東で低い。







第3図 茶臼岳と八幡平の旧火山体復元図。

終了後に畚岳の活動が起きたのであろう。

須藤ら<sup>7)</sup>は西側の八幡平—諸柵岳火山群と東側の茶臼岳—前森山火山群に区分し、前者の噴出物は逆帯磁、後者の噴出物は正帯磁を示すものが多いことから、前者が松山逆磁極期、すなわち前期更新世、後者がブリューン正磁極期に噴出したと推定している。すなわち、茶臼岳の活動およびそれ以降の安比岳、西森山・屋ノ棟岳、前森山の活動は70万年前より新しいことになる。

また、火山灰層序からみると、八幡平火山東麓には多数の降下火砕物が分布している。その中で、顕著に発達するのが外山火山灰である。この地域の外山火山灰は、岩手火山東麓の外山火山灰と細部の層序を比較すると、岩手火山以外の給源と考えられるスコリアを挟み、それらの給源は、八幡平火山群と推定される。また、前森山から東麓に流下した溶岩流の一部は、確実に外山火山灰中に介在している（土井、未発表）。外山火山灰は11~27万年前の火山灰であり<sup>8)</sup>、前森山の活動年代はこの時期であると考えられる。

茶臼岳の活動が終了した後、西森山や安比岳の活動があった。安比岳は茶臼岳や八幡平の山体がかなり崩壊、侵食されてから溶岩流を流出したと思われる。

西森山の活動が終了した後その東側で前森山の活動があり、成層火山体が形成された。茶臼岳から西森山、前森山と西から東に向かって活動位置が移動していったが、東端の活動は前森



山で終了する。

### §3. 八幡平火山群を構成する岩石

#### 3.1 ピジョン輝石質岩系とシソ輝石質岩系

八幡平火山群を構成する岩石は、ピジョン輝石質岩系に属するものとシソ輝石質岩系<sup>9)</sup>に属するものからなる。ピジョン輝石質岩系に属するものとしては、普通輝石含有シソ輝石玄武岩、普通輝石カンラン石玄武岩、カンラン石普通輝石シソ輝石玄武岩、カンラン石普通輝石シソ輝石安山岩、普通輝石シソ輝石安山岩、普通輝石シソ輝石デイサイトがある。一方、シソ輝石質岩系に属するものとしては、カンラン石普通輝石シソ輝石安山岩、普通輝石シソ輝石安山岩がある。

#### 3.2 岩石組織

ピジョン輝石質岩系の岩石は石基が完晶質の場合が多い。逆にシソ輝石質岩系の岩石の石基は結晶度が悪く、ガラス質、ハイアロオフィティック、隠微晶質などの石基組織が多い。シソ輝石質岩系の岩石の石基はしばしば石基鉱物サイズなどに不均質性がみられる。

ピジョン輝石質岩系の岩石の斑晶鉱物は斜長石、カンラン石(±)、普通輝石、シソ輝石からなり、稀に磁鉄鉱を含むこともある。シソ輝石質岩系の岩石の斑晶鉱物は斜長石、カンラン石(±)、普通輝石、シソ輝石、磁鉄鉱、石英(±)からなるが、しばしば石英とカンラン石が同時に含まれる。

シソ輝石質岩系の岩石中で見られる斜長石斑晶は dust zoning をもつものが多く含まれる。dust zoning をもつ斜長石には内部がすべて dusty でリムのみがクリアなものと、コアの部分とリムの部分がクリアでその間がマンテル状に dusty な部分をもつものがある。そのようなマンテル状の dusty zoning の厚さは薄いものから厚いものまで様々である。内部にパッチ状の双晶をもつものもみられる。内部にパッチ状双晶をもつ斜長石はその外側に厚い光学的に累帯構造の著しい層をもっている。パッチ状双晶の部分はクラックが発達していることが多い。dust zoning やパッチ双晶をもつ斜長石とクリアな斜長石は必ず共存している。シソ輝石質岩系の岩石の中でも内部がすべて dusty な斜長石や、内部にパッチ双晶をもつ斜長石をもつものはおもに茶臼岳の活動晩期に見られる石英+カンラン石+シソ輝石+普通輝石の組合せを持つ岩石である。マンテル状の dusty zoning をもつ斜長石はシソ輝石質岩系の大部分の岩石中に含まれる。これに対して、ピジョン輝石質岩系の岩石中に斑晶として含まれる斜長石はほとんどのものがクリアであり、dust zoning があっても量は少なく、しかもその zoning は薄い。

シソ輝石質岩系の岩石中のカンラン石斑晶は反応縁をもつ場合にはその反応縁はシソ輝石からなっており、それに対してピジョン輝石質岩系の岩石中のカンラン石は、反応縁をもつ場合にはその反応縁は単斜輝石からなっている。シソ輝石質岩系の岩石中のカンラン石は多面体自形もしくは骸晶である。一方、ピジョン輝石質岩系の岩石中のカンラン石は多面体自形もしくは半自形であり、骸晶はない。

ピジョン輝石質岩系の岩石中の斜方輝石の周囲には単斜輝石の反応縁があることがある。シソ輝石質岩系の岩石中の石英斑晶は融食形を示す。

#### 3.4 Subordinate tholeiite 系列

ピジョン輝石質岩系の安山岩のうち、一部は全岩化学組成上はシソ輝石質岩系の岩石に近い組成を有し、Kawano *et al.*<sup>10)</sup> の subordinate tholeiite 系列に対応している。Kawano *et al.* は subordinate tholeiite 系列の岩石と典型的なソレイト系列の岩石の間には  $K_2O/Na_2O$  比にかなり明瞭な差があることを明らかにしている。吉田ら<sup>3)</sup> は、典型的なソレイト系列とカルクアルカリ系列の岩石は  $FeO^*/MgO-SiO_2$  図ならびに  $MgO/FeO^*-K_2O/Na_2O$  図上で明瞭に識別できるとともに、両系列の間には漸移的な岩系が存在すること、石基におけるピジョン輝石の有無のみでは化学組成から定義された岩石系列の識別が難しい場合があることを明瞭に示している<sup>3)</sup>。

Subordinate tholeiite はカルクアルカリ系列に属する苦鉄質安山岩であり、mixing rocks であることが多い。

#### §4. 試料の分析方法ならびに分析結果

八幡平火山群を構成する噴出物について、蛍光X線分析法により、 $SiO_2$ ,  $TiO_2$ ,  $Al_2O_3$ , 全鉄,  $MgO$ ,  $CaO$ ,  $Na_2O$ ,  $K_2O$ ,  $P_2O_5$ ,  $V$ ,  $Cr$ ,  $Ni$ ,  $Cu$ ,  $Zn$ ,  $Sr$ ,  $Rb$ ,  $Zr$ ,  $Y$ ,  $Ba$  の分析を行い、 $FeO$  は過マンガン酸カリ滴定法により、 $H_2O$  は重量法により分析を行った。また、光量子放射化法<sup>11)</sup>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。照射試料についての $\gamma$ 線スペクトロメトリーは同施設のRI測定室で行い、東北大学教養部地学科において、定量計算ほかのデータ処理を行った。得られた分析結果を第1表に示す。 $Cr$ ,  $Ni$ ,  $Rb$ ,  $Sr$ ,  $Y$ ,  $Zr$  について光量子放射化分析と蛍光X線分析の結果を比較した(第4図)。サンプルの採取地は第5図に示した。

第1表 八幡平火山群噴出物の化学組成

	AP	AP	AP	AP	AP	AP	NM	NM	NM	NM	NM	NM
番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Wt%												
SiO <sub>2</sub>	52.43	52.71	52.79	53.99	57.25	57.89	50.97	52.31	52.95	53.44	53.44	54.45
TiO <sub>2</sub>	0.98	0.88	0.81	0.88	0.81	0.98	0.81	0.81	0.79	0.88	0.77	0.75
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	18.38	17.68	17.70	18.97	16.36	16.90	18.01	17.11	18.48	17.32	18.11	17.39
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.17	2.77	2.09	2.17	2.60	2.55	3.28	2.06	2.62	3.27	3.81	3.08
FeO	5.87	6.22	6.49	5.70	5.28	5.70	6.43	7.84	5.92	6.71	5.08	5.60
MnO	0.162	0.181	0.169	0.147	0.163	0.168	0.189	0.182	0.152	0.186	0.152	0.145
MgO	4.46	4.82	5.98	3.59	4.35	2.91	6.49	6.22	4.61	5.54	5.12	4.98
CaO	10.70	11.17	10.23	10.70	8.84	7.83	10.59	10.06	9.87	8.83	9.75	9.54
Na <sub>2</sub> O	2.37	2.27	2.18	2.23	2.52	2.91	1.95	1.85	2.22	2.05	2.13	2.14
K <sub>2</sub> O	0.22	0.23	0.17	0.51	0.62	0.69	0.12	0.27	0.30	0.39	0.31	0.60
H <sub>2</sub> O (+)	0.72	0.75	1.08	0.93	0.74	0.87	0.84	1.00	0.48	0.61	0.95	0.79
H <sub>2</sub> O (-)	0.41	0.22	0.22	0.10	0.38	0.47	0.23	0.21	1.53	0.66	0.30	0.45
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.119	0.102	0.083	0.092	0.095	0.122	0.081	0.090	0.089	0.102	0.087	0.085
total	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
ppm												
V	269	261	242	291	197	224	268	275	238	262	247	242
Cr	48.6	173.5	110.9	164.5	99.5	116.7	94.6	84.5	55.1	84.4	81.2	77.1
Cr*	54.1						96.7					
Ni	27.2	41.0	35.5	46.1	41.6	35.8	35.0	32.0	31.0	33.9	43.4	37.6
Ni*	37.4						47.1					
Cu	42	33	48	44	31	20	34	43	33	42	43	49
Zn	81	74	70	79	70	79	81	85	73	84	76	74
Zn*	87				89		87					
Rb	6.5	6.9	7.4	15.6	19.3	19.4	6.0	11.2	10.8	12.6	8.8	20.3
Rb*	2.9				2.1		1.4					
Sr	298	253	261	264	224	235	247	252	284	242	293	295
Sr*	301				251		258					
Y	14.5	14.5	13.9	18.9	21.0	55.2	10.9	18.1	15.0	16.5	14.2	15.3
Y*	18.7				21.8		16.5					
Zr	50.6	51.4	46.6	54.2	73.1	70.1	38.5	48.9	68.8	60.9	74.2	71.5
Zr*	39.5				45.6		34.7					
Nb*	1.5				2.7		1.6					
Ba	114	68	89	143	194	188	60	107	127	109	164	169
Ba*	394											
Sc*	32				30		31					
Co*	37.6				32.1		37.6					
Cs*	0.13				0.07		0.04					
Ce*	6.3				6.8		9.7					

\* : 光量子放射化分析, AP : 安比岳グループ, NM : 西森山グループ, MM : 前森山グループ, CH : 茶臼岳グループ, S : 南方火山列, HM : 八幡平グループ



	CH	CH	CH	CH	CH	CH	CH	CH	CH	CH	CH	CH
番 号	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36
Wt%												
SiO <sub>2</sub>	52.75	53.75	54.88	55.18	55.18	55.44	56.86	57.13	57.19	58.39	58.77	58.95
TiO <sub>2</sub>	0.86	0.71	0.69	0.79	0.70	0.80	0.73	0.84	0.74	0.75	0.80	0.76
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	17.11	16.92	15.40	16.95	16.20	16.21	16.09	15.95	16.34	15.80	15.80	16.02
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.05	3.28	1.78	1.96	1.98	2.38	1.68	2.55	4.17	2.63	2.82	2.74
FeO	6.50	5.18	6.86	6.40	6.02	6.17	6.74	6.05	3.66	4.91	4.95	4.61
MnO	0.154	0.163	0.156	0.169	0.158	0.164	0.152	0.160	0.147	0.147	0.151	0.137
MgO	5.58	5.87	7.66	5.65	6.56	5.85	5.85	4.52	5.09	4.63	4.45	4.46
CaO	9.96	9.92	9.11	8.78	9.25	8.78	8.15	8.08	7.45	7.52	7.40	7.48
Na <sub>2</sub> O	2.09	2.05	2.02	2.38	2.09	2.28	2.23	2.91	2.28	2.52	2.47	2.51
K <sub>2</sub> O	0.19	0.26	0.56	0.73	0.61	0.71	0.85	0.92	0.95	0.96	0.92	0.98
H <sub>2</sub> O (+)	1.07	1.00	0.56	0.88	0.88	0.98	0.51	0.60	1.34	0.93	0.89	0.54
H <sub>2</sub> O (-)	0.59	0.84	0.25	0.06	0.31	0.16	0.10	0.13	0.62	0.33	0.30	0.31
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.088	0.071	0.076	0.082	0.067	0.082	0.078	0.107	0.085	0.104	0.100	0.104
total	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
ppm												
V	313	225	219	214	275	229	223	211	197	177	188	189
Cr	80.1	102.8	324.6	146.6	84.5	131.1	143.1	56.2	87.7	88.4	78.4	88.7
Cr*						141.0						
Ni	34.3	28.0	118.9	64.8	32.0	39.7	42.2	29.6	38.6	39.6	30.7	32.2
Ni*						50.9						
Cu	19	25	40	22	43	24	47	27	39	24	33	32
Zn	63	79	77	71	85	77	73	73	72	67	69	73
Zn*		107				63						
Rb	8.2	9.0	19.4	23.4	11.2	23.8	29.5	30.0	28.3	30.6	22.4	33.2
Rb*		15.9				16.1						
Sr	267	218	251	252	252	262	241	244	241	256	255	259
Sr*		245				264						
Y	18.2	17.3	17.4	18.3	18.1	19.4	22.5	24.8	23.7	24.9	26.2	27.0
Y*						20.5						
Zr	47.4	48.6	70.4	80.9	48.9	86.6	92.2	100.0	110.3	104.6	116.6	110.7
Zr*		62.0				86.2						
Nb*		3.5				3.1						
Ba	81	91	160	208	107	184	247	249	288	232	297	266
Ba*		380										
Sc*		20				22.30						
Co*		24.0				35.1						
Cs*						0.47						
Ce*		13.3				10.7						



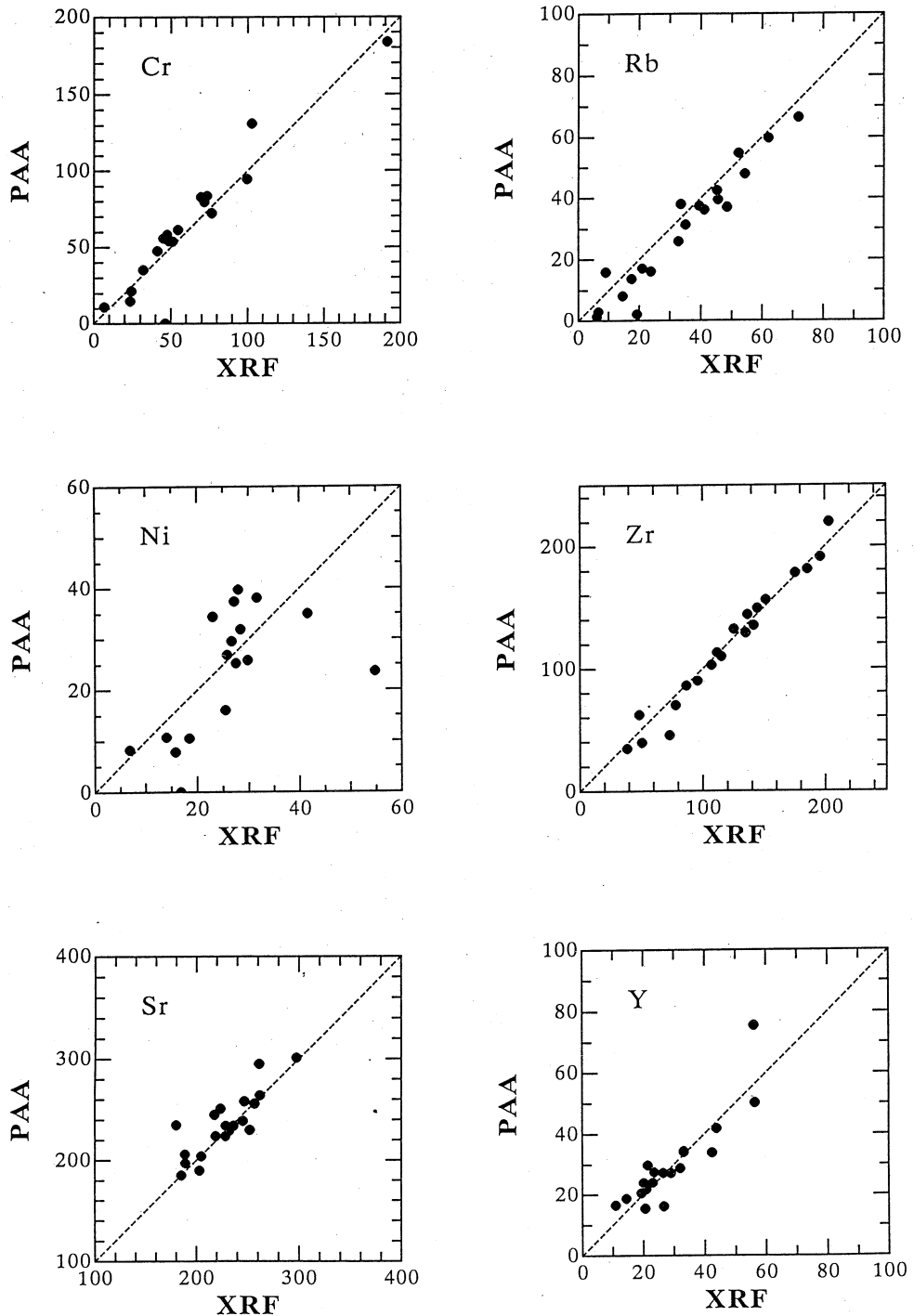
	CH	CH	CH	CH	CH	CH	CH	CH	S	S	S	S
番 号	49	50	51	52	53	54	55	56	57	58	59	60
Wt%												
SiO <sub>2</sub>	61.96	62.22	62.78	63.20	63.36	63.58	67.63	69.64	55.81	60.39	60.41	61.01
TiO <sub>2</sub>	0.75	0.78	0.77	0.79	0.79	0.77	0.98	0.68	1.00	0.69	0.79	0.66
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.07	16.31	14.39	14.83	14.56	14.73	13.67	15.20	15.83	15.46	15.56	15.36
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.16	2.81	3.00	2.39	2.50	3.59	1.94	2.98	3.03	2.58	3.53	3.34
FeO	5.11	4.02	4.60	3.90	4.14	2.99	3.71	1.47	6.49	4.99	3.23	3.75
MnO	0.132	0.130	0.144	0.118	0.120	0.113	0.061	0.073	0.183	0.145	0.123	0.132
MgO	3.66	3.65	3.10	3.18	3.26	3.07	1.24	1.03	4.11	3.79	3.36	3.38
CaO	6.14	5.83	5.91	5.89	5.74	5.80	3.83	3.05	8.44	7.32	6.58	6.91
Na <sub>2</sub> O	2.67	2.21	2.66	2.83	2.69	2.70	3.19	3.07	2.59	2.55	2.69	2.70
K <sub>2</sub> O	1.39	1.32	1.56	1.55	1.54	1.52	1.69	1.60	0.48	1.06	1.15	1.20
H <sub>2</sub> O (+)	0.45	0.67	0.86	0.84	0.79	0.95	1.25	0.85	0.86	0.56	1.30	0.96
H <sub>2</sub> O (-)	0.14	0.26	0.12	0.37	0.18	0.30	0.64	0.27	1.08	0.38	1.18	0.51
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.101	0.058	0.112	0.106	0.110	0.107	0.176	0.086	0.097	0.078	0.096	0.085
total	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
ppm												
V	154	180	158	141	142	138	82	65	269	179	169	158
Cr	52.0	69.1	45.5	163.8	37.7	39.2	6.8	12.6	23.6	36.3	74.0	73.3
Cr*							10.9		14.8			
Ni	24.8	34.1	20.6	51.0	17.3	18.0	6.9	45.4	15.8	14.3	29.4	24.8
Ni*							8.2		7.8			
Cu	33	61	34	34	34	32	40	32	42	28	24	30
Zn	70	69	69	63	66	62	56	140	74	70	69	63
Zn*							72		95			
Rb	44.4	43.7	47.9	49.2	48.9	46.5	48.4	62.5	14.6	31.1	36.4	33.1
Rb*							37.1		8.1			
Sr	214	201	217	212	213	206	189	229	261	225	210	214
Sr*							197		295			
Y	34.2	30.3	37.8	39.6	38.9	36.8	56.0	61.4	20.1	29.4	33.0	31.1
Y*							75.5		23.9			
Zr	145.2	131.1	168.1	159.5	165.4	154.4	196.1	246.4	77.9	114.6	126.3	127.9
Zr*							191.0		69.9			
Nb*							7.1		2.8			
Ba	367	271	809	377	437	363	402	483	192	309	306	300
Ba*							309		215			
Sc*							16		30			
Co*							13.3		29.7			
Cs*							0.49		0.14			
Ce*							48.9		13.1			

第1表 (続き)

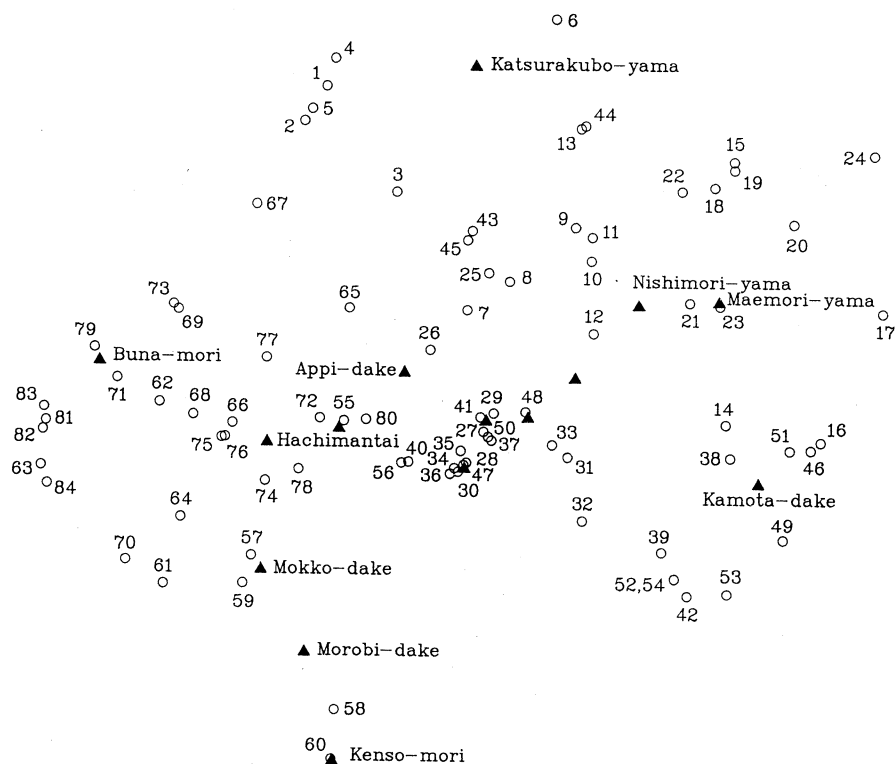
	S	HM	HM	HM	HM	HM	HM	HM	HM	HM	HM	HM
番号	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71	72
Wt%												
SiO <sub>2</sub>	61.21	54.53	54.83	55.19	55.41	55.42	56.14	56.72	57.34	57.82	58.55	59.41
TiO <sub>2</sub>	0.78	0.86	0.91	0.77	0.88	0.78	0.74	0.77	0.83	0.89	0.76	0.68
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	16.08	17.11	15.92	16.56	16.29	16.14	17.37	16.51	16.52	16.18	15.99	15.36
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.61	3.25	2.80	3.99	3.70	5.60	2.11	5.02	2.99	2.49	3.03	2.18
FeO	4.10	5.53	5.66	4.82	5.04	3.67	5.37	3.34	5.17	5.76	5.07	4.85
MnO	0.141	0.171	0.155	0.169	0.226	0.159	0.153	0.158	0.153	0.167	0.155	0.140
MgO	3.29	5.58	5.68	4.37	5.92	5.41	4.66	4.94	4.20	3.84	4.78	4.33
CaO	6.87	6.71	8.31	9.11	8.06	8.87	9.69	8.47	7.75	8.20	7.95	7.92
Na <sub>2</sub> O	2.85	1.76	2.33	2.42	2.13	2.11	2.35	2.26	2.47	2.71	2.34	2.56
K <sub>2</sub> O	1.14	0.43	1.01	0.79	0.84	0.60	0.50	0.61	0.63	0.72	0.84	0.99
H <sub>2</sub> O (+)	0.63	2.70	1.30	0.95	0.54	0.58	0.51	0.69	1.20	0.85	0.41	0.64
H <sub>2</sub> O (-)	0.21	1.30	0.97	0.77	0.85	0.57	0.32	0.45	0.65	0.27	0.05	0.13
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.101	0.079	0.130	0.086	0.113	0.085	0.084	0.063	0.096	0.097	0.085	0.800
total	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
ppm												
V	160	214	187	247	234	240	233	212	192	226	186	182
Cr	32.8	91.4	93.0	84.9	200.0	92.3	94.1	86.6	53.9	71.8	63.0	53.9
Cr*										79.6		
Ni	15.4	41.0	42.6	27.2	61.6	36.6	26.2	38.0	25.0	23.1	24.8	21.3
Ni*										34.4		
Cu	20	44	30	29	34	39	33	28	28	29	37	36
Zn	61	78	66	77	77	73	67	75	77	71	69	69
Zn*										94		
Rb	34.9	9.2	32.3	21.4	26.5	21.3	13.7	16.7	12.5	20.9	25.8	31.6
Rb*										17.1		
Sr	224	283	294	224	232	265	251	246	264	236	241	214
Sr*										234		
Y	29.4	23.9	28.9	22.7	21.8	21.1	19.4	26.1	21.2	23.5	32.5	27.7
Y*										27.4		
Zr	126.8	103.3	108.4	84.8	91.9	82.9	64.6	93.3	114.4	95.8	105.5	116.3
Zr*										90.1		
Nb*										3.8		
Ba	324	253	305	184	192	175	143	218	256	208	255	257
Ba*										147		
Sc*										23		
Co*										26.7		
Cs*										0.41		
Ce*										16.0		



