

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 究 報 告

第 25 卷 第 2 号

1992 年 12 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

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

投 稿 規 定

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

仙台市太白区三神峯1-2-1 郵便番号 982

東北大学理学部原子核理学研究施設

「核理研研究報告」編集委員長

核理研研究報告 第25巻 第2号 目次

I 原子核物理

- I-1 エネルギー移行40MeVにおける $^{12}\text{C}(e, e'p)^{11}\text{B}$ 反応の研究…………… 145
(核理研, 教養部*)

田所孝弘, 高橋哲宗, 堀田智明, 田中英二, 玉江忠明,
菅原真澄, 宮瀬晴久*, 坪田博明*

- I-2 $^{10}\text{B}(e, p)$ 反応の研究…………… 160
(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 放射化学

- II-1 メタロセン結晶中およびメタロセン- β -シクロデキストリン包接体中の反跳原子の挙動…………… 165
(理学部化学)

松江秀明, 関根 勉, 吉原賢二

- II-2 ジ(2-エチルヘキシル)リン酸によるイットリウムと鉄の抽出分離…………… 171
(素材研)

秋葉健一, 橋本裕之

- II-3 The Internal Standard Method Coupled with the Standard Addition Method as a Powerful Tool for the Standardization of Environmental Materials by Activation Analysis…………… 177
(核理研)

榎本和義

- II-4 光量子放射化による高純度材料中のフッ素の分析(II)…………… 187
(三菱マテリアル中研, 核理研*)

桜井宏行, 竹谷 実, 佐山恭正, 榎本和義*, 大槻 勤*

- II-5 豚の肝臓および脾臓中の微量金属元素の光量子放射化分析…………… 195
(石巻専修大理工学部)

福島美智子, 坂田 隆

- II-6 東北本州弧, 高原火山噴出物の地球化学…………… 199
 (山形大理, 理学部地学*, 教養部地学**, 秋田大教育***)
 伴 雅雄, 山中孝之, 井上道則*, 吉田武義**, 林信太郎***
 青木謙一郎*
- II-7 中部日本, 乗鞍岳火山噴出物の地球化学…………… 227
 (教養部地学, 理学部地学*)
 石川賢一, 吉田武義, 青木謙一郎*,
- II-8 房総半島に発達する火山岩及び火砕岩類の化学組成とそのテクトニクス上の意義
 …………… 241
 (理学部地学, 教養部地学*)
 斎藤実篤, 吉田武義*, 青木謙一郎
- III 加速器・測定装置
- III-1 コヒーレント遷移放射によるサブミリ・ミリ波分光 …………… 257
 (科研, 工学部応用物理*, 核理研**)
 大阪俊明, 伊師君弘, 柴田行男, 高橋俊晴, 金井利喜
 荒井史隆, 木村真一, 蔦谷 勉, 池沢幹彦, 近藤泰洋*
 小山田正幸**, 浦澤茂一**, 中里俊晴**, 加藤龍好**
 庭野 智**, 吉岡正裕**
- III-2 コヒーレント遷移放射における発光長と強度の関係…………… 265
 (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, 井原泰介, 佐藤康彦, 蔦谷 勉, 大坂俊明,
 池沢幹彦, 近藤泰洋*, 加藤龍好**, 浦澤茂一**,
 中里俊晴**, 吉岡正裕**, 梅津陽一郎**, 小山田正幸**,
 山川達也**

Research Report of Laboratory of Nuclear Science
Volume 25, Number 2, December 1992
Contents

I Nuclear Physics	
I - 1	Study of $^{12}\text{C}(e, e' p)^{11}\text{B}$ Reactions at Energy Transfer of 40 MeV..... 145 Takahiro Tadokoro, Akimune Takahashi, Tomoaki Hotta, Eiji Tanaka, Tadaaki Tamae, Masumi Sugawara, Haruhisa Miyase and Hiroaki Tsubota
I - 2	Study of $^{10}\text{B}(e, p)$ Reactions 160 Hiroaki Ueno, Hiroshi Taneichi, Yoshio Takahashi and Katsufusa Shoda
II Radiochemistry	
II - 1	Chemical Behavior of Recoil Atoms in Metallocenes and in Metallocene - β -cyclodextrin Inclusion Compounds 165 Hideaki Matue, Tsutomu Sekine and Kenji Yoshihara
II - 2	Extraction Separation of Yttrium and Iron with di(2-ethylhexyl)phosphoric acid..... 171 Kenichi Akiba and Hiroyuki Hashimoto
II - 3	The Internal Standard Method Coupled with the Standard Addition Method as a Powerful Tool for the Standardization of Environmental Materials by Activation Analysis 177 Kazuyoshi Masumoto
II - 4	Determination of Fluorine in High Purity Materials by Photon Activation Analysis(II)..... 187 Hiroyuki Sakurai, Minoru Takeya, Yasumasa Sayama, Kazuyoshi Masumoto and Tsutomu Ohtsuki
II - 5	Photon Activation Analysis of Trace Elements in the Liver and Spleen of Pig 195 Michiko Fukushima and Takashi Sakata

II - 6	Geochemistry of the Rocks from Takahara Volcano, NE Honshu Arc.....	199
	Masao Man, Takayuki Yamanaka, Michinori Inoue, Takeyoshi Yoshida, Shintaro Hayashi and Ken-ichiro Aoki	
II - 7	Geochemistry of the Rock from Norikuradake Volcano, Central Japan	227
	Ken-ichi Ishikawa, Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki	
II - 8	Geochemistry and Tectonic Significance of Volcanic and Volcaniclastic Rocks in the Boso Peninsula, Central Japan	241
	Saneatsu Saito, Takeyoshi Yoshida and Ken-ichiro Aoki	
III Accelerator and Instrumentation		
III - 1	Spectroscopy by Coherent Transition Radiation in the Submillimeter and Millimeter Wavelength Region	257
	Toshiaki Ohsaka, Kimihiro Ishi, Yukio Shibata, Toshiharu Takahashi, Toshinobu Kanai, Fumitaka Arai, Shinichi Kimura, Tsutomu Tsutaya, Mikihiko Ikezawa, Yasuhiro Kondo, Masayuki Oyamada, Shigekazu Urasawa, Toshiharu Nakazato, Ryukou Kato, Satoshi Niwano and Masahiro Yoshioka	
III - 2	Relation between Emission Length and Intensity of Coherent Transition Radiation	265
	Toshiharu Takahashi, Yukio Shibata, Kimihiro Ishii, Toshinobu Kanai, Fumitaka Arai, Shin-ichi Kimura, Taisuke Ihara, Yasuhiko Sato, Tsutomu Tsutaya, Toshiaki Ohsaka, Mikihiko Ikezawa, Yasuhiro Kondo, Ryukou Kato, Shigekazu Urasawa, Toshiharu Nakazato, Masahiro Yoshioka, Youichirou Umetsu, Masayuki Oyamada and Tatsuya Yamakawa	

I. 原 子 核 物 理

エネルギー移行 40MeV における $^{12}\text{C}(e, e'p)^{11}\text{B}$ 反応の研究

核理研, 教養部*

田所孝広・高橋哲宗・堀田智明

田中英二・玉江忠明・菅原真澄

宮瀬晴久*・坪田博明*

§ 1. 序

移行エネルギーが、双極子巨大共鳴領域(中心 22.5MeV)より高く、移行運動量が、 (γ, p_0) 反応と準弾性散乱領域 $(e, e'p_0)$ 反応との中間的な領域 ($\omega=40\text{MeV}$, $q=0.3\sim 0.4\text{fm}^{-1}$) においては、 $(e, e'p_0)$ 反応は、陽子が集団運動状態を経てから放出される準直接反応と、陽子が直接放出される直接放出反応の両方の反応が寄与していると予想される。双極子巨大共鳴領域における $^{12}\text{C}(e, e'p_0)$ 反応は、J. R. Calarco *et al.*¹⁾ や N. Zimmermann *et al.*²⁾ によって測定されており、準弾性散乱領域における $^{12}\text{C}(e, e'p_0)$ 反応は、G. Van Der Steenhoven *et al.*³⁾ によって測定されているが、この領域における $(e, e'p_0)$ 反応は、 $^{16}\text{O}(e, e'p_0)$ 反応⁴⁾ と $^{58}\text{Ni}(e, e'p_0)$ 反応⁵⁾ のみである。

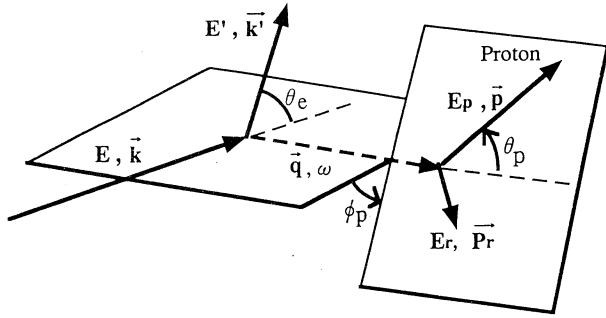
また、残留核 ^{11}B を 6.74MeV ($7/2^-$) 及び 6.79MeV ($1/2^+$) の励起状態に残す反応は、 (γ, p) 反応では非常に強いが⁶⁾、準弾性散乱領域 $(e, e'p_0)$ 反応においては、非常に弱いことが報告されている³⁾。その議論としては、 ^{12}C の基底状態における陽子の $1f_{7/2}$, $1s_{1/2}$, $2s_{1/2}$ 成分の直接放出反応及び two-step 反応、または中間子交換電流の寄与などがなされているが、いずれも決定的なものではない。

そこで、この中間領域において残留核を基底状態および各励起状態に残す $^{12}\text{C}(e, e'p)$ 反応における放出陽子の角分布の詳細を調べることは、非常に重要である。また今回の実験で、out of plane の測定を行なった。Out of plane の測定は、励起や崩壊に関する原子核の遷移電荷と電流成分の構造関数(縦-横構造関数)を測定することができ、励起や崩壊の微視的構造を明らかにするのに有効である。

ここでは、散乱断面積の導出が、完全には終わっていないので、詳しい議論は次回以降行なうことにし、簡単な報告に留める。

§ 2. 実験装置と実験条件

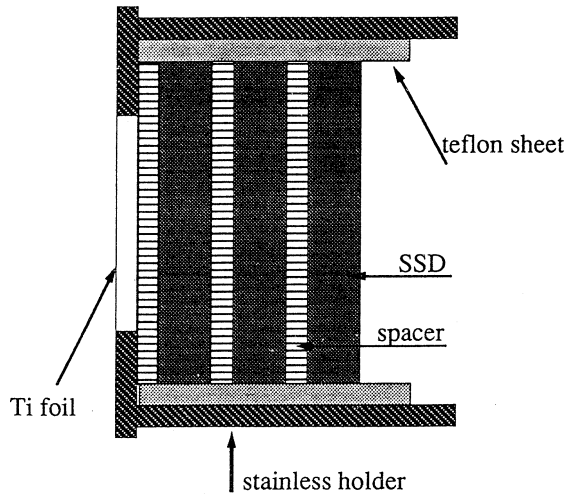
実験は、電子ライナック及びパルスビーム・ストレッチャー (SSTR) を用いて行ない、電子ビームの平均電流は、約 200nA であった。標的核によって散乱された電子は、大型電子スペクトロメータ (LDM) によって運動量分析され、焦点面上の垂直型ドリフトチェ



第1図 実験の運動学。

入射電子のエネルギーと運動量; E, \vec{k}
 散乱電子のエネルギーと運動量; E', \vec{k}'
 放出陽子のエネルギーと運動量; E_p, \vec{p}
 残留核エネルギーと運動量; E_r, \vec{p}_r
 移行運動量; \vec{q} 移行エネルギー; ω 電子散乱核; θ_e
 散乱平面と反応平面とのなす角; ϕ_p
 移行運動量と放出陽子とのなす角; θ_p

ンバー (VDC) 及び2層からなるプラスチックシンチレータによって検出した。標的核から放出された陽子は、3層に並べた半導体検出器 (SSD) からなる検出器によってエネルギー分析した。実験の運動学を第1図に、検出器の構成図を第2図に、実験条件を第1表に、検出器の配置及び構成を第2表に示す。



第2図 検出器の構成図。

3層に並べた半導体検出器 (SSD) からなる陽子検出器の構成図。

第1表 $^{12}\text{C} (e, e'p) ^{11}\text{B}$ 反応の実験条件。

入射電子エネルギー	E_i (MeV)	129 ± 0.26
電子散乱角	θ_e (deg)	30 ± 0.8
移行運動量	q (fm^{-1})	0.347 ± 0.04
移行エネルギー	ω (MeV)	40 ± 2.5
標的の厚さ	t (mg/cm^2)	18.5
残留核の励起エネルギー	E_x (MeV)	0~24

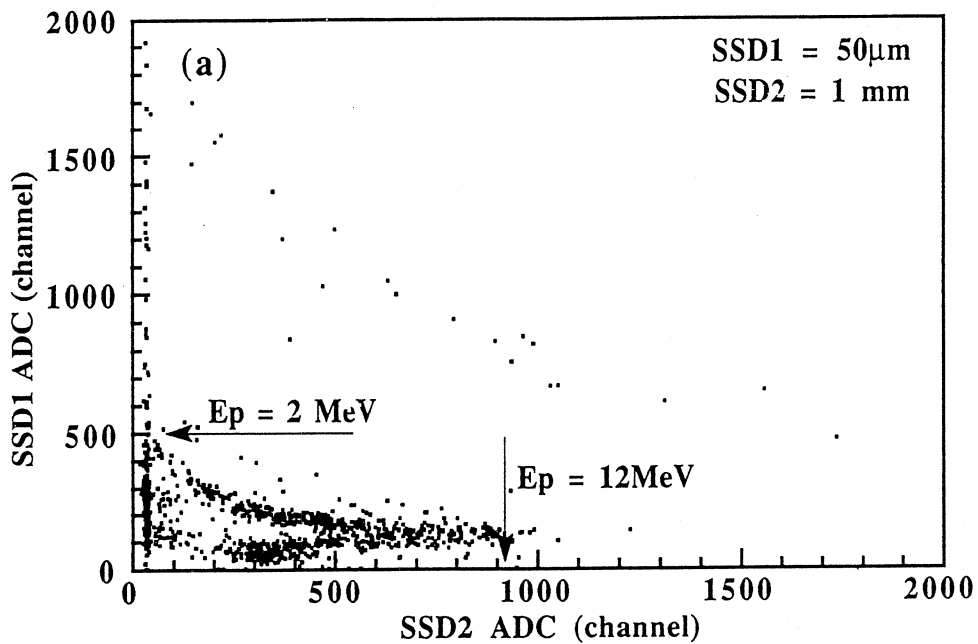
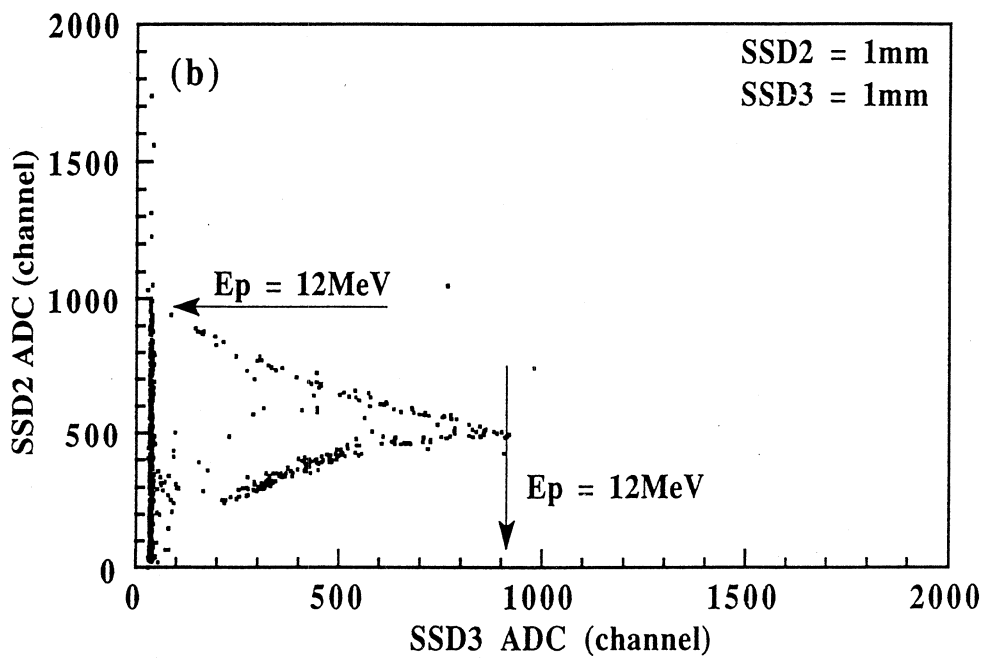
第2表 検出器の配置と構成。

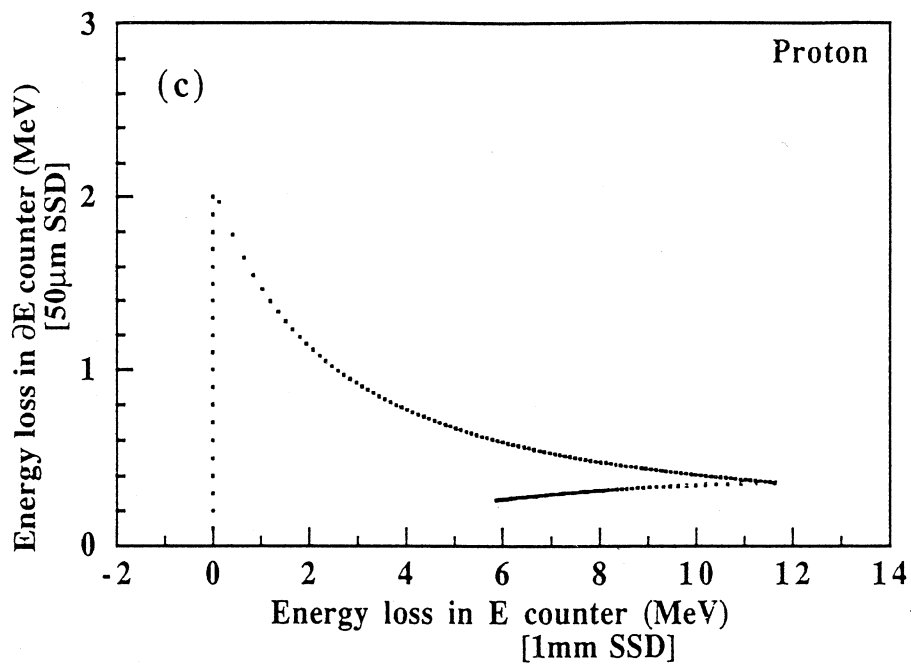
(θ_p, ϕ_p)	SSD 厚さ			立体角 (msr)
	1層目 (μm)	2層目 (mm)	3層目 (mm)	
($0^\circ, -$)	50	1	1	7.365
($7.5^\circ, -135^\circ$)	50	1	1	7.365
($15^\circ, -135^\circ$)	50	1	1	7.365
($22.5^\circ, -135^\circ$)	50	1	1	7.365
($30^\circ, -135^\circ$)	50	1	1	7.365
($37.5^\circ, -135^\circ$)	50	1	1	7.365
($60^\circ, -135^\circ$)	50	1	4	5.636
($90^\circ, -135^\circ$)	50	1	4	6.458
($120^\circ, -135^\circ$)	50	1	1	5.664
($120^\circ, -135^\circ$)	50	1	4	6.358
($150^\circ, -135^\circ$)	50	1	1	7.170
($180^\circ, -$)	50	1	1	9.623
($7.5^\circ, -45^\circ$)	50	1	1	7.597
($15^\circ, -45^\circ$)	50	1	1	7.365
($22.5^\circ, -45^\circ$)	50	1	1	7.459
($30^\circ, -45^\circ$)	50	1	1	7.365
($37.5^\circ, -45^\circ$)	50	1	1	7.377
($60^\circ, -45^\circ$)	50	1	1	5.636
($120^\circ, -45^\circ$)	50	1	1	5.697
($150^\circ, -45^\circ$)	50	1	4	7.204

§ 3. 角度分布

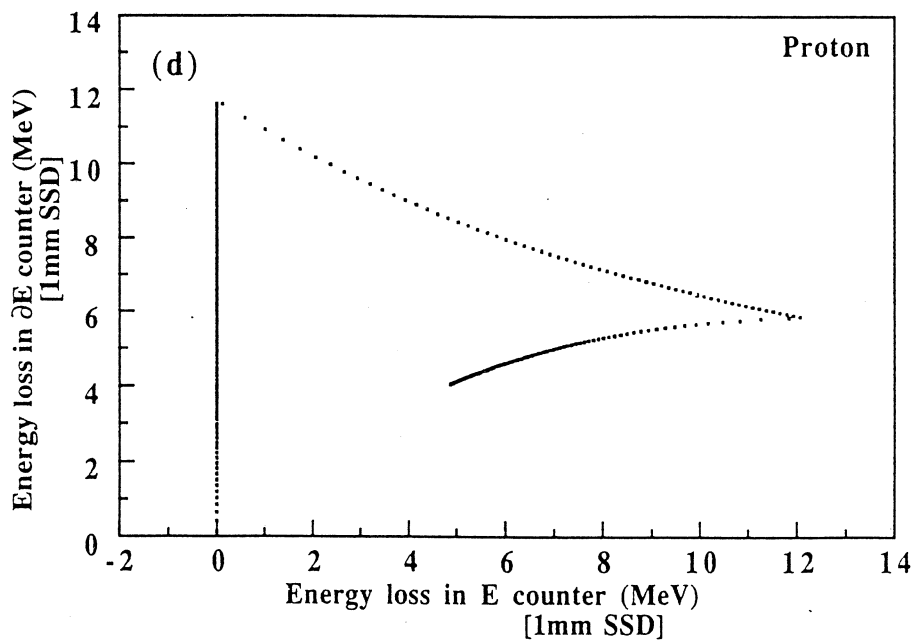
SSD エネルギー校正は、先ず実験前に α ソース (^{241}Am , $E_\alpha=5.49\text{MeV}$) で行なうが、実際の実験では散乱電子のバックグラウンドなどでゲタをはいたり出力波形が崩れたりして実験前のエネルギー校正とずれてしまうことがある。そこで、今回の解析では、実際のビームを用いて (e, p) シングルアームのデータを取り、 ΔE - E 法を用いて SSD のエネルギー校正を行なった。第3図に例として $(\theta_p, \phi_p)=(30^\circ, -135^\circ)$ におけるエネルギー校正の様子を示す。第3図 (a) は、1層目、2層目の SSD による ΔE - E プロットで、第3図 (b) は、2層目、3層目の SSD による ΔE - E プロットである。また、第3図 (c) は、 $50\mu\text{m}$ と 1mm の SSD によるエネルギー損失の計算値を、第3図 (d) は、 1mm と 1mm の SSD によるエネルギー損失の計算値をプロットしたものである。各 SSD のエネルギー校正は、この計算値とフィッティングすることによっておこなった。

このようにして校正した SSD から放出陽子運動エネルギーを求め、放出陽子の運動エネルギーから、Missing energy spectrum 導出する。Missing energy (E_m) は、移行エネルギー (ω)、放出陽子の運動エネルギー (E_p) および基底状態にある残留核の反跳エネルギー (E_r)

(a) 1層目、2層目のSSDによる ΔE - E プロット。(b) 2層目、3層目のSSDによる ΔE - E プロット。



(c) 50 μ m と 1 mm の SSD によるエネルギー損出の計算値。



(d) 1 mm と 1 mm の SSD によるエネルギー損出の計算値。

を用いて、次のように表せる。

$$E_m = \omega - E_p - E_r$$

第4図に $(\theta_p, \phi_p) = (7.5^\circ, -135^\circ), (60^\circ, -135^\circ), (180^\circ, -)$ における、陽子の Missing energy spectrum を示す。 $E_m = 16\text{MeV}$ におけるピークは、残留核を基底状態（スピン-パリティ $= 3/2^-$ ）に残すレベルであり、 $E_x = 2.1\text{MeV}, 5.0\text{MeV}$ 示してあるピークは、残留核のエネルギー、スピン-パリティを、 $2.10\text{MeV} (1/2^-), 5.02\text{MeV} (3/2^-)$ の各励起状態に残すレベルに対応している。 6.8MeV におけるピークは、 $6.74/6.79\text{MeV} (7/2^-, 1/2^+)$ に対応していて、 (γ, p) 反応においては強く現れるが⁶⁾、準弾性散乱領域 $(e, e'p)$ 反応においては、ほとんど現れていない³⁾。

^{12}C $(e, e'p)$ 散乱断面積は、弾性散乱のデータと比較することによって求めた。

弾性散乱の微分断面積は、一般に

$$\left. \frac{d\sigma}{d\Omega_e} \right)_{\text{ela}} = \sigma_M \times |F_0|$$

とかける。ここで σ_M は Mott 散乱断面積であり、 F_0 は形状因子である、入射電子エネルギー 129MeV 、電子散乱角度 60° における F_0 の値は、実験点をフィッティングして外挿したものを用い、 $F_0 = 0.624$ とした。弾性散乱の断面積を σ とすると、弾性散乱計数 N は、以下の式で与えられる。

$$N/D = \sigma \cdot \Delta\Omega_c \cdot N_t \cdot \eta$$

$\Delta\Omega_c$: スペクトロメータの立体角

N_t : 標的中の原子核の個数

D : 線量計 (SEM) で計った線量

η : 散乱電子系の効率

ここで、断面積 σ は、

$$\sigma = \left. \frac{d\sigma}{d\Omega_e} \right)_{\text{ela}} \cdot Z^2 \cdot K(\Delta E)$$

$$K(\Delta E) = e^{-\delta_S} \cdot e^{-\delta_B} \cdot (\omega - 1) / \omega$$

$e^{-\delta_S}$: Schwinger Correction

$e^{-\delta_B}$: Bremsstrahlung Correction

$(\omega - 1) / \omega$: Landau Straggling Correction

と表せ、入射電子エネルギー 129MeV 、電子散乱角度 60° 、 $\Delta E = 1.0\text{MeV}$ 、標的核厚さ 18.5mg/cm^2 においては、 $K(\Delta E) = 0.836$ である。

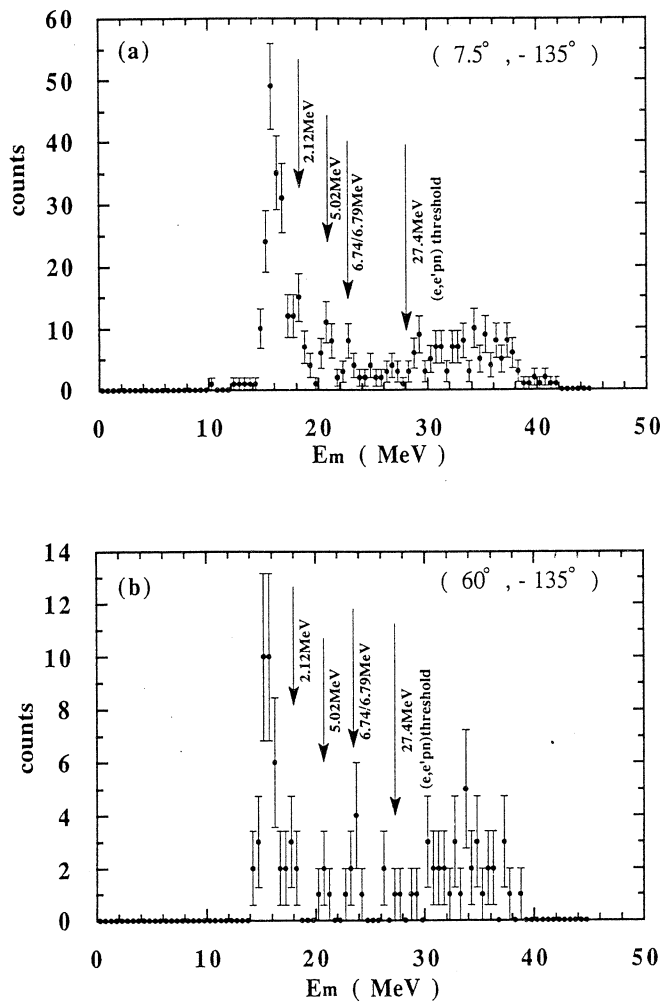
^{12}C $(e, e'p)$ 散乱断面積は、各 Missing energy 領域における陽子の個数 (counts) を数え

て、

$$\frac{d\sigma(e, e' p)}{d\Omega e' d\Omega_{pd} \omega} = \frac{\text{counts}}{\Delta\Omega_e \cdot Nt \cdot \eta \cdot D \cdot \Delta\omega \cdot \Delta\Omega_p}$$

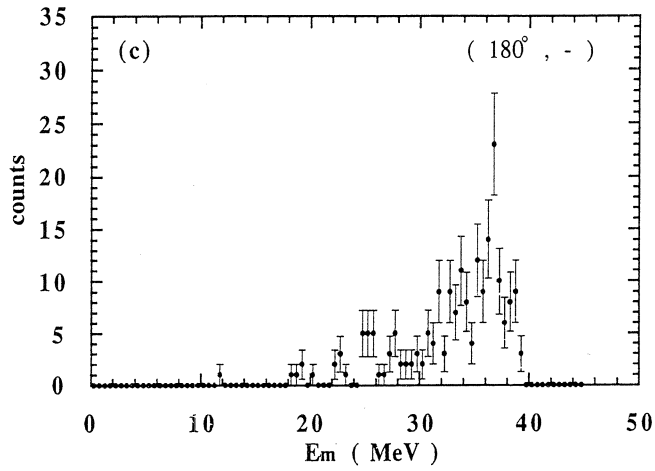
で求めた。ここで、 $\Delta\omega$ は移行エネルギーの幅であり、 $\Delta\Omega_p$ は陽子検出器の立体角である。

Missing energy spectrum で、13~19MeV, 22~24MeV, 30~35MeV に対応する領域における ^{12}C ($e, e' p$) 散乱断面積の角度分布を第5図に示す。13~19MeV は、残留核を基底状態及び2.12MeV 励起状態に残す反応を合わせた角度分布であり22~24MeV は、6.74/6.79MeV 励起状態に残す反応の角度分布である。



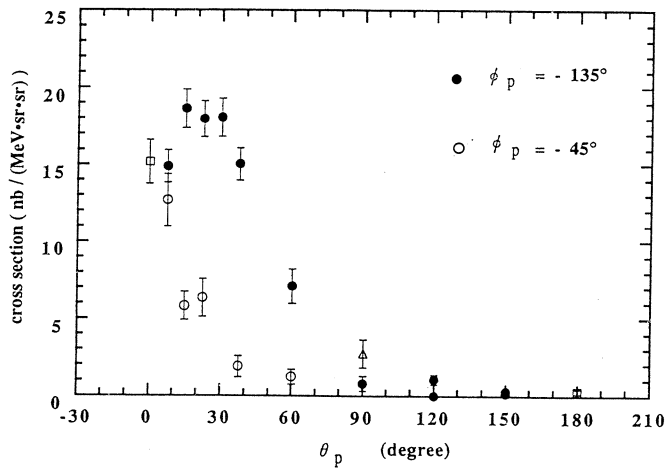
第4図 Missing energy spectrum.

$(\theta_p, \phi_p) = (7.5^\circ, -135^\circ), (60^\circ, -135^\circ), (180^\circ, -)$ における Missing energy spectrum.