	HM	HM	HM	HM	HM	HM	HM	HM	HM	HM	HM	HM
番 号	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84
Wt%												
SiO <sub>2</sub>	59.71	60.00	60.02	60.43	60.44	60.73	63.05	63.20	63.67	64.20	64.27	66.06
TiO <sub>2</sub>	0.85	0.79	0.78	0.76	0.84	0.80	0.82	0.74	0.67	0.73	0.69	0.65
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.81	15.70	15.24	15.44	15.86	15.61	14.96	14.92	15.46	15.12	15.26	14.48
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.27	2.43	3.20	3.02	2.61	2.74	3.47	2.81	2.79	2.09	3.07	2.32
FeO	5.30	4.90	5.06	5.45	4.73	4.31	3.06	3.71	3.50	3.90	2.51	3.43
MnO	0.142	0.148	0.130	0.136	0.149	0.137	0.122	0.120	0.137	0.095	0.075	0.092
MgO	3.91	4.21	3.24	3.24	3.60	3.77	2.85	3.03	2.00	2.58	1.84	2.08
CaO	7.54	7.57	6.57	6.60	5.42	7.14	4.40	5.29	4.36	5.09	4.39	4.41
Na <sub>2</sub> O	2.49	2.59	2.65	2.62	2.40	2.52	2.77	2.54	2.84	2.77	2.84	2.82
K <sub>2</sub> O	1.00	0.97	1.12	1.12	1.00	1.04	1.89	1.46	2.03	1.91	2.05	2.20
H <sub>2</sub> O (+)	0.48	0.43	1.05	0.80	0.90	0.80	1.80	1.40	1.01	0.85	1.60	0.89
H <sub>2</sub> O (-)	0.39	0.17	0.84	0.29	1.94	0.30	0.67	0.70	1.42	0.56	1.30	0.46
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.108	0.092	0.107	0.106	0.105	0.101	0.126	0.088	0.108	0.115	0.106	0.104
total	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
ppm												
V	186	180	163	160	164	175	119	136	125	156	127	112
Cr	48.4	53.3	41.6	46.1	42.6	93.9	45.1	30.0	41.7	53.4	46.2	28.9
Cr*							55.8					
Ni	24.1	22.4	26.0	28.3	23.2	31.9	27.5	13.7	21.2	23.0	16.8	19.2
Ni*							25.3					
Cu	28	45	35	34	19	33	22	28	15	26	24	17
Zn	76	68	77	76	71	68	58	62	63	75	64	54
Zn*							72				70	
Rb	31.7	33.7	35.1	36.0	19.7	33.4	52.3	44.3	62.6	62.1	62.1	69.3
Rb*							54.8				59.7	
Sr	242	232	223	225	179	230	185	173	189	224	189	194
Sr*							185				206	
Y	33.0	27.5	35.0	34.4	29.3	29.2	43.8	36.6	46.0	57.9	56.4	48.2
Y*							41.8				50.2	
Zr	116.3	114.8	132.6	135.7	145.8	122.6	175.4	152.5	187.3	183.1	185.4	205.6
Zr*							178.0				181.0	
Nb*							6.9				4.9	
Ba	281	257	334	297	386	267	411	400	482	536	516	512
Ba*							175				323	
Sc*							20				20	
Co*							18.8				18.8	
Cs*							1.11				0.44	
Ce*							32.0				42.4	



第4図 光量子放射化分析の結果（縦軸：PAA）と蛍光X線分析の結果（横軸：XRF）の比較。破線は1：1の線。



第5図 サンプル採取位置図。図中の番号は第1表の番号と同じ。三角は主なピーク。

## § 5. 主成分全岩化学組成：

### 5.1 SiO<sub>2</sub>量：

各山体を構成する噴出物のSiO<sub>2</sub>量は次のとおりである。

前 森 山：SiO<sub>2</sub>=51~54wt. % (玄武岩~苦鉄質安山岩)

西 森 山：SiO<sub>2</sub>=51~55wt. % (玄武岩~苦鉄質安山岩)

安 比 岳：SiO<sub>2</sub>=58wt. % (安山岩)

安 比 岳：SiO<sub>2</sub>=53~54wt. % (苦鉄質安山岩)

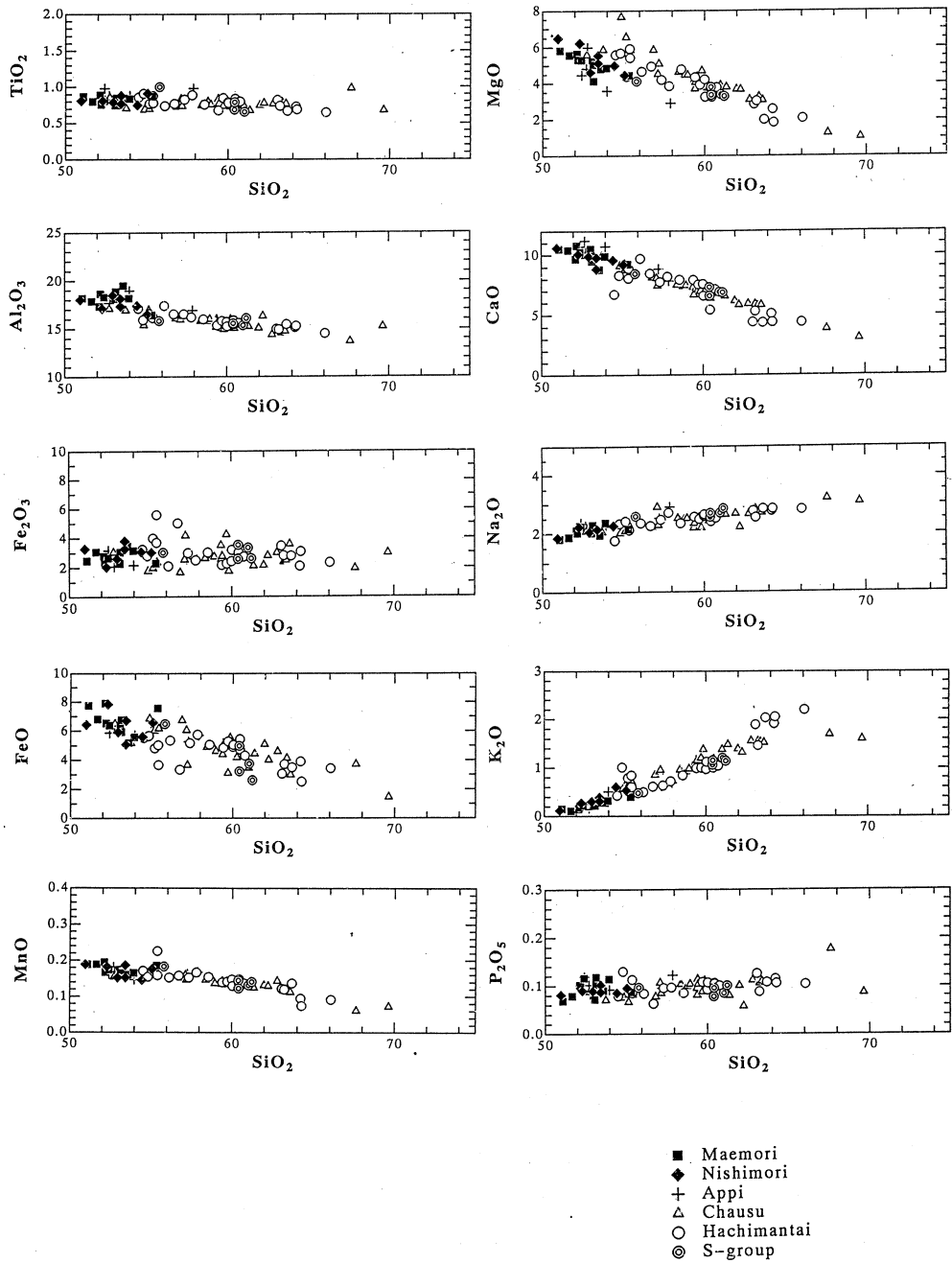
茶 臼 岳：SiO<sub>2</sub>=54~64wt. % (安山岩)

源 太 森：SiO<sub>2</sub>=68~70wt. % (デイサイト)

八 幡 平：SiO<sub>2</sub>=56~66wt. % (安山岩~デイサイト)

南方火山列：SiO<sub>2</sub>=60~62wt. % (安山岩)

南方火山列：SiO<sub>2</sub>=56wt. % (安山岩)



第6図 八幡平火山群噴出物の主要元素の $\text{SiO}_2$ -酸化物図。

## 5.2 SiO<sub>2</sub>-酸化物図 (第6図)

TiO<sub>2</sub>は山体によってそれほど違いはみられず、ほとんどの岩石が0.7から0.9wt. %の範囲にある。TiO<sub>2</sub>量はSiO<sub>2</sub>に対してほぼ一定である。SiO<sub>2</sub>が65wt. %を越えるとややばらつく傾向が見られる。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>はSiO<sub>2</sub>に対して緩やかに減少する。SiO<sub>2</sub>が51から55wt. %の範囲ではAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は17から20wt. %である。SiO<sub>2</sub>が55から65wt. %の範囲ではAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は14から17wt. %, 70wt. %前後では13から16wt. %である。山体毎にそれほど違いは見られない。全鉄はSiO<sub>2</sub>増加にともなって減少する。MgOはSiO<sub>2</sub>増加にともなって減少するが、山体によってやや違いが見られる。前森山ではSiO<sub>2</sub>が52wt. %に対して5.5wt. %であり、西森山では52wt. %に対して6.5wt. %とやや多い。八幡平、茶臼岳はそれほど違いはみられずSiO<sub>2</sub>が56wt. %で、MgOは4.5~6 wt. %, 61wt. %では3~4 wt. %である。しかし、茶臼岳の安山岩の中にはSiO<sub>2</sub>が55wt. %でMgOが7.5wt. %と高い値を示すものがある。CaOはSiO<sub>2</sub>にともなって減少し、山体によって違いはない。Na<sub>2</sub>OはSiO<sub>2</sub>増加にともなって増加している。K<sub>2</sub>OはSiO<sub>2</sub>増加にともなって増加するが山体によってその量は異なっている。前森山と西森山は0.1~0.5wt. %である。八幡平、茶臼岳は同じSiO<sub>2</sub>量で比べると茶臼岳、八幡平の順にK<sub>2</sub>Oは低くなる。例えば、SiO<sub>2</sub>が56wt. %では茶臼岳は0.8wt. %, 八幡平は0.4wt. %である。どの山体も直線的に増加するがデイサイトでは乱れる。焼山のデイサイトは安山岩からの直線的なトレンド上にある。しかし、八幡平のSiO<sub>2</sub>が65から67wt. %のデイサイトは安山岩のトレンドの延長より高い値を示す。源太森のデイサイトはどのトレンド上にも位置せず低い値を示す。

## 5.3 SiO<sub>2</sub>-FeO\*/MgO図 (第7図)

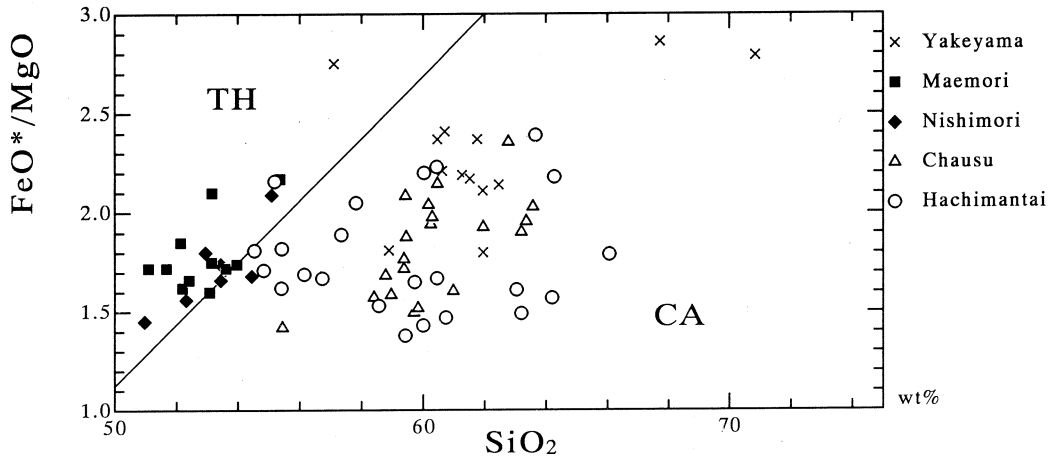
八幡平火山群を構成する岩石は、全体としてSiO<sub>2</sub>-FeO\*/MgO図上において、ソレアイト領域からカルクアルカリ領域まで連続的にプロットされる。ただし、山体毎にみた場合、それぞれの山体を構成する岩石にかなりの幅があるものの、どの山体を構成する岩石群もほぼMiyashiro<sup>12)</sup>によるCA/TH境界線にほぼ平行なトレンドを描いている。山体毎に比較するため、明瞭な山体を成さず、活動時期も曖昧な安比岳と南方火山列は除いた。また、隣接する秋田焼山火山も八幡平火山群の一部と見なし、大場ら<sup>13)</sup>および大場(準備中)のデータを用いて比較する。各山体を構成する岩石の示す領域は次のとおりである。

前森山: ソレアイト領域

西森山: ソレアイトとカルクアルカリ領域の境界付近

茶臼岳: カルクアルカリ領域

八幡平: カルクアルカリ領域



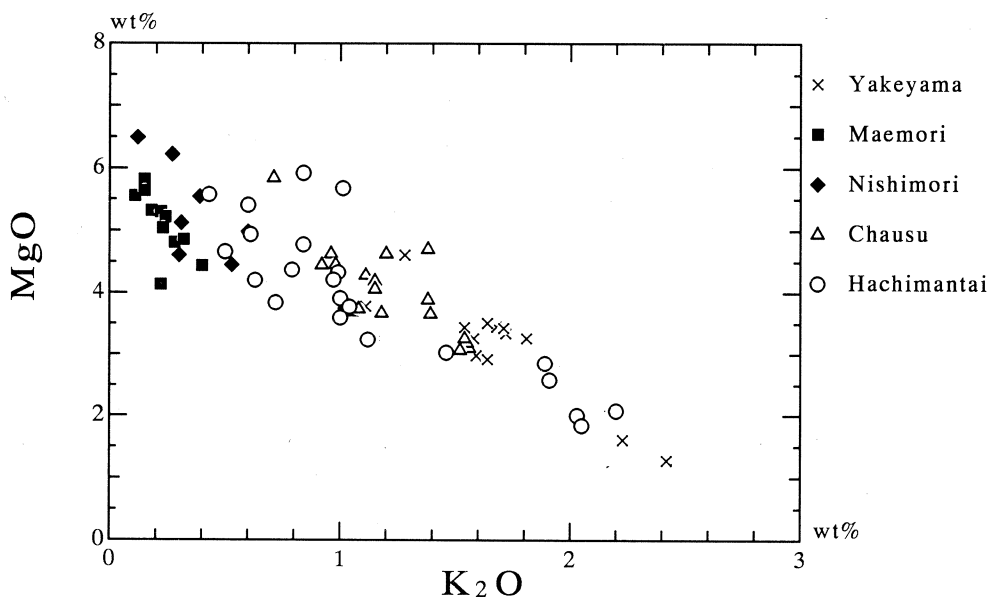
第7図 八幡平火山群噴出物の  $\text{SiO}_2$ — $\text{FeO}^*/\text{MgO}$  図。直線は Miyashiro (1974) による CA/TH 境界線。

焼山：カルクアルカリ領域

各トレンドがほぼ CA/TH 境界線に平行なので、この傾きを用いて、各試料の  $\text{FeO}^*/\text{MgO}$  比を  $\text{SiO}_2=57.5\%$  に規格化することにより、すべてのデータについて CA/TH 境界からの距離を測ることができ、カルクアルカリ度あるいはソレイト度を測ることが可能である。今回、すべての試料についてこの値を計算した。

#### 5.4 $\text{K}_2\text{O}$ — $\text{MgO}$ 図 (第8図)

横軸に  $\text{K}_2\text{O}$  をとり、縦軸に  $\text{MgO}$  をとった図においてソレイト系列とカルクアルカリ系列を区別することができる<sup>2)</sup>。八幡平火山群の噴出物は、各山体を構成する岩石はある一本の  $\text{MgO}$  が減少し  $\text{K}_2\text{O}$  が増加するトレンドを描いているが、全体としてみると図上でソレイト系列とカルクアルカリ系列に2分できず、ソレイト系列の領域からカルクアルカリ系列の領域まで連続的にデータがプロットされる。この図には秋田焼山のデータもプロットし、安比岳、南方火山列は除いた。各山体を構成する岩石が描くトレンドが、ソレイト系列の領域から、カルクアルカリ系列の領域へと互いに平行に配列しているために連続的になっている。傾向としては、前森山が最も  $\text{K}_2\text{O}$ 、 $\text{MgO}$  に乏しい側でトレンドを描き、最もソレイト的性格が強いことが分かる。これに対して、西森山、八幡平、茶臼岳、焼山の順に  $\text{K}_2\text{O}$ 、 $\text{MgO}$  とも高くなり、この順で、よりカルクアルカリ的性格が強くなる。記載岩石学的には前森山、西森山はピジョン輝石質岩系に属し、茶臼岳、焼山はシソ輝石質岩系に属し、八幡平は両岩系にまた



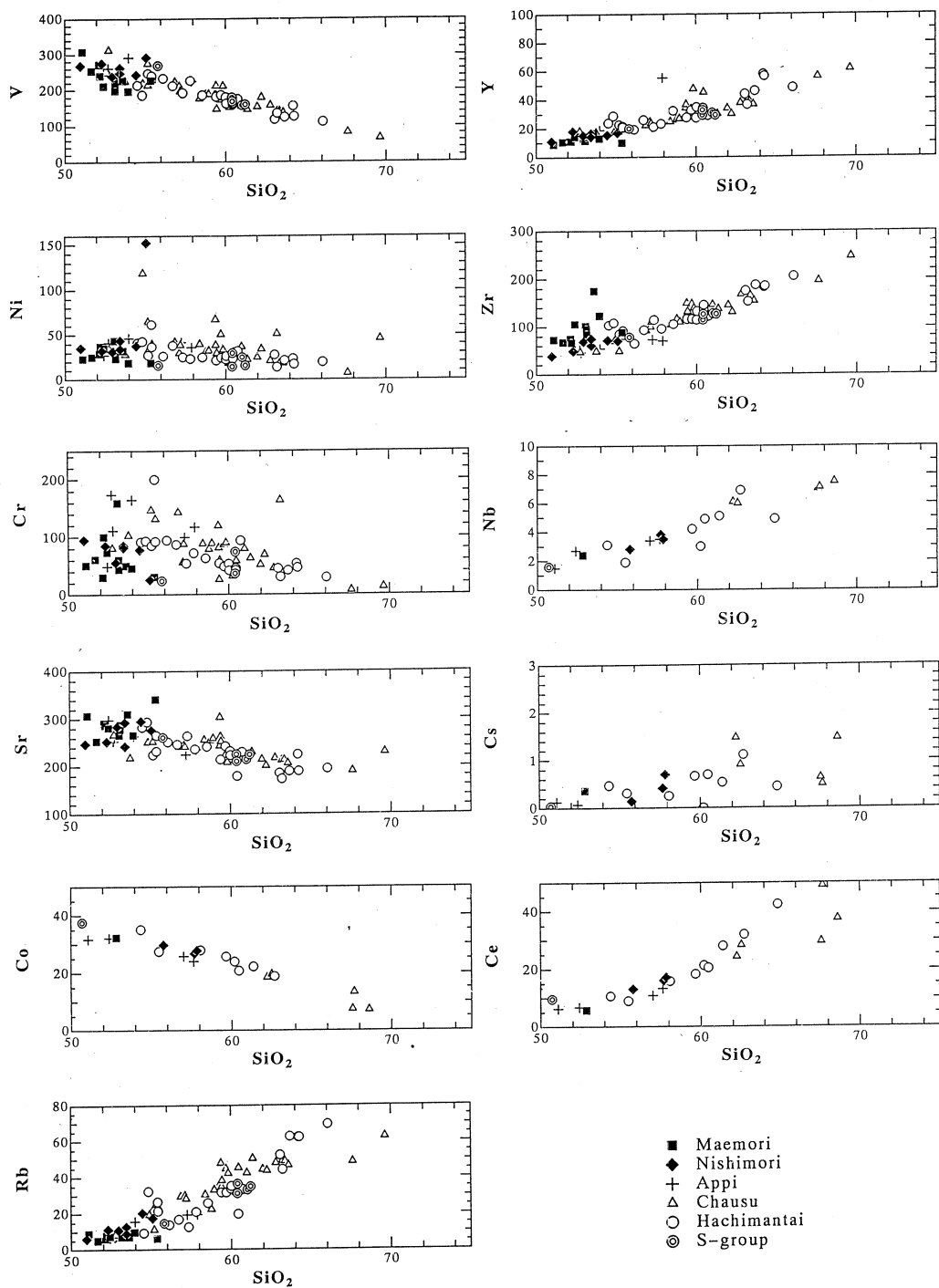
第8図 八幡平火山群噴出物の  $K_2O$ - $MgO$  図。

がる領域にプロットされている。従って、八幡平火山群を構成する岩石は、ソライトからカルクアルカリへと漸移していること、各山体毎、また、各山体内にも異なるカルクアルカリ度の岩石が存在していることがわかる。

各噴出物のカルクアルカリ度を  $K_2O$ - $MgO$  図上での、ある一定の  $MgO$  (= 4%) における  $K_2O$  量によって表現することが可能である。今回、この  $K_2O$  ( $MgO=4\%$ ) を各データについて算出した。

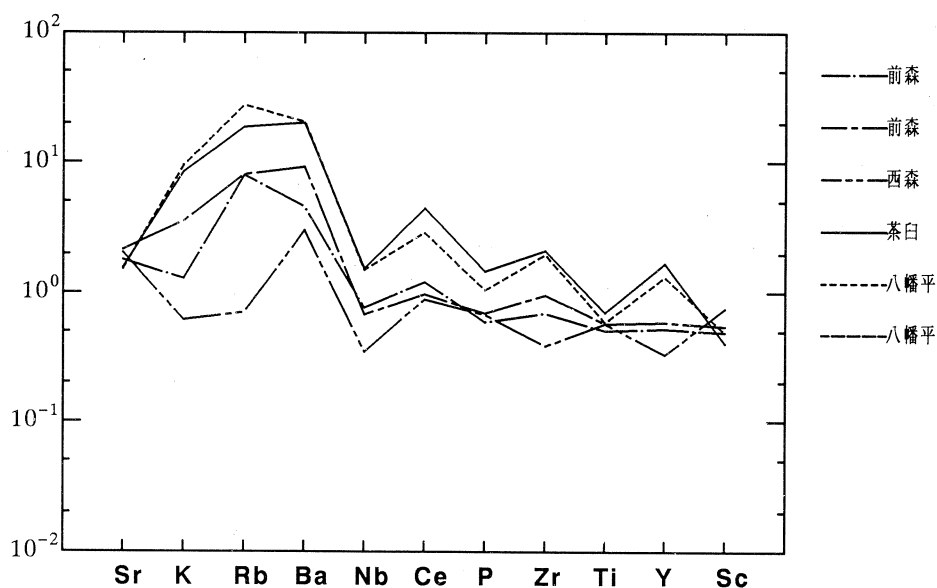
### 5.5 $SiO_2$ -微量元素図 (第9図)

V は  $SiO_2$  の増加とともにほぼ直線的に減少する。山体による違いは明瞭でない。Ni は一部を除いて玄武岩からデイサイトまで含有量は少なく 50ppm を越えない。茶臼岳と西森山の一部の安山岩は 50ppm~160ppm と高い値を示す。また Cr でも同様の傾向がみられ、全体としては 100ppm を越えないものが多いが、茶臼岳の一部の安山岩は 100~200ppm と高い値を示す。Ni や Cr の高い安山岩は、カンラン石をかなり多量に含む特徴的な岩石である。Sr は 200~300 ppm 含まれ、 $SiO_2$  増加にともなって減少する傾向がみられるが、かなりばらついている。Co は  $SiO_2$  増加にともない単調に減少し、山体による違いはない。Rb は  $SiO_2$  増加にともなって増加する、 $K_2O$  と似た様な傾向がみられ、安山岩では茶臼岳が高く、八幡平は低い値をしめすがデイサイトは茶臼岳で低い。Y, Zr, Nb は  $SiO_2$  増加にともなって増加する。Ce, Cs は  $SiO_2$  の増加にともない増加するが増加率は  $SiO_2$  の増加とともに大きくなる傾向が認められる。