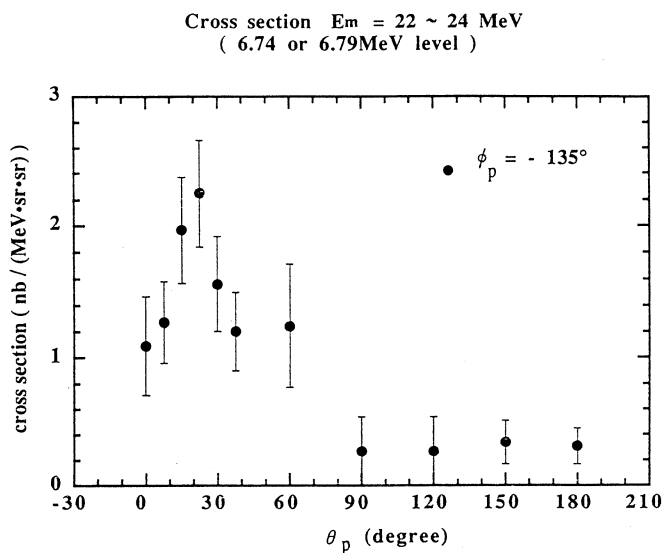
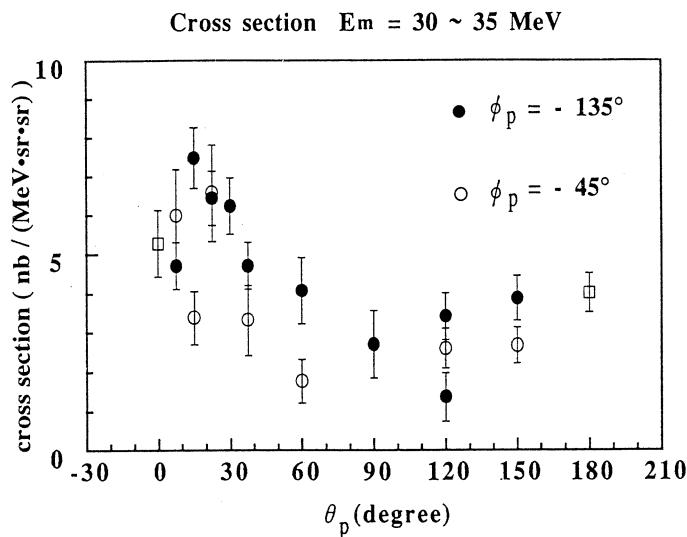


第4図 (続き)。

Cross section $E_m = 13 \sim 19$ MeV
(ground and 2.12MeV level)

第5図 ^{12}C ($e, e' p$) の角度分布。

上から、それぞれMissing energyが、13~19MeV (ground+2.12MeV), 22~24MeV (6.74/6.79MeV), 30~35MeV に対応する角度分布になっている。



第5図 (続き)。

§ 4. 考 察

同時計数実験の散乱断面積は、平面波ボルン近似によって次のように与えられる。

$$d\sigma = \sigma_M (V_L R_L + V_T R_T + V_{LT} R_{LT} \cos \phi_P + V_{TT} R_{TT} \cos 2 \phi_P)$$

ここで、 V_L 、 V_T 、 V_{LT} 、 V_{TT} は入射電子および散乱電子の条件で決まる運動学的係数で原子核構造の情報は含んでいない。原子核の励起、崩壊に関する情報はすべて構造関数 R の中に

含まれている。このうち R_L , R_T は電子散乱に既に現れていた頃でそれぞれ縦、横構造関数である。同時計数実験で新しく現れたのは R_{LT} , R_{TT} であり R_{LT} は縦-横構造関数の干渉項, R_{TT} は横-横構造関数の干渉項である。これらの干渉項は、励起に関する遷移電荷、電流成分の干渉の結果、それぞれの成分の微細な構造を浮き彫りにする。各構造関数は移行運動量 q , 陽子放出角 θ_p , 放出陽子のエネルギー E_p の関数であってルジャンドルの多項式、陪関数を使って次のように表せる。

$$\begin{aligned} R_L &= \sum_1 A_1 \cdot P_1(\cos \theta_p) \\ R_T &= \sum_1 B_1 \cdot P_1(\cos \theta_p) \\ R_{LT} &= \sum_1 C_1 \cdot P_1^1(\cos \theta_p) \\ R_{TT} &= \sum_1 D_1 \cdot P_1^2(\cos \theta_p) \end{aligned}$$

(1) $E_m = 13 \sim 19 \text{ MeV}$

W. E. Kleppinger and J. D. Walecka⁷⁾ の手法に従って準直接反応計算のフィッティングを行なった。W. E. Kleppinger and J. D. Walecka の手法によれば A_1 , B_1 , C_1 , D_1 は、

$$\begin{aligned} A_1 &= \sum_{JJ'LL'S} a_1(S;LJ;L'J') M_{JJ'}^{L'}(S;LL') \langle J \parallel \hat{M}_J \parallel 0 \rangle * \langle J' \parallel \hat{M}_J \parallel 0 \rangle \\ B_1 &= \frac{1}{2} \sum_{JJ'LL'S} b_1(S;LJ;L'J') M_{JJ'}^{L'}(S;LL') \langle J \parallel \hat{T}_J \parallel 0 \rangle * \langle J' \parallel \hat{T}_J \parallel 0 \rangle \\ C_1 &= \frac{1}{\sqrt{2}} \sum_{JJ'LL'S} c_1(S;LJ;L'J') \text{Re} M_{JJ'}^{L'}(S;LL') \langle J \parallel \hat{M}_J \parallel 0 \rangle * \langle J' \parallel \hat{M}_J \parallel 0 \rangle \\ D_1 &= \frac{1}{2} \sum_{JJ'LL'S} d_1(S;LJ;L'J') M_{JJ'}^{L'}(S;LL') \langle J \parallel \hat{T}_J \parallel 0 \rangle * \langle J' \parallel \hat{T}_J \parallel 0 \rangle \\ M_{JJ'}^{L'} &= 4q \xi \left(\frac{\pi W}{\xi M_1} \right) \frac{1}{2} (1 + (-1)^1 \pi_i \pi_j) \frac{1}{\sqrt{2J+1} \sqrt{2J'+1}} i^j (-i)^{j'} \langle LS \parallel J \rangle * \langle L'S \parallel J' \rangle \\ &\quad \times \frac{\left(\frac{\Gamma_j}{2\pi} \right)^{\frac{1}{2}}}{\omega - \omega_j - i \frac{\Gamma_j}{2}} \times \frac{\left(\frac{\Gamma_{j'}}{2\pi} \right)^{\frac{1}{2}}}{\omega - \omega_{j'} + i \frac{\Gamma_{j'}}{2}} \end{aligned}$$

と表すことができる。ここで表式を簡単にするために、

$$C(LS \parallel J) = (-i)^j \frac{\left(\frac{\Gamma_j}{2\pi} \right)^{\frac{1}{2}}}{\omega - \omega_j + i \frac{\Gamma_j}{2} \sqrt{2J+1}} \langle LS \parallel J \rangle \langle J \parallel \hat{M}_J \parallel 0 \rangle$$

$$T(LS|J) = (-i)^J \frac{\left(\frac{\Gamma_J}{2\pi}\right)^{\frac{1}{2}}}{\omega - \omega_J + i\frac{\Gamma_J}{2}\sqrt{2J+1}} \langle LS|J \rangle \langle J|\hat{T}_J|0 \rangle$$

$$P(JJ') = \frac{1}{2} (1 + (-1)^J \pi_J \pi_{J'})$$

$$CJ = \sum_{LS} \sqrt{(C(LS|J))^2} \quad , \quad TJ = \sum_{LS} \sqrt{(T(LS|J))^2}$$

と定義する。

フィッティングパラメータとして、 $C(LS|J)$ および $T(LS|J)$ をとった。

パラメータを制限するために、 $\Delta S = 0$ の励起及び崩壊のチャンネルのみが許され、かつ $J^\pi = 1^-$ と 2^+ 状態のみ励起されるという仮定を行ない、また基底状態における陽子は、 $1p_{3/2}$ にいたとしたときに取りえる $C(LS|J)$ および T 第3表 取りうるパラメータ。

$(LS|J)$ を第3表に示す。

フィッティングの結果を第6図 (a) に示す。またそのときのパラメータを用いて計算した運動学的係数と構造関数との積 $V_L R_L$, $V_T R_T$, $V_{LT} R_{LT}$, $V_{TT} R_{TT}$ の角度分布を第6図 (b) に示す。またパラメータの値を第4表に示す。

フィッティングの結果、 $T1/C1 \sim 0.5$ となった。

Goldhaber-Teller Model を仮定したときの $T1$ と $C1$ の比、

$$T1/C1 = -\sqrt{2} \times \frac{\omega}{q}$$

を計算した値は、 $T1/C1 = -0.83$ となっている。このことは、双極子巨大共鳴における高励起領域では、スピンアップ遷移が含まれる場合には携帯電流との干渉から $|T1|^2$ が減少し今回の移行運動量において Goldhaber-Teller Model を用いた計算値が実験値の約3倍になっている⁸⁾

ことを考慮にいれるとほぼ等しい値となっている。また、 $T1/C2 \sim -0.7$ となったが、ここで $T2$, $C2$ について Siegert の定理が成り立つと仮定したときの

$$T2/C2 = -\sqrt{\frac{3}{2}} \times \frac{\omega}{q}$$

の計算値 $T2/C2 = -0.72$ とほぼ等しい値となった。 $C2/C1$ の値は、 ~ 0.6 となった。

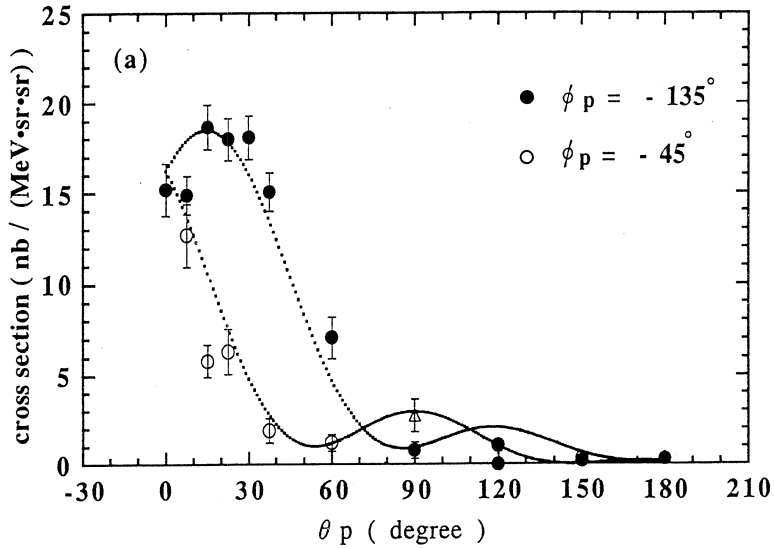
またフィッティングで求めた $C(LS|J)$ を、Goldhaber-Teller model 及び Siegert の定理を

	$S=1$
$J^\pi = 1^-$	$L=0,2$ ${}^3S_1 \quad {}^3D_1$
$J^\pi = 2^+$	$L=1,3$ ${}^3P_2 \quad {}^3F_2$

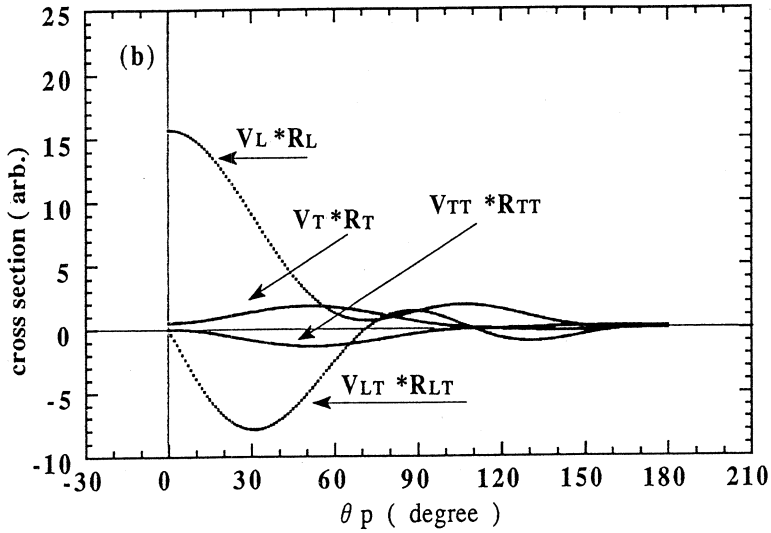
$C(LS|J)$, $T(LS|J)$ は、上の L, S, J の組である。

第4表 パラメータの値。

	$\times 10^{-3} (\text{MeV} \cdot \text{sr})^{-1/2}$
$C(01 1)$	-0.95
$C(21 1)$	4.7
$C(12 2)$	-0.71
$C(32 2)$	1.8
$T(01 1)$	0.46
$T(21 1)$	-2.3
$T(12 2)$	0.49
$T(32 2)$	-1.3



(a) $^{12}\text{C}(e, e'p)$ 反応において、残留核を基底状態に残すレベルにおける準直接過程計算によるフィッティング。



(b) (a) におけるパラメータを用いて、4つの構造関数に分けて角分布を計算したもの。

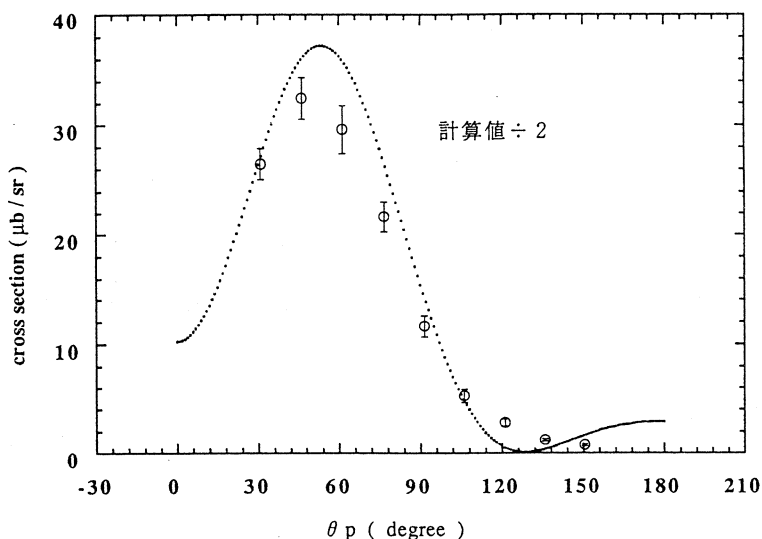
第6図 準直接過程計算によるフィッティング。

用いて、

$$CJ(\omega) = \frac{\omega}{q} CJ(q) \quad , \quad TJ(\omega) = \frac{TJ(q=\omega)}{CJ(q=\omega)} CJ(\omega)$$

で光核反応におけるパラメータ $T(LS|J)$ に変換した。

ここで、 $TJ(q=\omega)/CJ(q=\omega)$ としては、フィッティングの結果の値を $q=\omega$ であるとして補正した値であり、 $J=1$ においては -0.83 を、 $J=2$ においては -1.2 を用いた。残留核を基底状態と第1励起状態に残す $(\gamma, p_{0,1})$ 反応における散乱断面積の角度分布⁹⁾ とパラメータ $T(LS|J)$ を用いて散乱断面積の角度分布を計算した値とを比較したものを第7図に示す。



第7図 $^{12}\text{C}(\gamma, p_{0,1})$ 反応との比較。

実験点は、J. L. Matthews et al. による $^{12}\text{C}(\gamma, p_{0,1})$ 、 $E_\gamma=60\text{MeV}$ におけるデータである。計算値は、 $E_\gamma=40\text{MeV}$ における値であるため、実験点と比較するために $1/2$ 倍してある。

ここで、

$$\frac{d\sigma^\gamma}{d\Omega} = \frac{2\pi\alpha^2}{\omega} \sum_1 B_l^\gamma \cdot P_l(\cos\theta_p)$$

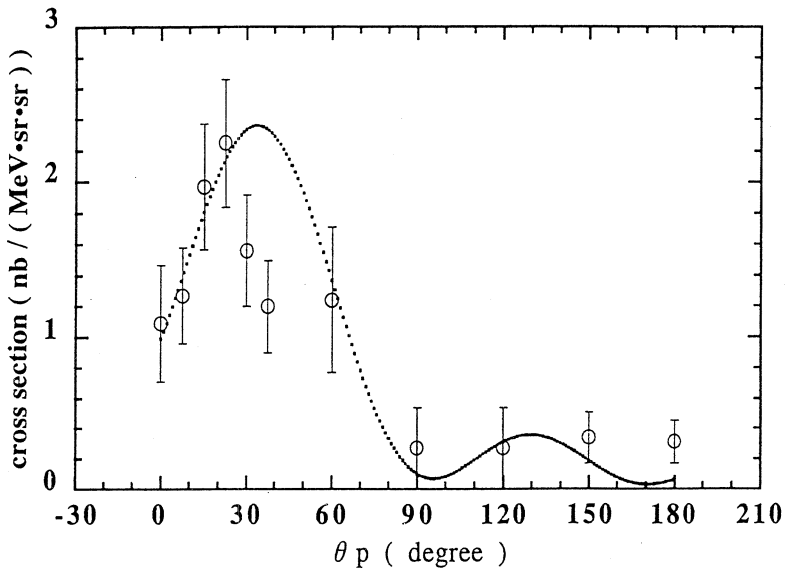
$$B_l^\gamma = \frac{1}{2} \sum_{JJ'LL'S} b_l(S;LJ;L'J') P(JJ') T(LS|J)^* T(LS|J)$$

とする。

計算値は、 $(\gamma, p_{0,1})$ 反応の散乱断面積の角度分布の約2倍の値になっているが、これは、 $(\gamma, p_{0,1})$ 反応における、移行エネルギーが 40MeV のときと 60MeV のときの散乱断面積の比とほぼ等しい値となっている。

(2) $E_m=22\sim 24\text{MeV}$

$E_m=13\sim 19\text{MeV}$ における場合と同様に、W. E. Kleppinger and J. D. Walecka⁷⁾ の手法に従って準直接過程計算のフィッティングをおこなった。パラメータを制限するために残留核のスピン-パリティは、 $1/2^+$ とし、 $S=0$ と $S=1$ の崩壊チャンネルのみが許され、 1^+ と 2^-



第8図 準直接過程計算によるフィッティング。

$^{12}\text{C}(e, e'p)$ 反応において、残留核を $1/2^+$ 励起状態に残す計算によるフィッティングである。

状態のみ励起されるという仮定を用いた。C1 と T1 の比および C2 と T2 の比には(1)の結果と同じものを用いた。フィッティングの様子を第8図に示す。

$S=0$ の場合と $S=1$ の場合はまざりあわないので、互いに別々に計算ができそれを足し合わせたものが散乱断面積となっている。 $S=0$ の場合の角度分布は、 0° にピークをもっており、また後方角がもち上がる。フィッティングと結果、 1^- 及び 2^+ 励起状態は、この仮定においては $S=1$ (3P_1 , 3D_2) がほとんどであることがわかった。

(3) $E_m=30\sim 35\text{MeV}$

この領域は、 $(e, e'pn)$ と $1s_{1/2}$ 陽子の直接放出のチャンネルが開く領域である。したがって、 S 殻陽子の直接放出の反応が関与しているはずである。しかし、角度分布をみると後方角において大きな散乱断面積をもっているから S 殻陽子の直接放出の反応だけではなく、統計モデルを合わせて考察を行なう必要があると思われる。しかし、詳しい考察はまだおこなっていない。

§ 5. まとめ

$^{12}\text{C}(e, e'p)$ 反応における Missing energy spectrum を測定することにより、残留核を基底

状態 ($3/2^-$), 6.74/6.79MeV 励起状態 ($7/2^-$, $1/2^+$)に残す反応及び Missing energy 領域で 30~35MeV の範囲における散乱断面積の角分布を求めた。残留核を基底状態に残す反応は, 準直接過程計算のフィッティングを行なうことにより, 励起状態として 1^- と 2^+ を考えるだけで角度分布がほぼ説明でき, また光核反応の結果とも矛盾しないことがわかった。6.74/6.79MeV の反応は, 励起状態が 1^- と 2^+ で $S=1$ 状態 (3P_1 , 3D_2) からの崩壊がほとんどであるという結果となった。

今後, 残留核を基底状態に残す反応においては, 直接陽子放出反応の寄与を定量的に求めるために Direct-semi-Direct の計算を行なう必要がある。また, $^{58}\text{Ni}(e, e'p)$ 反応においては, 移行エネルギー 25~42MeV, 移行運動量 $0.4\sim 0.8\text{fm}^{-1}$ の範囲で RPA の計算がおこなわれており¹⁰⁾, $J^\pi = 1^-, 2^+, 3^-$ 励起状態の微細構造について議論されている。RPA の計算をおこなうことは, 反応メカニズムの詳細を説明するうえで重要である。

参 考 文 献

- 1) J. R. Calarco *et al.* : Phys. Lett. **146B** (1984) 179.
- 2) N. Zimmermann *et al.* : "Physics with MAMIA," (Maiets Report, 1988) 159.
- 3) G. Van Der Steenhoven *et al.* : Nucl. Phys. **A480** (1988) 547.
- 4) V. F. Dmitriev *et al.* : Nucl. Phys. **A464** (1987) 237.
- 5) K. Reiner *et al.* : Phys. Lett. **228B** (1989) 31.
- 6) S. V. Springham *et al.* : Nucl. Phys. **A517** (1990) 93.
- 7) W. E. Kleppinger and J. D. Walecka. : Ann. Phys. **146** (1983) 349.
- 8) T. deForest and J. D. Walecka. : Adv. in Phys. **15** (1965) 1.
- 9) J. L. Matthews *et al.* : Nucl. Phys. **A267** (1976) 51.
- 10) J. Ryckebusch *et al.* : Nucl. Phys. **A505** (1989) 755.

$^{10}\text{B}(e, p)$ 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

^{10}B の巨大共鳴の研究は少なく, $^{10}\text{B}(\gamma, n)$ のデータ¹⁾が少しあるだけで, それ以外の反応による研究は殆どない。理論の研究も少ないが, 丁度 Gol'tsov と Goncharova による $^{10}\text{B}(\gamma, p)^9\text{Be}$ の計算²⁾がある。

そこで, 我々は ^{10}B の巨大共鳴領域の情報を得るために, $^{10}\text{B}(e, p)$ の実験をしたので報告する。以前の報告³⁾にある, ^9Be の第5励起状態へ行く p としたピークはターゲットの不純物によるものだったので, ここに訂正する。

実験は, 電子エネルギー13–30 MeVで90度の微分断面積を測定し, また, 18.5 MeV と27 MeV の間の7点で角分布を測定した。

§ 2. 実験および結果

実験は第一実験室で行った。電子線をターゲットに当て, 放出される粒子を広帯域磁気スペクトロメーター (BDM) で運動量分析をし, BDM の焦点面に置かれた100個のSSDでエネルギー分析をした。

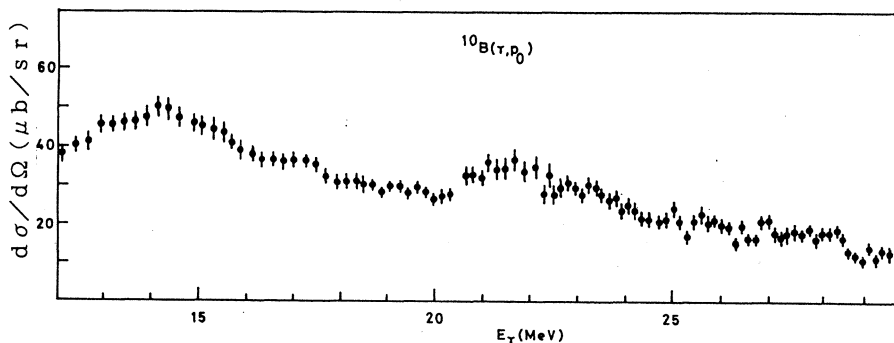
^{10}B 核のターゲットは, 96.5%エンリッチの粉末を厚さ4.8 mg/cm² の金箔に澱着させ, H₃BO₃を結合剤として焼き固めて作った。ターゲットの厚さは11.5 mg/cm²であった。

このターゲットは ^{10}B 以外に ^{11}B , Au と ^{16}O を含むが, 放出粒子のエネルギーは, $^{10}\text{B}(\gamma, p_0)$ の p のエネルギーが一番高い。一方, 残留核 ^9Be のレベルは, 1st が1.69 MeV (1/2⁺), 2nd が2.43 MeV (5/2⁻) であるが, 1st に行く p は非常に少ないので, p のエネルギー・スペクトで p_0 の取れる範囲は, 約2.5 MeV である。

この $^{10}\text{B}(e, p)$ 反応は E1 が主要な反応であり, E1 の断面積は他の多重極反応より約2桁大きいと考えられるから, $^{10}\text{B}(e, p)$ 反応の断面積を E1 仮想光子で割って, $^{10}\text{B}(\gamma, p)$ 反応の断面積に焼き直した。

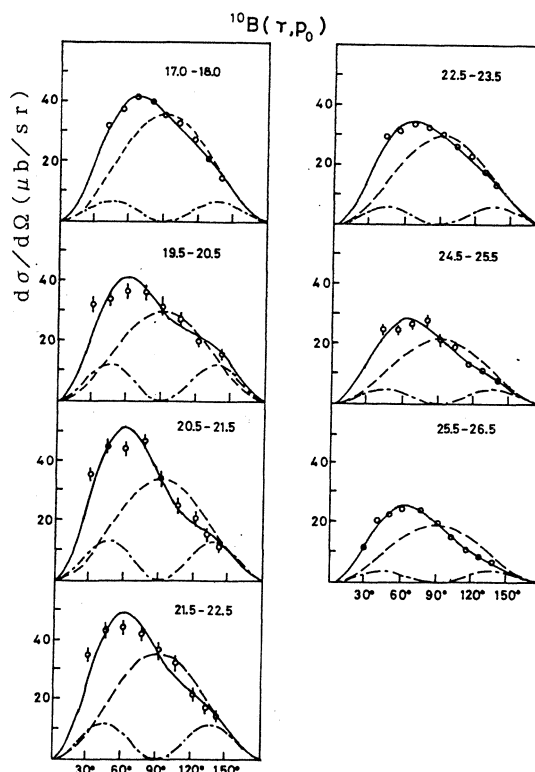
E1 の角分布は90° がピークで90° 対称となるので, 90° の微分断面積を $E_e=13-30$ MeV

の範囲で測定した。その結果を第1図に示す。14 MeV 近傍に幅の広い山があり、21.5 MeV にも幅の広い山が見られる。



第1図 $^{10}\text{B}(\gamma, p_0)$ の微分断面積。
 $E_e = 13 - 30$ MeV の範囲で、 $\theta = 90^\circ$ で測定した
 p_0 のスペクトルから得られた微分断面積。

角分布は $E_e = 18.5 - 27$ MeV の間の7つのエネルギーで測定した。18.5, 24.26 MeV は $\theta = 42^\circ - 138^\circ$ の間の11の角度で測定し、21, 22, 23, 27 MeV は、 $\theta = 30^\circ - 140^\circ$ の間の10の角度で測定した。その結果を第2図に示す。実線は4次までのルジャンドル級数 ($\sum a_l P_l$) に最小自乗法で合わせた曲線である。角分布は 90° 対称よりは、ピークが前方にずれており、そのピークの角度もエネルギーに依存している。純粋な E1 は 90° 対称なので、E1 以外の反応との干渉があることを示している。



第2図 $^{10}\text{B}(\gamma, p_0)^9\text{Be}$ の角分布。
 $E_e = 18.5 - 27$ MeV の範囲で測定した角分布。
 実線は測定値に合うルジャンドル曲線。鎖線は E1 成分。一点鎖線は E2 成分。図中の数字はエネルギー範囲を表す。

§ 3. 解析と考察

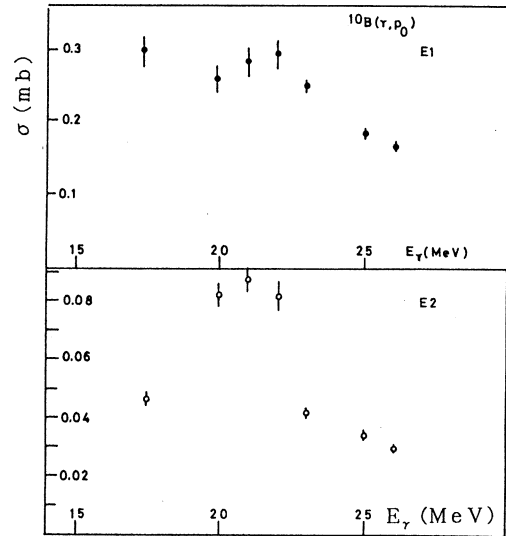
(γ, p) 反応の角分布が、第2図のように E1 が主要であるにもか

かわらず、 90° 対称よりずれるときは、他の多重極反応との干渉が考えられる。Miyase 等⁴⁾ は、 $^{65}\text{Cu}(e, p_0)$ 反応の角分布を解析することにより、E2成分を分離している。この解析方法で第2図の角分布を解析する。その結果は、図中に描かれている。鎖線はE1成分を表し、一点鎖線はE2成分を表す。このようにして、 $^{10}\text{B}(\gamma, p_0)$ の角分布から分離されたE1, E2の断面積を励起エネルギーの関数としたものを第3図に示す。

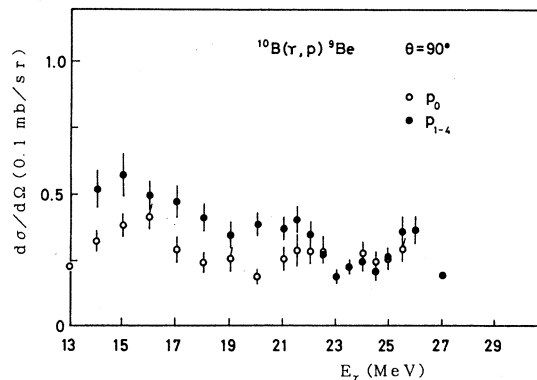
E1は22 MeVにピークの中心をもつ共鳴を示し、E2は少し下の21 MeVにピークの中心をもつ共鳴を示している。

第1図の励起曲線はピークの中心が14 MeVと21.5 MeVであったが、21.5 MeVは第3図のE1のピークと一致する。また、文献3)には $^{10}\text{B}(\gamma, p)$ 反応をディファレンス法による準単色 γ 線として求めた p_0 と p_{1-4} の 90° の微分断面積が出ているが、それを第4図に示す。 p_{1-4} は ^9Be の1-4のレベルのスピントパリティの関係で2ndの2.43 MeVレベルに行く p が一番多いと考えられるので、実質的には p_2 と考えてよい。

p_0 と p_{1-4} の微分断面積にも15 MeV近傍と22 MeV近傍に幅の広いピークがあり、第1図の p_0 の微分断面積と一致し、22 MeVのピークは第3図のE1のピークにも一致する。文献2)には、 ^{10}B の双極子共鳴から ^9Be のレベルに崩壊する p の断面積の計算が出ているので、第5図に示す。 p_0 については、20 MeVまでしか出ていないが、14 MeV近傍の広い山は第1図の p_0 、第4図の p_0 と一致する。また、2.43 MeVレベルに行く p_2 は、



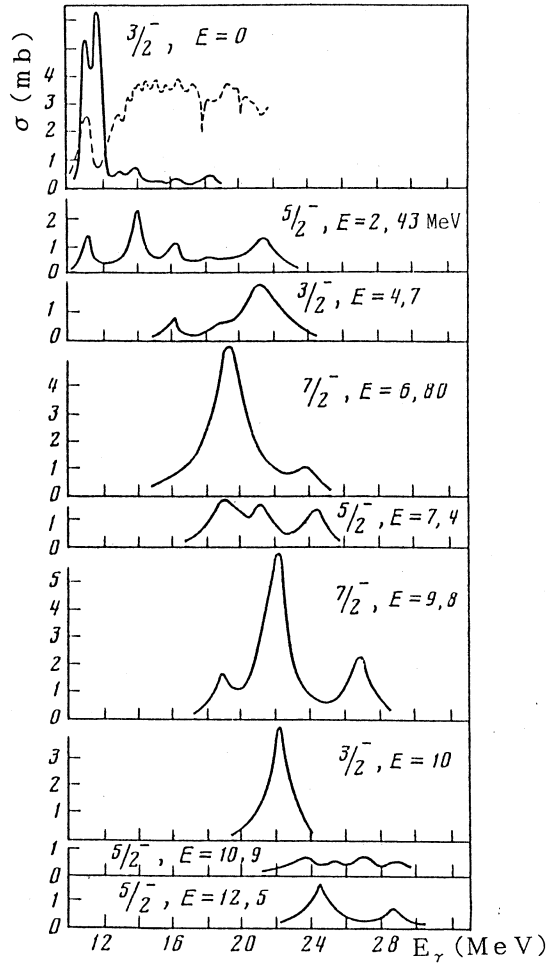
第3図 角分布から得られたE1とE2の断面積。第2図の角分布を解析して得られたE1成分とE2成分。



第4図 ディファレンス・スペクトルより得られた微分断面積。

文献3)に出ているディファレンス法により、準単色 γ 線によるスペクトルから得られた微分断面積。

第4図の p_{1-4} によく一致している。 p_0 が20 MeV までしかないのは残念である。



第5図 ^{10}B の光分解の陽子チャンネルの断面積
 実線は文献2の計算による ^{10}B の光分解の
 各陽子チャンネルの断面積。
 鎖線は $^9\text{Be}(p, \gamma)^{10}\text{B}$ の実験データ。

第3図の E2 については比較するものがないが、 $^{10}\text{B}(e, d)^9\text{Be}$ の d の断面積が得られれば、E2 共鳴の情報が得られる。 $^{10}\text{B}(e, d)$ 反応については実験を終え、現在解析中である。

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) R. J. Hughes and E. G. Muirhead : Nucl. Phys. **A215** (1973) 147 ;
U. Kneissel *et al.* : Nucl. Phys. **A264** (1976) 30.
- 2) A. N. Gol'tsov and N. G. Goncharova : Sov. J. Nucl. Phys. **38** (1983) 857.
- 3) 上野 博昭, 種市 宏, 高橋 良雄, 庄田 勝房 : 核理研究報告 **17** (1984) 34.
- 4) H. Miyase *et al.* : Phys. Rev. Lett. **50** (1983) 821.

Ⅱ. 放 射 化 学

メタロセン結晶中およびメタロセン - β - シクロデキストリン包接体中の反跳原子の挙動

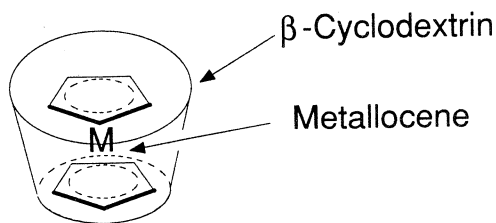
理学部化学

松江秀明・関根 勉・吉原賢二

§ 1. 序 論

メタロセン (MCp_2) 結晶中の反跳原子の挙動については前報¹⁾で報告した。今回の報告ではフェロセン (FeCp_2)、ルテノセン (RuCp_2)、オスモセン (OsCp_2) の各メタロセン結晶中の反跳原子の挙動に加えて、メタロセン - β - シクロデキストリン包接体 (MCp_2 - β - CD ; 第1図に簡略化した化学構造を示す) を用いて反跳原子の反応領域を限定した状態での反跳原子の挙動について報告する。

固相のホットアトム化学においては従来からホットゾーン模型²⁾、ディスオーダー模型³⁾などの反跳原子の最終的な反応領域における化学挙動を説明するモデルが存在する。しかしながら固相という非常に複雑な凝縮系を対象とするだけにその適用は単純な無機錯体などに限られている。我々はシクロデキストリンにメタロセンを包接させ、その反跳原子の反応領域を制限し、メタロセン結晶中の反跳原子の挙動と比較しその反応領域の知見を得ようとした。前報告¹⁾ではメタロセン結晶中での同一メタロセン間のリテンション値(反跳原子の化学形が親分子と同じである割合をさす)は平均反跳エネルギーに対して連続的であったが、異種のメタロセン間ではまったく別の曲線を示した。本報告で取り扱うシクロデキストリン包接体では異種のメタロセン間の収率の不連続性も見られなくなりそのメタロセン収率(本報ではシクロデキストリン包接系において反跳原子の化学形がメタロセンである割合をさす)は平均反跳エネルギーに対してスムーズな一本のカーブとなった。従来、データ点が少なく解析が困難であった反跳化学における収率 - 反跳エネルギー関係をシクロデキストリン包接体系を用いることによって深く理解する基礎ができた。



M = Fe, Ru, Os

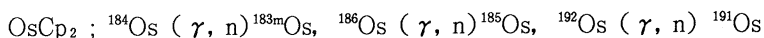
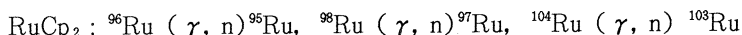
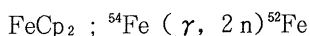
第1図 メタロセン - β - シクロデキストリンの化学構造。

§ 2. 実 験

照射に用いた試料は以下のように調製した。フェロセンは和光純薬社製のものを昇華精製して用いた。ルテノセンは Pertici ら⁴⁾の報告に基づいて三塩化ルテニウム水和物（和光純薬社製）とシクロペンタジエンを亜鉛触媒下エタノール中で反応させて合成し、昇華精製して用いた。オスモセンはルテノセンとほぼ同様の方法で三塩化オスミウム水和物（三津和化学薬品社製）から合成し、昇華精製して用いた。メタロセン- β -シクロデキストリン包接体は高橋ら⁵⁾のフェロセン- β -シクロデキストリン包接体合成の報告に基づいて次のように行った。メタロセン微粉末を β -シクロデキストリン水溶液中（ β -シクロデキストリンは和光純薬社製のものをそのまま用いた）に混合し60度で一晩反応させた。生成した包接体は反応溶液から沈殿し、その沈殿を濾過し、水、テトラヒドロフランで洗浄後、プロピルアルコール水溶液で再結晶しメタロセン- β -シクロデキストリン包接体の試料とした。照射にはこのようにして調製した試料を約50mg用いた。

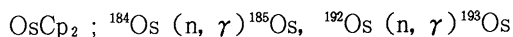
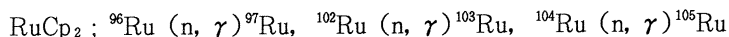
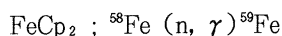
制動放射線照射は東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックで得られる最大エネルギー50MeVの制動放射線を用いた。その際の電流値は約100 μ Aで、未転換電子は掃引磁場によって除去した。また照射中は液体窒素で冷却した窒素ガスを試料に吹き付けながら-100~-130°Cに保って、約7時間の照射を行った。

制動放射線照射で着目した核反応と生成する放射性同位体を次に示す。



熱中性子照射は、主として日本原子力研究所のJRR-2原子炉（気送管、熱中性子束 $6.5 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ）を用いた。また同研究所のJRR-4原子炉（気送管、熱中性子束 $3.7 \times 10^{12} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ）と立教大学原子力研究所TRIGA MARK II原子炉（F孔、熱中性子束 $1.7 \times 10^{12} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ）も利用した。照射は試料をドライアイスに埋没させたまま行い、照射時間はJRR-2, JRR-4については約2分間、TRIGA MARK IIについては約2時間とした。

熱中性子照射で着目した核反応と生成する放射性同位体を次に示す。



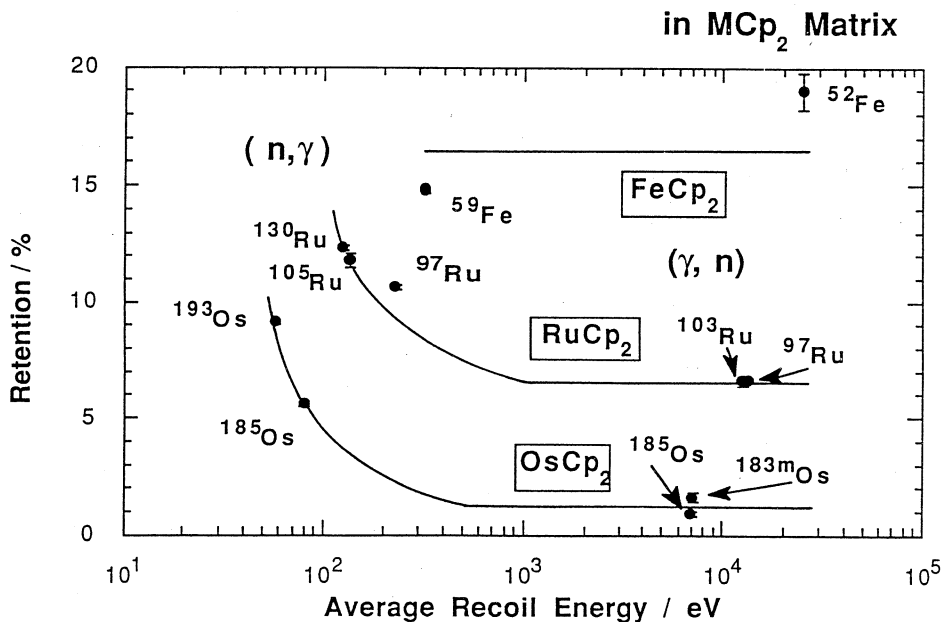
照射試料は熱アニーリングなどの二次的な効果を最少に押さえるために化学処理までの間ド

ライアイス中に保存した。

メタロセン照射試料の処理は次のように行った。照射試料をベンゼンに溶解し、シリカゲルカラム（和光純薬社製，Wakogel - C200）にチャージした後，ベンゼンで標識メタロセンを溶離した。また，メタロセン - β - シクロデキストリン照射試料の処理は少量のジメチルホルムアミド（0.4ml）に溶解後大過剰のベンゼン（8ml）を加えシクロデキストリンのみを沈殿させ，遠心分離により分離した。ベンゼンによる洗浄を繰り返した後，メタロセンを含む上澄みをシリカゲルカラムにかけ，標識メタロセンを分離した。化学処理後の放射能測定はGe（Li）または pure Ge 半導体検出器と4096チャンネル波高分析器を用いて行った。リテンション値あるいはメタロセン収率の評価は化学処理後の溶離部とシリカゲル部の形状を同一にして放射能を比較測定することで行った。リテンション値とメタロセン収率は全放射能分の溶離部の放射能を百分率表示したものである。

§ 3. 結果と考察

第2図にメタロセン単独系において得られたメタロセン収率を示す。横軸はそれぞれの核反応によって与えられる平均反跳エネルギーを表す。得られたリテンション値はフェロセン，ルテノセン，オスモセンの順番で低下している。（n, γ ）反応の低エネルギー反跳領域（100eV



第2図 メタロセンにおけるリテンション値の平均反跳エネルギー関係。

近傍)においては同位体間の収率変化が見出された。一方, (γ , n) 反応をはじめとする高エネルギー領域では同位体間の収率変化は認められなかった。100eV 程度までのエネルギー領域では中心金属が外れるしきい値の関係, および外れてもすぐに再結合する反応が関与するため, 反跳エネルギーの小さいほど大きな収率が得られ, 高エネルギー領域では大きな反跳エネルギーを持った反跳原子が自分の位置していたサイトから離れ他の分子をアタックして標識化合物を生成していると考えられるので, 最終的に反跳原子が反応する領域についての反跳エネルギーの効果はほとんどないと考えることが出来る。ここで各メタロセン間で収率が大きく異なるという事実について考えてみる。この事に関して Blackburn ら⁶⁾ は単に反跳エネルギーの違いによるホットゾーンの大きさのためだと解釈しているが, 我々はこの違いは反跳原子が他の分子を置換するときの反応のしやすさなど, メタロセン結晶の化学的あるいは構造的性質によるものであると解釈している。このようなメタロセン・マトリックスの影響を少なくするために錯体をシリカゲルなどに吸着させるなどの方法が取られてきたが⁶⁾, 我々はより確実にメタロセン分子を一個ずつ β -シクロデキストリンで包接することを考えた。この方法により, メタロセンは他の分子から遮蔽され, 反跳原子の置換反応などメタロセン結晶の性質による影響を少なくし, 反跳エネルギー依存性の収率成分をメタロセン化学種を問わず理解できると考えた。

第1表に本研究で得られた各メタロセン- β -シクロデキストリン包接体の各核反応におけるメタロセン収率と, 参考に前報で示したメタロセンでのリテンション値を合わせて示す。また第3図にメタロセン収率の平均反跳エネルギー依存性を示した。この場合のメタロセン収率

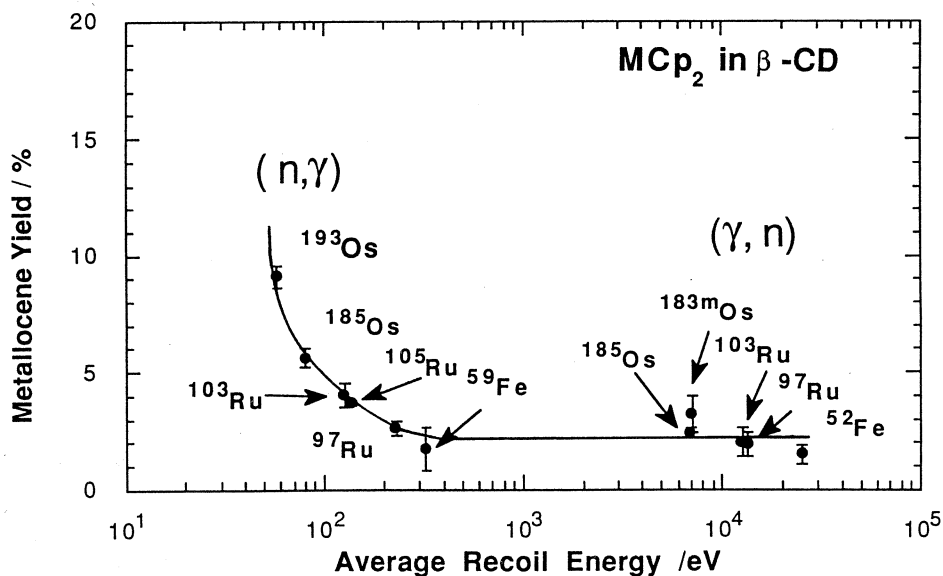
第1表 メタロセン結晶中およびメタロセン- β -シクロデキストリン包接体中におけるメタロセン収率。

Target	Nuclear Reaction	Metallocene Yield (%)	
		in MCp ₂ Matrix	in β -CD
OsCp ₂	¹⁹² Os (n, γ) ¹⁹³ Os	10.3±0.1	9.1±0.5
	¹⁸⁴ Os (n, γ) ¹⁸⁵ Os	5.8±0.1	5.6±0.4
RuCp ₂	¹⁰² Ru (n, γ) ¹⁰³ Ru	12.3±0.1	4.0±0.5
	¹⁰⁴ Ru (n, γ) ¹⁰⁵ Ru	11.8±0.3	3.7±0.1
	⁹⁶ Ru (n, γ) ⁹⁷ Ru	10.6±0.1	2.6±0.3
FeCp ₂	⁵⁸ Fe (n, γ) ⁵⁹ Fe	14.8±0.1	1.7±0.1
OsCp ₂	¹⁸⁶ Os (γ , n) ¹⁸⁵ Os	0.9±0.1	2.4±0.2
	¹⁸⁴ Os (γ , n) ^{183m} Os	1.6±0.2	3.2±0.8
RuCp ₂	¹⁰⁴ Ru (γ , n) ¹⁰³ Ru	6.6±0.2	2.0±0.6
	⁹⁸ Ru (γ , n) ⁹⁷ Ru	6.6±0.1	1.9±0.5
FeCp ₂	⁵⁴ Fe (γ , 2n) ⁵² Fe	19.0±0.8	1.5±0.4

はメタロセンの種類を問わずにスムーズな1本の曲線上に並ぶという結果となった。これは当初の目的どおり反応に関与するメタロセン分子をシクロデキストリンで包接することで固体中に孤立させたことによると考えられる。すなわち、メタロセン単独結晶中では、核反応をおこした中心金属の周囲にも反応に預かることのできる他の分子が存在しているのに対し、シクロデキストリンでメタロセンを包接することにより他の分子との相互作用を断ったことになる。ここで注目すべきことはメタロセン単独系において認められたメタロセン化学種間の収率変化が包接体においては中心金属の種類を問わない結果となることである。このことは、反跳エネルギー自体がその収率の大小を定める因子になっているためと考えられる。

メタロセン包接体の中心金属が核反応を起こし、最終的にメタロセン分子として見出される過程にはいくつかの素過程が考えられる。その過程を引き起こすのに必要な反跳エネルギーの低いと思われる順に素過程を示す。

- (1) 核反応を起こした中心金属が結合を切断することができずもとの化学形を保持する過程。
- (2) 核反応の際の反跳エネルギーがメタロセン分子全体に分散し、シクロデキストリンの壁にそのエネルギーを移し安定化する過程。
- (3) 核反応の際の反跳エネルギーがメタロセン分子全体に分散し、メタロセン反跳分子としてマトリックス中に飛び出す過程（分子ロケット過程⁷⁾）。



第3図 メタロセン-β-シクロデキストリン包接体におけるメタロセン収率と平均反跳エネルギーの関係。

- (4) 反跳原子が一旦、配位子との結合を切断したがシクロデキストリンの壁にはばまれシクロデキストリン中で再び配位子と結合を起こす過程。
- (5) 十分大きな反跳エネルギーにより反跳原子がオリジナル・サイトを離れ他の包接体中の錯体をアタックする過程。

包接体においては、(5)の過程に対して(1)から(4)の過程が優勢となったために、異種メタロセン化学種間の収率変化が中心金属の種類を問わない結果となったと考えられる。また興味深い分子ロケット反応については現時点では確定的な証拠は得られていないがその過程が存在することを示唆する事実も幾つか得られており、この件に関してはすでに報告済みである⁷⁾。(2)の過程はその様相から分子ドーナツ過程とでもいうべきものであるが、これについてはなおのちに考察することにする。佐々木ら⁸⁾は溶液系においてルテニウムのフェナントロリン錯体の反跳原子の緩和過程に溶媒の分子量による影響が見られたことなどから反跳分子と溶媒との相互関係の存在を示唆しており我々の実験系との関連に興味もたれる。

以上のようにメタロセン包接体からの反跳原子が、最終的にメタロセン分子として見出される素過程を考えたが、現在その解析を進めているところである。

照射にあたってお世話いただいた東北大学核理研、榎本和義助手と大槻勤助手そしてマシングループの方々に御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 松江秀明, 関根勉, 吉原賢二: 核理研研究報告 **23** (1991) 77.
- 2) G. Harbottle and N. Sutin: J. Phys. Chem. **62** (1958) 1344.
- 3) H. Müller: Atomkernenergie **16** (1970) 237.
- 4) P. Pertici, G. Vitulli, M. Paci and L. Porri: J. Chem. Soc. Dalton Trans. (1980) 1961.
- 5) A. Harada, Y. Hu, S. Yamamoto and S. Takahasi: J. Chem. Soc. Dalton Trans. (1988) 729.
- 6) R. Blackburn and T. Yassine: Radiat. Phys. Chem. **33** (1989) 336.
- 7) H. Matsue, T. Sekine and K. Yoshihara: J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett. **166** (2) (1992) 123.
- 8) K. Sasaki, M. Furukawa and H. Yamatera: Radiochim. Acta **31** (1982) 121.

ジ(2-エチルヘキシル)リン酸による イットリウムと鉄の抽出分離

素材研

秋葉健一・橋本裕之

§ 1. はじめに

イットリウムの資源は鉄を含むことが多く、その効率よい分離が必要である。Yの溶媒抽出にはジ(2-エチルヘキシル)リン酸(DEHPA)が広く用いられているが、Y(Ⅲ)の抽出にともなって共存する鉄(Ⅲ)も抽出される。

前報において、Fe(Ⅲ)共存下のY(Ⅲ)の抽出挙動を調べ、Fe(Ⅲ)の抽出速度は遅いのに対してYの抽出速度は速いことを利用して、Fe(Ⅲ)の抽出を抑えてYを優先的に抽出する可能性を示した¹⁾。

本研究では、Y(Ⅲ)とFe(Ⅲ)が共存する場合について、それぞれの抽出および逆抽出速度ならびに分離係数の変動を調べ、抽出-逆抽出の組み合わせによる分離能の向上について検討した。さらに、Fe(Ⅲ)を有機相に負荷した状態でのYの抽出分離の可能性について検討した。

§ 2. 実 験

2.1 試 薬

ジ(2-エチルヘキシル)リン酸(DEHPA; HAと略す)およびリン酸トリブチル(TBP)はケロシンで所定濃度に希釈した。

⁸⁸Y ($t_{1/2}=105\text{d}$)は東北大学核理学研究施設の電子ライナックからの制動放射線によりイットリウム酸化物を照射して⁸⁹Y (γ, n) ⁸⁸Y反応により製造した。また⁵⁹Fe ($t_{1/2}=45\text{d}$)はNew England Nuclearより塩化物溶液として購入した。

2.2 液-液抽出

⁸⁸Yおよび⁵⁹Feを含む0.01M (=mol/dm³)硫酸溶液と等容のDEHPAのケロシン溶液を25°Cで260回/分の速度で所定時間振とうした。水相は通常 5×10^{-4} M Y(Ⅲ)溶液とし、0.01M Fe(Ⅲ)を含んでいる。有機相は0.05M (HA)₂ケロシン溶液とし、適宜TBPを共存させた。遠心分離(3000rpm)後、両相の放射能を井戸型NaI(Tl)シンチレーション検出器、あるいは

は両核種が共存する場合には純 Ge 半導体検出器一波高分析器 (PHA) により測定し、それぞれの分配比 (D) を求めた。平衡後の pH を測定し、水素イオン濃度を求めた。

§ 3. 結果と考察

3.1 イットリウム抽出

DEHPA-ケロシン溶液による Y(III) の抽出は (1) 式に従うことが前報で確認されている¹⁾。



$$K_{ex} = \frac{[Y(HA_2)_3]_{org} [H^+]_{aq}^3}{[Y^{3+}]_{aq} [(HA_2)]_{org}^3} \quad (2)$$

DEHPA が大過剰である限りは(1)式に従って、正常な型 $Y(HA_2)_3$ で抽出されるが、TBP の共存あるいは Fe(III) の共存により $(HA)_2$ が少なくなると D_Y の低下をもたらすことが示されている。

また、Y の抽出速度は速く、 $(HA)_2$ 濃度の10倍以下の TBP の共存の影響は小さいことがわかっている¹⁾。

3.2 鉄(III)の抽出速度

Fe(III) の抽出速度は遅いことが知られているが²⁾、さらに TBP の共存が Fe(III) の抽出速度に及ぼす影響を調べ、 D_{Fe} の時間変化を第 1 図に示す。 D_{Fe} は TBP の共存の影響を受けやすく、 $(HA)_2$ と等モルの TBP の共存で D_{Fe} は低下しはじめ、TBP の濃度が増すにつれ大きく減少し、また平衡に達する時間にも遅れが認められた。

3.3 鉄共存下のイットリウム抽出速度

Y と Fe(III) の抽出速度の差を利用すると Fe(III) と Y の分離に適用できると考えられる。⁵⁹Fe と ⁸⁸Y の両者が存在する系について、それぞれの γ 線のピークを PHA で分別測定して分配比の変化を調べた結果を第 2 図に示す。Y は短時間の振とうで抽出され50秒付近で D_Y は最大値をとることがわかる。

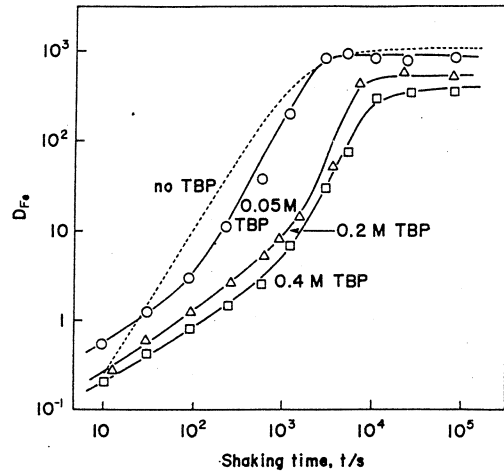


図 1 Effect of TBP on extraction rate of Fe(III) 0.01 M H_2SO_4 ; 0.05 M $(HA)_2$ in kerosen.

TBP が共存する場合の D_Y は短時間では TBP がない場合と類似の変化を示すが、長時間の振とうでは低下する。

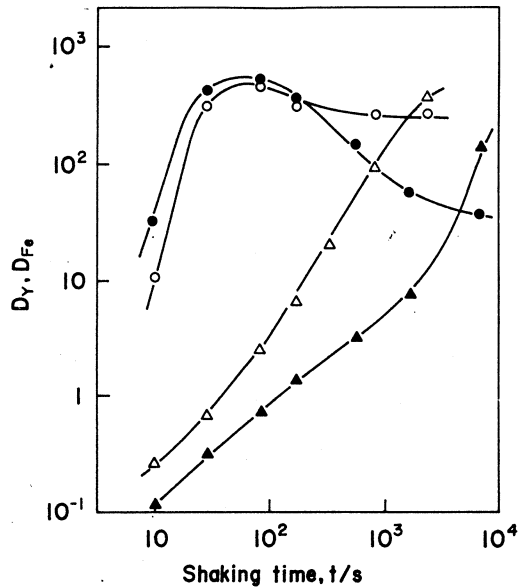
一方、Fe(III) の抽出は時間とともにゆっくり増大し、抽出平衡には長時間を要する。またいずれの時間でも TBP の共存により D_{Fe} は大きく低下することが認められた。すなわち TBP は Fe(III) の抽出を抑え Y を優先的に抽出することに寄与していることがわかる。

この D_Y および D_{Fe} 値から分離係数 α_f ($=D_Y/D_{Fe}$) を求めその時間変化を第 3 図に示す。 α_f は TBP がない場合は約 20 秒で最大となり、以後時間とともに急激に低下している。0.2M TBP が共存する場合には、20~100 秒間で広いピークとなり、 α_f の値は数百となり、相互分離に有利なことがわかる。

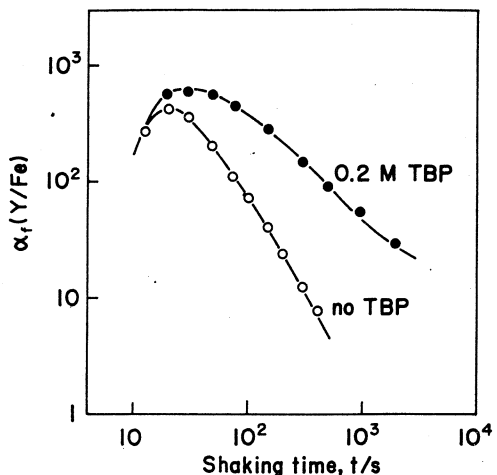
3.4 逆抽出速度

液-液抽出を分離プロセスに応用するに際しては逆抽出挙動を知ることが必要である。第 4 図には Y と Fe(III) を 0.01M H_2SO_4 から 0.05M $(HA)_2$ ケロシン溶液に抽出した後、この有機相を 2M HNO_3 と振とうした際の逆抽出の分配比の時間変化を示す。Fe(III) の分配比は時間とともにゆっくりと低下し、逆抽出には長時間を要する。この際、TBP の共存による D_{Fe} への影響は少ない。一方、Y の分配比は急激に低下し、約 30 秒後には一定値となる。TBP が共存すると D_{Fe} はさらに短時間で低下することがわかる。

逆抽出における分離係数 α_b を D_{Fe}/D_Y と



第 2 図 Variation in distribution ratios of Y and Fe with shaking time for forward extraction.
 $5 \times 10^{-4} M Y - 0.01 M Fe(III)$; $\circ D_Y$, $\triangle D_{Fe}$ without TBP; $\bullet D_Y$, $\blacktriangle D_{Fe}$ in the presence of 0.2 M TBP.



第 3 図 Variation in separation factors for forward extraction with shaking time.

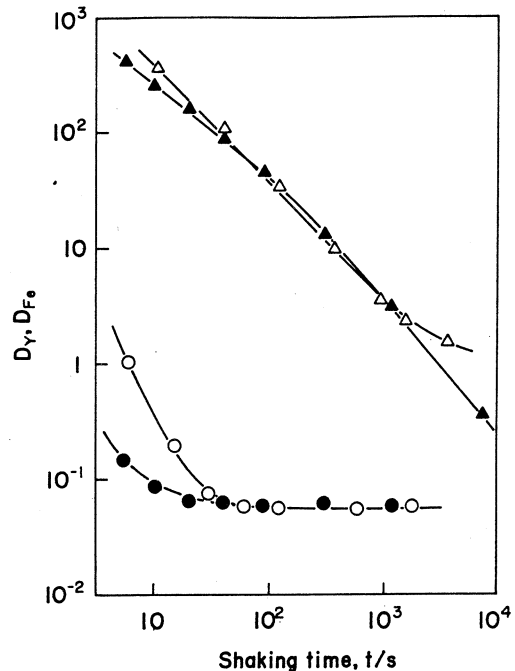
し、その時間変化を第5図に示す。10~60秒で α_0 は 10^3 以上の高い値となり、振とう時間が増すにつれて減少する。従って短時間の振とうによりFe(III)を有機相に残し、Yを優先的に水相へ逆抽出することが可能となる。この場合はTBPの共存はごく短時間の振とうのみ分離係数を増大させる。すなわち、TBPの共存は抽出段階ではFe(III)の抽出を抑えてYの抽出を促進し、また逆抽出段階ではFe(III)を有機相に残してYの逆抽出を促進し、Fe(III)からのYの分離回収の向上に寄与している。

3.5 鉄(III) 負荷有機相によるイットリウム の抽出

Fe(III)の抽出を抑えてYを優先的に抽出するために短時間の抽出操作を行ったとしても、Fe(III)の一部は有機相に抽出される。また逆抽出プロセスではYが水相へ分離回収され、Fe(III)は有機相に残っている。これらの操作を繰り返し、DEHPAケロシン溶液を循環使用すると、有機相に負荷される

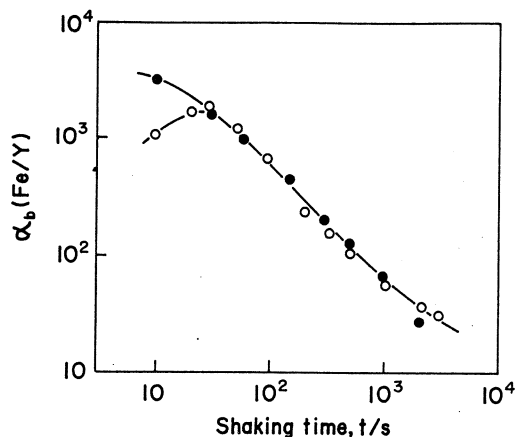
Fe(III)は次第にその濃度を増すことになる。Fe(III)の逆抽出には高い酸濃度と長時間の振とう、あるいは還元操作などを行わなければならない。これらの操作を最小限にして、いわばFe(III)が負荷した有機相であってもYを抽出できれば好都合である。

0.05M (HA)₂ケロシン溶液をFe(III)の水溶液と長時間振とうしてFe(III)を有機相に抽出し、このFe(III)を負荷した有機相によるYの抽出挙動を調べた。この際の D_Y の変化を第6図に示す。Fe(III)を含まない場合に比べて、Fe(III)負荷の場合はYの抽出平衡に要する時間も長くなり、平衡における D_Y 値も低下している。しかし、0.019M Fe(III)を負荷した場合であっても D_Y は 10^2 以上の値を示す。ここで仮に有機相に負荷しているFe(III)はすべて化学量論的な1:3錯体Fe(HA₂)₃を生成しているとする、この実験条件の(HA)₂の初濃度



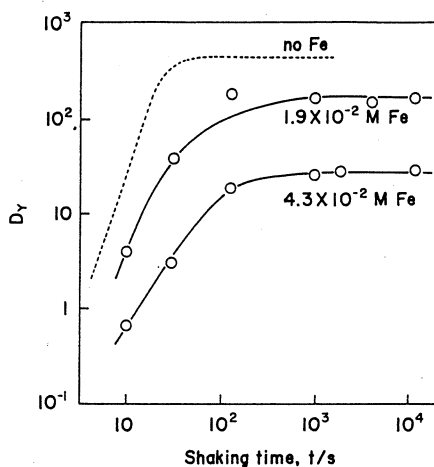
第4図 Variation in distribution ratios of Y and Fe with shaking time for backward extraction.

Forward extraction : 0.01 M Fe(III) in 0.01 M H₂SO₄, [(HA)₂]_{init} = 0.05 M; backward extraction : 2 M HNO₃; ○ D_Y , △ D_{Fe} without TBP. ● D_Y , ▲ D_{Fe} in the presence of 0.2 M TBP.



第5図 Variation in separation factors for backward extraction with shaking time.
○ no TBP, ● 0.2 M TBP.

0.05M ではすでに DEHPA 不足の状態になる。しかし $(HA)_2$ 濃度に対して大過剰といえる $0.043M$ Fe(III) が負荷しても D_Y 値は20~30となり、かなりの程度の Y が抽出されている。しかも、この Fe(III) 負荷有機相による Y の抽出時に、逆抽出に相当する Fe(III) の分配比をチェックしたところ、いずれの場合も D_{Fe} は 10^3 以上を示し、Fe(III) の逆抽出の量は無視できる。これらのことから Fe(III) は有機相中では化学量論的に想定される $Fe(HA_2)_3$ 以外に、これらが会合して1:3錯体よりも過剰の Fe(III) を取り込んでいること、あるいは一部に試薬の単量体の寄与などが予想される。このように過剰の Fe(III) を取り込んでも、なお Y の抽出が可能なのは分離プロセスへの応用には好都合といえる。



第6図 Extraction of Y with Fe(III) loaded DEHPA solution.

$2 \times 10^{-4} M$ Y; $[(HA)_2]_{init} = 0.05 M$

§ 4. まとめ

DEHPA による Y の抽出速度は速いのに対し、Fe(III) の抽出速度は遅い。TBP の共存は Fe(III) の抽出速度をさらに減少させる。このため分離係数 α_f は増大し、10 - 100秒の振と

うで最大値をとる。Feの抽出を抑え、Yを優先的に抽出するのに好都合となる。一方、逆抽出速度もFe(Ⅲ)では遅く、Yでは速いことから、Feを有機相に残しYを優先的に逆抽出できることがわかった。逆抽出による分離係数 α_0 は短時間で大きく、振とう時間が増すにつれ減少する。TBP共存下の短時間の抽出および逆抽出により、Fe(Ⅲ)からYを効率よく分離回収できることが明らかになった。また過剰のFe(Ⅲ)を有機相に取り込んでも、なおYの抽出が可能なことがわかった。

本研究にあたり、 ^{88}Y の製造にご協力いただいた榎本和義博士ならびにマシングループの方々に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 秋葉健一, 橋本裕之: 核理研研究報告 25 (1992) 63.
- 2) J. W. Roddy, C. F. Coleman and S. Arai: J. Inorg. Nucl. Chem. 33 (1971) 1099.

The Internal Standard Method Coupled with the Standard Addition Method as a Powerful Tool for the Standardization of Environmental Materials by Activation Analysis

K. Masumoto

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

The new aspects of the internal standard method coupled with the standard addition method (ISM-SAM) have been reported through the analysis of environmental materials, such as urban particulate matter, vehicle exhaust particulates and coal fly ash by photon activation. Gamma-ray spectrometry using high-resolution Ge-detector make possible to use several internal standards simultaneously in order to crosscheck the analytical results obtained from each internal standards. It was ascertained that this method can provide not only accurate analytical results but also the information of homogeneity of samples, correlation of elements in the sample, loss or contamination in preparation process and the degree of nuclear interference.

§1. Introduction

Activation analysis has very attractive features, such as high sensitivity, capability of multielement and nondestructive analysis, and applicability to various forms or matrices of sample. Though, large and expensive facilities, such as nuclear reactor or accelerator are indispensable for activation analysis and they can not be used anywhere and anytime for routine analysis. Therefore, activation analysis should also play the another role which can not be realized by usual analytical methods. Indeed, activation analysis have been frequently used for the certification of reference materials. Then, the pursuit of accuracy and precision should become one of the most important work in activation analysis. From this point of view, author has been developed the accurate quantitative methods for standardization, such as internal standard method and stable isotope dilution activation analysis for about ten years. In these studies, the internal standard method coupled with the standard

addition method (ISM-SAM) has been applied to the trace element analysis of several biological and environmental materials, such as plant^{1, 2}, serum³, sediment^{4, 5} soil^{6, 7}, and fly ash⁸ by photon activation and charged particle activation.

In this work, the attractive features of the ISM-SAM obtained by high-resolution γ -ray spectrometry will be mainly shown through photon activation analysis of some environmental reference samples.

§ 2. Principle

In activation analysis, the internal standard method is the best method to evaluate the incident fluxes on samples, because the effective fluence of incident particle can be evaluated inside the sample. On the other hand, standard addition method is the best method to match the elemental composition between sample and comparative standard and to compensate matrix effect, such as self-shielding in neutron irradiation, stopping power in charged particle irradiation and self-absorption in measurement. The combined use of above two methods in activation analysis was first presented by Leliaert *et al.* in 1958 as the internal standard method.⁹ In spite of the ideal characteristics of this method, the theoretical treatment and the effective use of this method have not been searched so far. In order to distinguish from other internal standard methods, the author calls this method "The internal standard method coupled with the standard addition method (ISM-SAM)".²

When the sample and the standard addition sample are irradiated by different fluxes of particles with the same energy spectrum, unknown amount (x) of element contained in the sample was obtained by a simple equation¹:

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

where y is the added amount of element, R is the activity ratio between two radio nuclides produced from element to be determined and internal standard element in the sample, and R^* is the ratio as above in the standard addition sample. Usually, R and R^* are the peak area ratio of γ -rays due to two radionuclides. In γ -ray spectrometry, the geometrical factor, such as small difference of sample shape or measurement position between sample and standard addition sample can be canceled by this peak area ratio method.

Clearly from the above equation, it is not necessary to correct the fluxes bombarded on

sample and standard. The sources of systematic errors accompanied with irradiation, measurement and spectrum analysis are also canceled by this double ratio (R^*/R) method.

In order to obtain highly accurate results by the ISM-SAM, accurate addition of elements to be determined and homogeneous mixing are indispensable. Therefore, "How to apply to practical cases?" is one of the most important theme in the development of such a quantitative method.

§ 3. Experimental

3.1 *Materials and chemicals*

As sample materials, NIST (National Institute of Standards and Technology) SRM 1633a coal fly ash, NIST SRM 1648 urban particulate matter and NIES (National Institute for Environmental Studies, Japan) CRM No. 8 vehicle exhaust particulates were selected. The NIST samples were dried according to the instruction for drying from NIST. The NIES sample was weighed without drying. Standard solutions of element to be determined were purchased from Junsei Chemical Co. Tetraethylorthosilicate and water were distilled twice and nitric acid was ultra pure grade.

3.2 *Preparation of standard addition sample*

An accurately weighed sample (~1 g) was dissolved in conc. HNO_3 in the acid digestion bomb (Uniseal) after addition of spiked solution containing the accurate amounts of interesting elements to be determined. In this work, standard solutions of elements to be determined are added with micro-pipet (Gilson). These added amounts were always checked by weighing distilled water which was pipetted as the same manner as standard solution. The resulted solution was dried and added equal amount of 4 N HNO_3 and Tetraethylorthosilicate with stirring. After gelification, the silica-gel mixture was dried in a microwave oven for several minutes and powdered. Additional drying was performed in an electric furnace at 400°C for 2 hrs, in order to evaporate HNO_3 perfectly. Four portions (~200 mg) of silica-gel powder samples were doubly wrapped with pure aluminium foils without weighing and shaped into 10 mm \varnothing disk. Three disks of untreated sample were prepared as the same manner. These standard addition samples and untreated samples were sealed into a quartz tube.