第9図 八幡平火山群噴出物の  $\text{SiO}_2$ -微量元素図。Co, Nb, Cs, Ce は光量子放射分析の結果。それ以外は蛍光X線分析の結果。





第10図 代表的なサンプルの MORB 規格化パターン。

## § 6. MORB 規格化パターンにおける比較

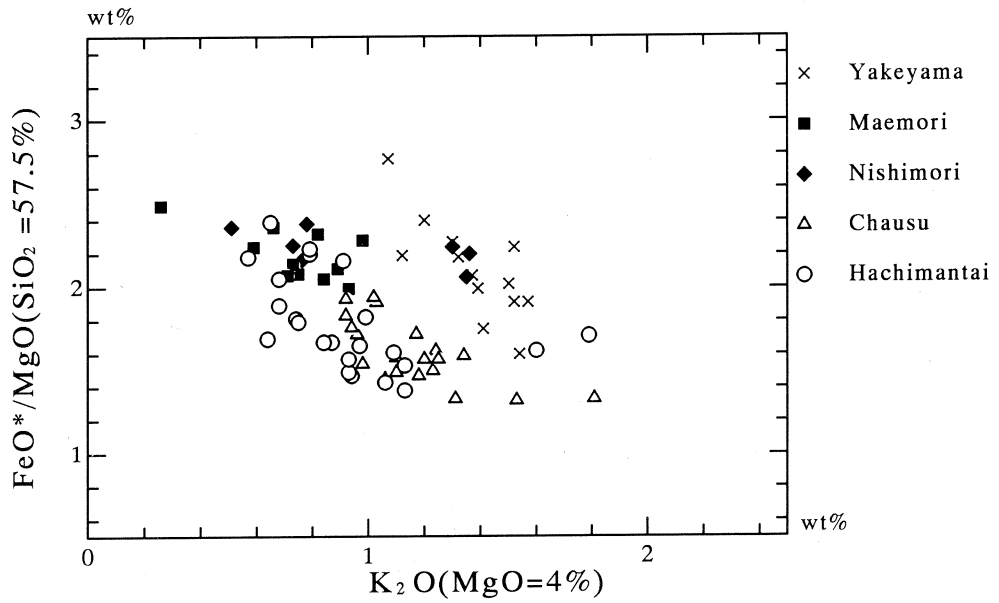
第10図に代表的なサンプルについての MORB 規格化パターンを示す。MORB 規格化パターンにおいて変化は連続的である。西森山～前森山は Sr が K 規格化値に対して高い、ソレイト系列岩に特有のパターンを示し、一方、茶臼岳～八幡平のパターンは Rb で最も規格化値が高いカルクアルカリ系列岩に特有のパターンを示している。しかしそれらは漸移的である。

## § 7. 噴出物の性格の時間的, 空間的变化

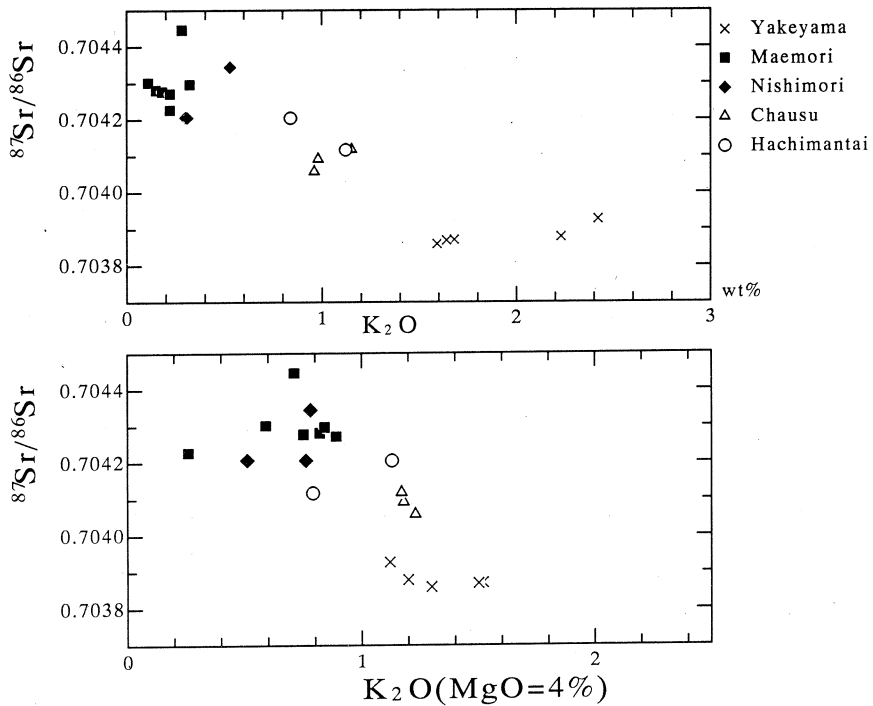
### 7.1 各山体を構成する岩石

八幡平火山群は複数の山体からなっており、山体毎に構成する岩石が異なっている。ここでは山体が区別でき、活動時代もある程度連続している前森山・西森山・茶臼岳・八幡平・焼山についてのべる。前森山はおもに久野のピジョン輝石質岩系に分類される玄武岩からなっている。西森山はおもにピジョン輝石質岩系の安山岩からなる。茶臼岳はおもにシソ輝石質岩系の安山岩からなり、八幡平と茶臼岳の間に位置する源太森はピジョン輝石質岩系のデイサイトからなる。八幡平はおもにシソ輝石質岩系の安山岩からなる。焼山はすべてシソ輝石質岩系の岩石からなる。

西森山のソレイトは  $\text{SiO}_2\text{-FeO}^*/\text{MgO}$  図上のソレイトとカルクアルカリ系列の境界に近い領域あるいは境界線上に点示される、CA と TH の中間的な性格を有している。従って、八幡平火山においても、典型的な TH と CA との間に中間的な岩系が存在していることが指摘



第11図 八幡平火山群噴出物の  $\text{FeO}^*/\text{MgO}$  (SiO<sub>2</sub>=57.5%) -  $\text{K}_2\text{O}$  (MgO=4%) 図。



第12図  $\text{K}_2\text{O}$ - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  および  $\text{K}_2\text{O}$  (MgO=4%) -  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  図。  
同位体のデータは大場・藤巻<sup>14)</sup>より引用。

できる。

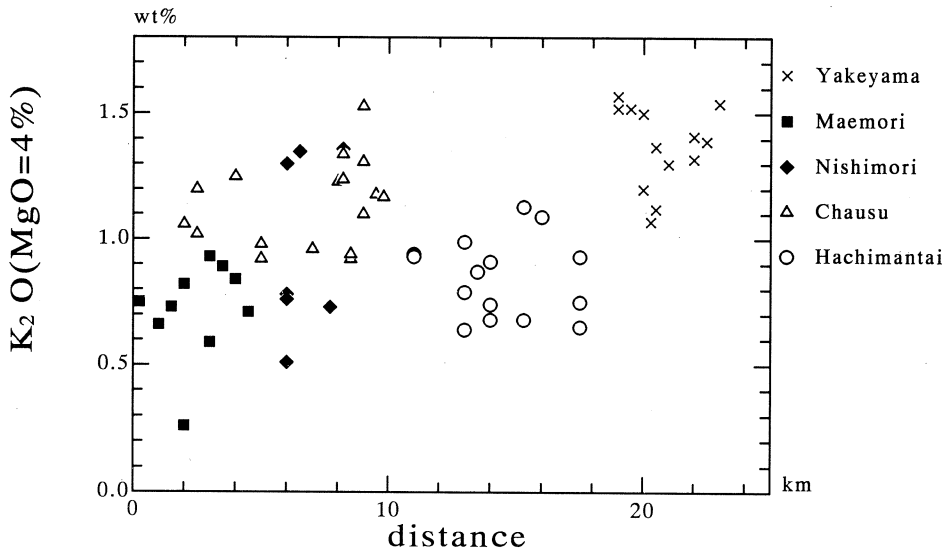
## 7.2 各山体の組成の違い

上に述べたように  $\text{SiO}_2\text{-FeO}^*/\text{MgO}$  図や  $\text{K}_2\text{O-MgO}$  図において山体毎に組成の違いがみられる。第11図には  $\text{K}_2\text{O}$  ( $\text{MgO}=4\%$ ) と  $\text{FeO}^*/\text{MgO}$  ( $\text{SiO}_2=57.5\%$ ) の関係を示した。前森・西森・八幡平・茶臼の順に  $\text{FeO}^*/\text{MgO}$  ( $\text{SiO}_2=57.5\%$ ) が減少し、 $\text{K}_2\text{O}$  ( $\text{MgO}=4\%$ ) が増加する。しかし、焼山は  $\text{K}_2\text{O}$  ( $\text{MgO}=4\%$ ) が高いにも係わらず  $\text{FeO}^*/\text{MgO}$  ( $\text{SiO}_2=57.5\%$ ) も高く、他の山体の成すトレンドとは異なっている。第12図には  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  と  $\text{K}_2\text{O}$  の関係を示した<sup>14)</sup>。この図から明らかなように、 $\text{K}_2\text{O}$  レベルが高いほど  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比が低い。しかもそれは連続的である。

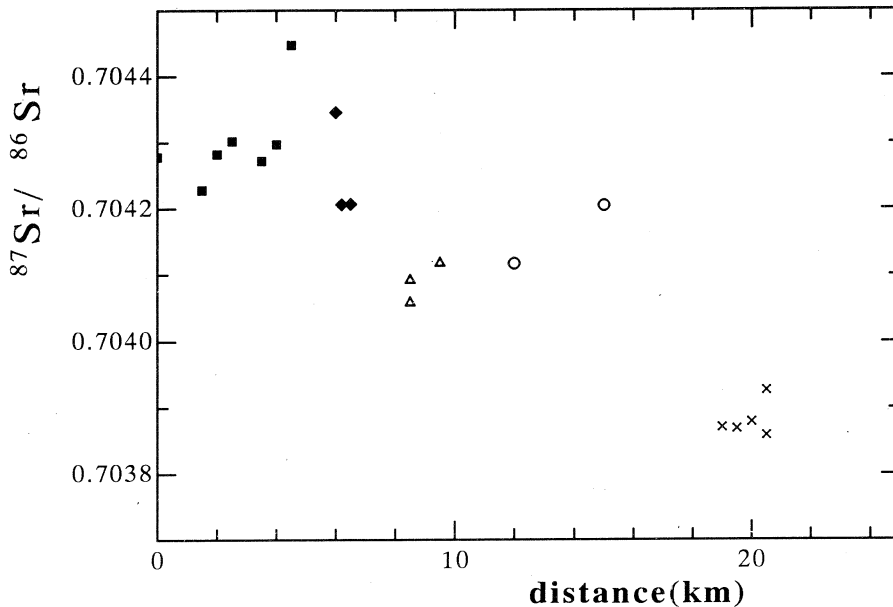
## 7.3 噴出物組成の時間的ならびに空間的变化

第13図には火山群の東端(火山フロント側)からの距離と  $\text{K}_2\text{O}$  ( $\text{MgO}=4\%$ ) の関係を示した。フロントからはなれるほどやや  $\text{K}_2\text{O}$  が高くなる傾向がみられるが、一部(八幡平)で逆転がみられる。第14図には  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  と東端からの距離との関係を示した。フロントから離れるにしたがって  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比は低くなるが、 $\text{K}_2\text{O}$  と同様に八幡平で逆転がみられる。

東側の三つの山体だけを見ても、茶臼岳、西森山、前森山の順に岩質の変化が認められ、安山岩から次第に玄武岩中心の活動へと変化する。噴出中心が、茶臼岳、西森山、前森山へと、



第13図 火山群東端からの距離と  $\text{K}_2\text{O}$  ( $\text{MgO}=4\%$ ) の関係。各サンプルの距離は噴出位置ではなく採取地までの距離である。



第14図 火山群東端からの距離と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の関係

地域的には西から東へと移動している。また同時に岩系はカルクアルカリ系列岩からソレアイト系列岩へ変化している。輝石温度計によって求めたマグマの温度は次第に低温から高温へ変化している。従って、これらのマグマはそれぞれ異なる親マグマに由来すると推定される。また、さらに Sr 同位体比はより低い  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比から、高い  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比へ変化しており、それらのマグマの起源物資も次第に変化していると考えられる。

## §8. さいごに

以上述べてきたように、八幡平火山群においては様々な岩石が噴出している。本火山群の岩石は、これまで単純にカルクアルカリ系列とソレアイト系列の二つに分けられていたが、これらは漸移的なものであることが明らかになった。また、それらは時間的にも空間的にもある程度の規則性を持って噴出している。すなわち、西から東へカルクアルカリ系列岩からソレアイト系列岩へと変化しており、岩石学的連続性が時間・空間的な分布の規則性と密接に関係している。

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ならびにライナック・マシングループの方々をはじめ職員の方々には大変お世話になった。東北大学岩鉱教室の藤巻宏和助

教授，長谷中利昭博士，土谷信高博士，同教養部蟹沢聰史教授，石川賢一博士には，諸般にわたって御助力頂き，また常日頃議論いただいている。また，日重開発工業土井宣夫氏には地質について多々議論していただき，重要なコメントをいただいた。なお，本研究の一部に文部省科学研究費補助金（Nos. 01302017, 01302019, 03302022）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) 河野義礼，青木謙一郎：火山第2集 4 (1959) 61.
- 2) Y. Masuda and K. Aoki : Earth Planet. Sci. Lett. **44** (1979) 139.
- 3) 吉田武義，渡部 均，青木謙一郎：核理研研究報告，**16** (1983) 309.
- 4) 河野義礼，上村不二雄：5万分の1地質図幅「八幡平」，および同地質説明書 (1964) 36p,  
地質調査所
- 5) 早川典久，北村 信：岩鉱 **37** (1953) 29.
- 6) Kawano, Y. and Aoki, K. : Sci. Rep. Tohoku Univ., Ser. III, **6** (1960) 409.
- 7) 須藤 茂，向山 栄：地調報告 **266** (1987) 143.
- 8) 土井宣夫：日本火山学会1991年秋季大会講演要旨 (1991) p. 162.
- 9) H. Kuno : Bull. Geol. Soc. Amer. **61** (1950) 957.
- 10) Y. Kawano, K. Yagi and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ., Ser. III, **7** (1961) 1.
- 11) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki : J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. **81**  
(1986) 150.
- 12) A. Miyashiro : Amer. J. Sci. **274** (1974) 321.
- 13) 大場 司，吉田武義，青木謙一郎：核理研研究報告 **24** (1991) 110.
- 14) 大場 司，藤巻宏和：日本火山学会1989年度秋季大会講演要旨 (1989) p. 103.

## 2・3のスウェーデン原生代花崗岩類の 微量成分についての予察的研究

教養部, 信州大理学部\*,  
秋田大鉱山学部\*\*, 理学部地学\*\*\*

蟹澤聰史・吉田武義・石川賢一

黒田吉益\*・山田哲雄\*

森清寿郎\*・丸山孝彦\*\*

青木謙一郎\*\*\*

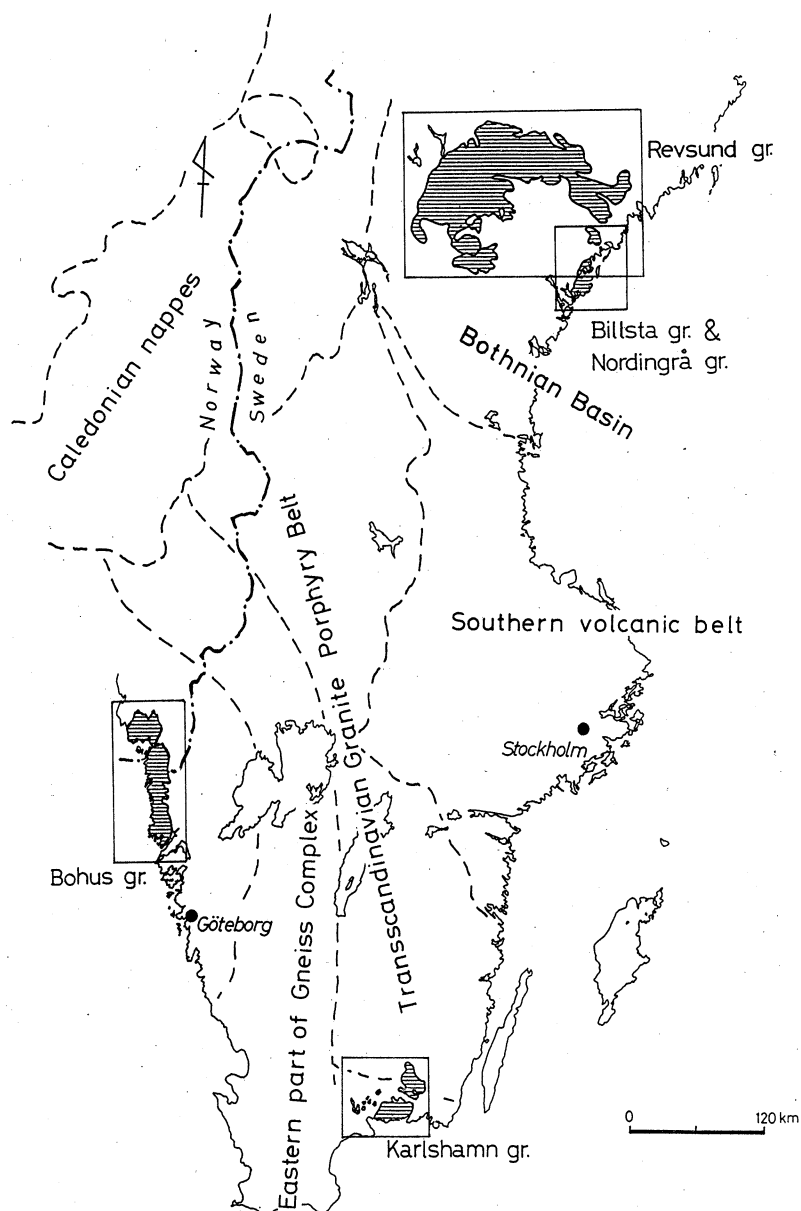
### §1. はじめに

過去のテクトニクス場の復元のための手段の1つとして, 火成岩類の地球化学的特徴からのアプローチがある。また, マグマの分化の過程や起源物質の推定のためには微量成分の挙動がきわめて重要である。今回は, バルト楕状地の変遷史を明らかにするために, スウェーデン南部および中部の5つの代表的な原生代花崗岩類の主成分および微量成分元素組成について予察的に検討した。

### §2. バルト楕状地の原生界

バルト楕状地はフィンランド・スウェーデン・ノルウェーおよびソ連西部にかけて分布し, 始生界および原生界の各種岩石からなる。バルト楕状地の露出地域はいくつかに分けられ, その1つは典型的なトーナル岩-グリーンストーン地域であり, 他の1つは正片麻岩の卓越する高度変成岩地域である。始生代トーナル岩およびグリーンストーン帯は主としてソ連およびフィンランド北部に分布し, 約3.1-2.9Ga および2.9-2.6 Ga の2つの時期に形成された。スウェーデンには Svecofennian あるいは Svecokarelian と呼ばれる原生界が広く分布する。Wilson<sup>1)</sup> および Wilson *et al.*<sup>2)</sup> は Svecokarelian を, 北から大陸環境の Karelian, 大洋環境の Bothnian の地域に分け, その間には火山弧としての Skellefte 地域が介在し, 南部では浅海的な環境の地域が, さらにその西には後 Svecokarelian が発達するとした。Lindh and Persson<sup>3)</sup> は構造的・岩相的に Svecofennian 造山帯を Bothnian 盆とそれを狭む南北両火山地帯に分けた。北部火山地帯は Wilson *et al.* の Karelian 大陸環境に, 南部のそれは浅海的环境の地域に相当する。さらにその西側にはやや年代の若い Transscandinavian 花崗岩-斑岩帯 (TSGPB) が分

布する。TSGPBの西側には西南スカンディナヴィア片麻岩コンプレックス (SGC) が分布する。Svecofennian 造山帯の花崗岩類は1.90–1.77Ga, TSGPB および SGCの花崗岩類は1.83–1.65 Ga と1.70–0.83Gaの年代の範囲にはいる。南方では東ヨーロッパ台地に続く顕生代堆積物がこれらを覆っている (第1図)。



第1図 Map showing the principal units of the Baltic Shield after Lindh and Persson<sup>3)</sup> and the localities of study area.

Wilson<sup>2)</sup>は、この地域のマグマの形成をプレートテクトニクスに関連づけ、1.9 Ga 以前の沈み込みに関連した I - タイプ花崗岩類とカルクアルカリ火山岩活動に引き続いて1.75 Ga 頃のヘルシニア型の地殻由来マグマが生成し、その後さらに新しい Svecokarelian 変成帯の縁に沿った沈み込みによって後 Svecokarelian のアンデス型 I - タイプマグマが生成したと説明した。

初期 Svecofennian 花崗岩類はカルクアルカリ～カルシックで、閃緑岩～トータル岩を主体とし、斑れい岩から狭義の花崗岩まで変化する<sup>2)</sup>。同位体および地球化学的データはこれらが原生代初期に主としてマントルから分離した物質に由来することを示唆する<sup>4-6)</sup>。

### §3. 各岩体の記載

今回分析した岩体は、Billsta, Revsund Nordingrå, Karlshamn とその衛星岩体 (Klagstorp, Spinkamåla (Mörrum North), および Jamshög 岩体), および Bohus の 5 岩体である (第 2 図～第 5 図)。次に各岩体の大まかな記載を行なう。

#### 3.1. Billsta 花崗岩

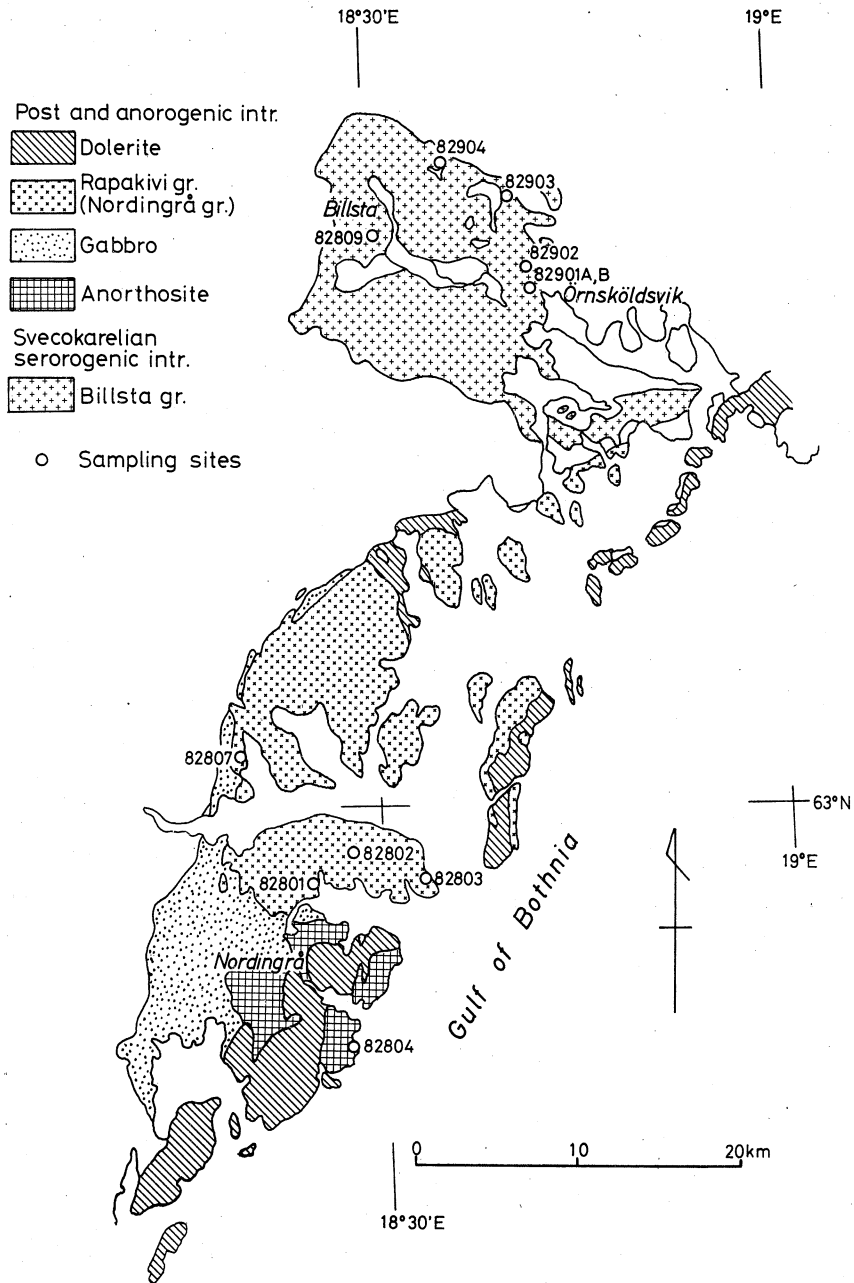
この岩体は中部スウェーデン、Bothnia 盆の Örnskörsvik 北西地域に貫入する (第 2 図) が、岩石学的な資料はほとんどない。Magnusson<sup>7)</sup> 編集の地質図では Revsund 花崗岩類に含められている。しかし、Lundqvist<sup>8)</sup> の地質図では Svecokarelian serorogenic (late orogenic) 貫入岩体として Revsund 花崗岩類とは区別されている。灰色の中～細粒両雲母花崗岩からなり、副成分鉱物としてジルコン、アパタイト、少量の鉄鉱物、それにしばしば蛍石を含む。

主成分の分析結果は  $A/CNK [= \text{mol. Al}_2\text{O}_3 / (\text{CaO} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O})]$  が大きく、S - タイプ花崗岩の性質をもっている。中部スウェーデンおよび南フィンランドの Bothnia 盆の花崗岩類には極端な過アルミナス両雲母花崗岩がみられ、酸素同位体比は +8 ~ +12‰ を示すことから、泥質堆積物の寄与と後期の堆積物との相互作用を被った可能性がある<sup>2)</sup>といわれる。Bothnia 盆の S - タイプ花崗岩は 1.8 Ga における  $\epsilon \text{Nd}$  が -0.5 ~ -3 で、2.17 ~ 2.47 Ga の Sm - Nd モデル年代に相当し、 $\epsilon \text{Nd}$  値が低いことは古い堆積岩組成を引き継いでいるという考えと整合的である<sup>3)</sup>。Billsta 花崗岩類はこれらの S - タイプ花崗岩類に属するものと思われるが今後の研究に待ちたい。

#### 3.2. Revsund 花崗岩

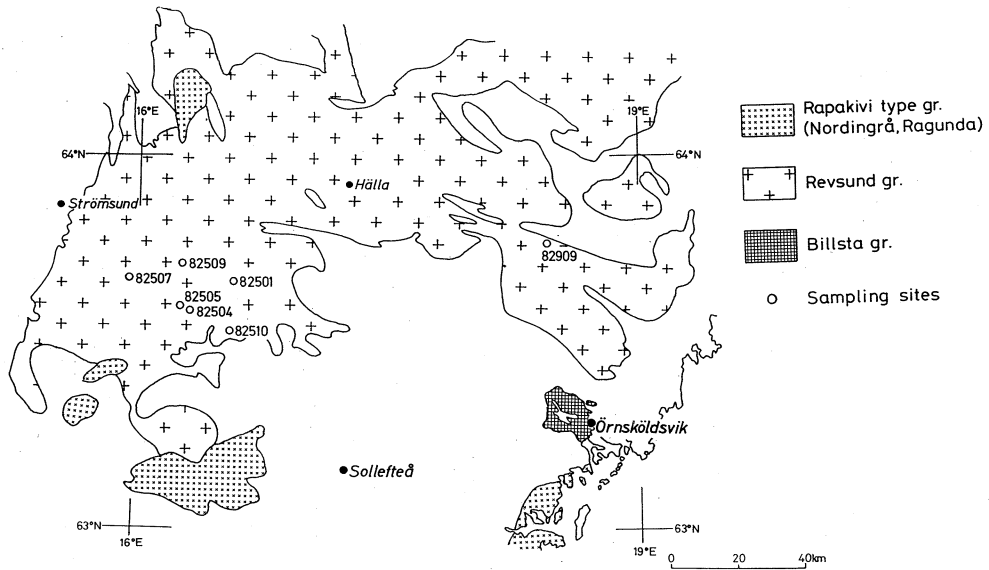
中部 Norrland の大きな岩体で、Bothnia 盆中へ貫入する (第 3 図)。Svecokarelian 変成後の 1750 Ma の年代を示す<sup>9,10)</sup>が、一部には明らかに若いものもある<sup>11)</sup>。Lundqvist<sup>8)</sup> の地質図で





第2図 Distribution of the Billsta and the Nordingrå granites after Lundqvist<sup>8)</sup> and sampling sites.

は後～非造山帯貫入岩体とされる。微斜長石の数cmの長方形～円形斑晶が特徴である<sup>12)</sup>。石英含有モンゾ閃緑岩～花崗岩で、極端にFeに富むオリビン、輝石、角閃石および黒雲母を含み、全岩組成もこれを反映する<sup>13)</sup>。



第3図 Distribution of the Revsund granites after Magnusson (1957) and sampling sites.

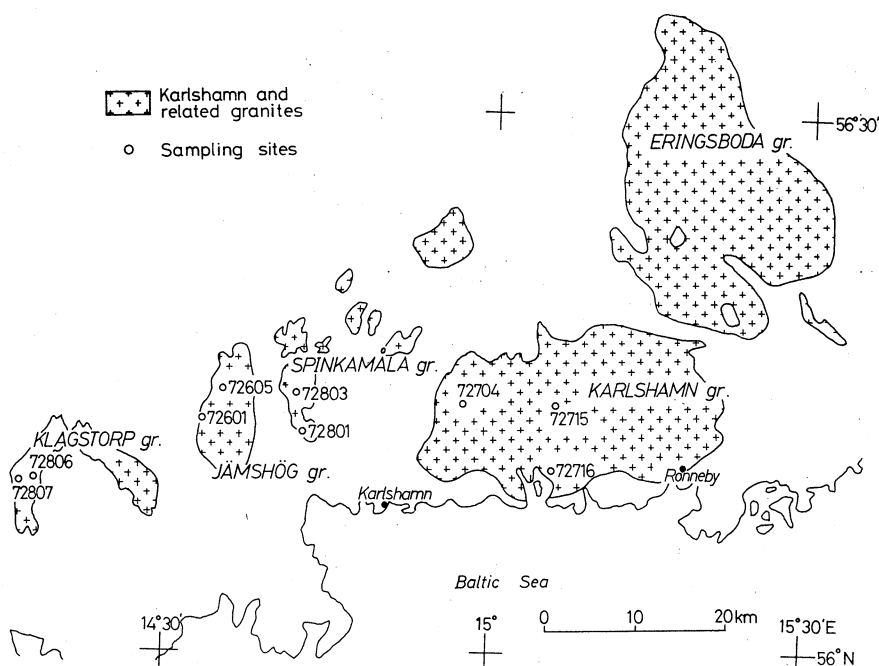
今回の分析試料は中～粗粒のカミングトン閃石－ホルンブレンド－黒雲母花崗岩で、一部に斜方輝石およびガーネットを含み、ホルンブレンドを欠く組み合わせのものがある。副成分鉱物としてはスフェーン、アパタイト、ジルコン、鉄鋳物で、ときに蛍石、青色電気石を含む。アパタイトが比較的多い。主成分の分析結果は $\text{SiO}_2$ 含有量がやや少なくモンゾニ岩質である。

### 3.3. Nordingrå 花崗岩

中部スウェーデンの Örnsköldsvik 南方の海岸沿いに分布する花崗岩で、アノソサイトや斑れい岩を伴う (第2図)。Rb-Sr年代は1415Maを示す。この岩体は1215Maの年代を示すUlvöドレライトとNordingrå砂岩(60m)に覆われ、付近の海岸の岩塊からボスニア海および周辺の海岸地域に広く分布していたことを示唆する<sup>12)</sup>。赤色でやや斑状を示す場合が多く、鏡下で文象組織を示すものもみられる。単斜輝石、ホルンブレンドを含み、黒雲母は少ない。ときにオリビンを含む。ジルコン、鉄鋳物、蛍石を副成分として持つ。従来は、西方のRevsund花崗岩の南に分布するRagunda花崗岩と同様、ラパキビ花崗岩として扱われている。

### 3.4. Karlshamn 花崗岩および関連花崗岩

スウェーデン南東部、Blekinge地方にみられる岩体で、KarlshamnとEringsbodaの2つの大きな岩体と、Klagstorp, Spinkamåla (Mörum North), およびJämshög岩体などの衛

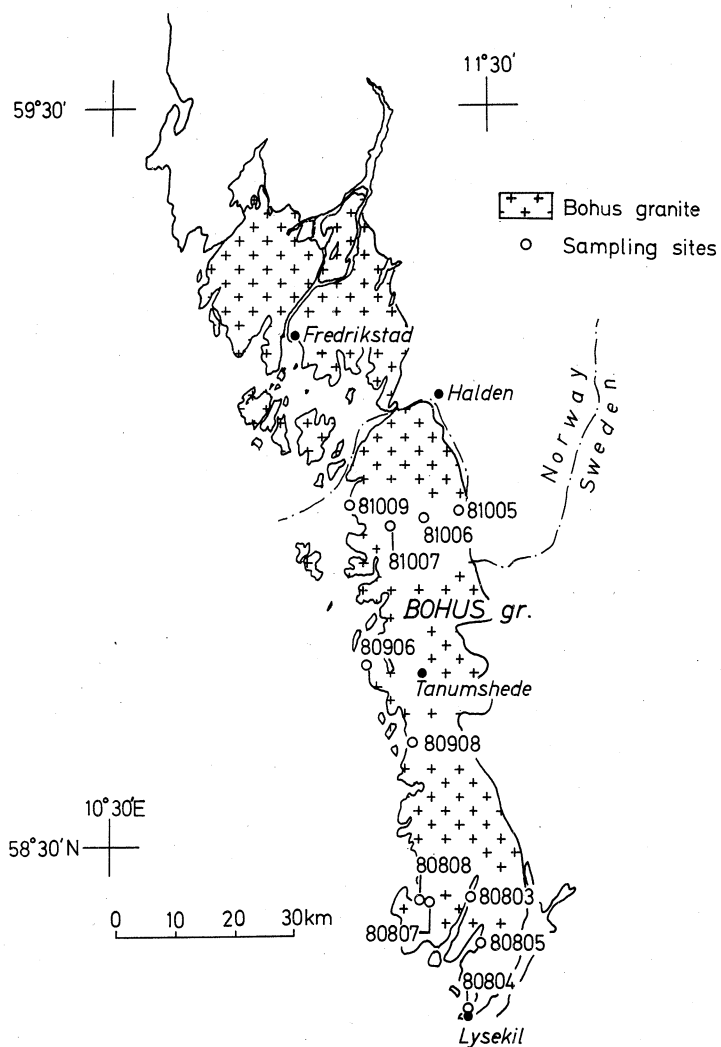


第4図 Distribution of the Karlshamn and related granites compiled from Magnusson<sup>7)</sup> and Åberg<sup>14)</sup> and sampling sites.

星岩体が西方に分布する（第4図）。Karlshamn花崗岩は中粒～粗粒赤褐色で、1-2cmの長石斑晶を含むカルクアルカリ～アルカリ岩的な組成の非造山帯花崗岩類の特徴を示し、ジルコンU-Pb年代は～1400Ma、Rb-Sr全岩年代は1422Ma、Sr初生値は0.7046を示す<sup>14)</sup>。Klagstorp花崗岩は赤灰色で1×2cm程度の平行配列をなす長石で特徴づけられる。東北方のEringsboda花崗岩とKlagstorp花崗岩のRb-Sr全岩年代は1358Maのアイソクロン年代、0.7064のSr初生値を示す。また、Spinkamåla花崗岩は灰色～赤灰色で、0.5×1mm程度の微斜長石を含み、1360Maの年代を示す<sup>15)</sup>。これらのデータはKarlshamn花崗岩の性質と整合的である<sup>16)</sup>。分析した試料は片状構造の発達が顕著な黒雲母花崗岩～黒雲母ホルンブレンド花崗岩で、ジルコン、スフェーン、アラナイトなどが多い。一部のものは鉄鉱物に富む。蛍石は稀である。ときにパンペリー石が黒雲母中にみられる。

### 3.5. Bohus花崗岩

後Sveconorwegian期に貫入した20×90kmに達する大きな岩体で、変形していない黒雲母花崗岩～両雲母花崗岩からなる。ペグマタイト・アプライトが多く、U、Thに富む<sup>11)</sup>。岩体北部はノルウェーに連続し、Iddefjord花崗岩と呼ばれる<sup>17)</sup>（第5図）。岩体周縁部は急冷相を欠き、



第5図 Distribution of the Bohus and Iddefjord granites compiled from Magnusson<sup>7)</sup> and Eliasson and Schöberg<sup>18)</sup> and sampling sites.

壁岩の片麻岩も花崗岩と同じ温度を示すことから貫入の場所が広域的に深成岩と同じ温度条件であったと考えられる。また、岩体の形態は扁平な岩床状で、いくつかの貫入単元に分かれる<sup>17)</sup>。Bohus花崗岩はSr初生値からS-タイプの典型との見方<sup>13,11)</sup>もあるが、Pedersen and Maalöe<sup>17)</sup>は閃緑岩～花崗岩までの広い組成範囲をもつこと、董青石や珪線石を欠くと、苦鉄質クロットの存在などはI-タイプ花崗岩の性質を示し、Rb-Sr年代は $918 \pm 7$  Ma, 0.7063のSr初生値は古い地殻からの寄与を示唆するもののI-タイプとS-タイプの境界に近いものとした。Eliasson and Schöberg<sup>18)</sup>はジルコンのU-Pb年代から、ジルコンの一部はプロトリ

スの年代を示すがアプライト・ペグマタイトのモナズ石やゼノタイムなどの $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ 年代はそれぞれほぼ調和的な $919 \pm 5 \text{ Ma}$ ,  $922 \pm 5 \text{ Ma}$ を示し, Bohus花崗岩の結晶作用の年代とした。Bohus花崗岩の活動は南東ノルウェー～南西スウェーデンの Sveconorwegian 造山の終結を示すものである。鉄鋳物, スフェーン, ジルコン, アパタイト, アラナイトなどを副成分として含む。最も珪長質のものはガーネットを含む。ときに黒雲母中にパンペリー石が注じている。

第1表(1) Major and trace element chemistry of some Proterozoic granites from Sweden.

Sample No.	Billsta granites							Revsund granites					
	82901B	82902	82903	82901A	82904	82809	82507	82909	82501	82505	82510	82509	82504
SiO <sub>2</sub>	70.56	70.94	72.38	73.31	73.54	72.16	59.81	62.82	63.89	64.52	64.40	64.55	65.40
TiO <sub>2</sub>	0.41	0.32	0.31	0.20	0.09	0.38	1.47	1.08	0.98	0.84	0.99	0.84	0.75
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	14.93	15.39	14.16	13.98	14.85	14.02	14.59	14.47	14.66	14.90	14.60	15.22	15.37
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.74	0.29	0.17	0.02	0.08	0.14	1.92	2.27	1.52	1.44	1.97	1.15	1.41
FeO	1.39	1.41	1.55	1.55	0.67	2.04	8.41	6.54	5.37	4.65	5.18	4.61	4.17
MnO	0.02	0.01	0.02	0.01	0.01	0.03	0.13	0.10	0.08	0.08	0.09	0.07	0.07
MgO	0.63	0.54	0.54	0.40	0.24	0.45	1.86	1.15	1.08	1.04	1.21	0.93	0.91
CaO	1.12	1.13	0.93	0.95	0.79	1.34	4.17	2.98	3.24	2.50	2.91	2.57	2.85
Na <sub>2</sub> O	3.22	3.19	2.73	3.00	3.44	2.92	3.19	3.12	3.22	2.96	3.09	3.13	3.21
K <sub>2</sub> O	5.81	6.01	5.93	5.60	5.41	5.82	3.47	3.91	4.73	5.59	3.83	5.94	4.73
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	0.91	0.41	1.02	0.77	0.64	0.48	0.43	0.90	0.85	1.01	1.21	0.65	0.74
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	0.10	0.17	0.06	0.10	0.10	0.11	0.10	0.17	0.08	0.21	0.18	0.10	0.17
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.16	0.20	0.20	0.12	0.15	0.12	0.47	0.50	0.31	0.26	0.33	0.25	0.23
Total	100.00	100.01	100.00	100.01	100.01	100.01	100.02	100.01	100.01	100.00	99.99	100.01	100.01
mg-value	0.35	0.36	0.36	0.31	0.36	0.27	0.24	0.19	0.22	0.24	0.23	0.22	0.23
A/CNK	1.10	1.11	1.12	1.10	1.15	1.04	0.88	0.98	0.90	0.96	1.01	0.94	0.99
Ba(FAA)	572	605	239	391	293	846	1439	1451	932	2191	1068	1740	1342
Ba(PAA)	481	380	245		205		1071		1036			1116	
Ce	166.6	120.9	98.1		41.9		114.4		105.3			81.3	
Co	3.1	2	2.2		1.1		19.3		11.1			8.5	
Cr	26.9	0.8	5.6		2.1		30.8		37.3			26.4	
Cs	8.75	8.42	16.73		5.72		5.68		9.73			8.11	
F(ionanal)	2037	1478	2330	1465	623	2485	911	1078	1130	1106	970	1192	828
Nb	19.7	12	15.1		13.1		29.3		22.9			20.1	
Ni	3.8	3.7	2.8		1		15.7		4.4			4.1	
Rb	385.4	344.7	401.1		335.6		125.2		190.9			221.5	
Sc	4.9	4.6	1.5		1.8		29.6		16.3			7.6	
Sr	89.9	86.5	58.2		70.4		239.1		217.7			204.6	
Y	7.3	9.3	2.8		11.6		45.6		39.1			21.2	
Zn	49	40	33		34		100		56			53	
Zr	242.6	188.5	152.3		76.1		444.6		508.4			423.9	

Billsta granites

88082901B : Muscovite-biotite granite  
 88082902 : Muscovite-biotite granite  
 88082903 : Muscovite-biotite granite  
 88082901A : Muscovite-biotite granite  
 88082904 : Muscovite-biotite granite  
 88082809 : Muscovite-biotite granite

Revsund granites

88082501 : Cummingtonite-hornblende-biotite granite  
 88082504 : Cummingtonite-hornblende-biotite granite  
 88082505 : Cummingtonite-hornblende-biotite granite  
 88082507 : Hornblende-orthopyroxene-biotite granite  
 88082509 : Hornblende-biotite granite  
 88082510 : Tourmaline bearing biotite granite  
 88082909 : Garnet-orthopyroxene-biotite granite  
 88082910 : Hornblende-biotite granite

## §4. 主成分および微量成分元素の分析法と各花崗岩の化学的特徴

主成分分析については蛍光エックス線法と重量法を併用した。FeOは過マンガン酸カリ滴定法、アルカリについては炎光光度法、H<sub>2</sub>O±は重量法の結果を採用し、蛍光エックス線法の結果と併せて100%になるように再計算した。微量元素のうちCe, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Y, Zn, Zrについては光量子放射化分析、Baについては光量子放射化分析とフレームレス

第1表(2)

Sample No.	Nordingra granites						Karlshamn and related granites							
	82804	82801	82807	82802	82803	72716	72704	72715	72806	72807	72803	72801	72605	72601
SiO <sub>2</sub>	52.10	71.77	71.91	73.24	73.79	63.87	66.79	67.51	66.08	66.56	69.26	73.80	66.04	74.25
TiO <sub>2</sub>	0.63	0.35	0.41	0.26	0.26	1.16	0.86	0.91	0.90	1.00	0.49	0.21	0.86	0.25
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	23.24	12.99	12.62	12.68	12.18	13.58	14.20	13.28	14.50	13.76	14.21	13.42	14.06	13.29
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.34	1.20	0.52	1.31	2.38	3.53	2.12	2.78	2.24	2.68	1.39	0.41	2.73	0.52
FeO	4.08	2.21	3.36	1.89	0.86	3.10	2.35	2.33	2.84	2.58	1.31	1.31	2.67	1.02
MnO	0.07	0.04	0.05	0.04	0.04	0.14	0.11	0.10	0.10	0.11	0.06	0.06	0.11	0.05
MgO	1.99	0.28	0.16	0.11	0.32	1.42	1.23	1.09	1.08	1.13	0.87	0.39	1.07	0.38
CaO	10.61	1.07	1.34	0.97	0.39	3.24	2.62	2.65	3.06	2.62	2.23	1.39	2.62	1.73
Na <sub>2</sub> O	3.79	3.02	3.02	3.06	2.98	3.11	3.53	3.15	3.88	3.27	3.16	3.02	2.96	3.38
K <sub>2</sub> O	0.69	6.07	5.74	5.82	5.84	5.41	4.47	4.97	4.17	5.19	5.13	5.48	5.80	4.57
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	1.14	0.76	0.64	0.46	0.78	0.74	1.09	0.64	0.70	0.55	0.83	0.40	0.62	0.46
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	0.21	0.21	0.19	0.12	0.17	0.10	0.25	0.17	0.10	0.14	0.09	0.06	0.12	0.07
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.13	0.03	0.03	0.03	0.02	0.61	0.38	0.42	0.35	0.42	0.14	0.05	0.33	0.04
Total	100.02	100.00	99.99	99.99	100.01	100.01	100.00	100.00	100.00	100.01	100.01	100.00	99.99	100.01
mg-value	0.40	0.13	0.07	0.06	0.16	0.28	0.33	0.28	0.28	0.28	0.31	0.29	0.27	0.31
A/CNK	0.88	0.96	0.93	0.97	1.02	0.81	0.92	0.86	0.88	0.87	0.96	1.00	0.88	0.97
Ba(FAA)	207	1200	1416	1602	604	1630	1437	1424	1496	1495	1995	982	1764	604
Ba(PAA)		1320	1148	916	325	1469		1219					1840	
Ce		141.6	84.7	145	161.3	305.9		227.1					318.7	
Co		0.2	0.2	0.2	0.2	8.4		7.5					6.1	
Cr		tr	50.2	0.1	14.2	19.9		14.7					19.1	
Cs		4.53	4.12	5.55	8.65	2.38		3.04					2.29	
F(ionanal)	224	1341	1209	1369	130	2315	1710	2218	1340	2303	1365	1003	2293	901
Nb		25.5	26.3	19	26.3	42.4		40.7					49	
Ni		0.7	3	0.7	1.2	0.5		1					6.7	
Rb		232.2	233.7	252	291.4	195.2		287.5					275.4	
Sc		4.5	4.3	3.5	4.6	20.8		16.4					17.4	
Sr		75.2	71.7	62.1	35.1	373.5		320.3					394.4	
Y		84.2	92.6	77.9	86	90.1		75.5					90.9	
Zn		132	99	104	366	103		109					100	
Zr		641.8	741.5	498.1	491.8	712.2		570.1					805.9	

Nordingrå granites  
 88082801 : Porphyritic clinopyroxene-hornblende granite  
 88082802 : Hornblende bearing clinopyroxene granite porphyry  
 88082803 : Granite porphyry  
 88082804 : Anorthosite  
 88082807 : Olivine-clinopyroxene-hornblende granite porphyry

Karlshamn and related garnites  
 Karlshamn granites  
 88072804 : Biotite granite  
 88072715 : Biotite granite  
 88072716 : Hornblende-biotite granite

Klagstorp granite  
 88072806 : Hornblende-biotite granite  
 88072807 : Hornblende-biotite granite  
 Spinkamala (Mörå North) granite  
 88072801 : Biotite granite  
 88072803 : Biotite granite  
 Jämshög granite  
 88072601 : Biotite granite  
 88072605 : Biotite granite

第1表(3)

Sample No.	Bohus granites										
	80906	81009	80803	80908	80805	81006	80807B	81005	80808	80804	81007
SiO <sub>2</sub>	68.51	70.95	71.07	70.88	72.35	73.42	71.65	72.98	73.07	73.82	74.60
TiO <sub>2</sub>	0.46	0.31	0.35	0.22	0.25	0.20	0.28	0.20	0.20	0.21	0.07
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.09	14.44	14.16	14.90	14.21	14.27	14.31	14.06	13.96	13.53	14.03
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.69	0.68	1.18	0.64	0.64	0.00	0.74	0.20	0.49	0.77	0.02
FeO	2.54	1.69	1.30	1.18	1.18	1.23	1.12	1.35	0.99	0.96	0.53
MnO	0.06	0.02	0.08	0.07	0.06	0.03	0.06	0.07	0.05	0.06	0.03
MgO	0.90	0.49	0.57	0.56	0.44	0.44	0.53	0.36	0.38	0.47	0.23
CaO	2.11	1.49	1.50	1.31	1.43	1.27	1.36	1.34	1.41	1.25	1.43
Na <sub>2</sub> O	3.64	3.26	3.54	3.77	3.56	3.21	3.35	3.53	3.38	3.34	3.27
K <sub>2</sub> O	4.32	5.47	5.20	5.26	5.07	5.09	5.74	5.07	5.27	4.93	5.03
H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	1.28	0.92	0.72	0.92	0.63	0.65	0.60	0.61	0.59	0.47	0.53
H <sub>2</sub> O <sup>-</sup>	0.27	0.16	0.24	0.22	0.11	0.17	0.16	0.17	0.17	0.13	0.18
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.14	0.12	0.09	0.07	0.07	0.05	0.10	0.06	0.05	0.06	0.04
Total	100.01	100.00	100.00	100.00	100.00	100.03	100.00	100.00	100.01	100.00	99.99
mg-value	0.33	0.27	0.29	0.35	0.30	0.38	0.34	0.29	0.31	0.33	0.41
A/CNK	1.04	1.03	1.00	1.04	1.02	1.09	1.01	1.02	1.01	1.03	1.04
Ba(FAA)	1109	648	1096	784	718	519	1066	1087	791	532	539
Ba(PAA)	777	484				492			630		516
Ce	262.8	183.3				116.2			137		42.3
Co	4	3.3				1.8			1.7		1
Cr	14.7	3.2				1.5			0.9		2.9
Cs	1.67	2.39				2.92			2.54		1.71
F (ionanal)	1053	542	1261	1089	1042	281	895	978	754	928	125
Nb	25.5	14.8				18.7			17.6		6.2
Ni	3.8	1.2				3.2			1.7		1.5
Rb	257.6	233.8				231.9			303.9		163.3
Sc	9.3	4.1				4.3			4.3		1.4
Sr	171.1	118.2				134			182.8		171.4
Y	36.7	27.2				21.9			11.1		42.2
Zn	64	56				20			30		13
Zr	363.2	269.4				177.1			198.5		76.4

## Bohus granites

88080906 : Muscovite-biotite granite  
 88081009 : Muscovite-biotite granite  
 88080803 : Biotite granite  
 88080908 : Muscovite-biotite granite  
 88080805 : Biotite granite