3.3 Irradiation and measurement

Three or four pellets of standard addition sample and untreated sample were simultaneously irradiated with bremsstrahlung of $E_{\max} = 30$ MeV for 3 hrs at the low energy section of 300 MeV LINAC of Tohoku Univ. Gamma-ray measurement was automatically done by the robotic measurement system¹⁰ connected with HP-Ge detector (Rel. Eff. = 30 %, FWHM = 1.9 keV for 1332 keV γ -ray of ^{60}Co) at 3 hrs, 2 days, 1 week and 2 weeks after the end of irradiation. Spectrum peak search, decay correction, calculation of activity ratio and quantitative analysis were semi-automatically performed.¹⁰

§ 4. Results and discussion

4.1 Internal standards used for photon activation

In this work, several elements such as Na, Mg, Ca, Ti, Mn and Fe which commonly exist in environmental samples were used as internal standard simultaneously, Several radionuclides are produced from above internal standard elements by photon activation and emit some characteristic γ -rays. These nuclear data are shown in Table 1. Their half-lives are ranging between the order of hour and year and their γ -ray energies are covering between 160 to 1369 keV. Therefore, these internal standards were used for measurement at any cooling time and were very effective to check the accuracy each other. The combined use of multiple internal standards and standard addition of multielement can also provide the homogeneity of sample and/or the correlation of elements in the sample, because the ISM-SAM can eliminate various systematic errors on activation analysis.

Table 1. Internal standards and their nuclear data on photon activation analysis.

Target nuclide (abundance, %)	Reaction	Product nuclide	Half-life	Principal γ -ray energy, keV
^{23}Na (100)	(γ , n)	^{22}Na	2.602 y	1275
^{25}Mg (10.0)	(γ , p)	^{24}Na	14.659 h	1369
^{44}Ca (2.086)	(γ , p)	^{43}K	22.3 h	373, 617
^{48}Ca (0.187)	(γ , n)	^{47}Ca	4.536 d	1297
^{47}Ti (7.4)	(γ , p)	^{46}Sc	83.83 d	889, 1121
^{48}Ti (73.8)	(γ , p)	^{47}Sc	3.341 d	159
^{49}Ti (5.5)	(γ , p)	^{48}Sc	1.821 d	984, 1037, 1312
^{55}Mn (100)	(γ , p)	^{54}Mn	312.2 d	835
^{57}Fe (2.2)	(γ , p)	^{56}Mn	2.579 h	846

4.2 Preparation of standard addition samples and their homogeneity

The homogeneity of a certain element in the sample and/or the standard addition sample can be always checked by the ISM-SAM. Table 2 shows one of the results of simple addition method. By this method, the equal volumes of 4 N HNO₃ and tetraethylolthosilicate were directly added to the NIST coal fly ash with stirring after adding standard solution of elements. In this case, Sr is the element to be determined and Ti and Fe are internal standards. Then, the activity ratios of ^{87m}Sr (388 keV) to ⁴⁷Sc (159 keV) and ^{87m}Sr (388 keV) to ⁵⁶Mn (846 keV) were measured in three portions of untreated samples and four portions of standard addition samples and shown as cps of peak area in Table 2. The specific activities of ^{87m}Sr, ⁴⁷Sc and ⁵⁶Mn in each sample were different, because each sample was irradiated at different position. Though, it is obvious that activity ratio become constant, if each element is contained homogeneously in the sample. In the case of ⁴⁷Sc as internal standard, the relative standard deviations of the activity ratio R and R^* are 0.6% and 1.0%, respectively. This means that Sr and Ti were very homogeneously distributed in the untreated sample and standard addition sample. In the case of ⁵⁶Mn, the relative standard deviations of R and R^* are 1.0% and 13%. This large value of R^* means that Fe became unhomogeneous in the course of preparation of the standard addition sample. It was found that the main component containing Fe was paramagnetic substance and was biased to the bottom of Teflon beaker by using magnetic stirrer before gelification.

In order to avoid the above case, the acid digestion procedure was added to the standard addition scheme. By the digestion using conc. HNO₃, samples could not be decomposed perfectly and components of silica and/or carbon were main residues. Nevertheless, it was assured that the homogeneity of standard addition sample was kept by this digestion method not only in the case of fly ash but also other environmental samples, such as soil and sediment.

4.3 Loss or contamination during preparation of standard addition sample

In the standard addition process, sample solution was homogeneously doped into silica gel by the hydrolysis of tetraethylolthosilicate and powdered. This doped silica gel powder made easy to handle the standard addition sample and did not cause any matrix effects. In order to check loss or contamination during preparation of the standard addition sample in

Table 2. The activity ratios of ^{87m}Sr from Sr to ^{47}Sc from Ti and ^{56}Mn from Fe in NIST coal fly ash.

a) Element = Sr (Sr - 87m, 388 keV), Internal standard = Ti (Sc - 47, 159 keV)

No.	Untreated			Standard addition				
	cps (388 keV)	cps (159 keV)	R	cps (388 keV)	cps (159 keV)	R^*		
1	799.837	/	139.527	5.7325	938.533	/	84.407	11.1191
2	838.297	/	144.957	5.7831	994.221	/	88.581	11.2239
3	876.953	/	153.316	5.7199	1059.340	/	94.436	11.2175
4					1208.850	/	106.131	11.3902
	Average			5.7452				11.2377
	Standard Deviation			0.0334				0.1124
	%Relative Standard Deviation			0.582				1.0003

b) Element = Sr (Sr - 87m, 388 keV), Internal standard = Fe (Mn - 56, 846 keV)

No.	Untreated			Standard addition				
	cps (388 keV)	/	cps (846 keV)	R	cps (388 keV)	cps (846 keV)	R^*	
1	799.837	/	315.473	2.5354	938.533	/	185.705	5.0539
2	838.297	/	332.883	2.5183	994.221	/	178.102	5.5823
3	876.953	/	352.772	2.4859	1059.340	/	154.640	6.8504
4					1208.850	/	193.601	6.2440
	Average			2.5132				5.9327
	Standard Deviation			0.0251				0.7819
	%Relative Standard Deviation			0.9998				13.1797

the case of NIST coal fly ash, an extra sample without addition of Cr and As was prepared by the same manner as the standard addition sample. If Cr and As were contained or lost, the ratio of this non-addition sample (R^*) to the untreated sample (R) should not become unity. In order to obtain the information of the non-addition sample, the average of the activity ratios of the untreated sample (R) were taken. Then, the activity ratios between ^{51}Cr (320keV) from Cr or ^{74}As (596 keV) from As and five internal standard γ -rays were measured and calculated the double ratio (R^*/R) in four portions of non-addition sample as shown in Table 3. Each rows shows the reproducibility of four portions of sample and each column shows the reproducibility of five internal standard γ -rays. In the both cases of Cr and As, the standard deviation of rows and columns were almost same as counting error. As the results, the total average were 1.00 ± 0.03 for Cr and 1.01 ± 0.02 for As. Then, it was concluded that any loss or contamination did not occur in the preparation procedure.

4.4 Homogeneity of sample

As described above two sections, it was assured that the standard addition sample can be prepared homogeneously without any loss or contamination by using acid digestion

Table 3. The results of loss and contamination check for Cr and As in the standard addition sample of NIST coal fly ash prepared by the acid digestion method.

a) Element = Cr (Cr - 51, 320 keV)						
Internal standard	(R^*/R)				Average	Std.
Nuclide (Gamma-ray)	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4		Dev.
Sc-46 (889keV)	1.01	0.98	0.96	1.01	0.99	0.02
Sc-46 (1121keV)	0.99	0.97	0.97	1.03	0.99	0.03
Na-22 (1275keV)	1.00	0.98	0.95	1.02	0.99	0.03
Ca-47 (1297keV)	1.01	1.01	0.97	1.03	1.00	0.03
Mn-54 (835keV)	1.04	1.00	0.99	1.05	1.02	0.03
Average	1.01	0.99	0.97	1.03	1.00	0.03
Standard Deviation	0.02	0.02	0.01	0.01		

b) Element = As (As - 741, 596 keV)						
Internal standard	(R^*/R)				Average	Std.
Nuclide (Gamma-ray)	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4		Dev.
Sc-46 (889keV)	1.04	1.01	1.00	0.99	1.01	0.02
Sc-46 (1121keV)	1.02	1.00	1.00	1.00	1.01	0.01
Na-22 (1275keV)	1.03	1.01	0.98	1.00	1.00	0.02
Ca-47 (1297keV)	1.04	1.04	1.00	1.00	1.02	0.02
Mn-54 (835keV)	1.07	1.03	1.02	1.02	1.03	0.02
Average	1.04	1.02	1.00	1.00	1.01	0.02
Standard Deviation	0.02	0.02	0.01	0.01		

method. Then homogeneity of sample was checked by comparing between the standard deviation of R and R^* as the next step.

In the case of standard addition sample, 1 g or more amount of sample was taken and processed. In the case of untreated sample, smaller amount (~ 200 mg) of sample was taken and directly wrapped. If the interesting element is not homogeneous in the untreated sample, the standard deviation of R become larger than that of R^* . Table 4 shows the example of Pb (^{203}Pb , 279 keV) and Zn (^{67}Cu , 185 keV) in NIES vehicle exhaust particulates. In this case, ^{47}Ca (1297 keV) from Ca was used as the internal standard. In the case of Pb, the standard deviations of R and R^* were 1.2% and 2.5%, respectively. This means that Pb and Ca exist homogeneously in the untreated sample and the standard addition sample. On the other hand, the relative standard deviations of R and R^* for Zn are 12.2% and 1.4%, respectively. These values mean that the homogeneity of Zn was not good in the untreated sample and was improved during the process of sample preparation.

In the case of NIST urban particulate matter, about 80 mg of sample was taken as each untreated sample. Nevertheless, the relative standard deviations of R were always very

Table 4. The activity ratios of ^{203}Pb from Pb and ^{67}Cu from Zn to ^{47}Ca from Ca in NIST vehicle exhaust particulates.

a) Element = Pb (Pb - 203, 279 keV), Internal standard = Ca (Ca - 47, 1297 keV)								
No.	Untreated			<i>R</i>	Standard addition		<i>R</i> *	
	cps (279 keV)	/	cps (1297 keV)		cps (279 keV)	/		cps (1297 keV)
1	7.4806	/	1.4659	5.1030	12.8364	/	1.2376	10.3721
2	8.4904	/	1.6814	5.0496	13.9570	/	1.3070	10.6784
3	10.1309	/	1.9587	5.1723	16.5275	/	1.5036	10.9918
4					19.2730	/	1.8312	10.5246
Average				5.1083				10.6417
Standard Deviation				0.0616				0.2648
%Relative Standard Deviation				1.2049				2.4881

b) Element = Zn (Cu - 67, 185 keV), Internal standard = Ca (Ca - 47, 1297 keV)								
No.	Untreated			<i>R</i>	Standard addition		<i>R</i> *	
	cps (185 keV)	/	cps (1297 keV)		cps (185 keV)	/		cps (1297 keV)
1	11.8963	/	1.4468	8.2225	23.5548	/	1.2618	18.6669
2	16.8425	/	1.6521	10.1945	25.0074	/	1.3808	18.1112
3	20.6719	/	2.0094	10.2878	28.5976	/	1.5348	18.6325
4					32.9777	/	1.8004	18.3171
Average				9.5683				18.4319
Standard Deviation				1.1664				0.2655
%Relative Standard Deviation				12.1905				1.4405

small for all elements to be determined. Then, it can be concluded that the homogeneity of NIST urban particulate matter is very good even at small portion of sample.

4.5 Correlation of elements in sample

Now, the comparison with the standard deviation (σ) or *R* and *R** give useful information about the correlation of elements in the sample. Table 5 shows the results of NIES vehicle exhaust particulates. Comparing the value or *R*, the relative standard deviations in the case of Ni and Zn were larger than that of Pb and Sb. Therefore, the homogeneity of Ni and Zn are not better than that of Pb and Sb. The relative standard deviations of Pb/Ca, Sb/(Ca or Na) in the untreated sample were smaller than that of Pb/Mg and Sb/Mg, respectively. Contrarily, the relative standard deviations of Ni/Ca, Zn/(Ca or Na) in the untreated sample were larger than that of Ni/Mg and Zn/Mg. This means that the group of Pb, Sb, Ca and Na existed in the same location or cluster in the sample, but Mg had not so strong affinity with Pb and Sb, and also with Ni and Zn. And, again, Ni and Zn hardly existed in the same location as Ca and Na, and also Pb and Sb. Titanium showed the similar

Table 5. The relative standard deviations of activity ratio of several pairs of elements in the untreated sample and the standard addition sample of NIES vehicle exhaust particulates.

a) Element = Ni (Ni-57, 1378 keV)			c) Element = Pb (Pb-203, 279 keV)		
Internal standard	%RSD (R)	%RSD(R*)	Internal standard	%RSD (R)	%RSD(R*)
Ca(K-43, 373 keV)	8.5	3.3	Ca(K-43, 373 keV)	0.3	2.0
Ca(K-43, 617 keV)	8.2	3.6	Ca(K-43, 617 keV)	0.6	2.6
Ca(Ca-47, 1297 keV)	8.9	3.9	Ca(Ca-47, 1297 keV)	1.2	2.5
Mg(Na-24, 1369 keV)	5.1	1.8	Mg(Na-24, 1369 keV)	4.0	1.5

b) Element = Zn (Cu-67, 185 keV)			d) Element = Sb (Sb-122, 564 keV)		
Internal standard	%RSD (R)	%RSD(R*)	Internal standard	%RSD (R)	%RSD(R*)
Ca(K-43, 373 keV)	12.8	0.4	Ca(K-43, 373 keV)	1.4	2.2
Ca(K-43, 617 keV)	12.3	1.3	Ca(K-43, 617 keV)	1.1	1.6
Ca(Ca-47, 1297 keV)	12.2	1.4	Ca(Ca-47, 1297 keV)	1.2	2.9
Mg(Na-24, 1369 keV)	6.8	2.8	Mg(Na-24, 1369 keV)	6.0	4.8
Na(Na-22, 1275 keV)	13.0	4.2	Na(Na-22, 1275 keV)	1.2	2.0

behavior as Ni and Zn. Finally, it was ascertained that the homogeneities of Ni, Zn, Ti and Mg in the NIES sample itself were not so good.

4.6 Detection of nuclear interference

If we can get an accurate concentration of certain element in the sample, a systematic error on the other experimental condition can be detected easily by applying the ISM-SAM. For example, Sc can be sensitively determined by detecting ^{44}Sc can be also induced through $^{46}\text{Ti}(\gamma, \text{pn})^{44}\text{Sc}$ reaction and the determination of Sc is interfered. As the Q -value of this reaction is -21.7 MeV, nuclear interference can be suppressed by 20 MeV photon activation.

In the case of NIST coal fly ash, analytical results of Sc by 30 MeV and 20 MeV photon activation were $55.3 \mu\text{g/g}$ and $39.0 \mu\text{g/g}$, respectively. Then, we can estimate the degree of interference by Ti ($8000 \mu\text{g/g}$) as $16.3 \mu\text{g}$, that is, $1 \mu\text{g}$ of Ti equals to $2 \times 10^{-3} \mu\text{g}$ of Sc. Up to now, such a small degree of nuclear interference problem could not be accurately detected by the usual method.

Instrumental photon activation with bremsstrahlung of $E_{\text{max}} = 30$ MeV has been used for the routine analysis of geological materials, because of its high sensitivity. But, we often meet the nuclear interference problems in the case of 30 MeV photon activation. Then, the combined use of ISM-SAM and standard material would be also useful to detect the

unavoidable systematic errors, such as nuclear interference.

§5. Conclusion

As mentioned in the section of principle, various systematic errors can be eliminated by the ISM-SAM. Therefore, the information of homogeneity of elements and/or correlation between elements in the sample and/or the standard addition sample is clearly revealed in the course of quantitative evaluation by using multiple internal standards. For example, if $\sigma_R > \sigma_{R^*}$ is always true for one interesting element, this element is not homogeneously contained in the sample itself. If σ_R of one internal standard is larger than those of other internal standards, this internal standard element is not homogeneously distributed in the sample. Conversely, if $\sigma_R > \sigma_{R^*}$ is always true for a certain element, this element in the standard addition sample is not homogeneous. If σ_R of a particular pair of elements is larger than other pairs, this couple did not exist in the same location in the sample.

This self-checking power of analytical results by the ISM-SAM is very significant. Therefore, the ISM-SAM will play the important role in the standardization work especially for materials with complex matrix composition, such as environmental materials, because of the above mentioned features. Additionally, the ISM-SAM would be applied to various activation methods including prompt nuclear technique.

References

- 1) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **83** (1984) 319.
- 2) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **111** (1987) 359.
- 3) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. **109** (1987) 449.
- 4) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. **100** (1986) 287.
- 5) M. Yagi and K. Masumoto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **109** (1987) 337.
- 6) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. **116** (1987) 375.
- 7) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. **121** (1988) 131.
- 8) K. Masumoto and M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. **152** (1991) 55.
- 9) G. Leliaert, J. Hoste and Z. Eeckhaut : Nature **182** (1958) 600.
- 10) K. Masumoto, S. -I. Ushino, M. Mutoh and M. Yagi : Anal. Sci. **7 suppl.** (1991) 743.

光量子放射化による高純度材料中のフッ素の分析 (II)

三菱マテリアル中研, 核理研*

桜井宏行・竹谷 実・佐山恭正

榎本和義*・大槻 勤*

Trace amounts of fluorine in high purity materials has been determined by photon activation analysis using the $^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$ reaction.

After the sample was irradiated with 30MeV bremsstrahlung for 1hr, fluorine was separated as HF by fusion and combustion of the irradiated sample in a moist oxygen stream. The HF gas was then collected by passing through traps containing NaOH solution, and precipitated as LaF_3 to measure the positron annihilation gamma-rays. As a result, about 80% of fluorine can be purely separated with a good reproducibility, and the detection limit of fluorine was found to be $0.03 \mu\text{g/g}$.

§ 1. 序

新しい材料の研究開発の立場から軽元素の高精度高感度分析法の開発に対して以前にも増してより大きな関心が寄せられている。サイクロトロンや電子リニアックを利用する放射化分析はその高い感度を活かし、酸素、窒素、炭素などの検出、定量に活用されてきた¹⁻⁴⁾。また、我々もこれまでに光量子放射化分析法による微量炭素分析法の開発を行い、銅⁵⁾、砒化ガリウム⁶⁾、砒素及びガリウム⁷⁾、錫⁸⁾、高純度銅表面⁹⁾の炭素分析に応用してきた。

軽元素の中でフッ素は中性子放射化や荷電粒子放射化では分析に適した核種が生成しがたいため、定量が難しく、報告例も少ない。

従来のフッ素分析法であるアリザリンコンプレクソン吸光光度法、イオンクロマトグラフィーでは、マトリックス元素からの妨害を除くため、フッ素の定量的な分離が必要である。また、簡便な定量法として利用されているイオン電極法での定量下限は数10ppm~100ppm程度であり、高純度材料の品質管理に十分な感度とはいえない。

一方、電子リニアックを利用する光量子放射化法では $^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$ ($T_{1/2}=109.8\text{min}$) 光核反応により生成する ^{18}F からの陽電子壊変にともなう511keV 消滅放射線を検出することによりフッ素を高感度に分析することが可能である¹⁰⁾。また、放射化分析では放射化後担体を加

加えて化学分離を行うことができるため、他の分析法に比べて回収率を正確に見積もることができるという特徴がある。そこで、ppm レベル以下のフッ素を定量することを目的として光量子放射化分析法の検討を行った。

前回の核理研研究報告¹¹⁾では、照射試料からのフッ素の分離法として蒸留法を用いた定量法について報告したが、今回は種々の組成の試料に適用でき、簡便、迅速性に優るパイロリシス法の検討を行った。また、フッ素定量に関する妨害核反応の検討も行った。

§ 2. 実 験

2.1 試薬及び試料

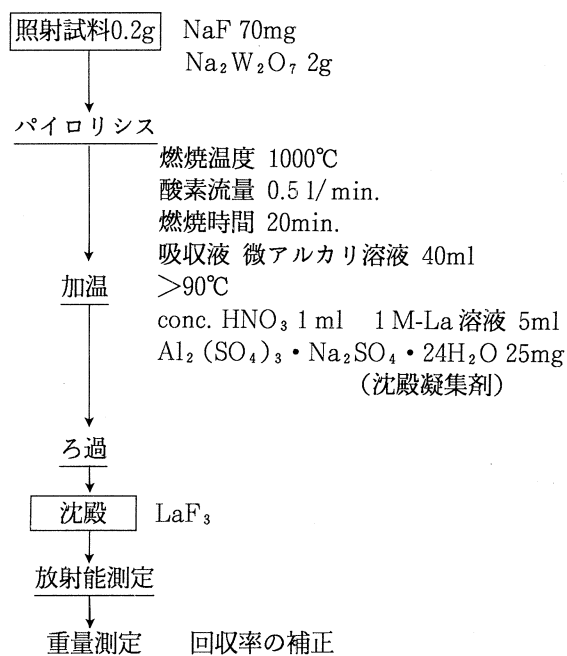
試薬はすべて特級以上のもの、酸は精密分析用を使用し、水は再蒸留して用いた。標準試料には NBS SRM91 Opal Glass (F=5.73%) を用い、分析試料としては石英ガラス、フッ素を適当な濃度に調製したシリカゲル合成標準試料、酸化テルビウム及び日本地質調査所配布の標準岩石 JB - 1, JG - 1 を選んだ。

2.2 照 射

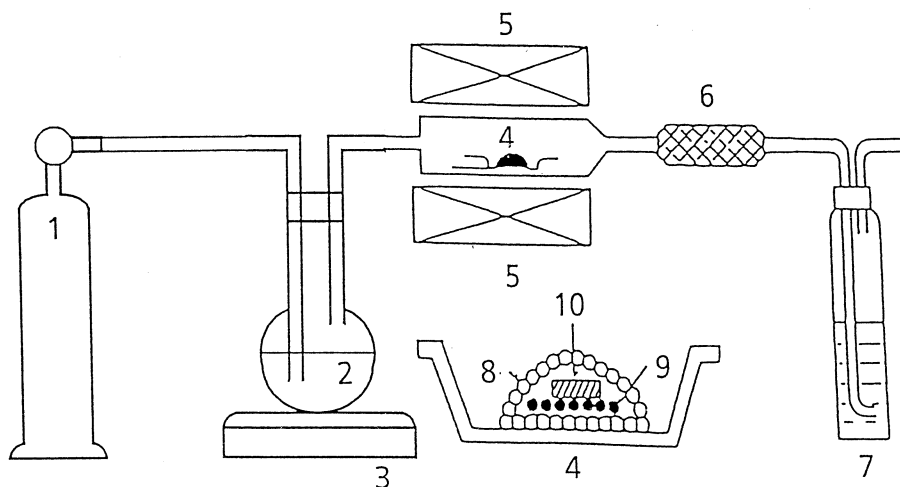
試料200mg を、厚さ10 μ m の高純度アルミニウム箔で二重に包装し、直径10mm のディスク状に成型した。各試料は照射線束モニターの Ni 箔とともに照射用石英管内に並べ封入の後、水冷照射ホルダー内の厚さ 2 mm の Pt コンバーター後方 3 ~ 5 cm の位置に固定した。電子加速エネルギー 30MeV、平均電流約100 μ A の電子線を Pt コンバーターで制動放射に変換し、1時間照射した。

2.3 化学分離

分離操作を第1図に示す。また、パイロリシスの実験装置を第2図に示す。照射後、試料とキャリアをフラックスで上下から覆うようにしてアルミナポートに乗せ、1000 $^{\circ}$ Cの管状電気炉にいれた。キャリアには NaF あるいは NBS SRM91、フラッ



第1図 フッ素の分析スキーム。



第2図 フッ素の化学分離装置。

1. 酸素 2. H_2O 3. ヒーター 4. アルミナボート
 5. 電気炉 6. 石英ウールフィルター 7. 捕集瓶 (希 NaOH 溶液)
 8. フラックス 9. キャリア 10. 試料

クスには $\text{Na}_2\text{W}_2\text{O}_7$ を用いた。フッ素は、水蒸気飽和の酸素気流中 ($500 \text{ cm}^3/\text{min.}$) で20分間加熱することにより HF として分離され、発生した HF は希 NaOH 溶液でトラップし捕集した。分離したフッ素は捕集液を加温し、 HNO_3 で酸性にした後、直ちに 1M La 溶液を添加して LaF_3 として沈殿させた。生成した沈殿はあらかじめ秤量した直径 25mm のろ紙上に均一に集めた。ろ紙はポリエチレン袋にいれ、ポリエチレンシャーレ内に固定して測定用試料とした。

フッ素の回収率は、放射能測定終了後、ろ紙を乾燥し秤量して求めた。

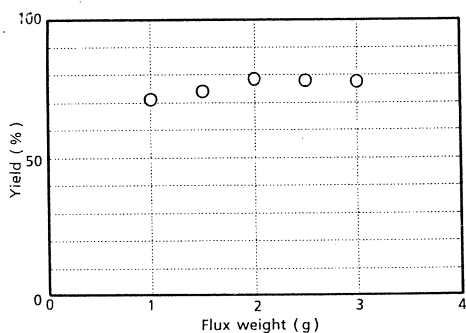
2.4 放射能測定

^{18}F からの陽電子壊変に伴う 511keV の消滅放射線の測定は Ortec 社製 Pure Ge 検出器 (分解能; 1.9keV, 相対効率; 30%) を東芝 NAIG 製 E シリーズ MCA に接続し、マイクロロボットによる自動試料交換装置を用いて繰り返し測定を行った¹²⁾。測定は約半日にわたり継続した。

§ 3. 結果と考察

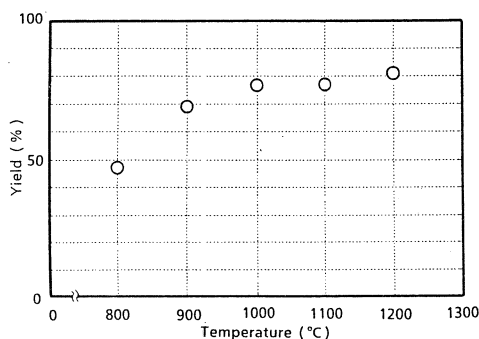
3.1 分離条件の検討

パイロリシス法の最適分離条件を求めるためにフラックスの種類及びフラックスの量、酸素流量、燃焼温度、燃焼時間について検討を行った。フラックスとして WO_3 、 V_2O_5 、 SiO_2 及び $\text{Na}_2\text{W}_2\text{O}_7$ の 4 種を検討したが、他の条件を統一して最も回収率のよかった $\text{Na}_2\text{W}_2\text{O}_7$ を



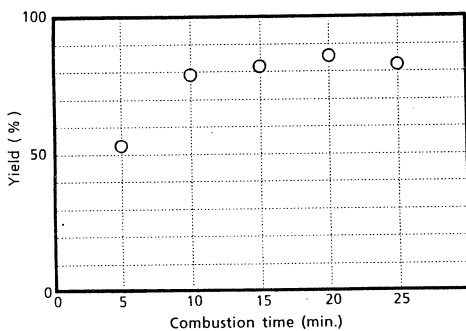
第3図 フラックス量とフッ素回収率の関係。

O₂ gas flow rate : 1.0 l/ min.,
 Combustion time : 15min.,
 Temperature : 1000°C, Sample : NBS
 SRM91 500mg (F ; 28.65mg)



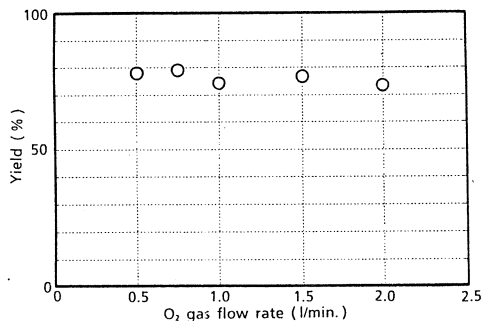
第4図 酸素流量とフッ素回収率の関係。

Flux : Na₂W₂O₇ 2g,
 Combustion time : 15min.,
 Temperature : 1000°C, Sample : NBS
 SRM91 500mg (F ; 28.65mg)



第5図 燃焼温度とフッ素回収率の関係。

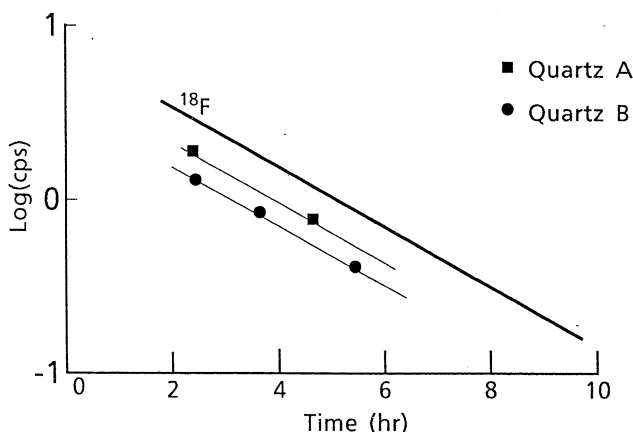
Flux : Na₂W₂O₇ 2g,
 O₂ gas flow rate : 1.0 l/ min.,
 Combustion time : 15min., Sample :
 NBS SRM91 500mg (F ; 28.65mg)



第6図 燃焼時間とフッ素回収率の関係。

Flux : Na₂W₂O₇ 2g,
 O₂ gas flow rate : 1.0 l/ min.,
 Temperature : 1000°C, Sample : NBS
 SRM91 500mg (F ; 28.65mg)

使用することにした¹³⁾。フラックス量とフッ素回収率の関係、酸素流量とフッ素回収率の関係、燃焼温度とフッ素回収率の関係、燃焼時間とフッ素回収率の関係をそれぞれ第3～6図に示す。検討条件以外の条件は各図に示した。第3図ではフラックスの量が増すにつれ、回収率が増加し、2g以上では一定になった。この結果からフラックス量は2gにした。第4図では酸素流量0.5～2.0 l/ min. の間で収率は若干の減少傾向を示した。そこで、酸素流量は0.5 l/ min. とした。第5図では温度が1000°Cまでは回収率が増加し、それ以上ではほぼ一定であった。これより燃焼温度は1000°Cとした。また、第6図では燃焼時間が5～10min. の間で回収率は急激に増加し、以降20min. まで緩やかに増加した。そこで燃焼時間は20min. とした。以上の条件でフッ素の回収率は平均で約80%であった。分離に要した総時間は1時間で蒸留法の2時間に対し半分に短縮できた。



第7図 化学分離後の石英試料からの511keV γ 線の減衰曲線。

また、第7図に化学分離後の減衰曲線を示すがこれより求めたフッ素の半減期は文献値(109.8min.)とよく一致し、本法により ^{18}F が放射化学的純度良く分離できていることが確かめられた。

3.2 フッ素の定量結果

本実験ではNBS SRM91 Opal Glassを比較標準試料としてフッ素の定量を実施した。定量結果を第1表に示す。石英試料A, Bは蒸留法の値と誤差の範囲でよく一致した。石英試料C

第1表 フッ素定量結果(パイロリシス法)。

試料名	定量値 ($\mu\text{g/g}$)	参考値 ($\mu\text{g/g}$)
Quartz A	1.2 ± 0.3 [5] *	1.1 ± 0.2 **
Quartz B	1.0 ± 0.2 [5] *	1.1 ± 0.2 **
Quartz C	1030 ± 60 [3] *	1000 ***
合成標準C	470 ± 20 [3] *	530 †
Terbium Oxide	2.2 ± 0.1 [3] *	

定量下限は $0.03 \mu\text{g/g}$ でB. G.の 10σ より算出

* [] 内は繰り返し回数

** 蒸留法による定量値

*** アルカリ溶融-イオン電極法による分析値

† 調製値

もイオン電極法で得られた定量値とよく一致した。合成標準試料は調製値より若干低めであった。希土類化合物は製法上フッ素混入の恐れがあるにもかかわらず、フッ素の定量が難しいとされてきた。そこで酸化テルビウム中のフッ素の定量に本法を適用したところ、非常に精度よく定量することができた。本実験条件下での定量下限はバックグラウンドの 10σ と定義すると

0.03 $\mu\text{g/g}$ の値が得られ, ppm レベル以下のフッ素が定量できることが分かった。

3.3 妨害核反応

マトリックス組成が複雑でフッ素の保証値がついている標準岩石 JB - 1, JG - 1 の分析にも本法を適用した。第 2 表に定量結果を示す。保証値に対し 50% 程度高い値を示した。これは妨

第 2 表 フッ素定量に対するナトリウムの影響 (30MeV)。

試料名	定量値 ($\mu\text{g/g}$)	補正定量値 ($\mu\text{g/g}$)	保証値 ($\mu\text{g/g}$)
標準岩石 JB - 1	590	450	393 [2.07%]*
標準岩石 JG - 1	720,750	550,580	496 [2.51%]*

*[] 内はナトリウム含有量。

定量値の補正は Na_2CO_3 を試料と共に照射して行った。

害核反応の影響であると考えられるが, ^{18}F の生成する核反応としては第 3 表に示すような例が上げられる¹⁴⁾。この中で核反応のしきい値などから $^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)^{18}\text{F}$ 反応によるものであると判断し, 炭酸ナトリウムを試料と同時に照射し妨害の程度を算定したところ, Na 1 g が F 6.92mg に相当することがわかった。しかし, この値を用いて定量値の補正を行ったが, 第 2 表に示したように補正してもまだ高い値となった。この問題については妨害核反応のしきい値 (20.9MeV) 以下の電子加速エネルギー 20MeV で照射実験を行い, 妨害核反応の有無を確認し, ナトリウム濃度の高い試料への本法の適用を検討する予定である。

第 3 表 ^{18}F が生成する核反応。

Reaction	Threshold (MeV)
$^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$	10.5
$^{20}\text{Ne}(\gamma, np)^{18}\text{F}$	21.1
$^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)^{18}\text{F}$	21
$^{24}\text{Mg}(\gamma, ^{18}\text{Li})^{18}\text{F}$	29
$^{24}\text{Mg}(\gamma, \alpha np)^{18}\text{F}$	30.4

第 4 表 蒸留法とパイロリシス法の比較。

	蒸留法	パイロリシス法
分離時間	約 2 hr	約 1 hr
試料重量	$\leq 200\text{mg}$	$\geq 200\text{mg}$
回収率	70~90%	70~90%
定量下限	$0.03 \mu\text{g/g}$	$\leq 0.03 \mu\text{g/g}$
簡便性	照射した試料を溶解後蒸留。 \triangle	照射した試料を即, 反応管に入れ分離。 \circ

3.4 蒸留法との比較

蒸留法とパイロリシス法の比較を第4表に示す。回収率と定量下限は両方法とも同程度であるが、分離時間は蒸留法では2時間かかったのに対しパイロリシスでは半分の1時間であった。試料重量も蒸留法では処理できる試料重量は200mgが上限であったがパイロリシス法ではさらに10倍量程度まで増加させることが可能である。従って定量下限をさらに向上させることができると考える。また、蒸留法では照射した試料をアルカリ融解した後、蒸留するのに対し、パイロリシス法では照射した試料を直ちに分離することが可能で、より簡便になる。このようにパイロリシス法がいくつかの点で優れている。特に、限られた施設を限られた時間利用する本実験のような場合簡便に多量の試料を扱えることは非常に重要であるといえる。

§ 4. ま と め

パイロリシス法によるフッ素の定量を検討し、実際に石英試料、フッ素合成標準試料、酸化テルビウム、標準岩石 JB-1, JG-1の分析に適用した。

石英試料では、さきに報告した蒸留法の値と今回検討したパイロリシス法の値はよく一致し、本法の正確さが証明された。また、フッ素合成標準試料はほぼ調製した濃度のフッ素濃度が得られ現在標準試料として用いている NBS Opal Glass にかわる標準試料として用い得る可能性が見いだせた。

各種材料への本法の適用例として、酸化テルビウム、標準岩石の分析を行ったが酸化テルビウムでは非常に再現性よく定量する事ができた。標準岩石では $^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)^{18}\text{F}$ 妨害核反応の問題が露見し、補正を試みたが補正しきれなかった。妨害核反応の影響については、この核反応のしきい値(20.9MeV)以下の照射を行うことにより更に検討する予定である。

本実験ではフッ素の分離法として、パイロリシス法の検討を行い、それを実試料に適用した。今回のパイロリシス法はさきに検討した蒸留法に比べ定量下限は同程度であったが、迅速性、簡便性に優れ更なる高感度化の可能性が見いだされた。

参 考 文 献

- 1) C. Engelmann : *Advances in Activation Analysis*, (eds. J. M. A. Lenihan, S. J. Thomson and V. P. Guinn, Academic Press, London, 1972) p. 1.
- 2) E. Ricci : *Advances in Activation Analysis* (eds. J. M. A. Lenihan, S. J. Thomson and V. P. Guinn, Academic Press, London, 1972) p. 221.