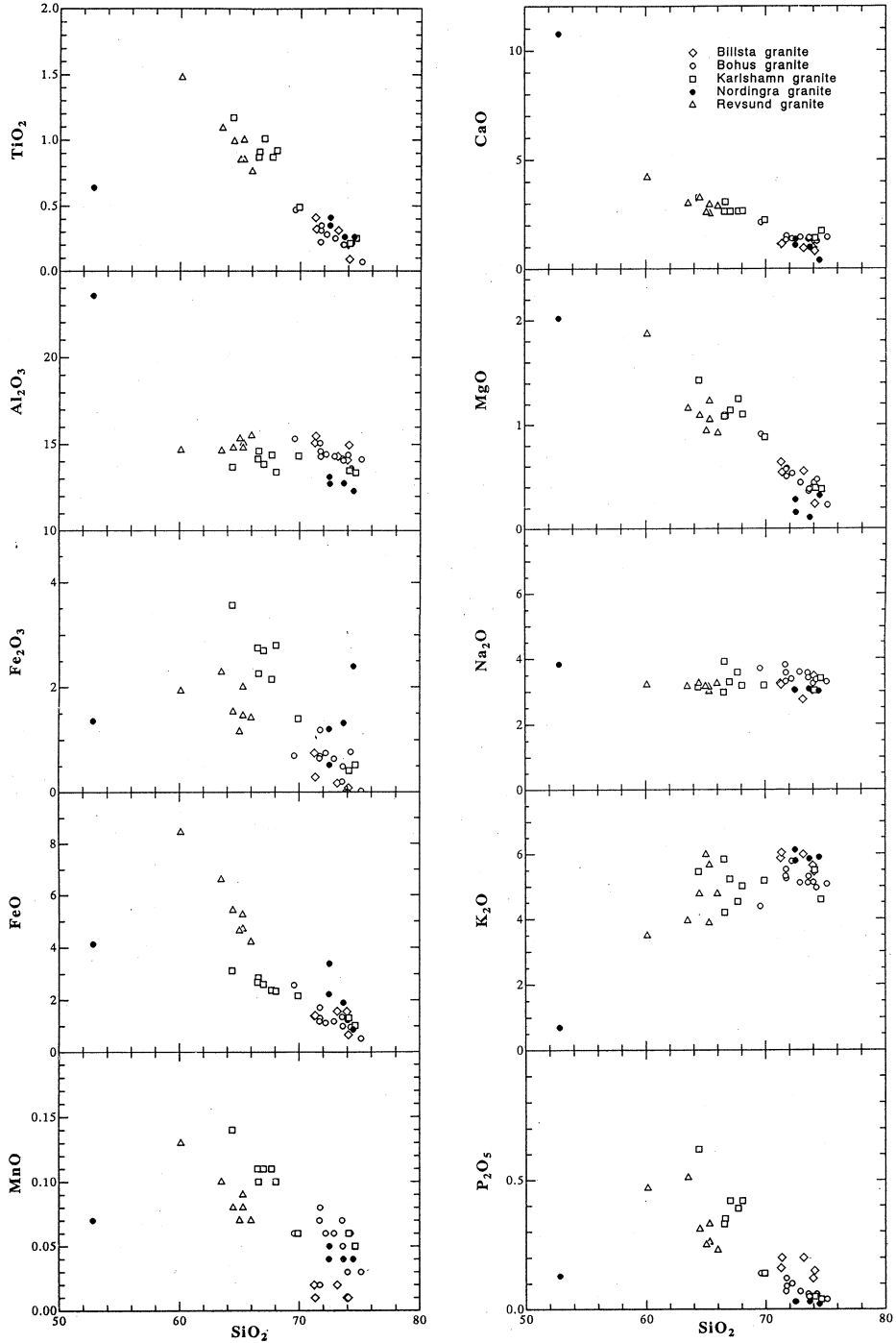
88081006 : Muscovite-biotite granite  
 88080807B : Biotite granite  
 88081005 : Muscovite-biotite granite  
 88080808 : Biotite granite  
 88080804 : Biotite granite  
 88081007 : Garnet-muscovite-biotite granite

原子吸光法を併用した。Fについてはイオン電極法を用いた。光量子放射化分析は東北大学理学部、原子核理学研究施設の電子ライナックを利用し、加速エネルギー30MeVを用いて行なった。分析結果を第1表に、SiO<sub>2</sub>と主成分および微量成分との関係を第6図に示す。

## 4.1. Billsta 花崗岩

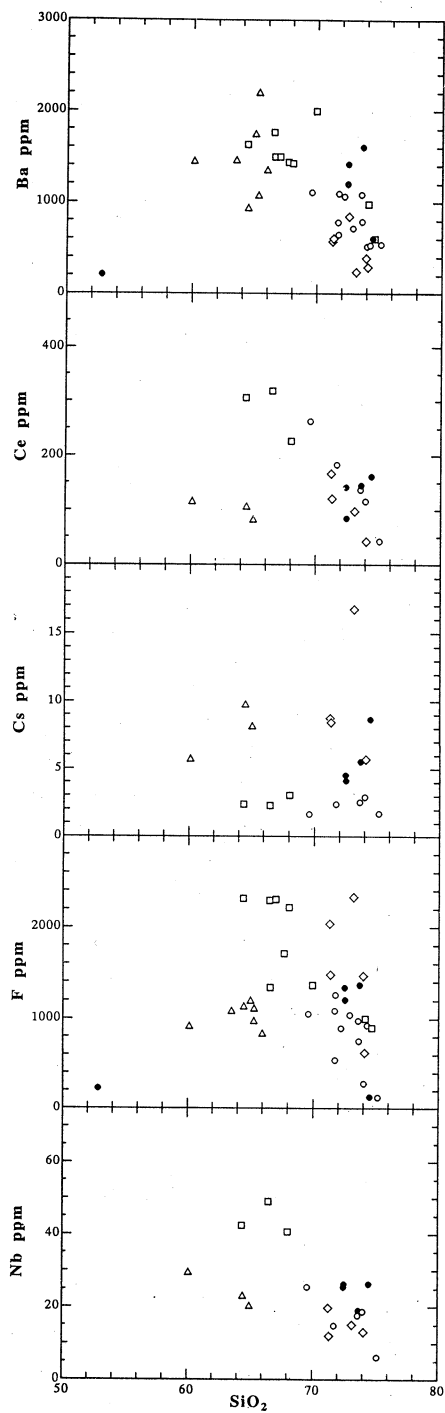
主成分はA/CNK [=mol. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> / (CaO+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O)] 比が>1.1と大きく(第7図)、S-タイプ花崗岩の性質を示す。いずれもSiO<sub>2</sub>に富む岩相で、鉱物組み合わせおよび化学組成からは明らかに次に述べるRevsund花崗岩とは区別される。鉄鉱物の少ないことを反映してFe<sup>3+</sup>/Fe<sup>2+</sup>比が小さい。同程度のSiO<sub>2</sub>含有量を持つ他の花崗岩に比べてP<sub>2</sub>O<sub>5</sub>とFにやや富みBaに乏しい。Ce, Nb, Zrは急激に減少する。Y, Nbに乏しくRbに富む。Csはイオン半径が最も大きく、インコンパティビリティが大きいいため、最後まで液相に濃集することが期待

(a)

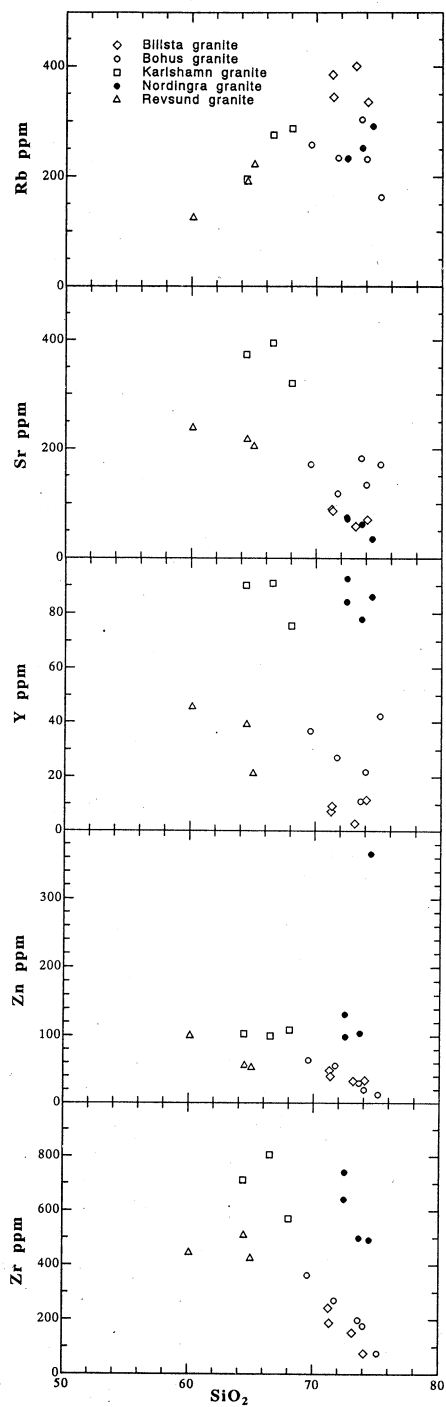


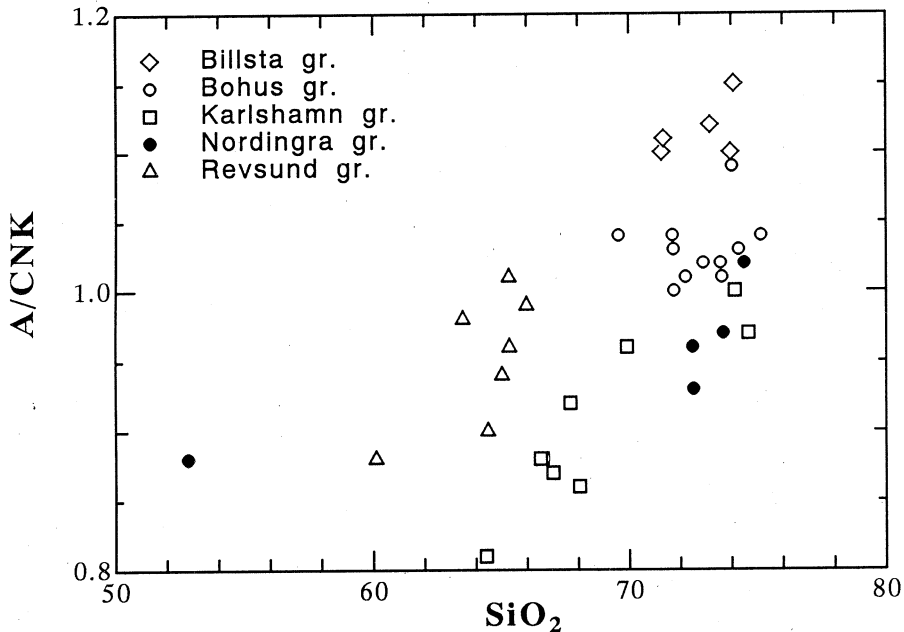
第6图 Major and trace element variation diagrams for analysed rocks.  
 (a) and (b) represent major and trace element diagrams, respectively.





(b)



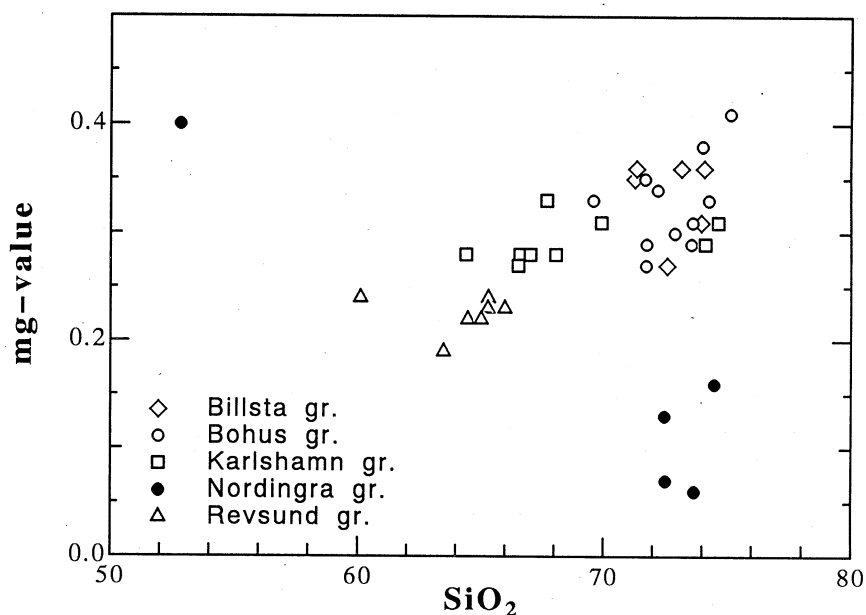


第7図 A/CNK-SiO<sub>2</sub> relations for granites.

される。したがって Cs の F と相関したばらつきは H<sub>2</sub>O の関与で本来 Cs に富んだものが分化の最末期における揮発成分の濃集と脱ガスに伴って F とともに移動したことが示唆される。

#### 4.2. Revsund 花崗岩

今回分析した値は SiO<sub>2</sub> = 59.8~65.4% の範囲であるが、Persson<sup>13)</sup> は SiO<sub>2</sub> = 53.4~77.0% の広い範囲にわたる結果と、Ba, Rb, Sr の微量元素について報告した。今回の結果は Persson の傾向とほぼ一致する。TiO<sub>2</sub>, MnO, MgO, CaO, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> は SiO<sub>2</sub> の増加とともに直線的に減少する。Fe<sup>3+</sup>/Fe<sup>2+</sup> 比が小さいことも特徴の一つである。Cs, Rb は SiO<sub>2</sub> の増加とともに増加する。Cs は最後まで液相に濃集するため、SiO<sub>2</sub> の多い岩石では他の岩体に比べれば大きい値を示すであろう。Rb はこの段階ではまだアルカリ長石・黒雲母の分別による影響がでていないため濃集の方向に進むが、Persson のデータを入れると SiO<sub>2</sub> = 73% 付近で減少の傾向を示す。Nb, Y, Ce は分化に伴い減少し、アパタイト、アラナイト、ホルンブレンド、黒雲母などの分別が効いている。Sr の減少は斜長石の分別の影響が考えられる。Zr はジルコンの分別の影響がまだないためかあまり変化がない。Ba と K<sub>2</sub>O はばらつくが弱い相関がみられ、カリ長石に含まれるためとみられる。



第8図 Mg-value—SiO<sub>2</sub> relations for granites.

#### 4.3. Nordingrå 花崗岩

分析結果はアノソサイトの1例を除けば、SiO<sub>2</sub>=71.8~73.8%で狭い範囲である。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>にやや乏しい特徴がある。これに対してFeO\*およびFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に富む。したがってFeO\*/MgO比が大きくmg-値が著しく小さい(第8図)。Zr, Yなどに富む特徴的な花崗岩である。蛍石が特徴的にみられるのは黒雲母に乏しいことと、P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>が少なく、フッ素がアパタイトに含まれ得ないからである。また、Y, Zr, およびZnに富む。RbがSiO<sub>2</sub>=70%を越えても増加傾向にあるのはRbを選択的に取り込む黒雲母が少ないためであろう。

#### 4.4. Karlshamn および関連花崗岩体

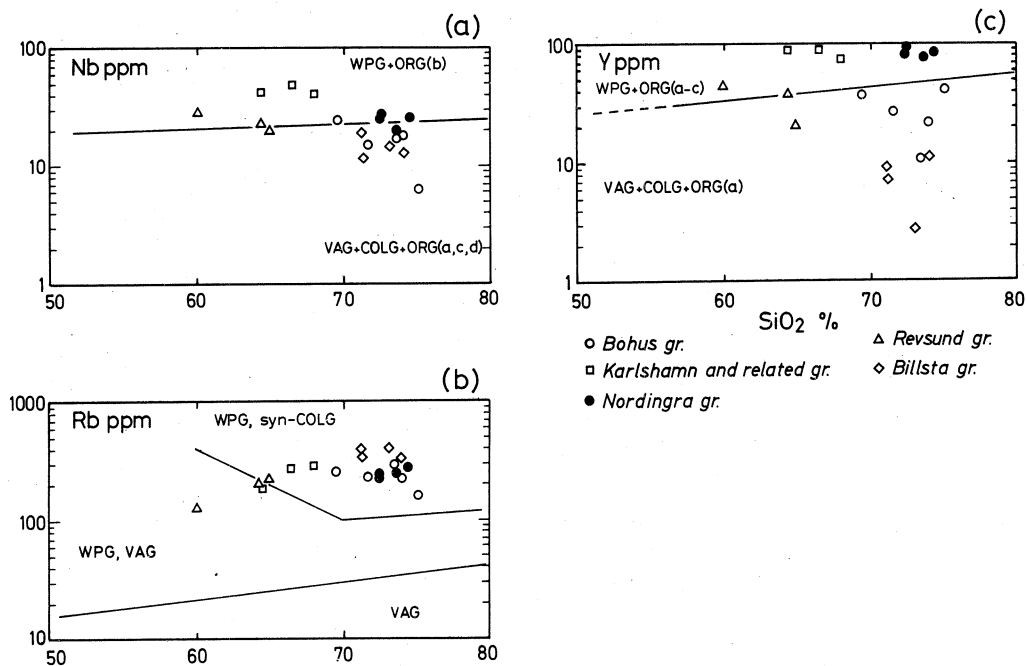
いくつかの岩体からなるが、分析した岩体での変化経路はほぼ同じで、それぞれが類縁関係である<sup>12)</sup>ことを示唆する。TiO<sub>2</sub>, FeO\*, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, FeO, MnO, MgO, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>はSiO<sub>2</sub>の増加に伴い減少する。Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に富み、Fe<sup>3+</sup>/Fe<sup>2+</sup>比が大きいのは鉄鉱物の多いことによる。SiO<sub>2</sub>の増加に伴いCe, Y, Zrが急激に低下するのはアパタイト, ジルコン, ホルンブレンド, 黒雲母などの晶出分別による。また、Fが多いにもかかわらず蛍石が少ないのはアパタイトに含まれるためであろう。Csに乏しく、Srが多いのが特徴である。

## 4.5. Bohus 花崗岩

$Al_2O_3$ に富み, A/CNK比は1.0よりやや大きくわずかに過アルミナスである(第7図)。 $SiO_2$ の範囲は68.5%から74.6%と限られている。 $TiO_2$ , FeO, MnO, MgO,  $Na_2O$ ,  $K_2O$ ,  $P_2O_5$ は $SiO_2$ の増加に伴い減少する。Csに乏しいのが特徴である。Ce, Nb, Yは分化とともに急激に減少し, 黒雲母, アパタイト, アラナイトなどの晶出分別が考えられる。Rb, Fの減少は黒雲母, Zrの減少はジルコンによる分別と考えられる。Baの急激な減少はカリ長石の分別の影響であろう。分化に伴うZr, およびCeなどのLREEの減少の傾向はEliasson and Schöberg<sup>18)</sup>によっても報告されている。

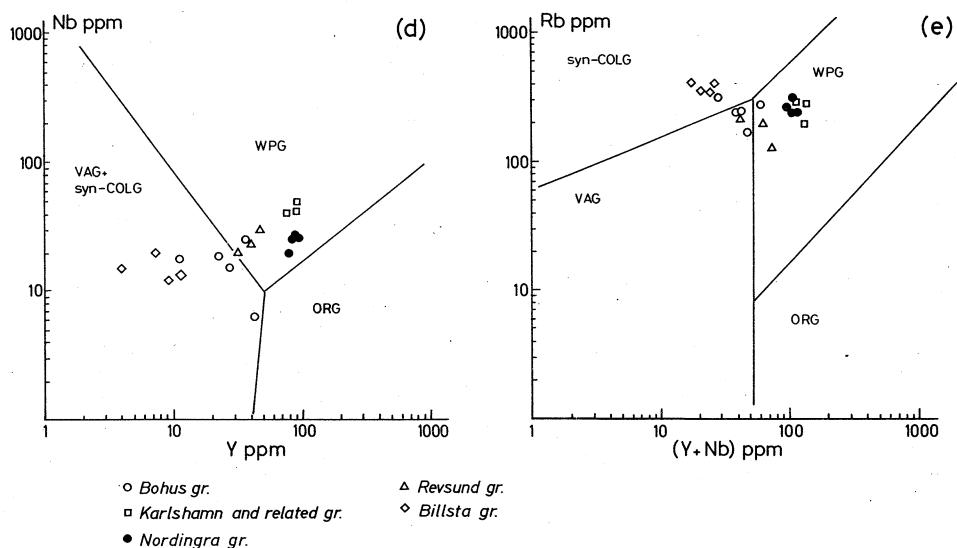
## §5. まとめ

まず, Billsta 花崗岩についてはその帰属は今後の研究に待たねばならないが, Lundqvist<sup>8)</sup>の見解のように Revsund 花崗岩とは明らかに異なるものであり, late orogenic



第9図 Tectonomagmatic discrimination diagrams plotted in (a) Nb- $SiO_2$ , (b) Rb- $SiO_2$ , (c) Y- $SiO_2$ , (d) Nb-Y, and (e) Rb-(Y+Nb) relations by Pearce *et al.*<sup>19)</sup>.

Abbreviations denote volcanic arc granites (VAG), ocean ridge granites (ORG), within plate granites (WPG), and collision granites (COLG).



第9図 (continued)

のものとすればヘルシニア型のSタイプ花崗岩で、Bothnia盆における普遍的な花崗岩であろう。そして、Pearce *et al.*<sup>19)</sup>によるsyn-COLG(第9図)の特徴を示し、1.8Ga頃に地殻の再融解で生じたもの<sup>2)</sup>かも知れない。Revsund花崗岩では分析したSiO<sub>2</sub>の範囲が限られているが、Csの増加傾向は顕著であり、最も液相濃集の傾向が強いことから本来の性質を示すものであろう。この点ではBillsta花崗岩と同じ性格と考えられ、Bothnia盆の特徴かも知れない。Pearce *et al.*<sup>19)</sup>ではWPGないしVAGの境界付近の性質を示す(第9図)。フィンランドラパキビ花崗岩のトレンドに似ている<sup>13)</sup>とされたが、Rogers and Greenberg<sup>20)</sup>の分類に従えば、Revsund花崗岩のZr, Y含有量はpost-orogenicよりも低くlate-orogenic花崗岩類に近い。Nordingrå花崗岩はMg/Fe比が非常に小さく、Haapala and Ramö<sup>21)</sup>のまとめによるラパキビ花崗岩(Laitila, Wiborg, Alandバリソスなど)の値に近い。また、Zr, Yに富むことも特徴で典型的なWPGのものである(第9図)。Karlshamn花崗岩とその衛星岩体はいずれも同一トレンドにのるため、成因的には類縁関係があるものといえよう。Fe<sup>3+</sup>/Fe<sup>2+</sup>が特徴的に高く、酸化的花崗岩である。また、FにとみCsには乏しい特徴がある。Nb, Yに富み、典型的なWPGの特徴を示す(第9図)。NordingråおよびKarlshamn花崗岩は典型的なWPGのタイプであるが、フィンランドのラパキビ花崗岩の年代(1.7-1.55Ga)よりも若い。1.40-1.35Gaにおけるラパキビ型の花崗岩の活動はシベリア、ウラルをってスカンディナ

ピアから北アメリカ大陸にみられ、その成因については古期花崗岩類からなる下部地殻がマントルマグマによる熱で融解して生じたもので、バルト楯状地とカナダ楯状地間の相対的な移動を考える上で重要な指針となるとの指摘がある<sup>14)</sup>が、さらに検討を加える必要がある。Bohus花崗岩はBillsta花崗岩に比べればAlの飽和はそれほどではないが1を越えており、典型的なS-タイプとI-タイプの間接の性質を示す。Csの少ないのも特徴の一つである。微量成分からの性質はほぼVAGとsyn-COLG<sup>19)</sup>との中間を示す(第9図)。

今回の結果では各岩体の分析個数が少ないが、明らかに岩体ごとに異なる地球化学的な特徴が現われている。今後、この特徴の意味づけとバルト楯状地の地史とを関連づけることが必要である。Ce, Nb, Y, ZrなどのHFS元素が岩体ごとに異なるのは各岩体を形成したマグマあるいはそれらの起源物質の違いを表すのかも知れないが、今後の検討に待たねばならない。

本研究は国際学術研究「バルチック楯状地先カンブリア界の地質学的同位体的研究」(代表者黒田吉益: 課題番号63041063)による成果の一部である。光量子放射化分析に際しては、東北大学理学部原子核理学研究施設の榎本和義博士、ライナックマシーングループの皆様へたいへんお世話になった。藤巻宏和助教授、長谷中利昭博士には蛍光エックス線分析に関してお世話頂いた。佐々木洋明、牧野禎紀、麻木孝郎の諸氏には薄片作成、試料の調整をお願いした。以上の方々ならびに当局に感謝する。

### 参 考 文 献

- 1) M. R. Wilson : Geol. Rundsch. **71** (1982) 120.
- 2) M. R. Wilson, P. J. Hamilton, H. E. Fallick, M. Aftalion and A. Michard : Earth Planet. Sci. Lett. **72** (1985) 376.
- 3) A. Lindh and P. -O. Persson : "Mid-Proterozoic Laurentia-Baltica : Geological Association of Canada", eds. C. F. Gower, J. Rivers and B. Ryan Spec. Paper **38** (1991) 1.
- 4) P. J. Patchett and O. Kouvo : Contrib. Mineral. Petrol. **92** (1986) 1.
- 5) H. Huhama : Geol. Surv. Finland, Bull. no. **337** (1986) 1.
- 6) P. J. Patchett and W. Todt and R. Gorbatshev : Precamb. Res. **35** (1987) 145.
- 7) N. H. Magnusson (ed.) : Sver. Geol. Unders. Ser. Ba NR **16** (1958) 1.
- 8) T. Lundqvist : Sver. Geol. Unders. Ser. Ba NR **31** (1987) 1.
- 9) E. Welin, K. Christiansson and Ö. Nilsson : Sver. Geol. Unders. **C 666** (1971) 1.