- 3) C. Segebade, H. - P. Weise, G. J. Luts : *Photon Activation Analysis* (Walter de Gruyter, Berlin, 1988) p. 221.
- 4) C. Vandecasteele : *Activation Analysis with Charged Particle* (Ellis Horwood, Chichester, 1988) p. 85.
- 5) A. Yoshioka, K. Nomura, M. Takeya, K. Shimura, K. Masumoto, M. Yagi : J. Radioanal. Nucl. Chem. **122** (1988) 175. : 核理研研究報告 **19** (1986) 98.
- 6) 吉岡 明, 野村紘一, 川上 紀, 志村和俊, 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **21** (1988) 42.
- 7) 吉岡 明, 野村紘一, 川上 紀, 深谷忠廣, 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **22** (1989) 195.
- 8) 吉岡 明, 野村紘一, 川上 紀, 深谷忠廣, 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **23** (1990) 29.
- 9) 吉岡 明, 野村紘一, 川上 紀, 深谷忠廣, 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **23** (1990) 37.
- 10) C. Segebade, M. Kuhl, B. F. Schmitt, R. Neider : J. Radioanal. Chem. **78** (1982) 665.
- 11) 桜井宏行, 川上 紀, 深谷忠廣, 佐山恭正, 榎本和義, 八木益男 : 核理研研究報告 **24** (1991) 84.
- 12) M. Yagi, K. Masumoto, M. Muto : J. Radioanal. Nucl. Chem. **98** (1986) 31.
- 13) E. G. Berns, P. W. Van Der Zwaan : Anal. Chim. Acta **59** (1972) 293.
- 14) J. S. Hislop, A. G. Pratchett, D. R. Williams : Analyst **96** (1971) 117.

豚の肝臓および脾臓中の微量元素の光量子放射化分析（予報）

石巻専修大学理工学部

福島美智子, 坂田 隆

§ 1. 序 文

生物体中の微量元素元素の役割を研究するためには、それら元素類の信頼しうる定量値が必要である。光量子放射化分析法は、多くの金属元素に対して高感度な多元素同時分析を行える分析法である。さらにこの放射化分析法の優れた点は、固体試料の非破壊分析を行えるということである¹⁾。そこで本研究では数種類の動物試料中の微量元素元素の多元素同時定量を光量子放射化分析で行うことにした。

生物試料を光量子放射化する際には、照射中の試料の損傷を避け、冷却効率を上げるために、一般的には生物試料を乾燥粉末にしてから照射する。しかし、乾燥粉末にした試料の粉末サイズ別の元素分布については検討が不充分である。そこで、動物試料中の微量元素元素を光量子放射化分析で定量するための条件を決定するために、試料の乾燥粉末をふるいのサイズ別に照射して金属元素の予備的な分析値を得たので報告する。動物試料としては豚の肝臓および脾臓を用いた。分析値の得られた元素はCa, Fe, Mg, Mn, Mo, Na, Ni, Pb, Rb, Sr, ZnおよびZrの11元素であった。

§ 2. 実 験

2.1 試料調製

宮城県仙北食肉衛生検査所において、屠殺、放血後の健康な成豚一頭から肝臓および脾臓を採取した。採取後に特別な処置は行わず、肝臓については右葉部分、脾臓については付着する脂肪をできるかぎり除いた後に脾臓全部をセラミックナイフを用いて、5-10 mmの厚さに切断した²⁾。切断した切片を臓器別にワーリングブレンダー容器に入れて12000 rpmの回転速度で3分間破碎した。処理後に得られたペースト状の試料を300 ml容のナス形フラスコに40-60 gずつ入れて-50°Cに温度調節した冷凍庫内で凍結させた後、EYELA製凍結乾燥器(FD-80)で36時間凍結乾燥をおこなった。乾燥後の試料の重量残率(乾燥重量(g)×100/生重量(g))は肝臓、脾臓について各々29.0±0.2%, 20.4±1.0%(平均値±標準偏差)であっ

た。乾燥後にナス型フラスコ中でガラス棒を用いて試料を細かく砕いてから、セラミック製ボールミルに移し、回転架台上で速度150 rpm で2時間回転させて粉碎した。試料粉末をステンレス製ふるいで分別し、ふるいのサイズ別に重量を測定した。第1表にふるいのサイズ別に得られた試料粉末の重量と、全乾燥重量に対する各サイズ別粉末重量の割合を示す。

第1表 Dry weight of powdered liver and spleen.

ふるいサイズ	肝 臓		脾 臓	
	乾燥重量 (g)	%	乾燥重量 (g)	%
<60 mesh	6.9	3.3	0.4	1.9
60-100 mesh	4.0	1.9	0.9	4.2
100-200 mesh	38.4	18.2	2.4	11.2
200 mesh <	161.1	76.6	17.7	82.7
合 計	210.4	100.0	21.4	100.0

2.2 照射試料

乾燥した粉末試料およそ200 mgをアルミニウム箔に包み、厚み約3 mm、直径10 mmの円柱状に成型した。試料照射の際に同時に放射化する標準試料としてNIST SRM 1633 a Coal Fly Ash 約200 mgを試料と同様の形状にして用いた。2個の標準試料で3個の分析試料をばさんで石英管に封入して照射試料とした。

2.3 照射および測定

東北大学原子核理学研究施設の電子線型加速器による30 MeV 制動輻射で、石英管に封入した試料を3時間照射した。照射後に、放射化された標準試料および分析試料をGe (Li) 半導体検出器、波高分析装置を用いて γ 線スペクトルを測定した。照射後から測定をおこなう間にもうけた冷却時間は約3時間、7時間、1.5日、5日、7日、20日、3ヶ月であった。

2.4 定 量

定量は、定量目的核種の標準試料の比放射能と、試料の放射能を比較して行なった。各元素の定量に用いた核種とその γ 線エネルギーを第2表に示す。Caについての分析値はK-43からの372.9 keV、617.8 keVの2本の γ 線とCa-47からの1297 keVの γ 線から得られる平均値とした。同様にZnについてはCu-67からの184.6 keVの γ 線と、Zn-65からの1115.5

第2表 Nuclear data for the analyzed elements.

Element	Target nuclide (abundance, %)	Reaction	Product nuclide	Half - life	γ -ray used / keV
Ca	Ca - 44 (2.09)	(γ , p)	K - 43	22.3 h	372.9, 617.8
	Ca - 48(0.187)	(γ , n)	Ca - 47	4.536 d	1297
Fe	Fe - 57(2.15)	(γ , p)	Mn - 56	2.579 h	846.8
Mg	Mg - 25 (10.0)	(γ , p)	Na - 24	15.02 h	1368.6
Mn	Mn - 55 (100)	(γ , n)	Mn - 54	312.2 d	834.8
Mo	Mo - 100 (9.62)	(γ , n)	Mo - 99	66.02 h	140.5
Na	Na - 23 (100)	(γ , n)	Na - 22	2.602 y	1274.6
Ni	Ni - 58 (68.3)	(γ , n)	Ni - 57	36 h	1377.6
Rb	Rb - 85 (72.15)	(γ , n)	Rb - 84	32.9 d	881.6
Sr	Sr - 88 (82.6)	(γ , n)	Sr - 87 m	2.8 h	388.4
Zn	Zn - 68 (18.56)	(γ , p)	Cu - 67	61.9 h	184.6
	Zn - 66 (27.81)	(γ , n)	Zn - 65	244.1 d	1115.5
Zr	Zr - 90 (51.5)	(γ , n)	Zr - 89	78.4 h	909.2

keV の γ 線から平均値を求めて分析値とした。

§ 3. 結果と考察

肝臓および脾臓中の11元素についてふるいサイズ別に得られた分析値の平均値を標準偏差とともに第3表, 第4表に示す。第3表より, 肝臓中の Ca, Fe, Mg, Rb および Zn の分析

第3表 Mean elemental abundances of powdered liver.

Element(ppm)	<60 mesh	60 - 100 mesh	100 - 200 mesh	200 mesh <
Ca	84.3±14.1	156.1±15.5	101.8±17.3	252.2±24.9
Fe	2044.8±94.2	1623.9±128.6	1397.0±80.8	1690.6±120.2
Mg	241.4±10.0	357.6±20.8	294.6±17.2	714.9±67.5
Mn	2.4±0.2	2.4±0.1	2.5±0.1	2.5±0.2
Mo	1.6±0.2	1.8±0.2	1.9±0.2	2.1±0.1
Na	1968.6±66.9	2039.9±24.9	2060.1±82.6	2173.6±87.0
Ni	1.7±0.8	0.8±0.4	0.6±0.4	1.5±0.4
Rb	20.0±7.8	22.3±5.3	21.1±6.7	27.7±2.0
Sr	0.2±0.1	0.3±0.1	0.3±0.2	0.1±0.1
Zn	233.1±31.3	258.4±19.8	263.0±12.5	282.8±12.6

第4表 Mean elemental abundances of powdered spleen.

Element (ppm)	60 - 100 mesh	100 - 200 mesh	200 mesh <
Ca	267.7±27.9	268.6±18.8	297.2±10.8
Fe	2764.9±560.5	2818.2±174.3	2801.0±184.8
Mg	882.0±8.4	881.5±31.0	958.5±13.6
Mn	1.7±0.1	1.8±0.2	1.8±0.2
Na	2668.8±66.2	2826.9±162.4	2979.5±71.8
Ni	1.6±0.1	2.2±1.0	2.5±0.1
Rb	46.6±1.6	48.1±2.4	49.9±1.4
Sr	0.3±0.2	0.3±0.2	0.2±0.1
Zn	92.6±3.4	90.4±16.8	99.5±4.7
Zr	0.8±0.2	0.6±0.2	0.7±0.2

値は乾燥粉末のふるいサイズ別に異なっている。また、第4表より脾臓中のCa, Mg, NaおよびZnの分析値からも粉末中の分布が異なるといえる。肝臓および脾臓のふるいサイズ別の粉末試料を光学顕微鏡で観察した結果とあわせると、臓器中の組織はふるいサイズ別の粉末にかたよって分布しているように思われる。

今後、数個体中の臓器の粉末試料に同様の検討を加えることにより、組織と金属元素の分布の関係が明らかになると思われる。

本研究を行なうにあたり、大変にお世話になった東北大学核理研の榎本和義博士、大槻勤博士ならびにマシングループの方々、職員の方々に感謝いたします。また、試料採取にあたり、宮城県仙北食肉衛生検査所の中村真平所長、御代田恭子さんに多大な便宜をはかっていただき、深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 福島美智子, 榎本和義, 岡部泰二郎: 核理研研究報告 **23.2** (1990) 244.
- 2) 三島昌夫: 環境中の微量金属測定 試料の前処理法 (化学同人, 1985).

東北本州弧, 高原火山噴出物の地球化学

山形大理, 理学部地学*, 教養部地学**,
秋田大教育***

伴 雅雄・山中孝之・井上道則*

吉田武義**・林信太郎***

青木謙一郎*

§ 1. はじめに

高原火山は, 栃木県北部の東北本州弧火山フロント上に位置する第四紀安山岩質成層火山である。東北本州弧の火山フロントは那須火山と, この高原火山との間でその延長方向を変えている。Kawano et al.¹⁾はこの火山配列の方向の変化が, 火山活動様式や岩石学的特徴の変化を伴っていると述べ, 那須岳以北を那須火山帯北帯, 高原火山以南を那須火山帯南帯に区分した。

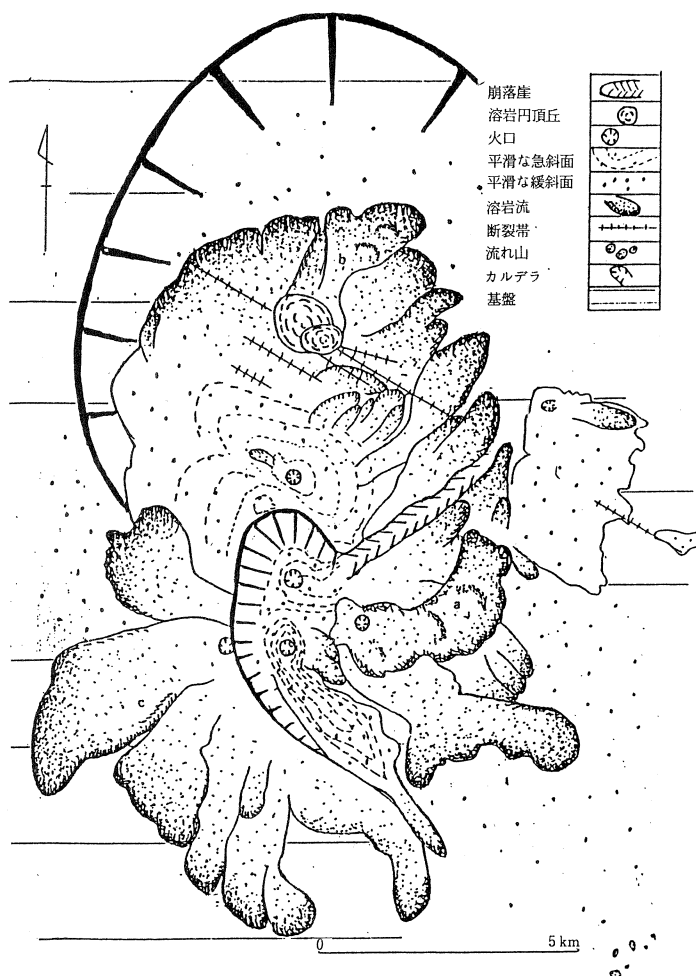
高原火山の研究としては, 金原²⁾, 岩生・今井³⁾, 池島・青木⁴⁾などがあり, その火山地質ならびに構成岩石の基本的な性格はすでに明らかにされている。近年, 島弧火山の発達史に注目した研究が多くなされている。例えば, 守屋⁵⁾は日本の火山をその地形発達史にもとづいて, A型火山(円錐火山・小カルデラ火山・多輪廻の溶岩円頂丘火山), B型火山(大カルデラ火山), C型火山(一輪廻火山)の3系列に分類している。各火山系列は特有の発達史をもち, 火山体の発達にともなう噴火様式, 鉱物組成, 化学組成などの様々な性格の変化の様子も異なっている。このような発達史的立場から火山を研究することは島弧火山の成因を理解する上で不可欠の手続きであると思われる。

本論では, 高原火山の火山層序とともに, 噴出物の記載岩石学的性質, 光量子放射化法などによる主成分ならびに微量成分元素組成を報告する。そして, 高原火山における火山噴出物の地球化学的特徴ならびにその時間的変遷を述べ, さいごに, 守屋⁵⁾により後期型円錐火山に分類されている本火山がおそらく大カルデラ火山と後期型円錐火山が複合した火山であると考えられること, ならびにその意義を述べる。

§ 2. 高原火山

2.1 地形概説

第1図に高原火山の地形分類図を示す。高原火山噴出物は南北, 東西ともに約15kmの範囲



第1図 高原火山の地形分類図。

に分布している。南から西平岳，鶏頂山，釈迦ヶ岳，明神岳，前黒山，富士山等のピークが南北に連なっており，それらのピークから周囲へ噴出物を流出している。尾根から約5 km以内では溶岩流の末端崖と側端崖がよく観察できる。剣ヶ峰から東方へ流下している溶岩流の表面には溶岩じわが認められる。

高原火山は地形的には北部の塩原火山と南部の釈迦ヶ岳火山に大別することも可能である⁴⁾。北部の塩原火山側には富士山を中心とした直径約10 kmの南東方向に開いたカルデラが認められる。このカルデラは尾上⁶⁾により塩原カルデラと命名されている。南部には釈迦ヶ岳付近を中心とした直径約2 kmの南東方向に開いた馬蹄形のカルデラが発達する。

富士山付近には北西から南東へ走る5本以上の断列帯が認められる⁵⁾。そのうちの一本は南

東の月山まで連続している。また富士山はこの断列帯によって切られていない。高原火山の東方にはおよそ南北に走る断層が認められる。この断層は高角東落ちの断層で関谷断層と名付けられている⁷⁾。

2.2 地質概説

高原火山の基盤は古～中生代の地層、白亜紀～古第三紀の花崗岩、および新第三紀層からなっている。高原火山の活動の開始時期は、初期噴出物を挟在する塩原湖成層との層序関係や段丘の形成年代などから、更新世中期、35～40万年前と推定されている⁴⁾。また、Itaya et al.⁸⁾によって北部の一部の溶岩について約30万年のK-Ar年代が報告されている⁹⁾。そして、火山体の解析の程度やテフラとの被覆関係から更新世末期には活動を終えたと推定されている⁴⁾。高原火山の歴史時代における噴火記録はないが、富士山近傍の地下で群発性微小地震が1979年2月に発生している⁹⁾。また、富士山ドームの西側にある新湯では現在でも微弱な硫気の活動がある。

高原火山の火山地質は池島・青木⁴⁾に詳しく述べられている。池島・青木⁴⁾によれば本火山の火山形成史は、その火山活動様式と噴出位置の移動によって4つの活動期に分けられる。第1活動期の噴出物は凝灰角礫岩と玄武岩質溶岩流である。これらの噴出物は山体の南東部、西部および山体中央部の深く侵食の進んだ沢において認められる。第2、第3活動期の噴出物は安山岩質溶岩流とそれに伴う火砕岩である。この活動期に塩原火山体、それに続いて釈迦ヶ岳火山体が形成された。池島・青木⁴⁾によれば、第4活動期には北部の富士山溶岩円頂丘と山体東部に分布する軽石流堆積物および釈迦ヶ岳東方に流下した溶岩流が形成されたとされている。

今回、特に第2、4活動期の噴出物について、各溶岩の分布を地質調査ならびに空中写真を用いて詳しく調べた。その結果は、大枠では池島・青木⁴⁾に近かった。そこで本報告では、溶岩ユニット名、噴出順序等については基本的には池島・青木⁴⁾に従う(第2図)。ただし、最近、尾上⁶⁾は高原火山の北側に直径が約10kmに達する比較的大きなカルデラが存在することを示し、これを塩原カルデラと呼んでいる。そして、鬼怒川地溝に約700km²にわたって広がり、体積が35km³に達する大田原軽石流堆積物が、おそらく塩原カルデラの形成に関係して形成されたものであろうと述べている。従って、本論では尾上⁶⁾に従い、池島・青木⁴⁾が第4活動期に形成されたと推定している大田原軽石流堆積物は塩原カルデラの形成に伴って噴出したものであり、第1活動期に属する噴出物であると考えた。小池ほか¹⁰⁾によると、大田原軽石流堆積物の下位の戸祭ローム層中のジルコンが約50万年前というフィッション・トラック年代を示している。塩原湖成層は従って、塩原カルデラ内に堆積した、カルデラ形成時～形成後の堆

積物であることになる。

岩生・今井³⁾は軽石流堆積物が高原凝灰角礫岩を整合ないし非整合で被覆していると述べている。このことは池島・青木⁴⁾が高原凝灰角礫岩として一括している地層が、塩原カルデラ形成を境にして、大田原軽石流堆積物の下位に位置するものと、その上位に位置し塩原湖成層中に挟在あるいはそれを被覆するものに二分されることを意味している（第1表）。地質図（第

第1表 高原火山噴出物の層序表。

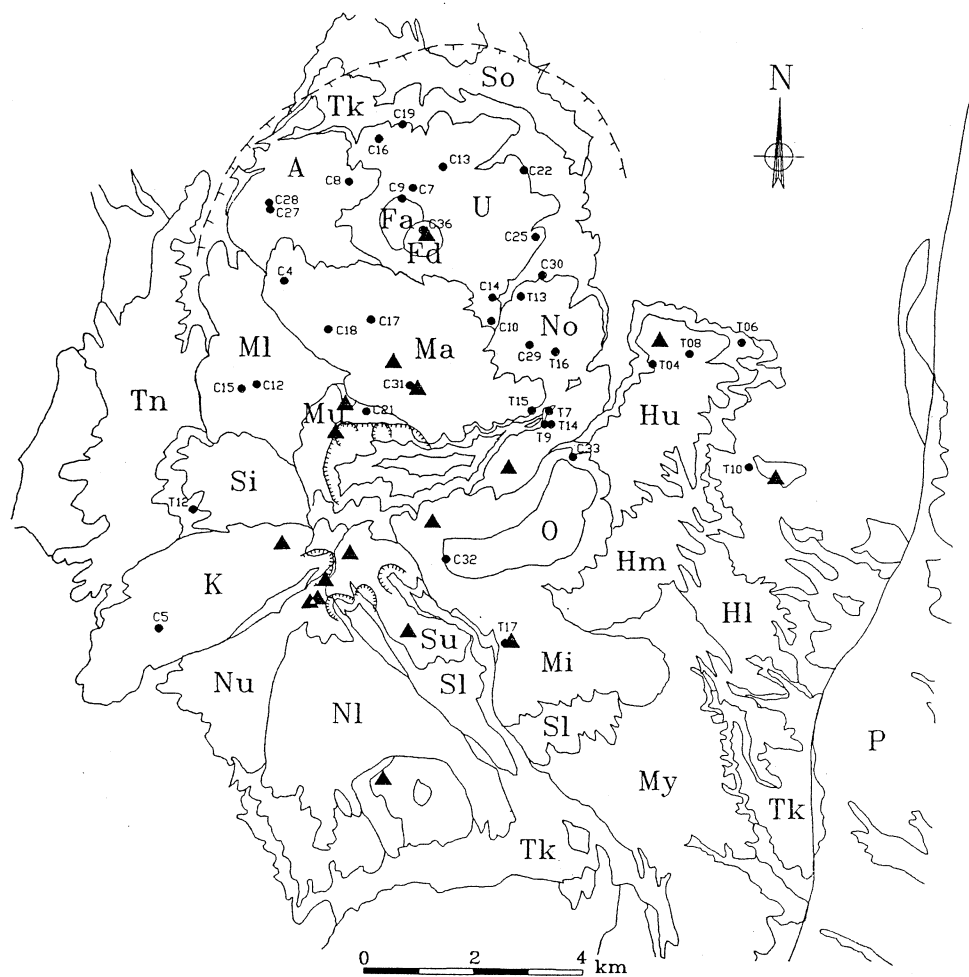
活動期	西～北部	東～南部
第5活動期	富士山デイサイト (Fd-F) 富士山安山岩 (Fa-B)	大間々溶岩 (O-E) みつもち溶岩 (Mi-D)
第4活動期		釈迦ヶ岳上部溶岩 (Su-B) 鶏頂溶岩 (K-B) 白滝溶岩 (Si-B) 西平岳上部溶岩 (Nu-B) 西平岳下部溶岩 (NI-B) 釈迦ヶ岳下部溶岩 (SI-B)
第3活動期	前黒溶岩 (Ma-B) 野地湯谷溶岩 (No-B) 明神上部溶岩 (Mu-B) 明神下部溶岩 (MI-B) 赤川溶岩 (A-B) 上の原溶岩 (U-B)	
第2活動期		八方原上部溶岩 (Hu-A) 八方原中部溶岩 (Hm-A, C) 宮川溶岩 (My-A) 高原凝灰角礫岩 (Tk-B?) 八方原下部溶岩 (Hl-A)
第1活動期	塩原湖成層 (So) 狸原溶岩 (Tn-A')	大田原軽石流 (P) 塩原カルデラ 高原凝灰角礫岩 (Tk-A)

記号のうち前は地質図中の記号に対応し、後ろは岩石タイプを表す。

2図)では区別していないが、おそらく、東部の関谷断層の西側に分布するものが前者に、塩原カルデラ内を埋めるものが後者に属する。このうち、前者は高原火山の現在の山体を作った火山活動と一連の噴出物であるかどうか定かでない。一方、後者の“火山角礫岩”には明らかに塩原層群の泥岩中に挟在するものがある。その大部分は、産状から判断して、カルデラ形成後に湖水中に流入して形成された自破碎溶岩流である⁵⁾。

第2図に池島・青木⁴⁾を一部修正した高原火山の地質図を示し、各噴出物の噴出順序を第1表に示す。この地質図では、上に述べた諸点の他に、池島・青木⁴⁾のみつもち溶岩をソレアイト質デイサイトからなるみつもち溶岩とその上に重なりカルクアルカリ質デイサイトからなる大間々溶岩（新称）に二分してある。現在、本火山の活動史を、著者の一人 (M. I.) が詳し

く調査中であり、この地質図は近い将来に少なくともその一部が改訂されると思われる。



第2図 高原火山の地質図⁴⁾と分析試料採取地点。

各地質境界は基本的には池島・青木⁴⁾に基づき、一部修正してある。修正点に関しては本文参照。各地質ユニットの記号は第1表中の記号に対応している。三角は山頂を表している。黒い点と記号は化学分析試料の採取地点を示している。

§ 3. 高原火山噴出物の記載岩石学的特徴

3.1 高原火山噴出物にみられる斑晶鉱物の組み合わせとモード組成

高原火山を構成する火山岩類の岩質は比較的多様であり、ソレライト系列のカンラン石玄武岩からカルクアルカリ系列の普通角閃石デイサイトに及んでいる。斑晶鉱物としては、カンラン石、普通輝石、紫蘇輝石、普通角閃石、鉄鉱、斜長石、石英を含む。これら高原火山噴出物について、今回100サンプルの斑晶モード分析を行った。分析は一枚の薄片につき3000ポイントのカウンタを行い体積%を求めた。その結果を第2表に示す。

斑晶鉱物のうち、斜長石は常に認められ、4%から最大32体積%におよぶ。斜長石を除く斑晶鉱物組み合わせとしては、玄武岩では4タイプ（カンラン石；カンラン石+普通輝石；カンラン石+紫蘇輝石+普通輝石；紫蘇輝石+普通輝石）あり、安山岩では3タイプ（カンラン石+紫蘇輝石+普通輝石；カンラン石+石英+紫蘇輝石+普通輝石；紫蘇輝石+普通輝石）が認められる。さらに、デイサイトでも3タイプ（紫蘇輝石+普通輝石；石英+紫蘇輝石+普通輝石；角閃石+石英+紫蘇輝石+普通輝石）ある。不透明鉱物は初期の玄武岩と後期のデイサイトの一部を除く、大部分の岩石で認められる。安山岩においては、カンラン石と石英は含まれたり含まれなかったりと一定していない。デイサイトでは石英を4%近く含むことがあり、また、角閃石斑晶を有するものが産する。高原火山噴出物にみられる、斑晶鉱物組み合わせの変化から推定される、斑晶鉱物の晶出開始順序は、カンラン石、斜長石→普通輝石～不透明鉱物→紫蘇輝石→石英→角閃石である。これは、高原火山を形成したマグマが、もっとも分化した段階では角閃石を晶出しているものの、比較的H₂Oに乏しかったことを示している¹¹⁾。

3.2 高原火山噴出物の分類：A～Fタイプ火山岩

高原火山噴出物をその斑晶鉱物組み合わせ、ならびに化学組成上の特徴から以下のような岩石タイプに分類することが可能である。(1) Aタイプ：ソレライト系列 Ol (±) Hy (±) Aug basalt, (2) A'タイプ：ソレライト系列 Ol (±) Hy Aug andesite, (3) Bタイプ：カルクアルカリ系列 Ol (±) Qz (±) Hy Aug andesite, (4) Cタイプ：ソレライト系列 Aug Hy andesite, (5) Dタイプ：ソレライト系列 Qz (±) Hy Aug dacite, (6) Eタイプ：カルクアルカリ系列 Hy Aug dacite, (7) Fタイプ：カルクアルカリ系列 Ho Aug Hy Qz dacite。これらの他に、軽石流中の軽石を構成する Hy Aug dacite (Pタイプ) や溶岩中に包有される苦鉄質包有物 (Wタイプ) などがある。

これらのうち、量的に最も多いのはBタイプのカルクアルカリ系列安山岩で、以下A (A'を含む)、D、C、Eと続き、Fタイプが最も少ない。

第2表 (その1)。

sample number	rock type	SiO ₂	Plag	Aug	Hy	Ol	Ho	Qz	Gm	Opq
		(Dry)								
1-Vc (T-01)	A:AugOl bas	50.54	31.0	0.2	0.0	1.1	0.0	0.0	67.5	0.1
8910034 (T-04)	A:AugHyOl bas	51.51	19.9	0.8	1.0	3.9	0.0	0.0	72.3	0.1
10-Vc (T-05)	A:HyAugOl bas	52.12	18.7	0.4	0.3	2.3	0.0	0.0	78.1	0.1
8908082 (T-06)	A:OlHyAug bas	52.95	29.0	3.4	2.3	0.2	0.0	0.0	64.9	0.1
8909282 (T-07)	A:HyAug bas	53.94	23.5	2.4	1.8	0.0	0.0	0.0	72.2	1.0
8909284 (T-09)	C:AugHy and	55.51	22.2	0.2	0.5	0.0	0.0	0.0	77.1	1.0
14-Vd (C-02)	B:HyAug and	55.74	16.5	4.0	2.2	0.0	0.0	0.0	77.3	0.0
8909299 (C-05)	B:OlHyAug and	55.97	19.7	4.9	3.3	0.1	0.0	0.0	71.2	0.8
8809294 (C-04)	B:QzHyAug and	55.97	17.7	3.0	1.7	0.0	0.0	1.2	75.0	1.4
8907213 (C-07)	B:HyAug and	56.32	24.6	4.5	3.1	0.0	0.0	0.0	67.4	0.4
8911024 (T-11)	C:AugHyOl and	56.51	29.0	0.3	0.6	1.6	0.0	0.0	68.5	0.0
8909292 (C-08)	B:HyAug and	56.52	15.7	3.0	1.1	0.0	0.0	0.0	79.0	1.2
8909297 (C-09)	B:QzOlHyAug and	56.75	24.2	4.2	3.8	0.4	0.0	0.1	66.5	0.8
8908242 (C-10)	B:OlHyAug and	57.13	24.3	3.3	2.3	0.3	0.0	0.0	69.2	0.7
8908035 (C-12)	B:OlHyAug and	57.34	23.5	5.4	2.8	0.1	0.0	0.0	67.5	0.7
8809291 (C-13)	B:OlQzHyAug and	57.48	20.2	3.6	1.9	0.3	0.0	0.9	72.2	1.0
8905241 (C-14)	B:QzHyAug and	57.49	21.2	4.4	4.2	0.0	0.0	0.3	69.0	0.9
8908031 (C-15)	B:QzHyAug and	57.65	20.7	7.1	3.3	0.0	0.0	0.2	67.8	0.9
6-Vd (C-11)	B:HyAug and	57.71	20.3	2.7	2.3	0.0	0.0	0.0	74.2	0.5
89072211 (C-16)	B:OlHyAug and	57.84	28.5	6.1	3.6	0.1	0.0	0.0	60.6	1.1
8908301 (C-17)	B:HyAug and	57.96	18.1	4.6	2.9	0.0	0.0	0.0	73.1	1.3
8809297 (C-18)	B:HyAug and	58.35	24.3	5.1	4.0	0.0	0.0	0.0	66.0	0.6
89072212 (C-19)	B:HyAug and	58.38	28.3	4.4	1.8	0.0	0.0	0.0	64.9	0.6
89052810 (C-21)	B:HyAug and	58.66	25.9	5.2	3.8	0.0	0.0	0.0	64.4	0.7
8907241 (C-22)	B:OlHyAug and	58.72	22.1	4.9	3.0	0.2	0.0	0.0	68.7	1.0
8907211 (C-25)	B:HyAug and	58.84	25.7	5.4	4.1	0.0	0.0	0.0	63.9	0.9
13-Vd (C-20)	B:HyAug and	58.92	10.6	2.2	0.9	0.0	0.0	0.0	85.7	0.5
8909298 (T-12)	A':HyAug and	59.15	8.8	1.0	1.0	0.0	0.0	0.0	88.7	0.5
3-Vd (C-23)	B:AugHy and	59.15	25.5	4.5	5.3	0.0	0.0	0.0	63.4	1.3
4-Vd (C-24)	B:OlHyAug and	59.17	23.0	2.3	1.8	0.1	0.0	0.0	71.8	0.9
8908293 (C-27)	B:HyAug and	59.65	19.5	5.0	3.4	0.0	0.0	0.0	70.6	1.4
8908292 (C-28)	B:HyAug and	59.74	19.5	4.6	4.3	0.0	0.0	0.0	70.3	1.3
8905238 (C-29)	B:QzAugHy and	60.68	25.2	3.9	4.8	0.0	0.0	0.1	64.3	1.7
8809283 (C-30)	B:QzOlAugHy and	60.91	18.5	1.9	2.6	0.1	0.0	0.1	74.8	1.0
8908041 (C-31)	B:HyAug and	61.31	26.8	4.0	2.1	0.0	0.0	0.0	65.7	1.4
8809285 (T-13)	C:AugHy and	64.25	20.7	5.5	5.7	0.0	0.0	0.0	67.5	0.6
8908092 (C-32)	E:HyAug dac	65.53	17.4	2.0	1.1	0.0	0.0	0.0	78.4	1.1
8909286 (C-33)	E:OlHyAug dac	66.03	15.8	2.2	1.5	0.1	0.0	0.0	79.5	1.0
8909285 (T-14)	D:HyAug dac	66.60	13.9	1.3	0.7	0.0	0.0	0.0	83.5	0.6
15-Vd (C-34)	E:HyAug dac	66.64	15.0	1.4	1.2	0.0	0.0	0.0	81.7	0.7
8909283 (T-15)	D:QzHyAug dac	66.91	11.6	1.8	1.2	0.0	0.0	0.8	83.7	0.9
8905237 (T-16)	D:HyAug dac	66.98	11.8	1.4	1.0	0.0	0.0	0.0	85.2	0.6
8905291 (T-17)	D:QzHyAug dac	67.66	12.1	0.9	0.6	0.0	0.0	0.3	85.6	0.4
7-VId (C-35)	F:HoAugHyQz dac	67.91	12.4	0.2	0.7	0.0	0.2	3.5	82.3	0.6
8905245 (C-36)	F:HoAugHyQz dac	68.60	12.7	0.4	1.9	0.0	0.2	3.5	80.5	0.6

第2表 高原火山噴出物のモード組成。

試料番号のうち、括弧中の記号は分析値番号に対応している。そのうち、Tはソライト系列岩を、Cはカルクアルカリ系列岩を表している。岩石タイプの最初の記号A~Fについては本文参照。岩石名中の記号はそれぞれ次の語に対応している。bas : basalt, and : andeside, dac : dacite, Ol : olivine, Aug : augite, Hy : hypersthene, Qz : quartz, Ho : hornblende

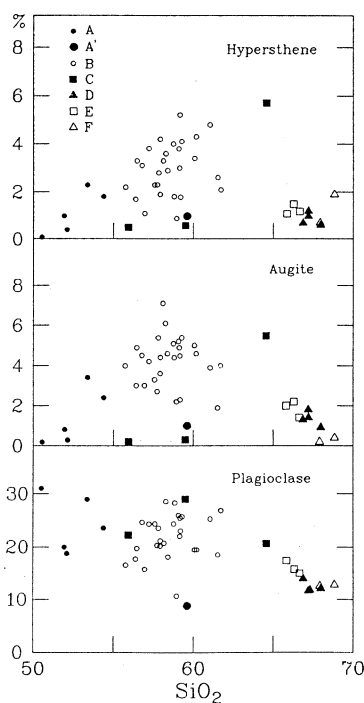
第2表 (その2)。

sample number	rock type	SiO ₂	Plag	Aug	Hy	Ol	Ho	Qz	Gm	Opq
8907227	B:HyAug and	--	26.2	4.4	3.0	0.0	0.0	0.0	65.7	0.8
8908033	B:OlHyAug and	--	26.9	6.8	4.1	0.1	0.0	0.0	62.0	0.1
89082310	B:OlAugHy and	--	24.4	5.1	5.3	0.2	0.0	0.0	64.7	0.6
8908034	B:OlQzHyAug and	--	22.4	2.7	0.9	0.1	0.0	0.3	73.5	0.2
8908042	B:AugHy and	--	23.4	2.3	2.6	0.0	0.0	0.0	70.2	1.5
8908245	B:OlAugHy and	--	23.6	4.4	4.8	0.2	0.0	0.0	66.2	0.8
8908302b	B:HyAug and	--	21.5	5.0	2.5	0.0	0.0	0.0	70.0	1.0
8908296	B:HyAug and	--	25.4	4.8	3.4	0.0	0.0	0.0	65.3	1.1
8910031	A:HyAug bas	--	32.0	0.4	0.4	0.0	0.0	0.0	67.1	0.1
8909295	A:OlHyAug bas	--	27.7	1.9	1.4	0.1	0.0	0.0	68.8	0.2
8908241	B:OlHyAug and	--	21.7	5.6	3.5	0.2	0.0	0.0	68.3	0.8
8905243	B:QzAugHy and	--	23.2	4.4	4.9	0.0	0.0	0.1	67.0	0.6
8908095	B:AugHy and	--	21.8	4.1	4.6	0.0	0.0	0.0	68.9	0.5
8907244	B:HyAug and	--	19.5	3.0	2.4	0.0	0.0	0.0	73.8	1.2
8905232	B:HyAug and	--	14.6	2.5	1.0	0.0	0.0	0.0	81.2	0.7
8907222	B:OlHyAug and	--	23.6	4.8	3.3	0.1	0.0	0.0	67.4	0.8
8905234	A:HyAug bas	--	27.4	2.2	1.6	0.0	0.0	0.0	75.5	0.0
8907242	B:OlHyAug and	--	21.9	4.2	2.7	0.3	0.0	0.0	69.7	1.2
8809292	B:QzOlHyAug and	--	23.3	4.5	2.0	0.8	0.0	0.6	67.5	1.4
8907224	B:HyAug and	--	20.4	5.0	3.0	0.0	0.0	0.0	70.6	1.0
8905288	B:HyAug and	--	23.8	5.8	4.9	0.0	0.0	0.0	64.8	0.7
8905244	B:OlHyAug and	--	25.2	4.0	3.8	0.2	0.0	0.0	66.0	0.7
8907229	B:OlHyAug and	--	24.7	5.4	2.8	0.2	0.0	0.0	66.2	0.7
8907223	B:OlHyAug and	--	25.1	3.4	2.1	0.3	0.0	0.0	68.5	0.6
8905242	B:QzOlHyAug and	--	17.8	3.5	2.9	0.4	0.0	0.1	74.4	0.9
8910036	A:AugOl bas	--	29.1	0.1	0.0	2.3	0.0	0.0	66.5	2.1
8907212	B:OlHyAug and	--	28.8	5.6	2.7	0.1	0.0	0.0	61.7	1.1
8905231	C:AugHy and	--	19.7	0.2	0.8	0.0	0.0	0.0	79.3	0.0
8908032	B:OlHyAug and	--	23.2	5.9	2.8	0.1	0.0	0.0	67.0	0.9
8911293	A':OlHyAug and	--	4.3	0.2	0.2	0.2	0.0	0.0	95.0	0.0
8908302a	B:HyAug and	--	21.9	5.9	4.4	0.0	0.0	0.0	66.9	0.9
880927	A:Ol bas	--	26.5	0.0	0.0	0.9	0.0	0.0	72.5	0.0
8908243	B:HyAug and	--	24.9	4.6	3.5	0.0	0.0	0.0	66.2	0.7
8905236	D:HyAug dac	--	12.0	1.3	1.2	0.0	0.0	0.0	84.4	1.0
8909291d	B:HyAug and	--	15.0	3.5	1.5	0.0	0.0	0.0	78.2	1.6
8909294	A:HyAug bas	--	28.0	1.7	1.3	0.0	0.0	0.0	68.9	0.1
8907228	B:OlHyAug and	--	27.6	6.0	2.5	0.3	0.0	0.0	62.8	0.8
8910035	A:HyAug bas	--	20.5	0.6	0.6	0.0	0.0	0.0	78.1	0.2
8905289	B:HyAug and	--	24.8	5.1	3.6	0.0	0.0	0.0	65.3	1.1
8910033	A:HyAug bas	--	17.9	1.1	0.9	0.0	0.0	0.0	79.7	0.3
8907225	B:HyAug and	--	30.0	5.1	2.7	0.0	0.0	0.0	61.6	0.6
8910032	A:HyAug bas	--	24.5	1.3	0.9	0.0	0.0	0.0	72.8	0.5
8908236	B:OlAugHy and	--	26.8	3.4	4.5	0.3	0.0	0.0	64.8	0.2
8909288	E:HyAug dac	--	17.2	2.1	1.4	0.0	0.0	0.0	78.6	0.7
8908239	B:OlHyAug and	--	15.9	2.4	1.0	0.1	0.0	0.0	79.5	1.1
8909291m	A:AugHy bas	--	17.9	1.3	1.7	0.0	0.0	0.0	78.1	1.0
8809293	B:QzOlHyAug and	--	24.5	5.5	3.0	0.6	0.0	0.3	64.5	1.7
8911294	A:HyAugOl bas	--	23.9	1.5	0.2	3.6	0.0	0.0	69.5	1.2
890723	B:OlHyAug and	--	27.1	4.8	2.2	0.3	0.0	0.0	64.6	0.9
8908091	E:HyAug dac	--	19.0	3.0	1.3	0.0	0.0	0.0	75.5	1.2
8905271	B:HyAug and	--	14.1	2.6	0.9	0.0	0.0	0.0	81.0	1.4
8908244	B:HyAug and	--	23.1	6.5	3.4	0.0	0.0	0.0	66.1	0.9
8905286	B:HyAug and	--	24.3	3.2	2.4	0.0	0.0	0.0	70.0	0.2
8905281	A:OlHyAug bas	--	25.6	1.2	0.6	0.4	0.0	0.0	72.1	0.1
880924	F:HoAugHyQz dac	--	15.8	0.2	1.6	0.0	0.2	4.2	77.3	0.8

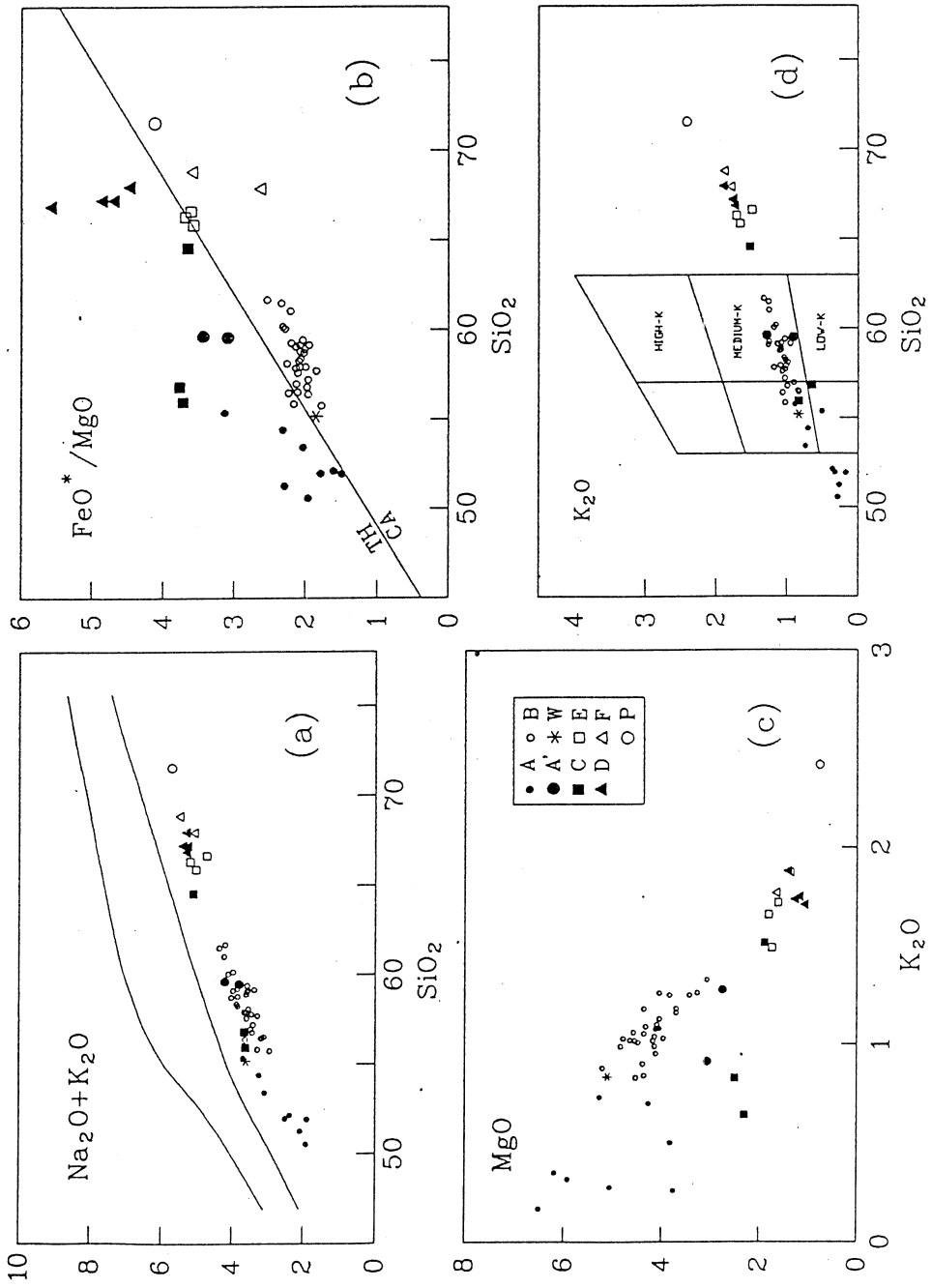
3.3 高原火山における斑晶モード組成変化

高原火山噴出物が示す斑晶モード組成変化を横軸に SiO_2 をとった図に示す (第3図)。各岩石タイプはそれぞれ固有の斑晶モード組成をもつことが図から分かる。特に、カルクアルカリ系列安山岩とソレライト系列安山岩の斑晶モード組成は明瞭に異なっている。例えば、同じ SiO_2 量で比較した場合、カルクアルカリ系列安山岩の方が常に斑晶量が多い。これは、斜長石斑晶量に関してはカルクアルカリ系列安山岩とソレライト系列安山岩との間に明瞭な違いは認められないものの、前者が輝石斑晶に富んでいるのに対して、後者では輝石斑晶が少ない傾向があるためである。Cタイプのソレライト質デイサイトのモード組成は特異であり、デイサイトとしては異常に輝石斑晶に富んでおり、ソレライト質安山岩と性格が異なっている。なお、 SiO_2 が65%を越えるデイサイトについては、ソレライト系列岩とカルクアルカリ系列岩との間に明瞭なモード組成差は認められない。

Aタイプの玄武岩にはカンラン石がほとんど含まれないものと、カンラン石斑晶が4%近く含まれるものとが認められる。カンラン石斑晶に乏しい玄武岩ではときに単斜輝石モードが2%を越えている。このことは、玄武岩が輝石斑状玄武岩とカンラン石斑状玄武岩とに分類できる可能性を示している。



第3図 高原火山噴出物における SiO_2 - 斑晶モード組成図。



第4図 高原火山噴出物の地球化学的特徴。
 (a) SiO₂ - Na₂O + K₂O 図, (b) FeO*/MgO - SiO₂ 図, (c) K₂O - MgO 図
 (d) SiO₂ - K₂O 図

§ 4. 試料の分析方法と分析結果

高原火山噴出物について、今回新たに38試料の主要成分化学分析を行った。分析は秋田大学教育学部地学教室において蛍光X線 (XRF) 法により行った。得られた全鉄 (total FeO) 量を, Irvine and Baragar¹²⁾の方法でFeOとFe₂O₃に分配した。この38個の分析値の他に、池島・青木⁹⁾より16個の主成分化学組成を引用した(以降の組成変化図ではこの16個を含めている)。分析結果を第3表に示す。TiO₂に関しては、池島・青木⁹⁾とXRFによる結果との間に系統的な差がみられたため、XRFによるデータと整合性のある光量子放射化法により得られたTiO₂の分析結果を用い、池島・青木⁹⁾のデータを補正して使用した。

また、一部の試料については光量子放射化法により、Ba, Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Zn, Zr およびYの13微量成分元素の分析を行った。試料の放射化には東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックを利用し、30 MeVの加速電子を用いて行った。照射試料についてのγ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を行った¹³⁾。分析結果を第4表に示す。一部の試料については、ICP発光法によりSrおよびBaが分析されている¹⁴⁾。BaについてはICP発光法による分析値がある場合はそれを使用した。

§ 5. 高原火山噴出物の地球化学的特徴

5.1 共存する低アルカリソレイトとカルクアルカリ系列岩

東北本州弧火山フロント火山である高原火山の噴出物には、玄武岩から安山岩、デイサイト、そして一部にSiO₂が70%を越える軽石がみられる。他の東北本州弧火山フロント側火山と同様に、SiO₂-アルカリ図¹⁵⁾(第4図(a))で低アルカリソレイトの領域にプロットされる。また他の火山フロント側火山と同様に、高原火山には、ソレイト・カルクアルカリ両系列の岩石が共存している。ソレイト系列 (TH系列) とカルクアルカリ系列 (CA系列) の識別にはFeO*/MgO-SiO₂図¹⁶⁾(第6図(b))を用いた。

なお、カルクアルカリ系列安山岩としてグルーピングされる岩石のうち、もっともSiO₂に乏しいSiO₂56%付近の試料において、一部の分析値が第4図(b)のTH領域にプロットされるが、これらは大部分のCA領域にプロットされる試料に漸移していることから、ここではこれらもカルクアルカリ系列に属するものとした。

K₂O-MgO図¹⁷⁾(第4図(c))によって、ソレイト系列岩とカルクアルカリ系列岩とを識別することが可能である。この図において、カルクアルカリ系列岩はK₂O, MgOともに高い側

第3表 高原火山噴出物の主要成分組成。

No.	Type	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	FeO	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	H ₂ O+	H ₂ O-	P ₂ O ₅	Total
T-01	A	49.87	0.84	19.98	4.69	5.02	0.11	4.96	11.21	1.60	0.28	0.63	0.45	0.12	99.76
T-02	A	51.31	0.74	21.52	2.17	6.39	0.15	3.75	11.90	1.81	0.26	0.25	0.20	0.12	100.57
T-03	A	51.59	0.80	18.77	2.55	7.04	0.13	6.44	10.04	1.70	0.17	0.27	0.10	0.11	99.71
T-04	A	51.51	0.78	18.05	2.28	8.15	0.18	5.85	9.77	2.16	0.32	-	-	0.11	99.16
T-05	A	52.29	0.69	18.09	3.67	6.24	0.15	6.18	10.51	2.03	0.35	0.19	0.09	0.12	100.60
T-06	A	52.95	0.88	17.17	2.38	8.16	0.17	5.21	9.05	2.32	0.72	-	-	0.14	99.15
T-07	A	53.94	0.85	17.85	2.35	7.38	0.17	4.23	9.10	2.50	0.69	-	-	0.12	99.18
T-08	A	54.77	1.18	15.38	2.68	9.09	0.20	3.77	8.10	3.15	0.49	-	-	0.14	98.95
T-09	C	55.51	0.89	18.49	2.39	6.82	0.14	2.48	8.80	2.75	0.82	-	-	0.16	99.25
T-10	C	56.51	0.92	18.86	2.42	6.11	0.14	2.27	8.44	2.99	0.64	-	-	0.13	99.43
T-11	A'	59.24	1.17	15.50	3.18	6.17	0.10	3.03	7.24	2.87	0.91	0.40	0.13	0.15	100.09
T-12	A'	59.15	0.86	16.16	2.36	6.95	0.16	2.71	6.59	2.89	1.27	-	-	0.12	99.22
T-13	C	64.25	0.78	15.20	2.28	4.55	0.13	1.87	5.22	3.55	1.51	-	-	0.16	99.50
T-14	D	66.60	0.71	15.48	2.21	3.55	0.12	1.04	4.49	3.53	1.70	-	-	0.17	99.60
T-15	D	66.91	0.75	15.02	2.25	3.53	0.11	1.23	4.43	3.47	1.73	-	-	0.16	99.59
T-16	D	66.98	0.74	15.19	2.24	3.20	0.11	1.13	4.57	3.60	1.74	-	-	0.15	99.65
T-17	D	67.66	0.54	14.69	2.04	4.06	0.11	1.37	3.78	3.37	1.87	-	-	0.06	99.55
C-01	W	54.74	0.78	16.75	2.28	6.93	0.16	5.03	8.87	2.76	0.82	-	-	0.10	99.22
C-02	B	54.64	0.76	16.93	4.23	4.81	0.12	5.10	8.42	2.02	0.86	0.68	0.62	0.14	99.33
C-03	B	55.47	0.81	17.00	3.76	6.19	0.17	4.61	7.95	2.25	1.01	0.48	0.34	0.13	100.17
C-04	B	55.97	0.68	17.19	2.18	6.67	0.15	4.53	8.20	2.55	1.05	-	-	0.10	99.27
C-05	B	55.97	0.87	16.84	2.37	7.61	0.18	4.48	7.58	2.32	0.82	-	-	0.11	99.15
C-06	B	55.77	0.82	16.92	2.65	6.43	0.12	4.30	8.46	2.23	0.83	0.69	0.43	0.17	99.82
C-07	B	56.32	0.76	16.50	2.26	7.20	0.15	4.79	7.72	2.42	0.98	-	-	0.11	99.21
C-08	B	56.52	0.79	16.97	2.29	6.97	0.17	4.35	7.60	2.56	0.89	-	-	0.12	99.23
C-09	B	56.75	0.79	16.62	2.29	6.99	0.16	4.74	7.41	2.35	1.02	-	-	0.09	99.21
C-10	B	57.13	0.77	16.49	2.27	6.82	0.16	4.32	7.60	2.51	1.05	-	-	0.12	99.24
C-11	B	56.99	0.81	17.02	2.35	5.95	0.13	4.48	7.69	2.23	1.01	0.49	0.36	0.10	99.61
C-12	B	57.34	0.74	16.42	2.24	6.95	0.16	4.32	7.53	2.25	1.17	-	-	0.09	99.21
C-13	B	57.48	0.80	17.12	2.30	6.58	0.16	4.45	6.71	2.56	1.00	-	-	0.12	99.28
C-14	B	57.49	0.75	16.24	2.25	6.64	0.15	4.29	7.72	2.54	1.08	-	-	0.10	99.25
C-15	B	57.65	0.75	16.38	2.25	7.02	0.15	4.11	7.30	2.53	0.98	-	-	0.10	99.22
C-16	B	57.84	0.75	16.35	2.25	6.39	0.16	4.15	7.48	2.79	1.01	-	-	0.13	99.30
C-17	B	57.96	0.75	16.63	2.25	6.27	0.15	4.12	7.22	2.81	1.03	-	-	0.11	99.30
C-18	B	58.35	0.73	16.68	2.23	5.97	0.15	4.07	7.04	2.90	1.09	-	-	0.12	99.33
C-19	B	58.38	0.74	16.20	2.24	6.22	0.15	4.09	7.38	2.74	1.07	-	-	0.10	99.31
C-20	B	57.94	0.78	16.37	2.35	5.68	0.12	4.01	7.40	2.48	1.06	0.46	0.54	0.14	99.33
C-21	B	58.66	0.77	16.10	2.27	6.29	0.16	4.01	7.42	2.29	1.25	-	-	0.10	99.32
C-22	B	58.72	0.75	16.55	2.25	6.05	0.15	4.01	6.76	2.83	1.12	-	-	0.13	99.32
C-23	B	57.91	0.75	16.69	2.59	5.27	0.11	4.03	6.98	2.55	0.93	1.33	0.56	0.09	99.79
C-24	B	58.39	0.78	16.00	3.06	5.36	0.12	4.00	7.53	2.26	1.07	0.57	0.36	0.12	99.62
C-25	B	58.84	0.74	16.50	2.24	6.13	0.15	3.81	6.99	2.57	1.24	-	-	0.10	99.31
C-26	B	58.06	0.75	16.39	2.74	5.16	0.12	3.87	7.02	2.48	1.01	0.69	0.55	0.13	98.97
C-27	B	59.65	0.74	15.90	2.24	6.15	0.14	3.67	6.62	2.91	1.17	-	-	0.12	99.31
C-28	B	59.74	0.74	16.09	2.24	6.25	0.14	3.67	6.38	2.79	1.15	-	-	0.10	99.29
C-29	B	60.68	0.73	16.16	2.23	5.29	0.14	3.41	6.49	2.95	1.24	-	-	0.10	99.42
C-30	B	60.91	0.72	15.86	2.22	5.34	0.15	3.24	6.15	3.07	1.25	-	-	0.12	99.03
C-31	B	61.31	0.70	16.10	2.20	5.53	0.12	3.05	6.08	2.84	1.32	-	-	0.13	99.38
C-32	E	65.53	0.71	15.08	2.21	4.20	0.12	1.79	4.78	3.34	1.65	-	-	0.13	99.54
C-33	E	66.03	0.68	15.32	2.18	3.73	0.12	1.60	4.68	3.42	1.71	-	-	0.12	99.59
C-34	E	66.21	0.69	15.05	2.53	3.67	0.09	1.72	4.56	3.21	1.48	0.44	0.44	0.14	100.23
C-35	F	67.41	0.52	15.74	1.59	2.64	0.06	1.62	4.60	3.24	1.76	0.63	0.27	0.08	100.16
C-36	F	68.60	0.43	14.90	1.93	2.86	0.11	1.35	3.99	3.57	1.86	-	-	0.08	99.68
C-37	P	69.56	0.57	14.30	0.67	2.32	0.04	0.73	3.34	3.20	2.35	2.64	0.33	0.15	100.20

番号は第2表の括弧中の番号に対応している。Tはソレライト系列岩，Cはカルクアルカリ系列岩を表す。タイプ，A，A'，B，C，D，E，F，P，Wについては本文参照。分析データのうち，H₂O±の値が示されている試料は池島・青木⁴⁾から引用したデータであり，それ以外のH₂O±が示されていないデータが今回，蛍光X線法により分析した結果である。

No.	T-01	T-03	T-05	T-11	C-02	C-03	C-06	C-11	C-20	C-23	C-24	C-34	C-35	C-37
Name	1-VC	11-VC	10-VC	9-VC	14-Vd	2-VC	12-VC	6-Vd	13-Vd	3-Vd	4-Vd	15-Vd	7-VId	16-V
Type	A	A	A	A'	B	B	B	B	B	B	B	E	F	P
SiO ₂	49.87	51.59	52.29	59.24	54.64	55.47	55.77	56.99	57.94	57.91	58.39	66.21	67.41	69.56
Sc	29.9	24.2	21.2	30.9	26.3	22.4	24.7	24.9			19.7	20.6	13.1	12.6
Cr	81.8	85.3	86.7	18.5	58.9	73.3	29.7	72.1			43.9	13.3	0.4	7.7
Co	34.0	34.8	33.8	20.9	28.8	27.4	23.5	27.8			24.4	11.1	8.1	1.9
Ni	30.7	42.6	35.3	9.2	26.5	30.7	11.1	29.8			18.8	2.9	4.5	2.0
Zn	90	84	88	112	89	117	99	78			68	68	57	31
Rb	3.0	6.0	4.5	29.0	23.9	31.1	21.4	37.3			33.4	52.2	58.3	78.5
Cs	0.07	0.08	-	-	0.54	0.57	0.32	2.83			0.79	0.69	2.59	3.35
Sr	306	299	268	257	255	270	251	258			232	219	237	195
Ba	171	121 [#]	116 [#]	299 [#]	250 [#]	281 [#]	213 [#]	287 [#]	264 [#]	253 [#]	298	464 [#]	474 [#]	555 [#]
Ce	8.0	9.8	9.2	21.6	18.4	20.3	17.4	21.4			21.1	31.6	28.2	38.9
Y	17.1	13.9	15.3	30.3	19.2	22.8	21.6	22.4			23.4	32.9	20.8	44.5
Nb	1.7	1.3	1.9	3.7	2.7	3.5	3.5	3.6			4.1	5.9	5.1	6.3
Zr	32.1	40.6	39.4	111	82.6	98.5	74.1	97.2			119	153	127	201

#: ICP-AES⁽¹⁴⁾

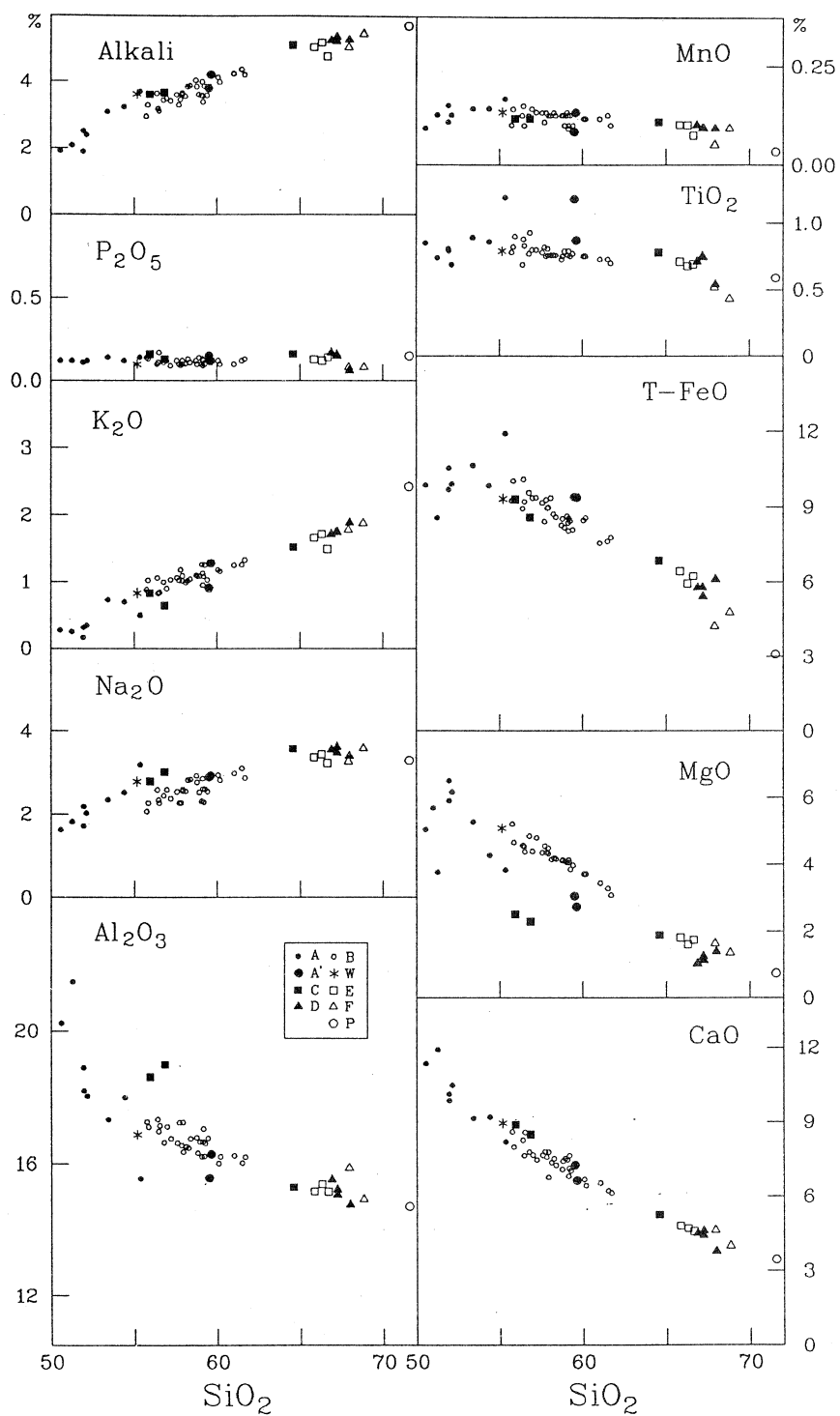
第4表 高原火山噴出物の微量元素組成。
試料番号 (No.) は第3表中の番号に対応している。名称 (Name) は池島・青木⁽⁴⁾による試料番号と岩石型を表している。岩石タイプ (Type) A, A', B, E, F, Pについては本文参照。

にプロットされる。そのうちでも、安山岩質岩（Bタイプ）は比較的直線的なまとまった領域にプロットされる。カルクアルカリ系列岩のうち、この安山岩（Bタイプ）とそれ以外の珪長質岩（E, Fタイプデイサイト, Pタイプ軽石）の間には明瞭な組成のギャップが認められ、両者は一本のトレンド上にはのっていない。ソレイト系列岩はカルクアルカリ系列岩よりも、より K_2O , MgO が低い側にプロットされているが、特に玄武岩（Aタイプ）～苦鉄質安山岩組成におけるばらつきが大きく、一部はカルクアルカリ系列岩の延長上にプロットされている。ソレイト質玄武岩類（Aタイプ）を MgO が多く、ノルムでカンラン石の多いグループと、 MgO に乏しく、ノルムで斜長石に富んでいるものとに区別することが可能である。これらのなかには、あるいはサブオーディネイトソレイトが含まれているのかもしれない。また、ソレイト系列安山岩にもA'タイプとCタイプの2系列が認められ、Cタイプ安山岩の MgO は低い。これらの安山岩はそれぞれ MgO に富んだ玄武岩と MgO に乏しい玄武岩に関連したものかもしれない。また、高原火山のソレイト系列岩の特徴として、 MgO の減少ないしは SiO_2 の増加に伴う、 K_2O の増加の程度が他の火山に比較してかなり急である。その結果、一般のソレイトが示すトレンドと斜交するトレンドをとっている。

Gill¹⁸⁾ は、全岩化学組成を用いて、 TiO_2 が、1.75%以下の中性火山岩 ($SiO_2 = 53 \sim 63\%$) を orogenic andesite と名付け、それらをカリウム量 (Kレベル) で low-K, medium-K, high-K andesites に三分している (第4図(d))。この分類によれば高原火山のカルクアルカリ岩は他の脊梁火山列カルクアルカリ岩と同様に medium-K andesites に相当する。一方、ソレイト系列岩については、玄武岩組成では大部分が low-K andesites の延長上にプロットされるが、苦鉄質安山岩から安山岩にかけては、low-K から medium-K andesite の範囲にまたがってプロットされる。そして、ソレイト質安山岩の K_2O に関してはカルクアルカリ系列安山岩と組成がかなり重なっており、両者に明瞭な濃度差がない。これは安達太良火山において、ソレイト系列岩とカルクアルカリ系列岩との間に、明瞭な K_2O 量の違いが認められることは大きく異なっている。ただし、東北本州弧南部においては、medium-K andesites に相当するソレイト系列安山岩を産する (例えば、那須火山¹⁹⁾, 男体火山²⁰⁾) ことが知られており、高原火山においても同様の岩石が存在していることになる。