- 10) E. Welin, O. Einarsson, B. Gustafsson, R. Lindberg, K. Christiansson, G. Johansson, and Ö. Nilsson : Sver. Geol. Unders. **C 731** (1977) 1.
- 11) M. R. Wilson and G. V. Akerblom : Mineral. Mag. **46** (1982) 233.
- 12) T. Lundqvist : Sver. Geol. Unders. **C 768** (1979) 1.
- 13) L. Persson : Sver. Geol. Unders. **C 741** (1978) 1.
- 14) G. Åberg : Lithos **21** (1988) 279.
- 15) K-A. Kornfält and J. Bergström : Sver. Geol. Unders. Af. Nr **154** (1986) 55.
- 16) G. Åberg and K-A. Kornfält : Geol. Fören. Stockholm Förh. **108** (1986) 149.
- 17) S. Pedersen and S. Maaloe : Norges Geol. Unders. Bull. **417** (1990) 55.
- 18) T. Eliasson and H. Schöberg : Precamb. Res. **51** (1991) 337.
- 19) J. A. Pearce N. B. W. Harris and A. G. Tindle : Jour. Petrol. **25** (1984) 956.
- 20) J. J. W. Rogers and J. K. Greenberg : Jour. Geol. **98** (1990) 291.
- 21) I. Haapala and T. Ramö : Geol. Soc. Amer. Spec. Paper no. **246** (1990) 275.

## IV. 加 速 器 · 測 定 器



## コヒーレントな横断放射の観測

科研, 工学部応用物理\*, 核理研\*\*

高橋俊晴・柴田行男・伊師君弘

金井利喜・荒井史隆・木村真一

蔦谷 勉・大坂俊明・池沢幹彦

近藤泰洋\*・加藤龍好\*\*

庭野 智\*\*・吉岡正裕\*\*

浦沢茂一\*\*・小山田正幸\*\*

## §1. 序

従来, 我々はライナックの電子線を用いて, コヒーレントなシンクロトロン放射光の観測を行ってきた<sup>1-5)</sup>。コヒーレント放射光は, 遠赤外線からミリ波の長波長領域における分光研究で, 極めて有用な光源である。その高輝度性により, 小さい測定光束が得られるので, 特に固体の分光研究には, 適した光源である。

加速された電子ビームが, 媒質中やその境界を通過するとき, 制動放射, チェレンコフ放射や横断放射 (transition radiation) 等が放射される<sup>6)</sup>。電子のバンチ長が短い時, これらの放射もシンクロトロン放射光と同様に, 個々の電子からの放射のコヒーレントな重畳の効果により, 強度が増大されると考えられる。それは, あらゆるコヒーレントな放射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からである。即ち, 一つのバンチから発せられるコヒーレントなスペクトル強度  $I(\omega)$  は, バンチ内の電子の空間的な分布関数  $S(r)$  によって, 次のように表わされる<sup>7)</sup>。

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

但しここで,  $\omega$  は角振動数,  $I_{\text{incoh}}(\omega)$  は様々な種類の通常の放射の強度,  $N$  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。

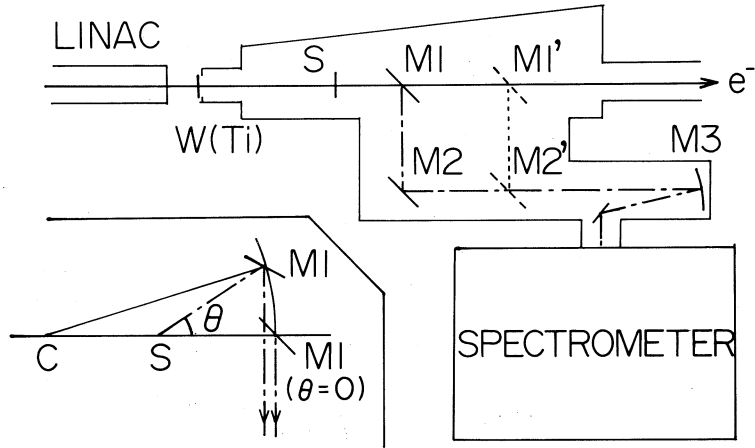
$$f(\omega) = \left| \int \exp(i\omega r/c) \cdot S(r) dr \right|^2 \quad (2)$$

様々な放射のうち, これまで実験的に諸性質が観測され, 基礎的な性質が解明されているのはシンクロトロン放射光のみである。他のコヒーレントな諸放射についても, 基本的な性質のみならず, 何れが一番分光計測等の光源として適当であるか検討することが必要であると考え

られる。今回我々は、ミリ波領域においてコヒーレントな横断放射を観測した。

## §2. 実験方法

横断放射の発光点付近の光学系が、第1図に示してある。図のS点に置いたAl, Ti及びCu金属箔に電子線を入射する。S点より下流で発生する横断放射光は、平面鏡M1, M2で反射



第1図 発光点付近の光学系の模式図。挿入図は、強度の角度依存性測定の場合の系を示す。金属箔S, 平面鏡M1~M2, M1'~M2', 球面鏡M3。

された後に、集光用の円形の球面鏡M3を経て、分光器に入射する。金属箔より後方の自由空間中の長さや放射強度の関係を調べるときには、上流のTi窓Wからの横断放射を、S点の金属箔および反射鏡M1を取り去り、更に反射鏡M1', M2'を用いて受光した。

放射強度の角度依存性を観測するために、第1図の挿入図に示してあるように、第一の反射鏡が、M1から点Sまでの長さの二倍の所Cを支点にして、回転出来るようにした。この時、受光角度の分解は、集光球面鏡の受光角によって定まり、上下とも35mradである。

分光装置の部分は前回と同じである<sup>2,3)</sup>。集光角70mradの球面鏡M3で集光された放射は、水晶の窓を通して前置室に導かれ、31.5Hzのチョッパーを通過して、フィルターを経た後分光される。偏光測定をする場合には、更に偏光器が挿入された。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に導かれる。

分光計は、平面回折格子のツェルニー・ターナー型である。回折格子は、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。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, これらの回折格子により波長範囲0.25から4 mm迄を分光した。検出器としては, 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。分光装置の感度の較正は, 温度1200Kの黒体炉を放射の発光点に置いて行なった。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1 mmで因子1.5以内である。

ライナックの電子はエネルギー150MeV, エネルギー幅は0.2%, ビームの繰り返し300ppsでパルス幅は2  $\mu$ s, 電子ビームの平均電流は約1  $\mu$ Aである。電子ビームの直径は, 発光点付近で約2 mmである。

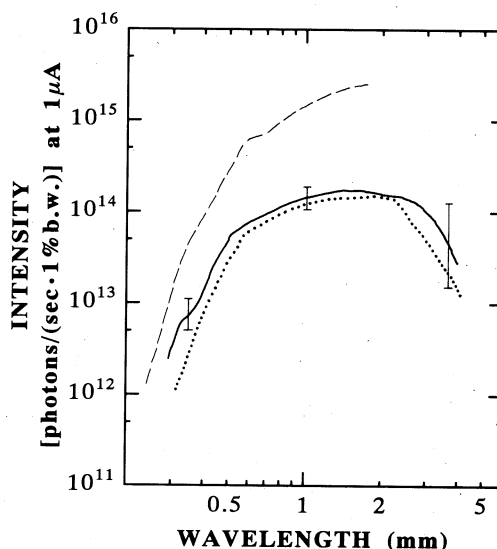
### §3. 測定結果と検討

#### 3.1 スペクトル強度

第2図に測定されたスペクトルを示す。図中, 太い実線は厚さ20  $\mu$ mのTi箔, 点線は10  $\mu$ mのCu箔を用いた場合である。図から解るように, 両者間には明確な違いは見られない。スペクトル強度は, 波長約1 mm近辺より短波長側で急激に減少している。全体の形状は, コヒーレント放射光のスペクトルに類似しており, (1)式によって定められていることを示唆している。

上記の測定の時, 金属箔と下流の反射鏡の間の距離, 即ち第1図の点SとM1間の距離は16.5cmである。第2図の細い破線で示したスペクトルは, 厚さ50  $\mu$ mのTi窓(第1図W)からの放射を, それより110cm下流の反射鏡(第1図M1')によって受光した時のものであるが, 強度が約1桁増大していることが解る。この結果は, 横断放射の強度が, ビーム下流の自由空間の長さに依存することを示している。即ち, 下流の自由空間中の長さが増すと, 強度がそれに伴って強くなることを見いだされた。

横断放射の「形成の長さ」(formation



第2図 横断放射スペクトル。太い実線及び点線は, それぞれTi箔及びCu箔を第1図のS点に置き, M1により集光した場合, 細い破線は, Ti窓(第1図W)とM1'を用いた時のスペクトル。

length)  $D$  は、コヒーレントな放射の強度に関係するが<sup>6)</sup>、それは次の式で与えられる<sup>8-10)</sup>。

$$D \sim \lambda \gamma^2 / 2\pi \quad (3)$$

本実験の場合この  $D$  は、波長  $\lambda$  が 1 mm の時、約 15 m である。本実験での上記二つの測定の場合、何れも下流の反射鏡はこの値よりかなり短い所で、金属箔の横断放射光を裁断している。このような場合、下流の自由空間中の長さ<sup>と放射強度の関係はどのようなものであるかを、今後の研究において、更に詳しく調べる必要がある。</sup>

### 3.2 放射強度の電流依存性

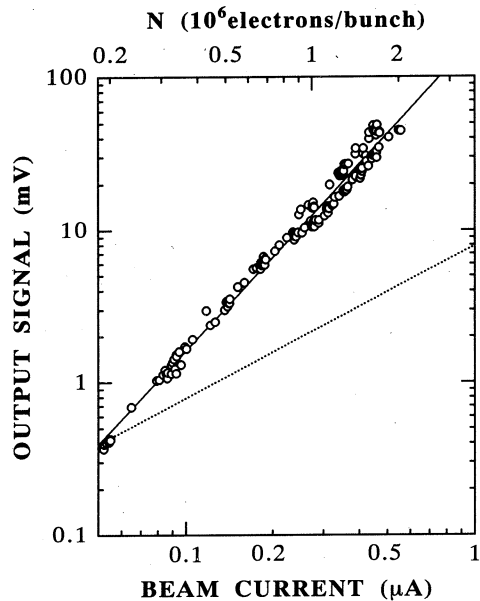
第 3 図に、波長 1 mm で観測した放射強度の電流依存性が示してある。図中の点線は、強度  $I$  が電流  $i$  に正比例する場合を示す。実線は、測定点に対して最小二乗法を適用して勾配を求めた直線である。その結果は、

$$I \propto i^{2.03 \pm 0.02} \quad (4)$$

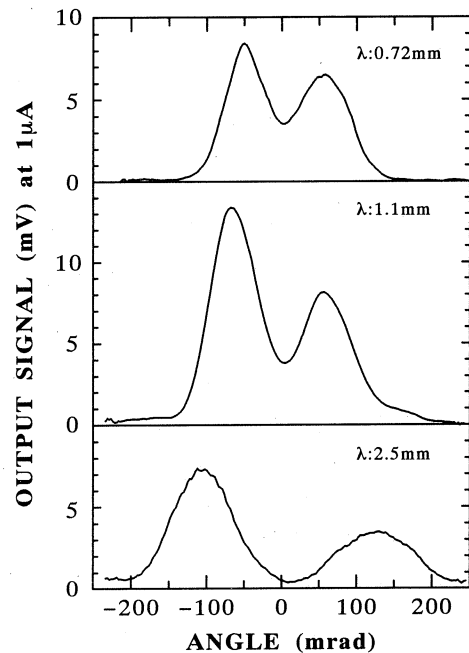
である。これは、強度がバンチ内の電子数の二乗に比例することを示している。そして、観測した横断放射が、(1)式に従ってスペクトル強度の定まるコヒーレント光である一つの証拠と考えられる。

### 3.3 発散角と偏光性

第 4 図に、Cu 箔を用いた場合の強度の発散角（第 1 図の挿入図の角度  $\theta$ ）依存性の、波長 0.7、1.1 及び 2.5 mm における測定結果である。図から見られるように、波長が長くなるにつれ、放射強度が大きい角度に発散することが解る。



第 3 図 横断放射強度のビーム電流依存性。点線は正比例関係、実線は最小二乗法によって得た勾配を示す。



第 4 図 横断放射強度の角度依存性。

同様な観測を、Ti と Al 箔を用いて行い、波長と強度の最大になる角度の関係を、まとめて示したものが第5図である。図の結果は、観測した範囲内では、横断放射の発散角が、ほぼ波長に比例していることを示している。

形成の長さより十分長い空間から発せられる時、発散角は  $1/\gamma$  で与えられる<sup>6,8)</sup>。しかし、第5図では、観測された角度は、それを直線で波長の極めて短い所に外挿すると、その値は  $1/\gamma$  より大である。これは、波長と発散角の関係は、正確な比例関係には無いことを示している。

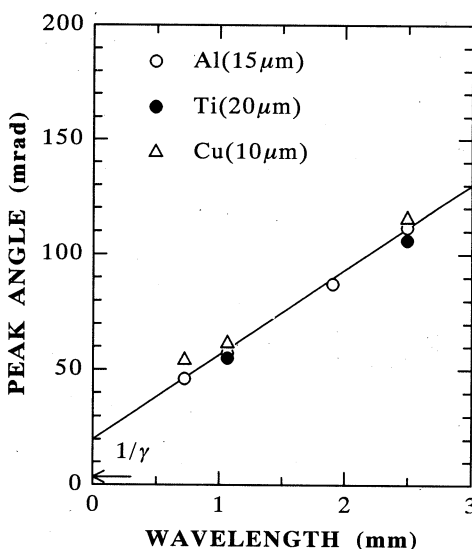
チェレンコフ放射において、有限の発光長からの放射を観測するとき、発散の角度が波長に依存し、しかも大きい値を取ることが知られている<sup>11,12)</sup>。横断放射の場合も、同様な回折の効果を考慮し、また、有限な電子ビーム断面積による回折効果をも考慮して、発散角に関して、今後、更に実験的な研究をする必要がある。

第6図に、偏光子を通して、Al 箔の放射強度の垂直成分と、水平成分の強度を、波長1.1 mm で観測した結果が、それぞれ破線と点線で示してある。実線は、偏光子を外して測定した全強度である。図は、完全には対称形ではないが、電子ビームを対称軸として発せられる横断放射光の性質に<sup>6,8)</sup>、定性的には合致したものである。

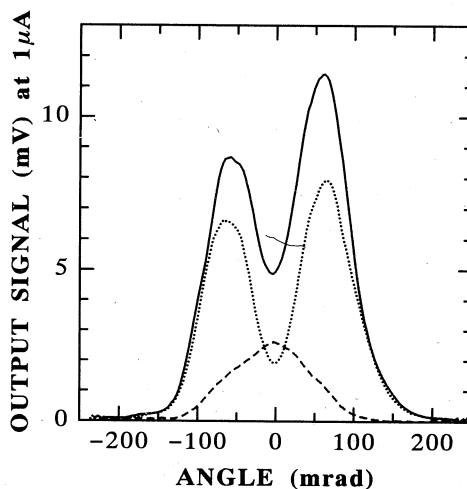
#### §4. 結 論

ライナックからの電子を用いて、コヒーレントな横断放射を発生させ、そのスペクトル強度を測定し、次の結果を得た。

- 1) スペクトルは、波長1 mm 近辺より短波長側で急速に減少し、短バンチ電子から発



第5図 発散角の波長依存性。



第6図 垂直偏光成分(破線)と水平偏光成分(点線)。実線は偏光子なしで観測された全強度。

生するコヒーレント光に特有な波長依存性を示した。

- 2) コヒーレント放射に特有な，放射強度の電流二乗依存性が確認された。
- 3) 「形成の長さ」より観測する発光の長さが短いとき，発光の長さが増すと，放射の強度は増大する。
- 4) 観測波長範囲内で，放射の発散角は，波長と共に増大した。
- 5) 放射に偏光度の軸対称が確認された。

本研究の実施に当り，東北大学核理研のスタッフには，加速器の運転等で協力を得たことを付記し，感謝の意を表する。

### 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) 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 : Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. **A301** (1991) 161.
- 3) K. Ishi, Y. Shibata, T. Takahashi, H. Mishiro, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, S. Urasawa, N. Niimura, R. Kato, Y. Shibasaki and M. Oyamada : Phys. Rev. **A43** (1991) 5597.
- 4) Y. Shibata, T. Takahashi, K. Ishi, F. Arai, H. Mishiro, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, S. Urasawa, T. Nakazato, R. Kato, S. Niwano and M. Oyamada : Phys. Rev. **A44** (1991) R3445.
- 5) Y. Shibata, K. Ishi, T. Takahashi, F. Arai, M. Ikezawa, K. Takami, T. Matsuyama, K. Kobayashi and Y. Fujita : Phys. Rev. **A44** (1991) R3449.
- 6) J. D. Jackson : *Classical Electrodynamics* (John Wiley and Son, 1962, New York).
- 7) J. S. Nodvick and D. S. Saxon : Phys. Rev. **96** (1954) 180.
- 8) G. M. Garibian : Soviet Phys. JETP **6** (1958) 1079, **10** (1960) 372.
- 9) L. C. L. Yuan, C. L. Wang, H. Uto and P. Pruenster : Phys. Rev. Lett. **25** (1970) 1513.

- 10) L. L. DeRaad, W. Tsai and T. Erber : Phys. Rev. **D18** (1978) 2152.
- 11) L. I. Schiff : *Quantum Mechanics, 2nd ed.* (McGraw Hill, 1955, New York).
- 12) F. R. Buskirk and J. R. Neighbours : Phys. Rev. **A28** (1983) 1531.

## 金属板によるコヒーレント放射光のシールド効果

科研, 工学部応物\*, 核理研\*\*

柴田行男・伊師君弘・高橋俊晴

荒井史隆・金井利喜・木村真一

蔦谷 勉・大坂俊明・池沢幹彦

近藤泰洋\*・加藤龍好\*\*

庭野 智\*\*・吉岡正裕\*\*

浦沢茂一\*\*・小山田正幸\*\*

### §1. 序

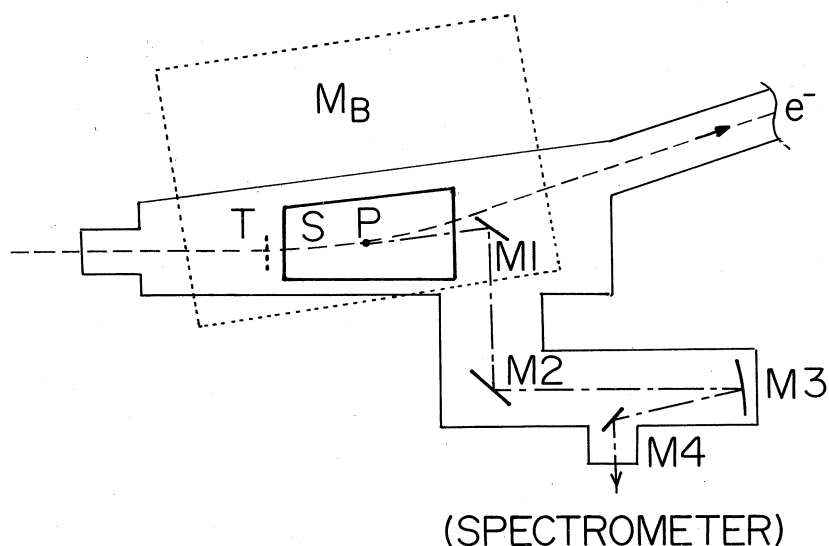
我々は、これまでサブミリ・ミリ波域でのコヒーレント放射光のスペクトルを測定しその結果を解析してきた<sup>1-3)</sup>。そのスペクトルは、波長1.5mm 近傍にピークをもち、約1mm より短波長では急激に弱くなり、全体のスペクトル分布はバンチの電子分布を反映している。長波長側でもスペクトル強度は減少して観測されているが、その減少の程度が理論的に予測される全放射強度の $\lambda^{-1/3}$ 依存性よりも急激であった。長波長域ではシンクロトロン放射は実験に用いる集光系の受光角以上に広がり、観測されるスペクトル強度の波長依存性は理論的に予測できる。しかし、長波長側で測定されたスペクトル強度の減少はその予測をも大きく越えていた。

その原因については、測定系の感度較正誤差等種々考えられるが、放射光発生ダクトの金属壁のシールド効果による長波長側での抑制もその原因の一つと考えられる<sup>4,5)</sup>。そこで、平行アルミ板を用い、コヒーレント放射光のシールド効果についての実験をした。

### §2. 実 験

実験系の配置模式図を第1図に示す。電子ビームは偏向電磁石  $M_B$  中で半径2.44mの円軌道を描きシンクロトロン放射を発生し、ビーム位置確認用蛍光板、ビーム電流モニタを通してビームキャッチャーに捨てられる。電子のエネルギーは150MeV、パルス幅は2  $\mu$  sec、パルス繰り返し周期は300パルス/秒であり、実験時の平均ビーム電流は1  $\mu$  Aである。シンクロトロン放射は電子軌道に沿って連続的に放射されているが、集光系によって受光される発光点Pを中心にして2枚の平行アルミ板Sが水平にセットされており、平行板間隔が12mmから108mmまで変えられるようになっている。アルミ板(厚さ2mm)は台形で、その寸法は





第1図 実験の模式図。M<sub>B</sub>, 偏向電磁石:P, 放射光発光点:S, 平行アルミ板:T, ターゲット:M1, M2, M4, 平面鏡:M3, 集光鏡。破線は電子軌道を示す。

196×260×400mm (上流辺×下流辺×長さ)である。アルミ板上流約2cmの所に、随時ビーム軸上に挿入出来るターゲットTがあり、必要に応じてビーム位置がモニタ出来る。

放射光は受光角70mradの円形の球面鏡M3で集光され、分光計に導入される。分光計は、従来から使用している5個の回折格子を用いたもので、波長0.25mmから5mmまでの分光測定が可能である<sup>3)</sup>。遠赤外光の検出には、液体ヘリウム温度でのシリコン・ボロメーターを使用した。

尚、コヒーレント放射光のシールド効果と比較するため、高圧水銀灯(ウシオ電気製100W, 有効口径10mm)をアルミ板上流Tの位置に置き、同様にアルミ板間隔を変えてその強度変化を測定した。

### §3. 結果と考察

波長1.4, 2.5, 4.5mmの3つの波長について、アルミ板間隔を変化させてコヒーレント放射光の出力の変化を測定した。その結果を第2図に示す。図中の縦線は測定誤差の程度を示す。波長2.5mmには水平(軌道面内)および垂直方向の偏光成分の変化の様子を示す。但し、垂直成分については測定値の5倍が図に示してある。高圧水銀灯に対しても、波長0.65mm, 0.99mm, 1.4mmについて同様の測定を行った。三波長に対する測定結果はほぼ相似形なので、

波長0.99mm に対する結果を第3図に示す。

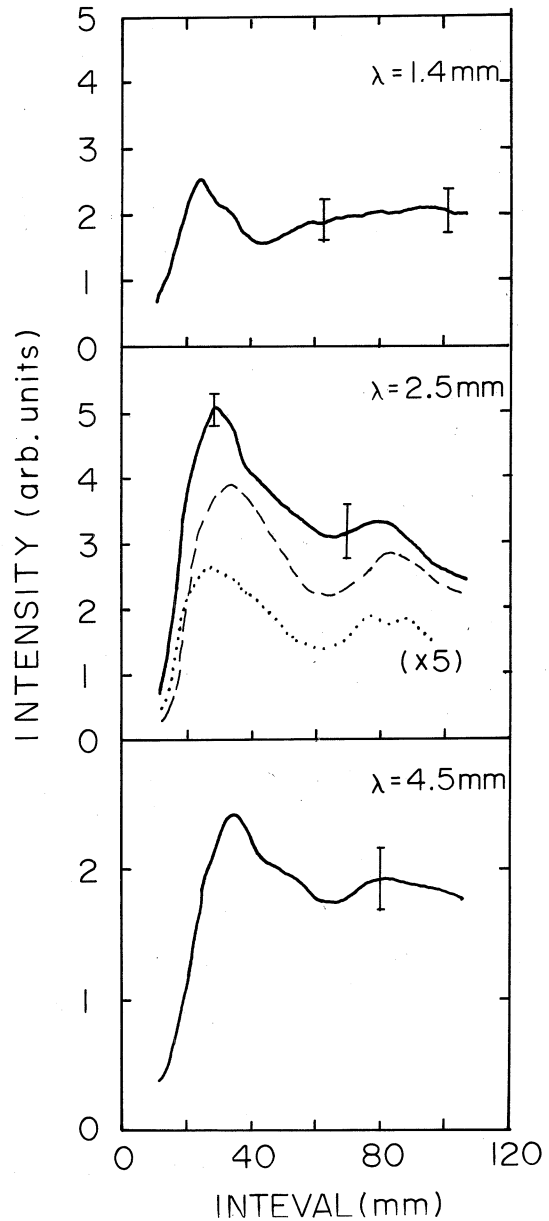
高圧水銀灯およびシンクロトン放射双方の測定結果は、両者ともに平行板間隔が約50mm より狭くなると、測定強度は一時増加している。その後、もっと間隔が狭くなるにつれて、高圧水銀灯は間隔の広い場合の出力にほぼ戻るが、シンクロトン放射では出力が急激に減少している。

高圧水銀灯の測定結果は、1) 平行板間隔が約50mm より広い場合には、シールド板がない場合の出力である一定値を示しており、また平行なアルミ板が鏡として作用し、2) 50mm 以下では、高圧水銀灯の鏡像からの光も分光測定系に入射してくるため一旦上昇を示すものと考えられる。間隔が狭くなり、水銀灯からの光がアルミ板で遮られるようになると遮蔽の程度と鏡像による効果とが打ち消し合って、シールド板が無い場合の出力に戻るであろう。

そのように考えた場合、シールドの間隔が上記の両効果が相殺するほどに狭い場合の強度と間隔が60mm 以上の強度との比をシールド効果を表す指標とみる事が出来る。シールド効果は間隔が狭いとき顕著なのであるから、いま最も狭い場合について次の比をとって検討することにする。

$$Z = \frac{\text{間隔が12mm の場合の強度}}{\text{間隔が60mm 以上の場合の強度の平均}} \quad (1)$$

第4図に、強度比Zを示す。なお、高圧水銀灯の場合の強度比も同図に示してある。



第2図 シールド板間隔とコヒーレント放射光の測定強度。測定波長は上から1.4, 2.5 および4.5 mmで、2.5 mmには水平(軌道面)及び垂直方向の偏光成分の測定値(但し、垂直成分はその5倍)を破線及び点線で示す。

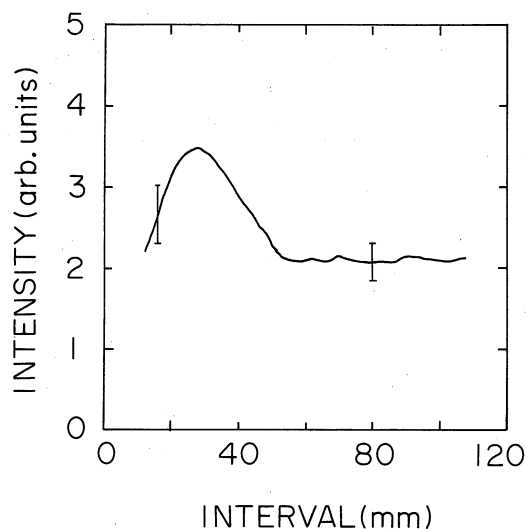
高圧水銀灯の場合は、いずれの波長においても、その強度比は1とみなせる。シンクロトロン放射の場合長波長になるにつれて、強度比 $Z$ は $1/3 \sim 1/5$ と小さくなっており、それがアルミ板のシールド効果を示すと考えられる。それはシールド効果が波長が長い方で顕著であるという理論的な予測とも合っている。シールド間隔が60mmより広い場合でも、コヒーレント放射光の測定値は変動しており、一定値に落ち着いている高圧水銀灯の場合と異なる。しかし、その変動は、ビーム電流その他測定系の揺らぎの範囲を示すものと考えられる。

以上の結果から、従来の実験<sup>1-3)</sup>においてはダクトの幅と高さは182×175mmであるから、ダクト壁面によるシールド効果は無視できると結論してよい。

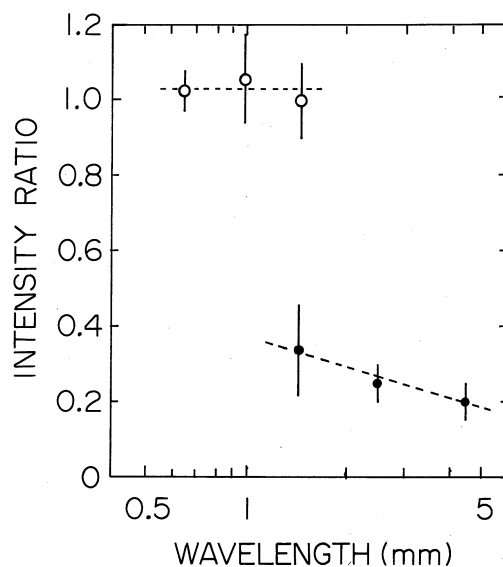
なお、シールド板間隔が30mmより広いとき、偏光成分の変化の様子は全体のそれと相似であり、偏光による差は見られない。しかし、シールド間隔が狭くなるとわずかに差が認められた。

#### §4. まとめ

磁場中の電子軌道を平行なアルミ板で挟み、そのアルミ板の間隔を12mmから108mm迄変化させて、コヒーレント放射光の金属シールド効果を測定した。なお、比較のため、高圧水銀灯に対し同様の測定を行った。その結果、次の事が明らかとなった。



第3図 シールド板間隔と高圧水銀灯の測定強度。測定波長は0.99 mm。



第4図 アルミ板によるシールド効果。縦軸はシールド板間隔が12 mmの時の測定値と60 mm以上の間隔の場合の測定強度の平均との比を示す。黒丸がコヒーレント放射化に対する結果で、白丸は高圧水銀灯の場合を示す。詳細は本文参照。

- 1) 測定波長範囲で、間隔が約60mm以上ではシールド効果は認められない。
- 2) 間隔50mm以下では、光源のアルミ板からの反射光が測定系に受光されるため、測定される強度は一旦増加する。それより狭くなると、光源の幾何学的な遮蔽により測定値は減少するものと考えられる。
- 3) コヒーレント放射光では、シールド効果によると思われる光強度の急激な減少が、前記2)の幾何学的な遮蔽に重なって観測される。そのシールド効果は長波長程顕著である。従って、シールド効果を定量的に測定するためには、幾何学的な因子を定量的に評価する必要がある。
- 4) これまでの測定で得られたコヒーレント放射光のスペクトル強度の、長波長側での急な減少は、ダクト壁面によるシールド効果では説明できない。

本実験を進めるに当たり、核理研のマシングループを始めとする諸スタッフにお世話になりました。また、科研附属工場には、真空ダクトとその付帯設備を製作して戴きました。ここに記して感謝いたします。

#### 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 : *Rhys. Rev. Lett.* **63** (1989) 1245.
- 2) 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 : *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.* **A301** (1991) 161.
- 3) K. Ishi, Y. Shibata, T. Takahashi, H. Mishiro, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, S. Urasawa, N. Niimura, R. Kato, Y. Shibasaki, and M. Oyamada : *Phys. Rev.* **A43** (1991) 5597.
- 4) L. I. Schiff : *Rev. Sci. Instrum.* **17** (1946) 6.
- 5) J. S. Nodvick and D. S. Saxon : *Phys. Rev.* **96** (1954) 180.
- 6) 伊師君弘, 柴田行男, 高橋俊晴, 蔦谷 勉, 大坂俊明, 池沢幹彦 : 東北大学科学計測研究所報告**39** (1990) 19.

## Development of New Electron Counter System for High Resolution Photon Tagging

T. Sasaki, S. Ito, O. Konno, K. Maeda<sup>†</sup>, H. Matsuyama  
T. Suda<sup>†</sup>, M. Takeya, T. Terasawa, M. N. Thompson<sup>††</sup>

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

<sup>†</sup>*College of General Education, Tohoku  
University, Kawauchi, Sendai 980 Japan*

<sup>††</sup>*School of physics, The University of  
Melbourne, Parkville 3052, Australia*

A high resolution electron counter for the photon tagging system has been developed. This system consists of 40 plastic scintillators, 4 optical fiber bundles with 10 branches and 4 photomultiplier tubes. This high resolution counter (HR counter) is installed in front of the preexisting tagging counter arrays. The improvement of resolution is a factor of 4 at  $E_\gamma=42.2$  MeV and 6 at  $E_\gamma=65.6$  MeV.

### §1. Introduction

At an energy region above the Giant Dipole Resonance (GDR) and below the  $\pi$  - production threshold, we have studied mainly  $(\gamma, p)$ ,  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, NN)$  reactions on light nuclei by using tagged photons. Informations obtained from light nuclei have been of great importance in understanding of nuclear reactions. When we proceed to heavier target, it occurs a problem that we cannot identify the level of the final state because of the insufficient energy resolution. The energy resolution of the present system is  $\Delta E_\gamma=2.6$  MeV.

For heavier nuclei of interest, the separation between the ground and the first excited state of the residual nucleus is typically 1.5 MeV. Since we can expect the energy resolution of the proton or neutron detector as around 1 MeV, we need to improve  $\Delta E_\gamma$  to about 1 MeV.

## §2. Design and construction of high resolution tagging counter system

Important points for the design of new system are ;

1. Reliability under high counting rate
2. Simple acquiring circuit
3. Compatible with the preexisting system.

The arrangement of a high resolution counter (HR counter) is shown in fig 1. It is mounted on the focal plane of the tagging magnet. It consists of three parts ; 40 plastic

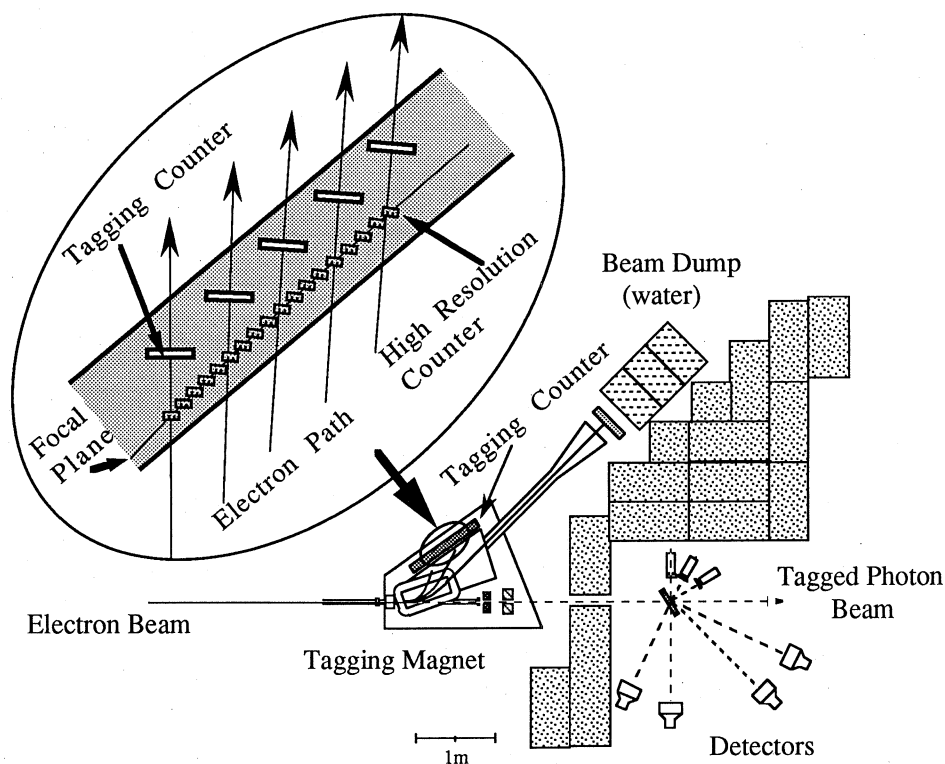


Fig. 1 Schematic setup of the high resolution tagging counter system.

scintillators 4 optical fiber bundles and 4 photomultiplier tubes. The size of a plastic scintillator is 5 mm thick, 10 mm width and 100 mm long. The fiber bundle (Mitsubishi Rayon Co.,LTD) is 40 cm long and has about eight thousand 0.25 mm  $\phi$  optical fibers, which was divided into 10 branches in order to read signals from 10 plastic scintillators. The bundle is viewed by a photomultiplier tubes (HAMAMATSU -H1161). Each

scintillator has one-third overlap with the next scintillator. By taking coincidences and anti-coincidences between neighboring scintillators, we can define the width of each HR counter as 3 mm. The position of the electron is decided by taking coincidence with the preexisting tagging counter. Fig 2 shows this overlap and readout.

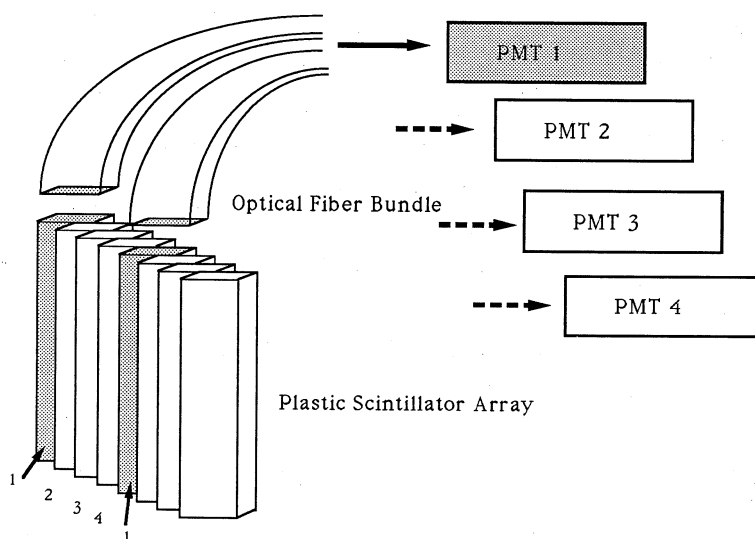


Fig. 2 Schematic diagram of the plastic scintillator, optical fiber and photomultiplier.

### § 3. Energy calibration

Momentum analyzed electrons ( $\Delta P/P=0.1\%$ ) from the linac were injected into the tagging magnet to make the energy calibration of the HR counter. Since the linac duty factor is 0.1% (pulse width =  $3 \mu s$ , 300 pulses/sec), the accidental rate within CAMAC cycle restricts beam intensity. Because of this limit, the electron linac was required to operate with cold gun cathode (cold emission). The counting rate for one tagging counter was approximately  $10 \sim 100 \text{ sec}^{-1}$ . We changed the electron beam energy as  $E_e = 50, 65, 80 \text{ MeV}$  and for each electron energy the magnetic field was varied, so as to cover all channels of the HR counter.

A shape of the electron beam is shown in fig 3. The precise beam position and width are determined by a Gaussian fit. The horizontal axis represents relative positions of plastic scintillators on the focal plane. The beam size is approximately 3 mm (FWHM).

Fig 4 shows energy calibration results for the HR counter. The horizontal axis represents a serial number of the HR counters and the vertical axis represents the recoil electron energy when the magnetic field is 4300 gauss. This result fits with a quadratic equation.

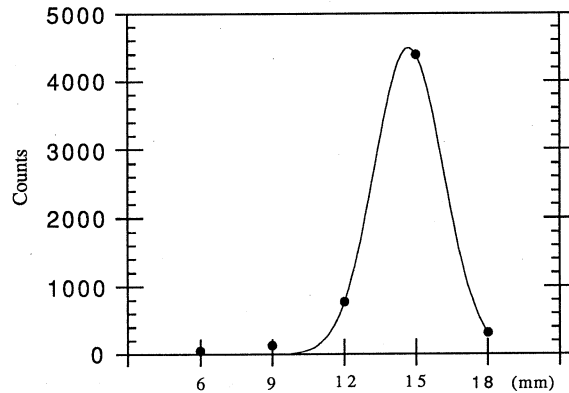


Fig. 3 Electron beam profile. The horizontal axis represents relative positions of plastic scintillators on the focal plane.

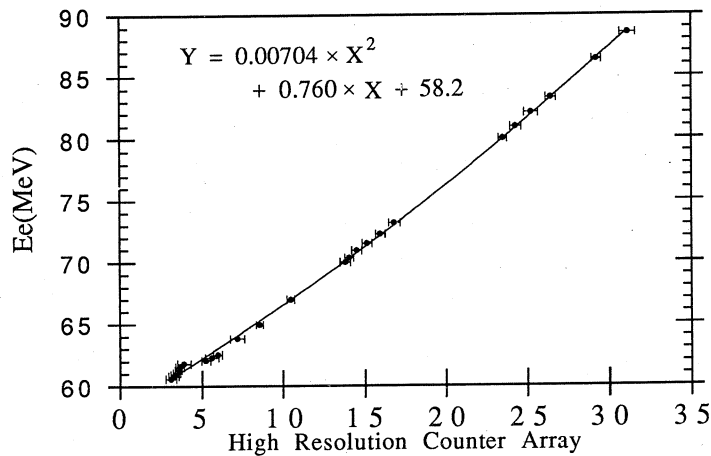


Fig. 4 Energy calibration results. Curve is fitted by a quadratic equation.

#### §4. Results

Finally, we obtain the energy resolution of 430 KeV at  $E_\gamma = 65.6$  MeV and 650 KeV at  $E_\gamma = 42.2$  MeV. Fig 5 shows the comparison of the HR counter resolution with the preexisting tagging counter resolution.

So far we haven't discussed about the reliability of the new system under the high counting rate condition. Because our HR counter has only 4 photomultiplier tubes, the counting rate per one photomultiplier tube becomes about 5 times higher than before. In a typical  $(\gamma, p)$  experiment, the electron rate per a tagging counter was



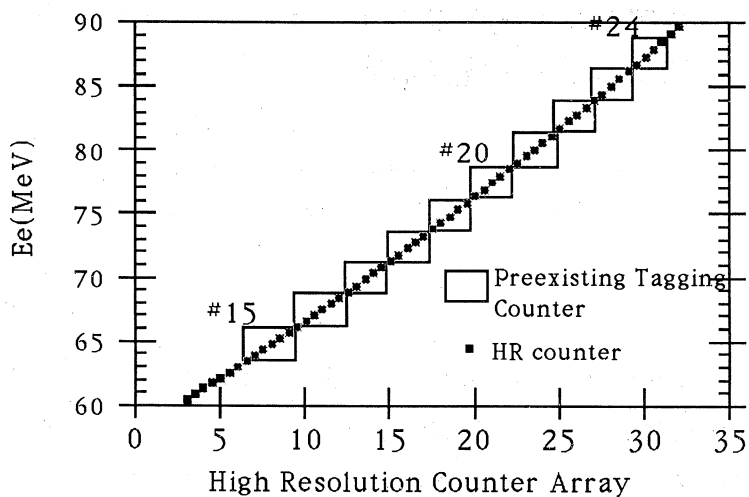


Fig. 5 The comparison of the HR counter with the tagging counter.  
 This shows the improvement of a resolution by a factor of 4 at  $E_c=87.6$  MeV ( $E_\gamma=42.2$  MeV) and a factor of 6 at  $E_c=64.2$  MeV ( $E_\gamma=65.6$  MeV).

about  $1.5 \times 10^5$  (counts/sec), whereas in the new system one photomultiplier tube must work under  $7.5 \times 10^5$  (counts/sec). In our system, the tagging channel is defined by taking coincidence between overlapping plastic scintillators. High counting rate cause accidental coincidences between these counters, which lower the energy resolution.

## コアモニタとデジタル・オシロスコープ によるビーム電流測定

核理研, サイクロRIセンター\*

榎本和義・柴崎義信・山寺 亮\*

### § 1. 序

加速器を利用する核化学やラジオアイソトープ製造研究においては、原子核物理の実験と同様に加速粒子の粒子束密度の測定が不可欠の場合が多々ある。その粒子束密度、すなわち電流値を測定するにはファラデーカップによる直接測定法が最も正確である。粒子の飛程に対し薄いターゲットを使用する場合はターゲット後方にファラデーカップを置くことができ、逆に非常に厚いターゲットではそれ自体がファラデーカップになる場合もある。しかし、高エネルギー電子線のように飛程が長く、制動放射線が発生するような場合にはファラデーカップは大掛かりなものとなる。そこで、本施設の原子核実験ではターゲット後方にあらかじめ校正した電離箱を設置し、電流値をモニターとしている。しかし、厚いターゲットによる実験ではこの方式を採用することはできない。このような場合、非接触型のコアモニタにより誘導電流を測定する電流プローブ方式が利用できる。実験室のビームダクトにコアを取付け、パルスビームが通過する際にコアの二次側コイルに誘導されるパルス波形を制御室のオシロスコープで観測する。定量的に測定するには誘導電流を整流器で整流し、デジタル・カレント・インテグレータでデジタル化し、カウンターを使って計数する。RI実験では低い電流から百数十マイクロアンペアまでの広いダイナミックレンジで測定することが必要である。しかし、これまでの測定方式で数十マイクロアンペア以下の平均電流を測定する場合、著しく計数が減少するとともに、計数と電流値に直線関係が得られず測定が難しかった。原子核実験グループでは低い電流を直線性良く測定するため、コアのコイルの巻数を少なくするとともにコアの直後に増幅器を入れて増幅したうえでシグナルを制御室に運んでいる。RI実験でもこの方式を採用したが、照射設備周辺の放射線レベルが非常に高く、増幅器は放射線損傷により直ちに使用不可能となった。また、ダイナミック・レンジを拡げることもできなかった。

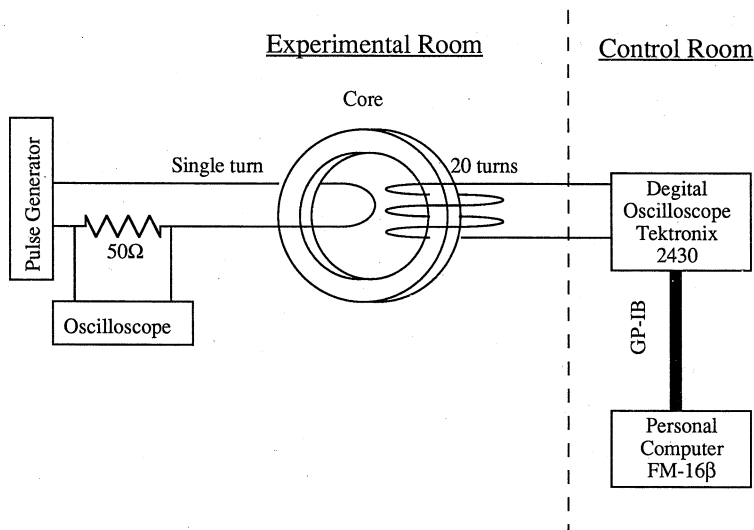
そこで、このような電気回路による計数方式に換え、デジタル・オシロスコープのパルス波形をそのまま数値積分し電流値に換算する方式を検討した。この方式はコアとオシロスコープおよびパーソナルコンピュータのみで電流測定が行え、従来より使用されてきた増幅器、整流

器、デジタイザー、カウンターを必要としないためメンテナンスは容易になる。

以下に、校正方法、測定データ処理について述べる。

## § 2. 校正方法

コアモニターの校正方法を第1図に示した。



第1図 コアモニター出力パルスの校正方法。

電子ライナックの加速電子と同じ条件で校正するため、パルスジェネレーターから幅2または3  $\mu$  secの矩形波を300ppsで発生させ、シングルターンでコアに通す。その際のパルス波高はオシロスコープでモニターしながら0.3~10Vまで変化させる。コアの二次側コイルの巻数は20とした。コアのコイルからの誘導パルスは制御室のテクトロニクス製2430型デジタルオシロスコープで測定する。オシロスコープ上の波形データはGP-IBインターフェイスを介して富士通パーソナルコンピュータFM-16 $\beta$ にDMA転送し、パルスの立ち上がり、立ち下がり自動検出し、ベースラインにより正の部分を積分する。データは各チャンネル毎に1バイトのバイナリ・コードとして、合計1024チャンネル分DMAモードで受信する。同時に入力感度(mV/div)、掃引速度( $\mu$  sec/div)のデータも取り込み、面積を規格化する。取り込んだパルス波形はその積分値とともにディスプレイに表示するとともに、その積分範囲はオシロスコープ上にカーソルで表示させる。これらのデータ処理は数秒以内で終了する。この部分のサブプログラムのリストを第2図に示した。使用言語はFBASIC-HGである。波形のプロット

```

subpgm
parm AD$,MSEG,WAF(),ST,SP           'AD$=adress,WAF()=wave form data
WAD$="WRT "+AD$+";"                'ST=integral start ch.SP=stop ch.
RED$="RED "+AD$+";"+STRING$(30,20)
*START
  gosub *PARM.READ                   'read parameter
  gosub *GPIB.TFI                     'read wave form data
  gosub *PLOT                          'display data
  gosub *AREA                          'calculate area
input "OK";Y$
if Y$="N" or Y$="n" then *START
returns
*PARM.READ
  cls
  print "SAMPLING TIME = ";time$
  TEKDATA$="CH1? VOL":gosub *GPIB.READ
  VOL=A*1000:print "CH1 = ";VOL;" mV/div
  TEKDATA$="HOR? ASE":gosub *GPIB.READ
  SWEEP=A*1E+06:print "Horizontal Sweep = ";SWEEP;" usec/div"
return
*GPIB.READ
  gosub *GPIB.SEND
  G$=usr0(RED$)
  STI=instr(G$,";")+1
  A=val(mid$(G$,STI))
return
*GPIB.SEND
  G$=WAD$+TEKDATA$:G$=usr0(G$)
return
*GPIB.TFI
  TEKDATA$="CURV?":gosub *GPIB.SEND
  G$="TFI "+ad$+";"&H17FF,&H800,&H"+hex$(MSEG):G$=usr0(G$)
  ADR=&h800+10
  for I=0 to 1023
    WAF(I)=peek(ADR+I)
  next I
return
*PLOT
  if FLAME=1 then *LINE
  FLAME=1
  loads "TEK-FL1":calls "TEK-FL1":deletes "TEK-FL1"
*LINE
  calls "TEK-PL1",WAF()
return
*AREA
  calls "TEK-AREA",AD$,WAF(),VOL,SWEEP,ST,SP
return

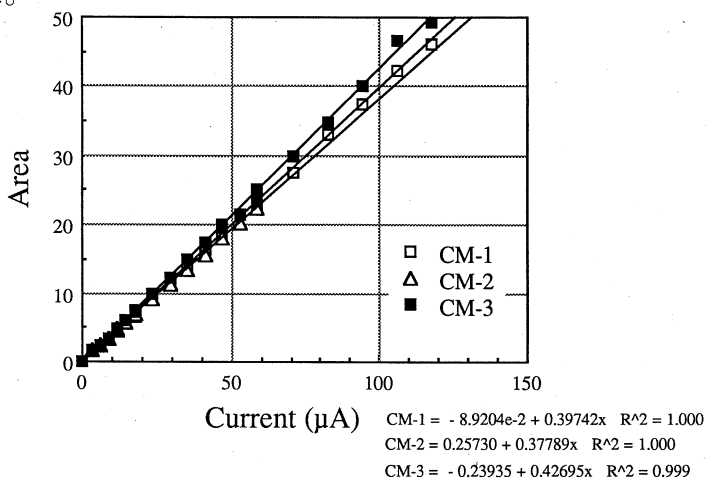
```