5.2 主成分元素組成

第5図に高原火山噴出物についての、 SiO_2 を横軸に、縦軸に各主要酸化物組成をとったハーカー図を示す。高原火山噴出物には上記のようにソレイト系列とカルクアルカリ系列の岩石が共存している。 SiO_2 は50~72%にわたるが56~61%, 65~68%に集中する傾向がある。日



第5図 高原火山噴出物の主成分元素についてのハーカー図。

光火山群²⁰⁾は、那須火山¹⁹⁾と比べた場合、各元素が描くトレンドに大差は見られないが、 Al_2O_3 と FeO^* に関しては高原火山の方がわずかに組成範囲が広いようである。

ソレイトとカルクアルカリ両系列では、安山岩組成で、 MgO と Na_2O において明瞭なトレンドの違いを示している。さらに、 TiO_2 、 K_2O 、 P_2O_5 、アルカリなどにも多少の違いが認められる。これらと同じ SiO_2 量で比べた場合、カルクアルカリ系列岩はソレイト系列岩に対して、 MgO 、 K_2O に富み、 Na_2O 、 P_2O_5 、 TiO_2 、アルカリに乏しい。ただし、第1活動期の軽石流堆積物は他のカルクアルカリ系列岩に比べて相対的に K_2O に富んでいる。 TiO_2 の含有量はソレイト質玄武岩類(Aタイプ)では SiO_2 の増加とともに増加し、安山岩類では SiO_2 量が65%までの岩石では SiO_2 量が増加してもほとんど変化しないが、 SiO_2 量が65%以上の岩石では SiO_2 量の増加とともに減少する傾向がみられる。 Al_2O_3 の含有量はソレイト系列玄武岩類(Aタイプ)では SiO_2 量の増加とともに急速に減少している。また、ソレイト質安山岩類(Cタイプ)でも SiO_2 の増加にともない減少するが、Aタイプのトレンドとは異なる経路をとる。一方、カルクアルカリ系列岩では SiO_2 量の増加にともない僅かに減少する。全鉄の含有量はソレイト系列玄武岩類(Aタイプ)では SiO_2 量の増加とともに増加している。安山岩類では、ソレイト系列(Cタイプ)およびカルクアルカリ系列(Bタイプ)ともに、 SiO_2 量の増加にともなって減少する。 MnO の含有量は FeO の含有量と同じ傾向を示すが、安山岩類での減少の程度は弱く、ほとんど一定の濃度を示している。 MgO の含有量はソレイト質玄武岩類(Aタイプ)では SiO_2 の増加にともない急激に減少し、ソレイト質安山岩類(Cタイプ)では緩やかに減少している。一方、カルクアルカリ系列安山岩類(Bタイプ)ではソレイト質安山岩類より高濃度の組成から比較的急激に減少する傾向が認められる。この場合、同じ SiO_2 量で比べた場合、カルクアルカリ系列安山岩の方がソレイト系列安山岩より含有量が多い。 CaO の含有量は SiO_2 量の増加とともにほぼ直線的に減少する。ただし、細かくみると、ソレイト質玄武岩類(Aタイプ)のトレンドとソレイト質安山岩類(Cタイプ)のトレンドとは僅かながらくいちがっているようにも見える。カルクアルカリ系列安山岩とソレイト系列安山岩とは、前者がわずかに低い傾向があるものの、ほぼ重なっている。 Na_2O の含有量はカルクアルカリ系列安山岩(Bタイプ)では SiO_2 量の増加とともに緩やかに増加している。一方、ソレイト系列では玄武岩から SiO_2 量が55%までのAタイプでは急速に増加し、 SiO_2 量55%以上の安山岩類(Cタイプ)においてはカルクアルカリ系列岩と同様な傾向を示している。同じ SiO_2 量で比べるとカルクアルカリ系列安山岩に比べてソレイト系列安山岩の方が含有量が高い。 K_2O の含有量は SiO_2 量の増加とともにほぼ直線的に増加し

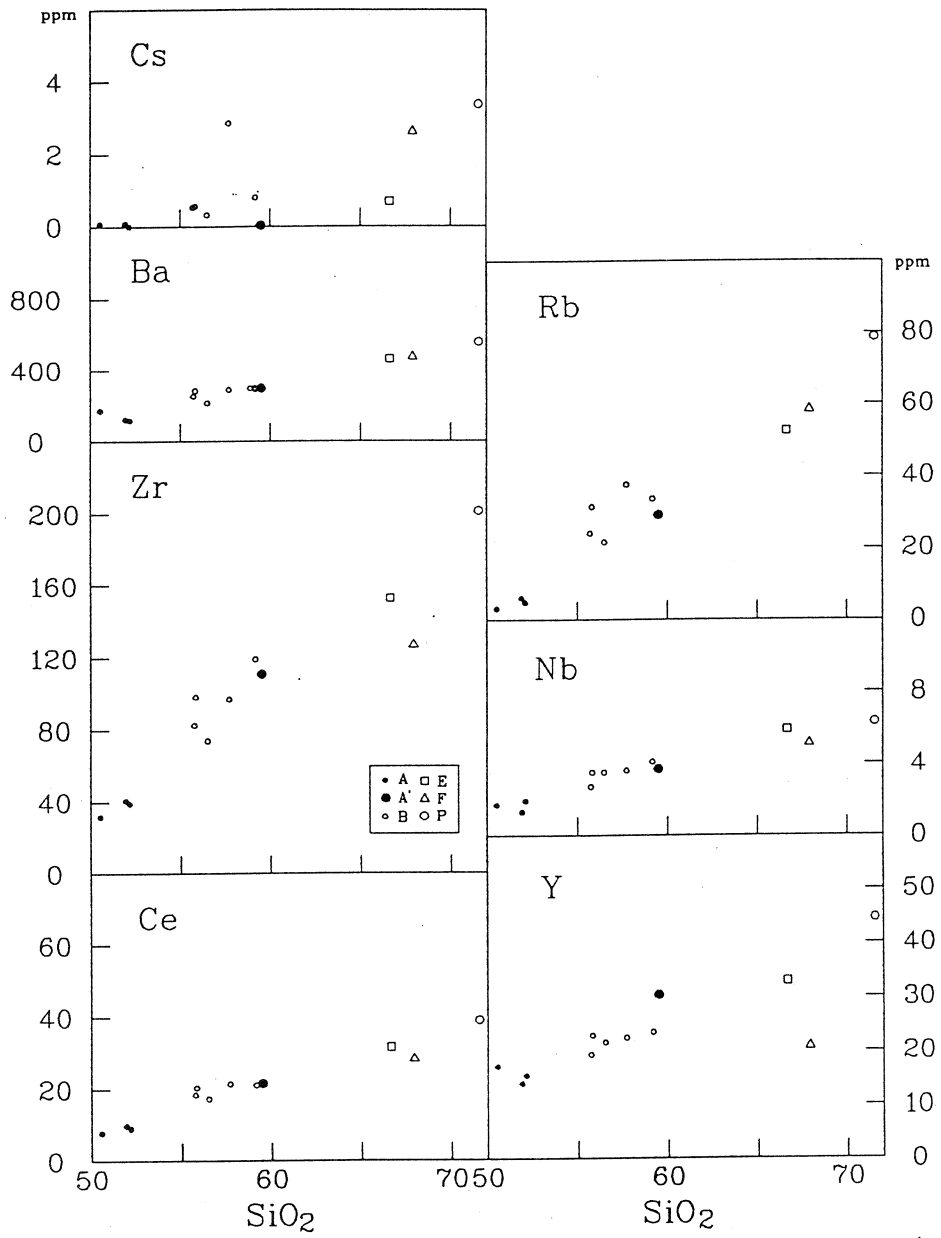
ている。カルクアルカリ系列安山岩の方がソレイト質安山岩に比較してわずかに K_2O が高い傾向がある。アルカリ量はソレイト質玄武岩では SiO_2 の増加に伴い、比較的急激に増加した後、安山岩類では増加の程度が小さくなる。安山岩では、同じ SiO_2 量で比較した場合、カルクアルカリ系列岩の方がソレイト系列岩よりもアルカリが低い傾向が認められる。これは安達太良火山の場合とは逆である。 K/Na 比も SiO_2 の増加に伴い、単調に増加する傾向がみられる。安山岩においては、カルクアルカリ系列岩の方がソレイト系列岩よりも K/Na 比は高い。これは主に、カルクアルカリ系列岩の方が Na_2O が低いことが影響している。 P_2O_5 含有量は SiO_2 が65%前後までは SiO_2 の量に関係なくほぼ一定であるが、ソレイト系列岩では玄武岩から安山岩へとわずかに増加の傾向がある。カルクアルカリ系列安山岩ではほとんど一定である。 SiO_2 量65%以上では急激に減少する傾向がみられる。

5.3 微量元素組成

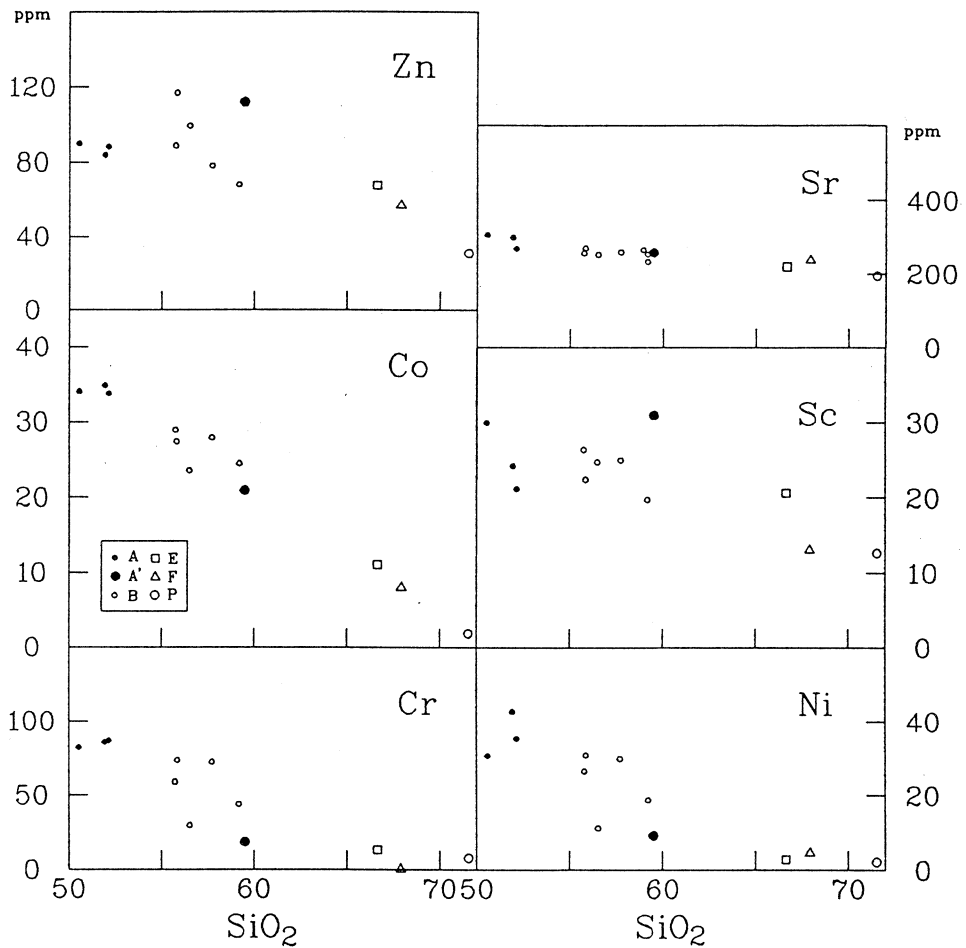
微量元素に関するハーカー図を第6図(a), (b)に示す。微量元素のうち, Ba, Rb, Ce, Y, Nb, Zr は SiO_2 量の増加とともに含有量が増加し, Sc, Cr, Ni, Co, Sr は減少している。Cs はソレイト系列岩では含有量が非常に低く, カルクアルカリ系列岩の方が概して高い。Rb についても同様の傾向が認められる。A' タイプのソレイト系列安山岩中の元素にはカルクアルカリ系列安山岩が描くトレンドからはずれるものが見られ, 例えば, Sc, Zn の含有量が後者に対して高い側にずれている。カルクアルカリ系列安山岩の方が同じ SiO_2 のソレイト系列安山岩よりも Ni や Cr が概して高く, 両者は別のトレンドを描く。Ba, Sr, Co, Nb, Zr, Ce などでは, ソレイト系列岩とカルクアルカリ系列岩との間にとくに明瞭な組成差は認められない。

5.4 液相濃集元素のMORB規格化パターン

MORB規格化パターン²¹⁾(第7図)には2つのタイプがあり, ひとつは, Ba で正異常を示し, Sr から右下がり比較的なだらかなパターンであり, もうひとつはHFS元素に対して, Ba や Rb といったLIL元素が相対的に高いパターンである。Nbの負異常はいずれのタイプにおいても認められる。高原火山において, 前者はソレイト系列玄武岩(Aタイプ)が描くパターンであり, これは東北日本弧, 脊梁火山列からのソレイト系列玄武岩が一般に示しているパターンである。後者はA'タイプのソレイト系列玄武岩, B, E, Fタイプのカルクアルカリ系列安山岩〜デイサイト, そして太田原軽石流からの軽石が描くパターンである。これは脊梁火山列からのカルクアルカリ系列岩ないし, 背弧側の火山岩に特徴的に認められるものである。

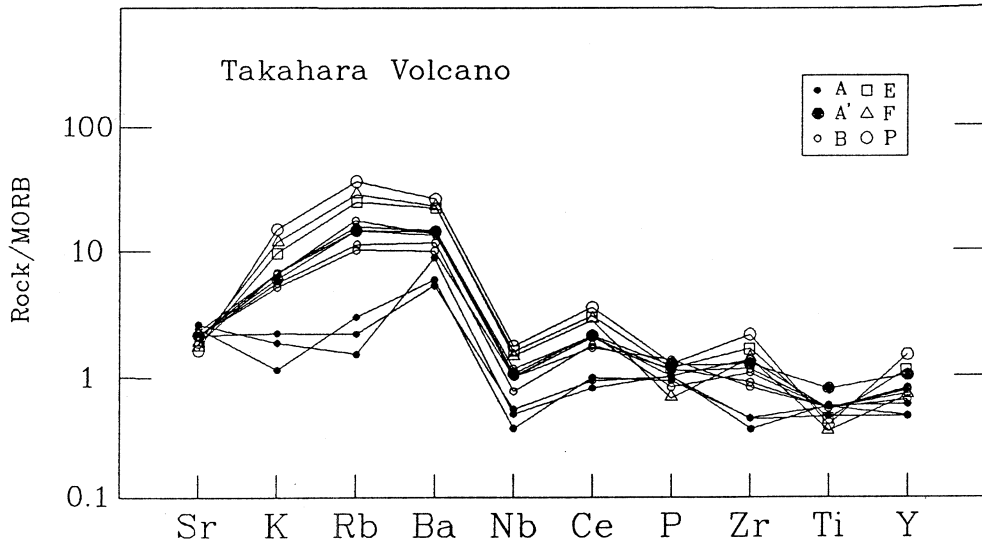


第6図(その1) 高原火山噴出物の微量元素についてのハーカー図。



第6図(その2)。

吉田ら²⁾は火山フロント側の脊梁火山列におけるソレイト系列玄武岩に見られるインコンパティブル元素組成の多様性を論じ、特に東北本州弧南部に位置する火山では脊梁火山列に属するにもかかわらず、Sr規格化値に対してK, Rbが高い傾向があり、Sr, K, Rbがつくる規格化パターンが鳥海火山列のものほとんど相似であると論じている。高原火山のソレイト系列岩の場合、Sr規格化値に対してK, Rbが高いという傾向はT-01, T-05では見られない。しかし、A'タイプのソレイト系列安山岩(例えば、T-11)ではSr, K, Rbがつくる規格化パターンが鳥海火山列のものほとんど相似である。また、これらの中間的なパターン

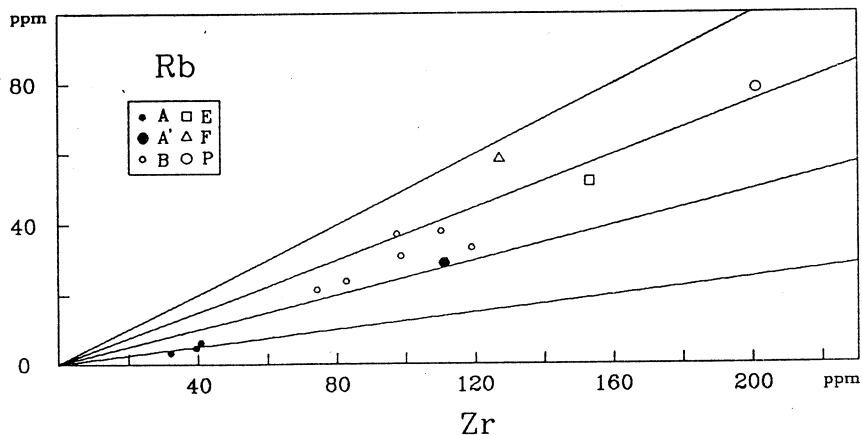


第7図 高原火山噴出物のMORB規格化図。

を示す岩石 (T-03) も存在する。従って、今回の結果から、那須帯南帯においても、北帯のソレイト系列玄武岩と同じ規格化パターンを示す岩石が産出すること、それが南帯を特徴づける鳥海火山列火山岩と相似のパターンを持つソレイト質岩と共存していること、両者の中間的な岩石が存在することなどが明らかになった。なお、カルクアルカリ系列岩については、他の脊梁火山列火山からのカルクアルカリ系列岩のパターンと同じ傾向を示している。

5.5 ソレイト系列岩とカルクアルカリ系列岩との成因関係

ソレイト系列岩とカルクアルカリ系列岩との成因関係を検討する目的でRb/Zr図(第8図)を作成した。この図で特徴的なことはRb/Zr比が、Aグループ、A'グループ、B+Eグループ、F+軽石+Bグループの順に大きくなっていることである。特にAグループとA'+B+Eグループの間には明瞭な違いがある。Rb, Zrといった元素は基本的には液相濃集元素であり、そのような元素の比であるRb/Zr比が明瞭に異なるということは、Aグループソレイトと、A'グループソレイトならびにBグループカルクアルカリ岩とが互いに一方から他方を導くことはできないことを意味しており、すくなくとも両者を生じた初生マグマが異なっていたことを表している。また、Aグループの岩石の中でも八ヶヶ原溶岩(T-03)は他のAグループに対してK₂Oが低く、特にK/Rb比が235とソレイト質岩としてはきわめて小さい値をとっている。このような低い値はHigh-K系列のカルクアルカリ岩の値に相当する



第8図 高原火山噴出物のZr-Rb図。
図中の直線は等Rb/Zr比線を示している。

ものである。しかも他の岩石に比較して最も K_2O 濃度が低く、一方、 MgO は高原火山岩中最も高い。これら2種のAグループソレライト質玄武岩をどちらか一方の結晶分化作用で作ることも困難であり、ソレライト質玄武岩を生じた初生マグマにも何種類かあったことを示唆している。このように、微量元素組成上、初生マグマ組成が異なっていたと推定される、3種類のソレライト系列岩と1種類のカルクアルカリ系列岩が存在することがMORB規格化図(第7図)にも明瞭に示されている。

§ 6. 高原火山における火山発達史と地球化学

6.1 大カルデラ火山と後期型円錐火山の複合体としての高原火山

守屋⁵⁾は高原火山を後期型円錐火山に分類している。円錐火山の地形発達史を概観すると、(第1期)平滑な斜面からなる円錐火山体の形成、(第2期)階段状の斜面からなる円錐火山体の形成。山頂崩壊によって馬蹄形カルデラや火山体大崩壊、岩屑流堆積面が形成されることがある、(第3期)山麓に火砕流堆積面、山頂部に火砕丘が形成される、(第4期)小カルデラと溶岩円頂丘の形成、小規模な円錐火山体や火砕流堆積面が形成されることがある、というような過程をたどる傾向がかなり顕著である。これに対して、直径が10 km以上のカルデラを有する大カルデラ火山は、いずれも初期に大規模な軽石噴火と大カルデラの形成、つづいて小円錐火山の形成という似たような発達過程を持っている⁵⁾。

円錐火山と大カルデラ火山の違いは顕著であるが、両者には、各発達史上で最も規模の大きい火砕流の活動が、活動の後期に出現するか、最初に出現するかの違いがある。高原火山の活動史を概観すると、最も大規模な火砕流は活動の最初に認められ、これによって直径約10 kmに達する塩原カルデラが形成されている⁶⁾。塩原カルデラはカルデラ形成に先だって円錐火山体を形成していた証拠はなく、富士山を小型円錐火山ないし後カルデラ火山であると考えたと高原火山の北半分は大カルデラ火山としての条件を満たしている。

池島・青木⁷⁾は高原火山が地形的に北部の塩原火山と南部の釈迦ヶ岳火山に2分できると述べている。高原火山が塩原火山と釈迦ヶ岳火山の複合体であると考え、守屋⁵⁾が後期型円錐火山としたのは釈迦ヶ岳火山であり、これが大カルデラ火山である塩原火山の南半分を被覆していると理解することができる。釈迦ヶ岳火山は規模は中程度であるが、後期型円錐火山としての要件を満たしている。

高原火山の塩原層群と互層する溶岩が示す約30万年前という年代は円錐火山の活動開始年代としては一般的な年代である⁵⁾。但し、約50万年前に活動したと推定される大田原軽石流堆積物に覆われる、高原凝灰角礫岩とされている火山岩の中にはより古い年代を示すものが含まれる可能性がある。守屋⁵⁾は大カルデラ火山を新期と古期に分けている。このうち、新期大カルデラ火山の多くは、3万年前以降に活動しており、その寿命は多くの円錐火山よりも1桁小さい数万年であろうと述べている。これに対して、古期大カルデラ火山は主に200万年前から100万年前にかけて活動したらしい。従って、高原火山のうち大カルデラ火山であると推定される塩原火山の形成年代ならびにその年齢は大カルデラ火山としては特異であると言える。すなわち、その形成時期は大カルデラ火山の活動空白期間（100万年前～数万年前）にあたり、また、富士山ドームの地形的な特徴から判断して、その寿命は数10万年はあったと推定される。これは新期大カルデラ火山の寿命の10倍に相当し、円錐火山の寿命に匹敵している。大カルデラ火山のうち、例外的に塩原火山に近い年代学的性格を示しているのは阿蘇火山である。

火山の体積を正確に見積もることは難しいが、活動の性格を考えるうえでは概数を求めることも重要である。高原火山のうち大田原軽石流堆積物の体積は約35 km³、それ以外の部分の合計は約20 km³と見積られる。守屋⁵⁾によれば、円錐火山の総体積の平均値が37 km³で、大カルデラ火山のそれは103 km³、そして後カルデラ火山は6 km³である。従って、大カルデラ火山としての塩原火山の規模は小さく、平均の3分の1であるが、高原火山全体の体積は円錐火山の平均的体積よりは約20 km³大きい。また、軽石流堆積物を除いた部分の体積は、大カルデラ火山の後カルデラ火山（小円錐火山）の体積の3倍を越える。従って、塩原火山は小規

模の大カルデラ火山、釈迦ヶ岳火山は中～小規模の円錐火山といえる。

円錐火山では薄い溶岩流・スコリア→厚い溶岩流→火砕流・降下軽石→円頂丘溶岩という噴出物の変化が認められるのに対して、大カルデラ火山では大規模火砕流→溶岩流・降下スコリア・溶岩餅→降下軽石・軽石流→円頂丘溶岩の順序で噴出物が形成されることが多い⁵⁾。この順序は、それぞれ、釈迦ヶ岳火山と塩原火山における噴出物の変化にほぼ対応しており、これらの火山がいずれもその活動史をほぼ終了していることを示唆している。

6.2 高原火山における噴出物の時間的変遷

先に述べたように、高原火山構成岩石はその斑晶組合せ等によって7つの岩石タイプに区分できる。この岩石タイプは火山層序とよい対応を示している。釈迦ヶ岳火山では、(第1期) Aタイプ(ソレイト系列カンラン石含有輝石玄武岩～輝石安山岩)→(第2期) Bタイプ(カルクアルカリ系列カンラン石含有輝石安山岩)→(第3期) B(カルクアルカリ系列カンラン石含有輝石安山岩)～Dタイプ(ソレイト系列輝石デイサイト)→(第4期) Eタイプ(カルクアルカリ系列輝石デイサイト)と変化し、塩原火山では、(カルデラ形成期) Pタイプ(SiO_2 に富んだ輝石デイサイト)→(後カルデラ火山)(第1期) Bタイプ(カルクアルカリ系列安山岩?)→(第2期) Bタイプ(カルクアルカリ系列カンラン石含有輝石安山岩)→(第3期) Bタイプ(カルクアルカリ系列カンラン石含有輝石安山岩)→(第4期) Fタイプ(カルクアルカリ系列角閃石輝石デイサイト)と変化している。なお、釈迦ヶ岳馬蹄形カルデラ⁴⁾の形成直前に噴出したと考えられる前黒溶岩中には苦鉄質包有物(Wタイプ岩)を多く含む溶岩流が認められる。

中規模の後期型円錐火山である釈迦ヶ岳火山と、大カルデラ火山である塩原火山を比較すると両者には発達史に伴う組成変化に明瞭な違いが認められる。釈迦ヶ岳火山ではマグマの組成が時間とともに次第に玄武岩質から安山岩、デイサイトへと単調に変化している。また、ソレイト系列とカルクアルカリ系列が交互に活動しているが、同岩質の場合は、より高温のマグマに対応するソレイト系列が先に、より低温のマグマに対応するカルクアルカリ系列岩が後から活動している。このような釈迦ヶ岳火山における、発達史に伴う噴出物の岩石学的性格の変化は、マグマ溜りの冷却に伴うマグマ分化作用の過程で、噴火活動を繰り返しながら火山が成長していったことを示唆している⁵⁾。

一方、塩原火山では、最初に SiO_2 に富んだ輝石デイサイトが大量に噴出しているが、このデイサイトには角閃石が認められない。このことは、塩原大カルデラ火山が古期と新期の空白期間に活動しているが、岩石学的性格からはほとんどの場合、角閃石・黒雲母といった含水鉱

物斑晶をもたない新期大カルデラ火山に分類されることを示している⁵⁾。高原火山で唯一微量の角閃石斑晶を有するのは、塩原火山の後カルデラ火山として最末期に形成された富士山デイサイト質溶岩円頂丘のみであるが、これも新期大カルデラ火山の一部に認められる特徴である。

火山体の発達に伴う噴出物の化学組成変化は、円錐火山では活動に伴って苦鉄質安山岩 ($\text{SiO}_2 = 55\%$) から珪長質安山岩 ($\text{SiO}_2 = 61 \sim 62\%$) へと変化する。火山によって最後に SiO_2 が逆戻りする場合もあるが、多くは SiO_2 が単調に増加することが多い。一方、大カルデラ火山では、 SiO_2 に富んだデイサイト ($\text{SiO}_2 = 67\%$) が最初に活動した後、苦鉄質安山岩 ($\text{SiO}_2 = 55\%$) が活動を始め、その後は単調に SiO_2 に富んだデイサイト ($\text{SiO}_2 = 68\%$) へと変化している⁵⁾。大カルデラ火山の寿命が概して円錐火山に比較して極めて短いことを考えると、大カルデラ火山が示す短い時間内にデイサイト質から、安山岩質になり、再びデイサイト質へと変化する傾向を、円錐火山における時間とともに冷却と分化が進行しながら噴火を繰り返すというモデルで説明することは難しい。恐らく、地下のマグマ溜り内において噴火以前に分化などが進行し、噴火開始時にはすでに組成累帯したマグマ溜りが形成されていると考えるのが妥当であろうが、大カルデラ火山が示す発達にともなう組成変化を、既存の組成累帯した単一のマグマ溜りの存在のみで説明することはできず、今後の検討が必要である⁵⁾。火山の活動度を単位時間内での噴出量で表すことが可能であるが、円錐火山も大カルデラ火山もその活動度は発達につれて小さくなる傾向が認められている⁵⁾。これは高原火山の釈迦ヶ岳火山と塩原火山についてもあてはまりそうである。

6.3 異なる発達史を持つ火山の地理的分布

守屋⁵⁾ は各発達史をもった火山の地理的分布を示し、その意義を論じている。それによると、典型的な島弧セグメントである那須帯の那須火山から八甲田火山に至る範囲に分布する火山の大部分は前期型円錐火山であり、一方、高原火山の釈迦ヶ岳火山以南の那須帯には多数の後期型円錐火山が分布している。守屋⁵⁾ も指摘しているように、東日本火山帯では、後期型円錐火山は島弧の会合部に特徴的に認められ、弧状部にはあまりない。言い替えると、那須帯の南端部に位置し、その配列方向が海溝に対して斜交している那須帯南帯は全体として島弧会合部に属しており、この点で島弧弧状部に属している那須帯北帯と区別されるという考え方が可能である。島弧会合部には多くの地学的異常が知られている²⁾。

一方、第四紀末に活動した新期大カルデラ火山は、北は屈斜路・阿寒・支笏・洞爺・十和田、南は阿蘇・加久藤・始良・阿多・喜界と、日本列島の南北両極端にわかれて分布し、東北北部の十和田火山と九州中部の阿蘇火山の間には、長さ1300 km という大カルデラ火山の空白地

帯があると言われている⁹⁾。この空白地帯にも、第四紀前半には古期大カルデラ火山が存在していた。

高原火山は大カルデラ火山である塩原火山と後期型円錐火山である釈迦ヶ岳火山の複合した火山体であると考えることが可能である。複合の仕方は、その配置から判断して大カルデラ火山の外輪山にあたる釈迦ヶ岳火山が、通常の後カルデラ火山をなす小円錐火山に比較して異常に成長し、小～中規模の円錐火山に発達したとみることが可能である。つまり、新期大カルデラ火山としての性格を有する塩原火山の形成が新期大カルデラ火山としては異常に古い50万年前に活動を開始したが、その後の島弧の構造変化に対応して、本来後カルデラ火山にすぎなかった釈迦ヶ岳火山の活動が活発化し、円錐火山に成長したとみることができる。先に述べたように大カルデラ火山の活動は、地殻中での比較的浅い位置に安定に存在していた平坦な珪長質マグマ溜りの存在を示唆している。一方、円錐火山の活動史は数10万年という長時間にわたる次第に温度が低下するマグマ供給系の存在を必要とし、これは大カルデラ火山に相当するマグマ溜りより深い位置にある縦長の安山岩質マグマ溜りの存在を示唆している。

高原火山における円錐火山と大カルデラ火山の複合体の存在は、両者それぞれに対応するマグマ供給系が地下で共存し得ること、共存するマグマ供給系の規模の大小、あるいは共存するマグマ供給系の各々の成長の度合により、円錐火山として成長したり、大カルデラ火山として成長したりする可能性を示している。高原火山は那須帯のなかでも北帯と南帯の会合部に位置していたため、多くの円錐火山が活動を開始した50万年前にまだ、大カルデラ火山を形成するような珪長質大型マグマ溜りが浅い位置に存在していた。このマグマ溜りが古期大カルデラ火山を形成したマグマよりも高温の新期大カルデラ火山を特徴づけるマグマであったことも空白期に活動できた要因の一つかもしれない。しかしながら、東北本州弧は50万年前以降、大カルデラ火山よりも円錐火山が成長しやすい構造環境におかれたため、高原火山は通常の大カルデラ火山とはならず、本来後カルデラ火山の小円錐火山となるはずであった釈迦ヶ岳火山がより規模の大きい円錐火山として成長し、早期に形成された大カルデラ火山の南部を被覆したと考えることができる。

大部分の大カルデラ火山は後カルデラ小円錐火山をカルデラ内や縁に伴っている。このうち縁にある最も大きな小円錐火山の、カルデラに対する配置には例は少ないながらある傾向が認められる。例えば、千島弧では屈斜路火山や支笏火山が東～南東側、東北本州弧では洞爺火山が南側、十和田火山も南側である。琉球弧の加久藤カルデラでは南東側、始良火山では南側である。円錐火山と大カルデラ火山が複合した高原火山においては円錐火山は大カルデラ火山の南

側に位置しており、これは那須帯の洞爺火山や十和田火山と同じ配置である。おそらく、複合したマグマ供給系を構成する、より平坦な珪長質マグマ溜りとより縦長の安山岩質マグマ溜りは大カルデラ縁部で接合しており、その両者の配置は広域的な応力場によって決定されたと考えると上記のような現象を説明することが可能であろう。

§ 7. ま と め

(1) 東北本州弧の火山フロントに位置する火山である高原火山は大カルデラ火山（塩原火山）と後期型円錐火山（釈迦ヶ岳火山）とが複合した火山である。

(2) 高原火山噴出物はソレイト系列のカンラン石玄武岩からカルクアルカリ系列の普通角閃石デイサイトにおよんでいる。これらはその斑晶鉱物組合せ、ならびに化学組成上の特徴から、A, A', B, C, D, E, F, Pの8タイプに分類できる。またこの他に溶岩中に含まれる苦鉄質包有物であるWタイプがある。

(3) ソレイト系列安山岩とカルクアルカリ系列安山岩との間には明瞭な斑晶モード差があり、前者に対して後者の方が輝石斑晶に富んでいる。

(4) 高原火山噴出物を構成する各岩石タイプはそれぞれ特有の地球化学的性格を示している。また、微量元素組成上、初生マグマ組成が異なっていたと推定される、3種類のソレイト系列岩と1種類のカルクアルカリ系列岩が認められる。

(5) 大カルデラ火山（塩原火山）が、初期に活動した大規模火砕流堆積物とそれに続くカルクアルカリ系列岩を主体とするのに対して、後期型円錐火山（釈迦ヶ岳火山）ではソレイト系列岩とカルクアルカリ系列岩と交互に活動しながら、マグマの組成が時間とともに次第により分化したものとなっている。

(6) 高原火山における大カルデラ火山と円錐火山の複合体の存在は、両者それぞれに対応するマグマ供給系が地下で共存し得ること、共存するマグマ供給系の規模の大小、あるいは各々の成長の度合によって、円錐火山として活動したり、大カルデラ火山として活動したりすることがある可能性を示している。

本報告を作製するにあたって、山形大学理学部地球科学教室、大場与志男教授、田中久雄助教授、東北大学岩鉱教室の藤巻宏和助教授、長谷中利昭博士、土谷信高博士には諸般にわたって御助力ならびに御議論いただいた。また、東北大学核理研の榎本和義博士、大槻 勤博士ならびにライナック・マシーングループの方々、東北大学教養部地学科の蟹沢聰史教授、石川賢

一博士には光量子放射化分析ならびに化学分析にあたって御助力いただいた。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金 (Nos. 01302017, 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) Y. Kawano, K. Yagi and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ., Ser. III 7 (1961) 1.
- 2) 金原信泰 : 災害予防報告 31 (1900) 3.
- 3) 岩生周一, 今井功 : 7万5千分の1, 塩原図幅地質説明書 (1955) p. 158.
- 4) 池島柳一, 青木謙一郎 : 岩鉱 48 (1962) 97.
- 5) 守屋以智雄 : 日本の火山地形, Up Earth Science (東京大学出版会, 1983) p. 135.
- 6) 尾上 亨 : 地質調査所報告 269 (1989) P. 207.
- 7) 新野弘 : 地質学雑誌 40 (1933) 579.
- 8) T. Itaya, T. Okada, T. Onoue and N. Isshiki : Mass Spectros. 37 (1989) 365.
- 9) 鈴木将之 : 高原山自然教育実習施設研究集録 1 (1982) 9.
- 10) 小池一之, 岩崎孝明, 壇原徹, 百瀬貢 : 駒沢地理 21 (1985) 39.
- 11) 柵山雅則 : 火山, 第2集, 22 (1977) 263.
- 12) T. N. Irvine and W. R. A. Baragar : Can. J. Earth Sci. 8 (1971) 523.
- 13) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki : J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. 81 (1986) 406.
- 14) 藤縄明彦, 小沼直樹, 田切美智雄 : SB システムテックスによる東日本火山帯地下深部火成活動の化学的解明. (科研費報告書, 1985) p. 59.
- 15) H. Kuno : Bull. Volcanol. 29 (1966) 195.
- 16) A. Miyashiro : Am. Jour. Sci. 274 (1974) 321.
- 17) Y. Masuda and K. Aoki : Earth Planet. Sci. Lett. 39 (1978) 298.
- 18) J. B. Gill : Orogenic andesites and plate tectonics. (Springer-Verlag, 1981) p. 390.
- 19) 伴雅雄, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研報告 20 (1987) 163.
- 20) 佐々木実, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研報告 19 (1986) 307.
- 21) J. A. Pearce : *Continental basalts and mantle xenoliths.* eds. C. J. Hawkesworth and M. J. Norry (Shiva, 1983) p. 230.
- 22) 吉田武義, 阿部智彦, 谷口政碩, 青木謙一郎 : 核理研報告 20 (1987) 131.