第2図 波形取込み用サブプログラム。

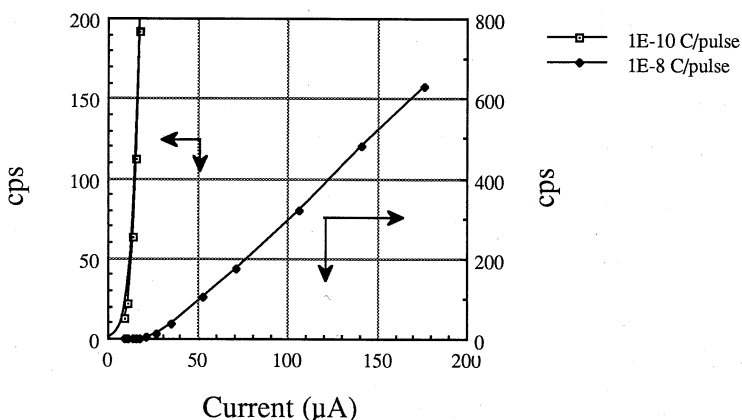
や積分計算はさらにサブプログラムをコールして行っている。

得られたパルス波形の積分値による平均電流の校正曲線の例を第3図に示した。コアによってその勾配には若干の固体差はあるが、いずれも数 $\mu\text{A}$ から百数十 $\mu\text{A}$ までの相関係数0.999以上の直線関係が得られることが分かった。

比較のため、従来の方式による校正曲線を第4図に示した。デジタル・カレント・インテグレータの $10^{-8}$ クーロン/パルスのレンジの測定では、 $35\mu\text{A}$ 以上で電流に対し計数は直線的に増加している。しかし、 $20\mu\text{A}$ 以下では計数が少なくなりこのレンジでの測定が難しかった。100倍に拡大し $10^{-10}$ のレンジで測定したところ、この領域では電流に対し計数は指数関数的に増加していることが分かった。このため、全領域を測定するには2種の校正関数を用いなければならなかった。



第3図 パルス波形積分法による平均電流校正曲線。



第4図 従来計数方式による平均電流校正曲線。

### § 3. 電流測定

上記の電流校正プログラムはそのまま電流測定にも利用できる。しかしながら、実際の加速電子ビームのパルス波形は理想的な矩形波とはならないため、測定には幾つかの工夫が必要である。

ひとつは300ppsのパルスの中には波形の異なるものが混在しているため、1パルスだけのデータをとったのでは平均電流の計算が不正確になる。このため8ないし16パルスをアベレーシングしたうえで取り込むことにした。さらに、15秒毎に1回電流値を記録することにしたため、その間に3回同様のデータ取り込みと処理を繰り返しその平均値をとることにした。

次に、取り込んだパルス波形の積分のスタートとストップチャンネルの判断をどうするかという問題がある。そこで、例えば、スタートの判定は“そのチャンネルおよび次のチャンネルのデータが同時にベースラインを越えるとともに、そのひとつ前のチャンネルの計数値とその標準偏差（平方根）にあるファクターを掛けた値の和を越えたとき”とした。しかし、あらゆる波形に対応した判定を行うには次第にプログラムが複雑になり、データ処理速度を遅くすることになる。そこで、現在は実験者がオシロスコープに表示される波形を見てスタートとストップの位置にカーソルを移動させ積分領域を指定できるようにし、計算機側はそのカーソルの位置を波形データと同時に読み込み積分計算するようにした。このようにすれば、積分領域を判定する必要がなくプログラムは簡単になる。DMA転送後必要なチャンネルのみ積算するだけであるためデータ処理時間も短縮できる。

また、実験者はパルスを観測しやすくするために入力感度や掃引速度を変える場合があることから、これらのデータも常に取り込むようにした。取り込みデータは1バイト/1チャンネルで1000チャンネル分と少ないため、パルス波形がオシロスコープのCRT上に大きく表示されるように入力感度、掃引速度を設定したほうが面積計数が増え、より精度の良い測定ができることになる。

現在、加速器の立ち上げ時はパルスの繰り返し数を落として行われている。しかし、本システムではパルスの繰り返しはモニターできないため、すべて300pps換算の値として計算している。

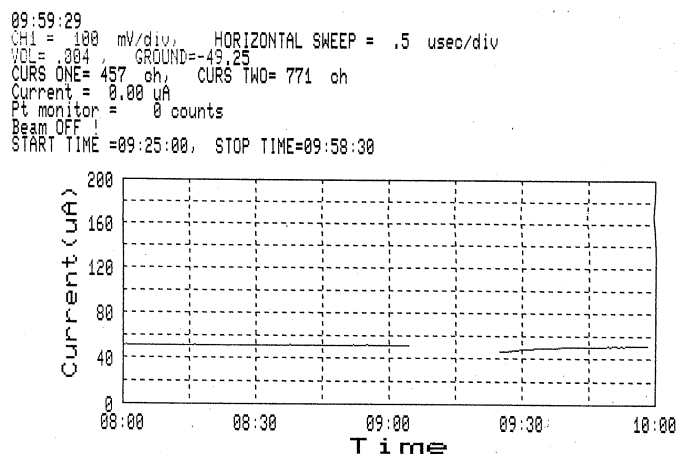
### § 4. 測定データの表示と記録

測定データは計算機の画面上に15秒毎にプロットされ、2時間分の経時変化が表示される。RIコースではビームが正しく試料に照射されるのをモニターするためPtモニターを設置して

いる。Ptモニターに流れる電流はデジタイザ，カウンターで計数し，15秒おきにGP-IBを介して計算機に取り込まれ，画面上にプロットされる。表示画面の例を第5図に示した。画面にはグラフとともに，その時点でのオシロスコープの入力感度，掃引速度，積分のスタート，ストップ・チャンネル，電流値，Ptモニターの計数，現在時刻，最近のビームのON，OFFの時間が表示される。

2つのモニターの測定値は測定時間とともにシーケンシャル・ファイルとしてディスクに保存される。同時に，ビームのON，OFFの時間を記録したファイルも作成される。15秒おきにデータを取り込みON，OFFの判定を行うことになるため，実際の時間との誤差は最大で15秒となる。

データはMS-DOSフォーマットのディスクにアスキー・データとして書かれているため，容易に市販の表計算ソフト，エディタまたは簡単なプログラムで読むことができる。



第5図 ビームの平均電流モニター画面例。

## § 5. まとめ

コアモニターによる電流測定法としてオシロスコープで得られる波形の数値積分を行う方法を試みた結果，数マイクロアンペアから数百マイクロアンペアにわたって直線性良く電流を測定することができることが確かめられた。本方式では高線量率となる照射装置周辺に放射線損傷を受けやすい電気回路を一切置く必要がないという利点がある。また，プログラム作成によって実験で必要とされるデータの計算処理，表示，保存などが自在になるという利点もある。しかし，今後の普及にはデジタル・オシロスコープの低価格化が不可欠といえよう。

## A new networked automatic measurement system for radiochemical study in the Laboratory of Nuclear Science

Kazuyoshi Masumoto, Shin-Ichi Ushino<sup>†</sup>,  
Masakatsu Mutoh, Takeyoshi Yoshida<sup>††</sup>, Masuo Yagi<sup>†††</sup>

*Laboratory of Nuclear Science, Faculty of Science,  
Tohoku University, Mikamine, Taihaku-ku, Sendai 982*  
<sup>†</sup> *Department of Material Engineering, Faculty of Technology,  
Tohoku University, Aramaki Aoba, Aoba-ku, Sendai 980*  
<sup>††</sup> *College of General Education, Tohoku University,  
Kawauchi, Aoba-ku, Sendai 980*  
<sup>†††</sup> *Institute of Materials Research, Tohoku University,  
Katahira, Aoba-ku, Sendai 980*

A flexible automation system which is applicable to various modes of radioactivity measurement has been developed. This system is composed of five units of robotic measurement system, a free workstation for program development and a server with 60-MB hard-disk in which programs, nuclear data and status information of each workstation are stored. These units are networked through Ethernet-type PC-LAN. One unit consists of a small revolute type robot, a 16-bit personal computer, a multichannel analyser or a counter/timer connected with GP-IB. All measurement programs are executed by menu-driven system using a mouse as a pointing device. This system enables all users to measure various types of samples continuously and to analyse the data very easily.

### § 1. Introduction

Radioactivity measurement detecting  $\gamma$ -, X- or  $\beta$ -rays has been one of the most tiresome works for almost all of radiochemists, because they are forced to measure various forms of samples under the complex conditions night and day. Especially in activation analysis, radioactivity from many samples and comparative standards must be



monitored continuously and large quantity of data must be processed. Several automation systems on the market are for the limited purpose and very expensive. Additionally many systems for radioactivity measurement based on micro or minicomputer has been mainly devoted to improve the efficiency and quality of data processing so far. In order to solve above problems and to satisfy much of the radiochemical requirements, an automatic measurement system using a small revolute type robot for sample changing was first developed in the spring of 1984<sup>1,2)</sup>. Since the introduction of this small robot, the automation system in our laboratory has been rapidly improved and extended with the innovation of computer technology<sup>3,4,5)</sup>. The history of the automatic measurement system is given in Table 1. The original system was controlled by the 8-bit personal computer with 32 kB RAM, 256 kB Tape-cartridge which had been used as MCA controller since 1981. In 1985, three sets of the 16-bit personal computer with 1 MB RAM and two units of 1 MB floppy-disk drive were introduced in order to improve the ability of data processing. Although the updating of software has become one of the most troublesome work, because various versions of programs have been developed for several types of MCAs, sample holders and modes of measurement. Therefore a network system has been introduced in 1988 as indispensable one for the easy maintenance of software. This paper outlines the flexible

Table 1. Histry of the automatic measurement system.

1984, 3	NAIG MCA, RM-101 Robot and HP-85 (8 bit CPU, 32kB RAM) system start.
1984, 5	Counter system starts.
1984, 10	New MCA (Canberra S35+) is added.
1985, 3	FM-16 $\beta$ (16bit 80186CPU, 1 MB RAM, OS ; CP/M 86) is introduced.
1985, 10	Canberra MCA S40, 2 set of FM-16 $\beta$ are introduced.
1986, 3	Total 4 sets (3 sets of MCA, 1 set of counter system) are completed.
1988, 3	DS-Link (MS-Network, OS ; MS-DOS) is introduced. (20MB HD Server + 4 Workstations)
1988, 10	1 set of MCA system, 2 sets of FM-R50 (80286 CPU) are introduced. (6 Workstations)
1990, 8	Network cable is extended to Machine Control Room and Radiation Safety Control Room. (3 $\times$ 20 MB HD Server + 8 Workstations)
1991, 7	Information service via university network (TAINS) starts.

laboratory automation system for radiochemical study in the Laboratory of Nuclear Science.

## §2. General consideration

Following things are considered for the development of a new system. Those are, 1) a short term of development, 2) an applicability of the existing hardware and software, 3) an easy maintenance, 4) an improvement of convenience and reliability, and 5) a correspondence of a future development.

## §3. System overview

### 3.1 Hardware

The layout of the LAN system is shown in Fig. 1. This system is composed of five units of the automatic equipment and one workstation for data processing and program development. All workstations (16-bit personal computer) are connected to a file server with three 20MB hard-disk units through the DS-Link (Fujitsu). This network is based on the IEEE 802.3 LAN (Ethernet) using a coaxial cable with the transmission speed of 10 Mbps. A 100 m of coaxial cable was also extended to the LINAC machine control room and the radiation safety control room and connected to each workstation.

One unit consists of a personal computer ; FM-16  $\beta$  or FM-R50 (Fujitsu), a robot ;

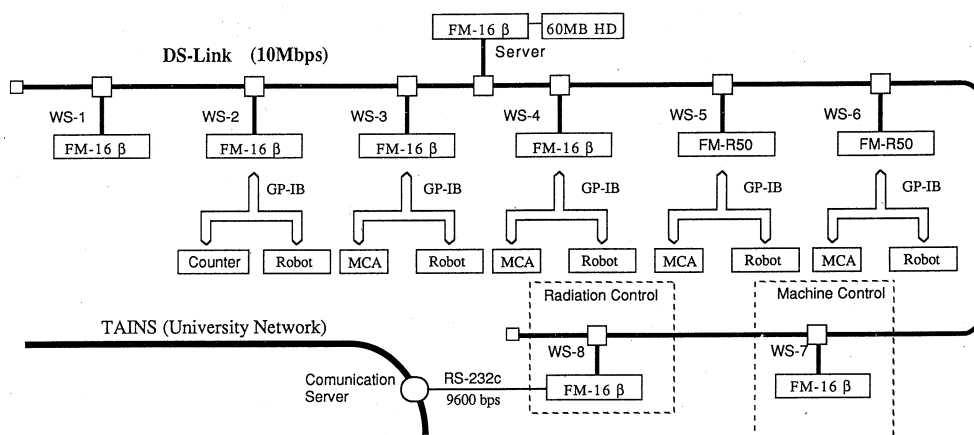


Fig. 1. Layout of the network system.

Movemaster RM-101 (Mitsubishi Electric) or PZ-AR 1 (Taiheiyo Kogyo) and a multi-channel analyser ; E-series (Toshiba), Series-40, 35+ (Canberra) or a E-541 dual counter/timer (Toshiba). The robot and the analyser are controlled by the personal computer via GP-IB interface. For robot control, an adaptor of UIO-488C (MCI engineering) is used for interface exchanger between Centronics and GP-IB. All sample storage racks were hand-maded. As an example, Fig. 2 shows a photo of one unit.

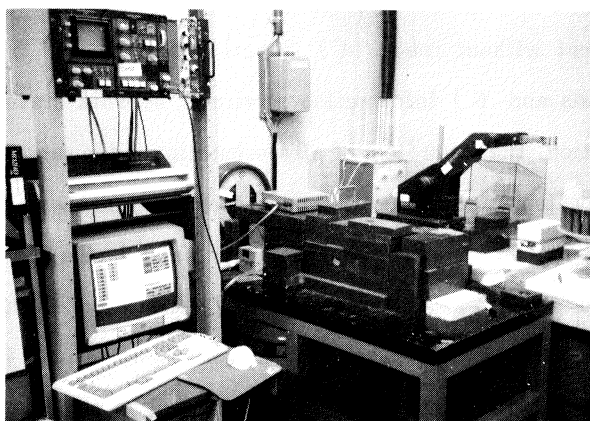


Fig. 2. Photograph of a robotic measurement unit.

## 3.2 Software

### 3.2.1 Language and utility

Network system was driven with the software of MS-networks (Microsoft), DS-Link driver and CPMGR (Fujitsu) on MS-DOS v3.1 (Microsoft). On this network environment, the hard-disk of the server is equally available from each workstation. All programs for robot teaching, data acquisition and analysis were stored in the hard-disk of the server. Those programs were written with a BASIC language (FBASIC-HG) for easy understanding for various users. The FBASIC-HG supports subprogram system for saving memory and constructing a program functionally. A set of GP-IB board and its control software which supports DMA transfer mode, service request and is available on FBASIC-HG was purchased from Ratoc System.

### 3.2.2 Construction of program and file management

When a workstation starts up, a system clock of workstation is setted by the server's clock and many useful subprograms for control and data processing are tranferred from the server to RAM disk after loading FBASIC-HG. As the control of different MCA need different subprograms, the instrumental information stored as "IN. dat" in the system disk is used as a parameter in each program.

A menu driven system has been adopted for easy instruction. In the bigining, a list of program which is consist of 1 ) Robot teaching, 2 ) Simple remote measurement, 3 ) Routine measurement without robot, 4 ) Robotic measurement, 5 ) Qualitative and quantitative analysis and 6 ) Information service of network status is shown on the display of workstation. The menu item of all workstation is the same. When the position of appropriate menu item is pointed with mouse, each program starts.

In the case of above measurement programs 2, 3 and 4, the conditions of measurement and the method of data processing can be easily defined and/or modified by selecting a region of the displayed control panel with mouse. Figure 3 and 4 show the graphic display of program 2 and 3 respectively. The setting way of the measurement condition is the same for the different multichannel analysers. The data of spectrum and acquisition

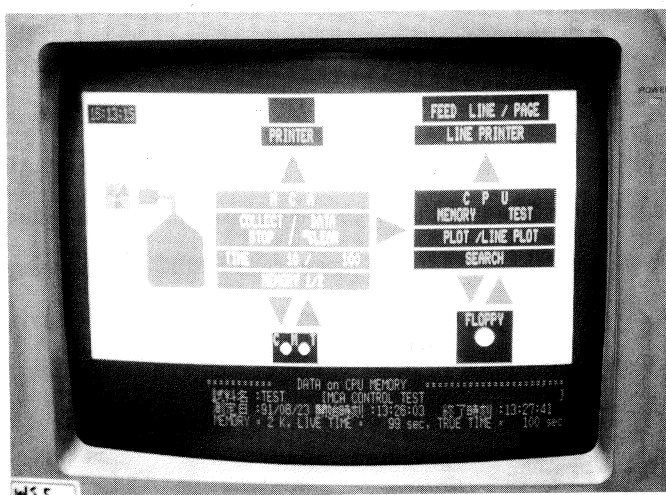


Fig. 3. Photograph of a remote control display for simple measurement.



Fig. 4. Photograph of a remote control display for continuous measurement.

condition are stored on the second floppy-disk drive. The data file is managed with the name of "MMDD" + 4 characters of sample name + ".DAT". "MMDD" is automatically added as the date of measurement (month and day) in order to avoid the duplicate file name.

In the case of qualitative analysis, programs for 1) Automatic spectrum search, 2) Specific peak analysis, 3) Decay correction, 4) Correction of spectrum overlapping and 5) Sequential run of above procedures for specified nuclides in the specified spectra files are provided. Addition to the above program, some utility programs for 1) Creation and correction of experimental record, 2) Creation and correction of nuclide file and so on are also provided. The results of spectrum analysis and experimental record are stored on the first floppy-disk drive, where is usually put the system disk. The record of analytical sequence is managed with "ANAL" + 2 characters of experimental code + 2 characters of measurement code and the analytical result is also managed by adding "AREA" in the file name as above. The experimental record file is distinguished by "EXP" + 2 characters of experimental code.

If you want to execute quantitative analysis after qualitative analysis, 1) two kinds of comparative method, 2) two kinds of stable isotope dilution method, 3) two kinds

of internal standard method are supported.

As the information service, a time schedule of measurement, the execution records of measurements are provided. The same informations are available at the every campus of Tohoku University via university information network called TAINS, because the workstation in the radiation safety control room plays as the host of an electric bulletin board system and can send a specified information through a communication server.

## § 4. System performance

### 4.1 Hardware

#### 4.1.1 Robot system

This small robot has a suitable size for laboratory use. Various types of samples such as disk, foil, filter paper and test tube can be measured after teaching robot only for about half an hour. A turntable method is applied to the measurement of a test tube containing liquid and a small filter paper. A vertical gravity-feed type holder is used for a pellet or foil fixed in a sample vial or a filter paper fixed in a Petri dish. Sample is holded in the robot hand during measurement. As the movement speed of robot arm is setted the slowest level for safety, it takes 2 minutes for changing. In the case of long acquisition time, it is more important to measure night and day than to reduce the time for data processing and sample changing. One robot has been able to save 250 man-days in a year.

#### 4.1.2 Network system

Though a DS-Link card is slightly expensive (100,000 yen) compared with a cost of a hard-disk, the merit of common ownership of hard-disk is the most attractive feature of network even in a system composed of a small number of workstation. Because many latest programs or data are available everywhere without any floppy-disks. An access time to server's hard-disk is faster than that of a workstation's floppy-disk. Although, when the server causes some trouble, all workstations cannot work. In order to avoid the above risk, all indispensable programs are transferred to the workstation's RAM-disk before starting a measurement cycle. Of course, all programs are duplicated in another hard-disk unit. If one part of the instrument has some trouble, measurement can be continued by substituting the part from a spare or another unit of measurement. As spare

instruments, one MCA and one robot are currently reserved.

## 4.2 Software

### 4.2.1 Subprogram system

The design of the architecture is the most important step of the creation of program. In order to make the best use of subprogram system, each part of MCA and robot control, I/O, graphic and data treatment was divided into subprogram with a few kB size and main program could be reduced to a small size, which was constructed by the combination of subprogram callings. Of course, one subprogram can call the other subprogram in the depth of fifteen layers. The head of subprogram name for MCA control is added "NAIG-" for Toshiba (old name was NAIG) or "CAN" for Canberra according to the instrument. Each workstation connected to NAIG or Canberra MCA can call the pertinent subprogram automatically according to the "IN. dat" recorded on the system disk. These subprograms are for 1) "collect start", 2) "collect stop", 3) "clear data", 4) "preset memory usage", 5) "preset counting time", 6) "data transfer" and so on. A subprogram commonly used in all program or subprogram is named "COM-xxxx". These subprograms are for 1) spectrum plot", 2) "peak search", 3) "store data", 4) "read data" and so on.

According to the two couples of system, "FM-16  $\beta$  and Canberra-MCA" and "FM-R50 and NAIG-MCA", there are two kinds of small main program such as "xxxx-MH", "xxxx-CH" and "xxxx-AH" corresponding to simple remote measurement, routine measurement without robot, robotic measurement respectively ("xxxx"="CAN" or "NAIG"). Because the system software (GPBIOS) for GP-IB handling of FM-16  $\beta$  is slightly different from that of FM-R50. Then, two kinds of main program call the same subprogram for control panel display. Although it is unnecessary for users to distinguish which type of personal computer or MCA is connected.

When one subprogram is improved, all programs using this subprogram change into a new version simultaneously and instantaneously. Therefore, all users on each workstation are always available the newest version of program provided from the server.

### 4.2.2 Development time

Although the 16-bit machine using MS-DOS is a "Single task/Single window" machine, one workstation can be used for the development of a program and another workstation

connected to various instruments can be used for checking the performance of their program simultaneously by using this network environment. Therefore, the subprogram system and the network environment lead the reduction of the period of development and/or improvement.

## §5. Conclusion

Since 1984, not only a radiochemist but also a biologist, a geologist or an engineer has been used our system, and many reports have been published in the field of analytical chemistry, radiochemistry, geology, biology, solid-state physics and environmental science. A network environment has expanded the ability of a single personal computer, especially in development or maintenance of program, data processing and transmission of information.

Now, today's spectrometer system costs about 3,000,000 yen without detector on the average. About 10% of additional payment make possible to establish the automation system. Therefore, six sets of these units have been introduced into Cyclotron Radioisotope Center, Institute for Materials Research, Department of Chemistry in Tohoku University. Of course, a different type of personal computer, MCA, sample rack or interface has been incorporated in these systems.

The characteristics of this system are the flexibility for extension and exchange of unit, the ease of handling and maintenance, and the inexpensiveness. Therefore the network system will be improved continuously according to the advancement of hardware and software. In this two years, the network environments, such as a 32-bit CPU, a multi-task OS and network software have been improved rapidly. It will be expected that an position encoder should be installed in a small robot in order to improve the reliability of robot movement.

It is the future goal of this system in our laboratory to realize the fully automatic continuous operation, which contains the sample preparation, the irradiation, the measurement and the data analysis. The expert system for activation analysis will be also constructed in the course of the above development.



### Acknowledgment

The author wish to thank Mr. Y. Shibasaki for devising the clock control utility in the network system, and Miss A. Odashima for making the electric bulletin board system.

### References

- 1) M. Yagi, K. Masumoto, M. Mutoh : J. Radioanal. Nucl. Chem. **98** (1986) 31.
- 2) K. Masumoto, M. Mutoh, M. Yagi : Abst. 28th Symp. on Radiochemistry (Kobe, 1984), p. 263.
- 3) T. Yoshida, K. Masumoto, K-I. Aoki : J. Jpn. Assoc. Min. Pet. Econ. Geol. **81** (1986) 406.
- 4) K. Masumoto, M. Yagi : Abst. 30th Symp. on Radiochemistry (Sendai, 1986), p. 308.
- 5) K. Masumoto, M. Mutoh, M. Yagi : Abst. 32th Symp. on Radiochemistry (Tokai, 1988), p. 234.

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 研 究 報 告   第 2 4 卷   第 2 号

1991年12月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設  
         仙台市太白区三神峯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 24 Number 2 December 1991

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