23) H. Kanamori : *Tectonophys.* **12** (1971) 1.

中部日本, 乗鞍岳火山噴出物の地球化学

教養部地学, 理学部地学*

石川賢一・吉田武義・青木謙一郎*

§ 1. はじめに

プレートテクトニクス説にもとずいてマグマの成因が議論されるようになって久しい。沈み込み帯におけるマグマ活動の特徴の一つとして、島弧を横切る方向における火山岩の水平的変化(全岩化学組成, 斑晶鉱物組み合わせなど)があげられる。東北本州弧はそのような水平的変化を顕著に示す典型的な島弧の一つであり、古くより島弧マグマ成因論研究の場として注目されてきた¹⁻⁶⁾。

これに対して、本州中部のフォッサマグナ地域ならびにその周辺は東北日本弧・西南日本弧、さらに伊豆小笠原弧が会合する特殊な位置にあり、第三紀中新世以降著しい変形を被ってきた。この地域はユーラシアプレートに対する太平洋プレートの影響だけでなく、フィリピン海プレートの運動の影響も受けていると考えられ、第四紀の東北本州弧のような単純な沈み込み帯とは明らかに異なった、より複雑なテクトニック場に置かれていると考えられている。また、この島弧の会合部を境にして、北東側では厚さ30km未満の地殻が発達するのに対して、南西側では地殻の厚さは30kmを越える。そして、伊豆-マリアナ弧の北端部では、火山フロントが東西に伸びる古い西南日本弧の帯状基盤構造を横切っている。

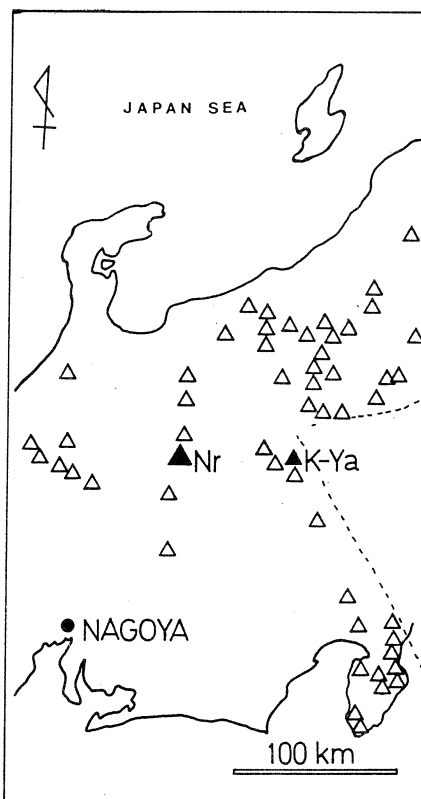
この地域では東日本火山帯⁷⁾の中でも最も広い範囲に火山が分布している。それらの火山の分布は、八ヶ岳火山を代表とする火山フロント沿いの火山グループ、その背弧側に位置し火山フロントに対して斜めに配列する従来より乗鞍火山列とよばれている火山グループ、さらにその背弧側に広く分布する白山火山群のグループに3分できる。これらの火山には、複雑な基盤テクトニクスを反映して、特に広域組成変化の様式に異常が認められており、例えば、八ヶ岳火山には局地的な K_2O の高異常が知られている⁸⁾。

このような、典型的な島弧火山帯である東日本火山帯のなかでも特殊なテクトニック場にある火山の地球化学的性格を検討する目的で、第四紀乗鞍岳火山を構成する岩石の研究を行なった。本報告では噴出物についての光量子放射化法等による化学分析結果を示し、その特徴を論ずる。

§ 2. 乗鞍岳火山の概要

乗鞍岳火山は中部日本，飛騨山脈上に発達した乗鞍火山列に属する第四紀の火山で（第1図），南北に配列する数個の成層火山群から成る。基底直径13kmで標高3,026mであるが，基盤岩類は標高2,300~2,500mの高さにまで分布しており，乗鞍岳火山の噴出物はうすい。山頂部に数個の火山湖やせき止め湖をもっている。基盤は主に美濃帯の中・古生層で濃飛流紋岩類および鮮新世石英安山岩質溶結凝灰岩などである。

この火山についての研究はきわめて少なく，神津⁷⁾の総括的な研究があるにすぎなかった。中野⁸⁾は，神津⁷⁾による山体区分を再検討し，乗鞍岳火山を鳥帽子・鶴ヶ池・権現池の3火山体（ほぼこの順序に活動が始まった）に分け，それぞれが古期成層火山および新期噴出物から成るとした。



第1図 乗鞍岳火山の位置図。

Nr：乗鞍岳火山，K-Ya：北八ヶ岳火山。

§ 3. 乗鞍岳火山噴出物についての記載

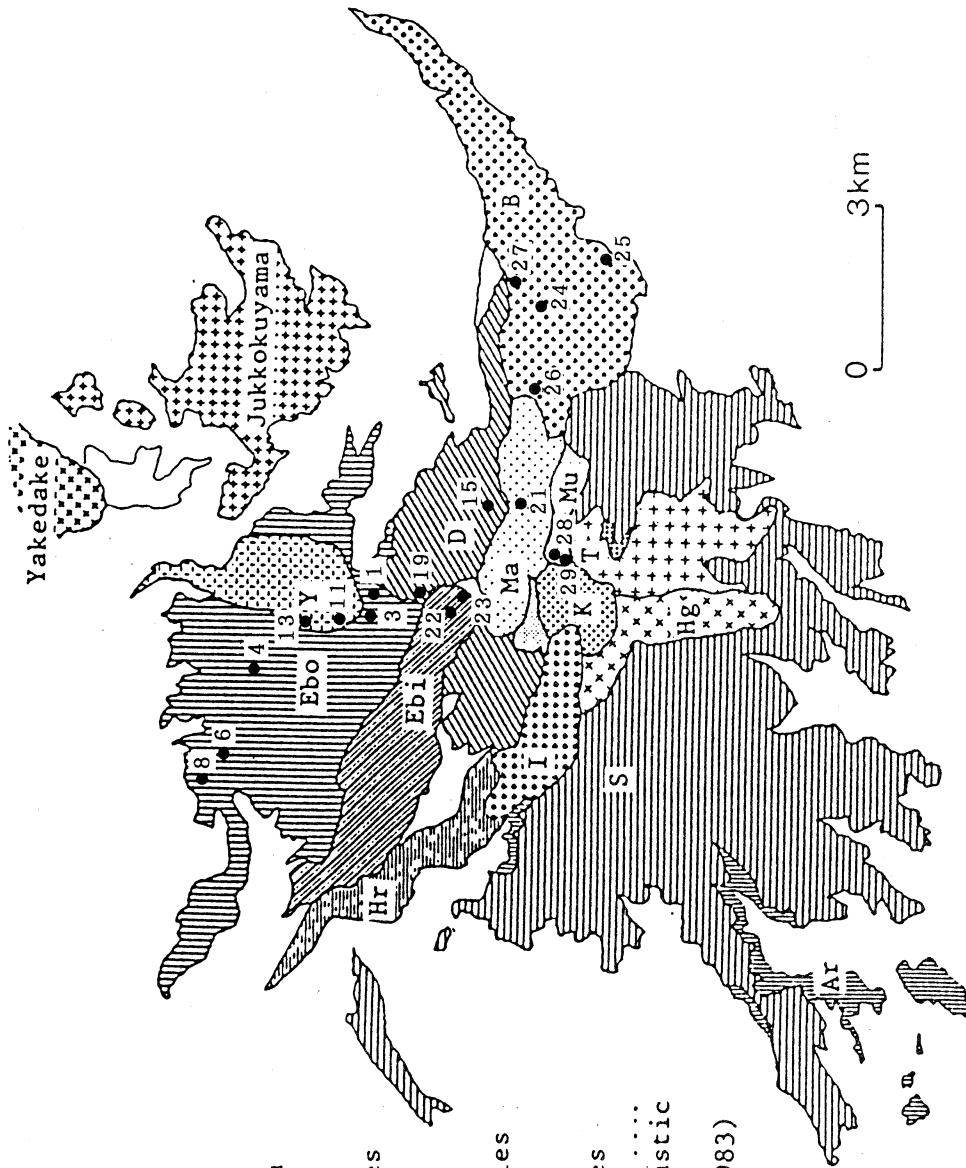
乗鞍岳火山噴出物について，中野⁸⁾の山体区分および活動形成史にしたがって記載する（第2図）^{9, 10)}。

a) 鳥帽子火山体

北部の鳥帽子岳・大丹生岳から北にあり，古期成層火山の鳥帽子岳溶岩群と新期噴出物の四ツ岳中央円頂丘溶岩に区分される。鳥帽子岳溶岩は複輝石安山岩（ $\text{SiO}_2 = 58.70\% \sim 61.17\%$ ）で普通角閃石を含むことがある。これらは包有物を含むことがあり，包有物（ $\text{SiO}_2 = 51.70\% \sim 55.33\%$ ）はホストの岩石より苦鉄質である。四ツ岳中央円頂丘溶岩は複輝石安山岩（ $\text{SiO}_2 = 57.87\% \sim 59.95\%$ ）で普通角閃石を含み，また包有物（ $\text{SiO}_2 = 48.08 \sim 54.49\%$ ）を含む。

b) 鶴ヶ谷火山体

鳥帽子岳火山体と摩利支天岳のあいだに存在する。古期成層火山の大黒岳溶岩群と，新期噴出物の摩利支天岳溶岩・恵比須岳円頂丘溶岩から成り，両者の間には浸食間隙がある。大黒岳



- I :Iwaidani lava
- K :Kengamine lava
- Hg :Higashidani lava
- Mu :Murodo lava
- T :Takamagahara lava
- Hr :Hiragane lava
- B :Bandokoro lava
- S :Sencho lava series
- Ebi:Ebisu lava
- Ma :Marishiten lava
- D :Daikoku lava series
- Y :Yotsudake lava
- Ebo:Eboshi lava series
-
- Ar :Arakigawa pyroclastic flow deposits (Yamada et al., 1983)

第2図 乗鞍岳火山の地質図⁹⁻¹⁰。分析試料の採取位置を示す。番号は分析試料番号のNrを省略した番号。

第1表 乗鞍岳火山噴出物の全岩化学組成（主成分元素）。

	Nr-1	Nr-2	Nr-3	Nr-4	Nr-5	Nr-6	Nr-7	Nr-8	Nr-9	Nr-10
	Host	Nr-1-I	Host	Host	Nr-4-I	Host	Nr-6-I	Host	Nr-8-IB	Nr-1-IA
SiO ₂	58.70	58.90	59.37	60.83	54.49	61.05	54.15	61.17	51.70	55.33
TiO ₂	1.02	1.06	0.93	0.87	0.90	0.81	1.14	0.83	1.16	1.09
Al ₂ O ₃	17.23	17.21	16.92	16.69	18.08	16.54	17.45	16.79	19.63	18.36
Fe ₂ O ₃	2.39	2.48	2.48	2.52	4.11	2.55	3.19	2.59	5.42	3.17
FeO	4.25	4.24	4.18	3.46	4.40	3.29	4.81	3.45	4.71	4.45
MnO	0.12	0.12	0.13	0.11	0.17	0.12	0.14	0.12	0.15	0.13
MgO	2.93	3.12	3.19	2.73	3.71	2.70	4.64	2.67	3.07	3.96
CaO	6.25	6.52	6.30	5.45	7.52	5.03	7.13	5.18	5.90	4.92
Na ₂ O	3.47	3.30	3.53	3.80	3.75	3.79	3.24	3.65	3.65	2.85
K ₂ O	2.10	1.96	2.14	2.23	1.53	2.35	1.78	2.28	1.84	2.11
H ₂ O+	1.04	0.67	0.15	0.71	0.73	1.07	1.20	0.81	1.76	2.67
H ₂ O-	0.23	0.12	0.42	0.36	0.36	0.44	0.81	0.24	0.61	0.64
P ₂ O ₅	0.28	0.31	0.25	0.25	0.25	0.24	0.30	0.24	0.40	0.32
Total	100.01	100.01	99.99	100.01	100.00	99.98	99.98	100.02	100.00	100.00

Nr-1 : Biotite-bearing Hornblende-Augite-Hypersthene andesite, Eboshi lava series.

Nr-2 : Augite-Hypersthene andesite, Inclusion in Nr-1.

Nr-3 : Biotite-bearing Augite-Hornblende-Hypersthene andesite, Eboshi lava series.

Nr-4 : Hornblende-Augite-Hypersthene andesite, Eboshi lava series.

Nr-5 : Hypersthene-Hornblende-bearing andesite, Inclusion in Nr-4.

Nr-6 : Augite-Hypersthene-bearing Hornblende andesite, Eboshi lava series.

Nr-7 : Augite-Hypersthene-bearing andesite, Inclusion in Nr-6.

Nr-8 : Biotite-bearing Hornblende-Augite-Hypersthene andesite, Eboshi lava series.

Nr-9 : Hornblende-bearing basalt, Inclusion B in Nr-8.

Nr-10 : Hornblende-Augite-bearing Hypersthene andesite, Inclusion A in Nr-8.

溶岩は複輝石安山岩 (SiO₂=58.21~59.34%) で他に苦鉄質斑晶として普通角閃石とかんらん石を含むことがある。大黒岳溶岩も包有物 (SiO₂=54.04~55.86%) を含み、それは苦鉄質斑晶として普通輝石、紫蘇輝石の他、普通角閃石とかんらん石を含む。大黒岳溶岩はホスト溶岩および包有物ともに乗鞍岳噴出物の他のものにくらべて、かんらん石斑晶をより多く含むことが特徴である。摩利支天岳溶岩は普通角閃石かんらん石含有複輝石安山岩 (SiO₂=59.50%) である。恵比須岳円頂丘溶岩は複輝石普通角閃石安山岩 (SiO₂=59.30~60.17%) であり、苦鉄質斑晶として輝石より普通角閃石のほうが多いのが特徴である。

c) 権現池火山体

乗鞍岳の南端にある主峰の剣ヶ峰付近を中心に、鶴ヶ池火山体の南に、半円形の火山体を形

第1表 (つづき)。

	Nr-11	Nr-12	Nr-13	Nr-14	Nr-15	Nr-16	Nr-17	Nr-18	Nr-19	Nr-20
	Host	Nr-11-I	Host	Nr-13-I	Host	Nr-15-IB	Nr-15-IA	Nr-15-IC	Host	Nr-19-I
SiO ₂	57.87	54.49	59.95	48.08	58.21	54.62	54.86	55.86	59.34	54.04
TiO ₂	0.99	1.17	0.86	1.49	0.98	1.16	1.15	1.11	0.96	1.38
Al ₂ O ₃	16.90	18.21	16.84	18.43	16.83	17.41	17.16	17.10	17.47	18.18
Fe ₂ O ₃	3.75	5.43	2.88	5.14	3.13	7.17	4.01	3.27	2.47	3.70
FeO	3.59	4.23	3.50	5.37	4.00	1.69	4.30	4.61	4.34	5.27
MnO	0.13	0.21	0.12	0.18	0.13	0.14	0.15	0.14	0.13	0.15
MgO	3.21	3.24	2.76	5.50	3.63	4.82	4.65	4.62	2.83	4.23
CaO	6.47	5.78	5.94	9.83	6.33	6.27	7.64	7.34	6.07	7.88
Na ₂ O	3.21	3.38	3.53	2.78	3.52	2.98	3.29	3.04	3.53	2.72
K ₂ O	2.20	1.34	2.33	1.12	2.05	1.43	1.54	1.57	2.16	1.59
H ₂ O+	1.05	1.62	0.71	1.44	0.72	1.03	0.77	0.70	0.29	0.38
H ₂ O-	0.40	0.52	0.33	0.41	0.21	1.10	0.19	0.33	0.16	0.15
P ₂ O ₅	0.24	0.38	0.23	0.24	0.27	0.18	0.31	0.31	0.25	0.33
Total	100.01	100.00	99.98	100.01	100.01	100.00	100.02	100.00	100.00	100.00

Nr-11 : Hornblende-Augite-bearing Hypersthene andesite, Yotsudake lava.

Nr-12 : Augite-Hypersthene andesite, Inclusion in Nr-11.

Nr-13 : Biotite-Augite-bearing Hypersthene-Hornblende andesite, Yotsudake lava.

Nr-14 : Hypersthene-Augite-bearing Hornblende basalt, Inclusion in Nr-13.

Nr-15 : Biotite-bearing Olivine-Hornblende-Hypersthene-Augite andesite, Daikoku lava series.

Nr-16 : Augite-Hypersthene-Hornblende-Olivine andesite, Inclusion B in Nr-15.

Nr-17 : Olivine-Hornblende-bearing Hypersthene-Augite andesite, Inclusion A in Nr-15.

Nr-18 : Augite-Hypersthene andesite, Inclusion C in Nr-15.

Nr-19 : Hornblende-Augite-bearing Hypersthene andesite, Daikoku lava series.

Nr-20 : Augite-bearing Hornblende-Hypersthene andesite, Inclusion in Nr-19.

成する。乗鞍岳火山のなかでは最も多い溶岩流で構成されている火山体である。古期成層火山は千町ヶ原溶岩群から成り、新期噴出物は番所溶岩・平金溶岩・高天ヶ原寄生火山・権現池成層火山から成る。千町ヶ原溶岩は火山体南部の標高約2,700mより低い地域に広い山腹を形成し、普通角閃石を多く含む複輝石安山岩から成る。番所溶岩は山体東側に、また平金溶岩は山体西側にそれぞれ分布する。千町ヶ原溶岩群形成後にかなり時間間隔があったと考えられる。番所溶岩は複輝石安山岩 (SiO₂=55.76~56.16%) で、苦鉄質斑晶としてかんらん石を含むことがある。高天ヶ原寄生火山は千町ヶ原溶岩群と番所溶岩・平金溶岩をおおい、権現池火山体の上部をつかって分布する。権現池成層火山は主峰の剣ヶ峰をつくり、下位から、室堂・東谷・

第1表 (つづき)。

	Nr-21	Nr-22	Nr-23	Nr-24	Nr-25	Nr-26	Nr-27	Nr-28	Nr-29	Nr-30
	Host	Host	Host	Host	Host	Host	Host	Host	Host	Nr-29-I
SiO ₂	59.50	59.30	60.17	55.76	55.78	55.85	56.16	58.84	58.66	56.52
TiO ₂	0.97	0.94	0.88	1.22	1.22	1.22	1.25	0.98	0.98	1.13
Al ₂ O ₃	16.27	16.68	16.59	18.36	18.10	18.27	17.70	16.50	16.41	16.69
Fe ₂ O ₃	2.47	3.32	2.89	1.88	2.04	2.23	2.43	2.50	2.33	2.68
FeO	4.10	3.38	3.59	5.79	5.86	5.45	5.50	4.21	4.45	4.62
MnO	0.12	0.12	0.13	0.14	0.14	0.14	0.15	0.12	0.13	0.14
MgO	3.33	3.06	2.83	3.35	3.45	3.35	3.43	3.47	3.67	4.75
CaO	6.12	6.11	5.98	7.08	7.18	7.22	7.06	6.32	6.47	7.65
Na ₂ O	3.56	3.39	3.53	3.30	3.28	3.20	3.24	3.56	3.53	2.81
K ₂ O	2.29	2.23	2.31	1.77	1.73	1.75	1.75	2.20	2.20	1.76
H ₂ O+	0.78	0.85	0.53	0.84	0.64	0.71	0.76	0.77	0.69	0.68
H ₂ O-	0.21	0.37	0.34	0.20	0.30	0.31	0.27	0.25	0.20	0.31
P ₂ O ₅	0.27	0.25	0.23	0.30	0.28	0.30	0.28	0.29	0.28	0.27
Total	99.99	100.00	100.00	99.99	100.00	100.00	99.98	100.01	100.00	100.01

Nr-21 : Biotite-Hornblende-Olivine-bearing Hypersthene-Augite andesite, Marishiten lava.

Nr-22 : Biotite-Olivine-Augite-bearing Hypersthene-Hornblende andesite, Ebisu lava.

Nr-23 : Biotite-bearing Augite-Hypersthene-Hornblende andesite, Ebisu lava.

Nr-24 : Hypersthene-Augite andesite, Bandokoro lava.

Nr-25 : Hypersthene-Augite andesite, Bandokoro lava.

Nr-26 : Olivine-bearing Augite-Hypersthene andesite, Bandokoro lava.

Nr-27 : Augite-Hypersthene andesite, Bandokoro lava.

Nr-28 : Biotite-Hornblende-Olivine-bearing Hypersthene-Augite andesite, Murodo lava.

Nr-29 : Olivine-Biotite-Hornblende-bearing Hypersthene-Augite andesite, Murodo lava.

Nr-30 : Augite-bearing Hypersthene andesite, Inclusion in Nr-29.

剣ヶ峰・岩井谷の4枚の溶岩と屏風岩スコリア集塊岩にわけられる。権現池火山体の新期噴出物は全体として包有物を含まない。

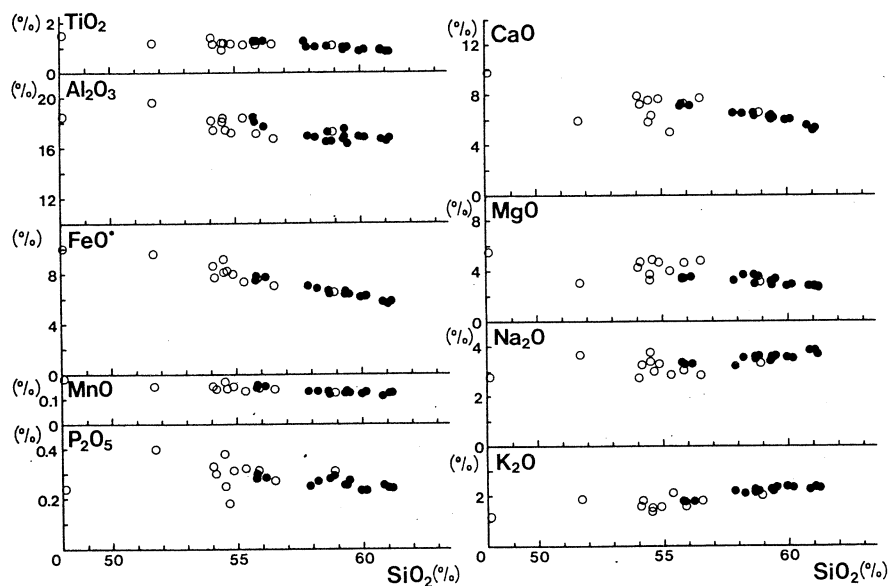
§ 4. 岩石試料の分析方法

乗鞍岳火山噴出物について包有物とそれを含むホスト岩石試料の代表的なものについて、全岩化学分析を行なった。主成分元素については蛍光X線法により分析した。主成分元素のうち、Na₂OとK₂Oについては、炎光光度法、FeOは過マンガン酸カリウム滴定法、H₂O(+), H₂O(-)は灼熱減量法により定量した。また、微量元素のうちBaはフレームレス原子吸光法により、そしてFはイオン電極法により定量した。ほかの微量元素のCe, Co, Cr, Cs,

第2表 乗鞍岳火山噴出物の全岩化学組成 (微量成分元素)。

ppm	Nr-4	Nr-5	Nr-6	Nr-7	Nr-8	Nr-9	Nr-10	Nr-13	Nr-14	Nr-19	Nr-20
Ba	449	365	422	441	431	593	397	424	226	388	310
Ce	50.5	61.8	51.1	44.6	49.7	79.2	54.7	45.5	29.7	45.2	33.6
Co	14.4	21.0	14.8	24.1	15.7	27.5	20.5	15.4	29.9	16.0	24.2
Cr	45.0	23.2	47.1	102.1	48.2	15.4	80.5	25.0	66.5	17.8	28.0
Cs	1.77	2.13	2.31	1.51	2.32	2.23	1.69	3.03	0.93	1.49	2.52
Nb	8.8	8.0	9.0	7.9	7.8	11.8	9.0	7.7	4.2	7.1	6.4
Ni	14.2	8.9	20.9	22.7	10.4	8.0	33.2	6.5	8.8	1.8	8.8
Rb	64.6	47.0	71.6	61.7	66.1	62.5	57.9	68.5	25.8	56.4	52.1
Sc	11.1	28.9	19.5	16.6	17.4	13.5	15.9	13.7	38.6	20.9	28.3
Sr	488.4	491.7	427.0	493.2	501.0	597.7	689.8	482.2	538.3	524.0	519.8
Y	19.4	38.4	20.3	22.4	20.9	33.2	22.5	19.9	13.5	21.3	20.8
Zn	65	97	68	128	39	99	86	82	68	83	75
Zr	484.2	183.7	176.7	160.0	164.1	195.3	177.0	156.5	98.2	145.3	100.0
F	440	353	276	380	393	985	386	766	468	207	288

Ni, Rb, Sc, Sr, Zn, Zr および Y は光量子放射化分析法¹¹⁾により定量した。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。分析結果は主成分元素を第1表に、微量成分元素を第2表にまとめて示した。



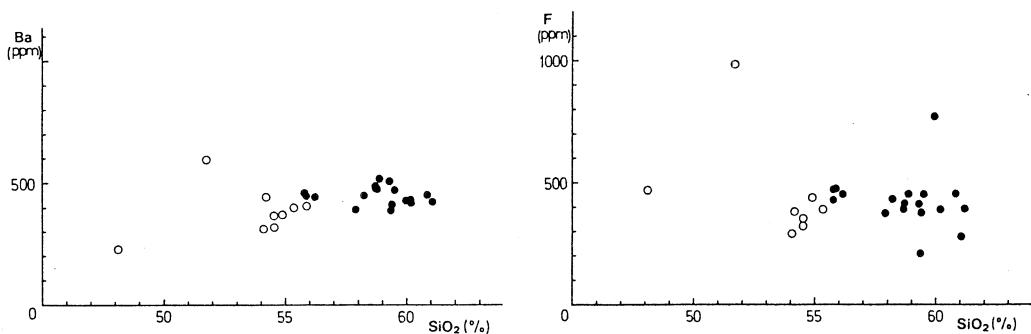
第3図 乗鞍岳火山噴出物の主成分元素組成変化図。
記号は黒丸：ホスト岩石，白丸：包有物。

§ 5. 乗鞍岳火山噴出物の組成変化

主成分元素の分析結果によれば、乗鞍岳火山噴出物は SiO_2 含有量で相対的に苦鉄質側の包有物と珪長質側のホスト岩石の2つに大きく分かれる。すなわち、包有物は玄武岩～苦鉄質安山岩質 ($\text{SiO}_2 = 48.08\% \sim 56.52\%$) であり、ホスト岩石は主として安山岩質 ($\text{SiO}_2 = 57.87\% \sim 61.17\%$) である。ただし番所溶岩は苦鉄質安山岩質 ($\text{SiO}_2 = 55.76\% \sim 56.16\%$) である。このようなホスト岩石と包有物の関係について、 SiO_2 -各酸化物図 (第3図) で検討した。全体としては SiO_2 の増加とともに、 TiO_2 、 Al_2O_3 、 FeO^* 、 CaO そして MgO は減少し、 Na_2O や K_2O は増加する。これらの変化図で特に注目されるのはホスト岩石はいずれの図においても一本のほぼ直線的な線上にのってくるのに対し、包有物は一般的にバラつく傾向にあり、一本の線上にかならずしものってこない。これは CaO や MgO で特に顕著である。

つぎに微量成分元素について、 SiO_2 -各微量元素図 (第4図) でみてみよう。Ba、F ともに SiO_2 とはあまり明瞭な相関はみられず、特に包有物ではバラつきが大きい。Ba は SiO_2 の増加とともに包有物からホスト岩石にかけてやや増加する傾向にある。インコンパティブル元素の Ce、Cs、Nb、Rb、Zr および Y のうち、Rb は SiO_2 の増加とともに増加し、Nb も包有物の一部を除くと増加する傾向にあるが、ほかは明瞭な相関関係を示さない。コンパティブル元素のうち、Ni と Cr は明瞭な関係を示さないが、Co と Sc は SiO_2 の増加とともに減少し、Sr は SiO_2 が 55% 位で最大になってあとは減少する。

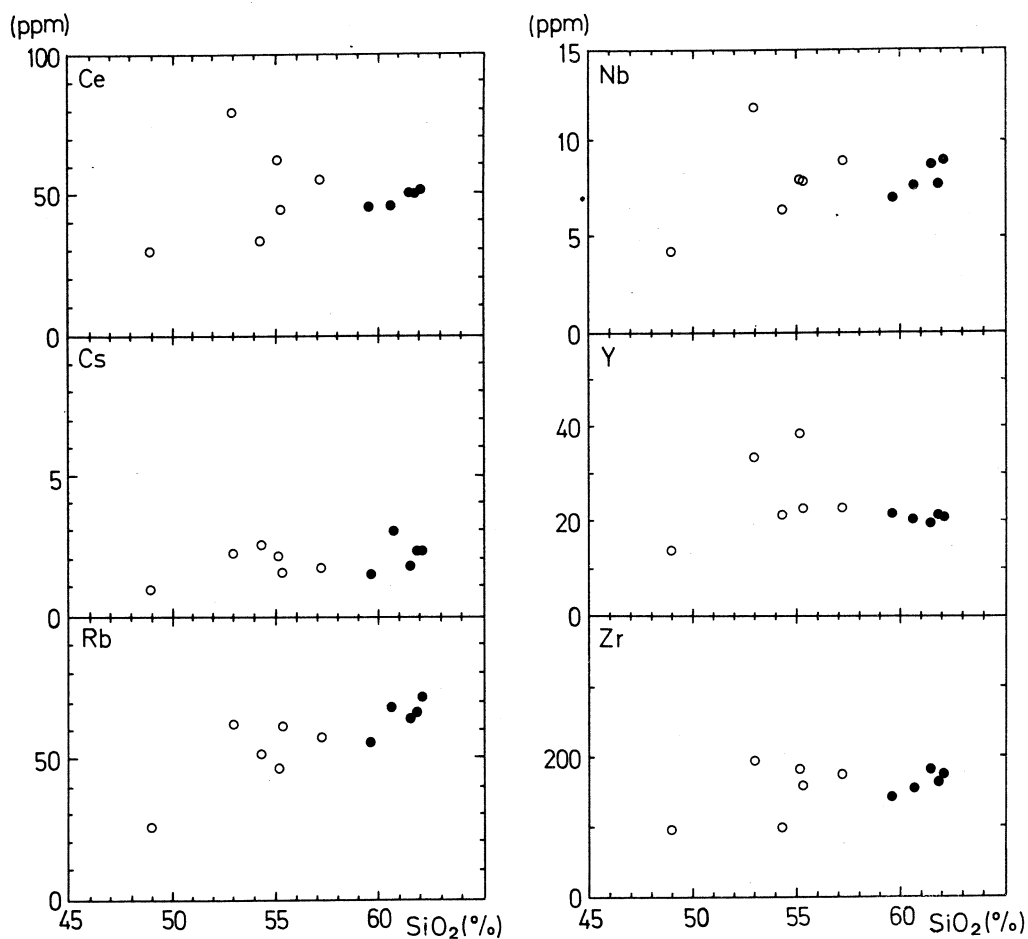
以上のようなことから、ホスト岩石はそれぞれ一連の分化の産物と考えられるが、これに対して包有物の少なくとも一部はホスト岩石のトレンドから明らかにはずれてしまい、同源的な



第4図 乗鞍岳火山噴出物の微量元素組成変化図。

a : バリウムおよびフッ素。

記号は第3図と同じ。



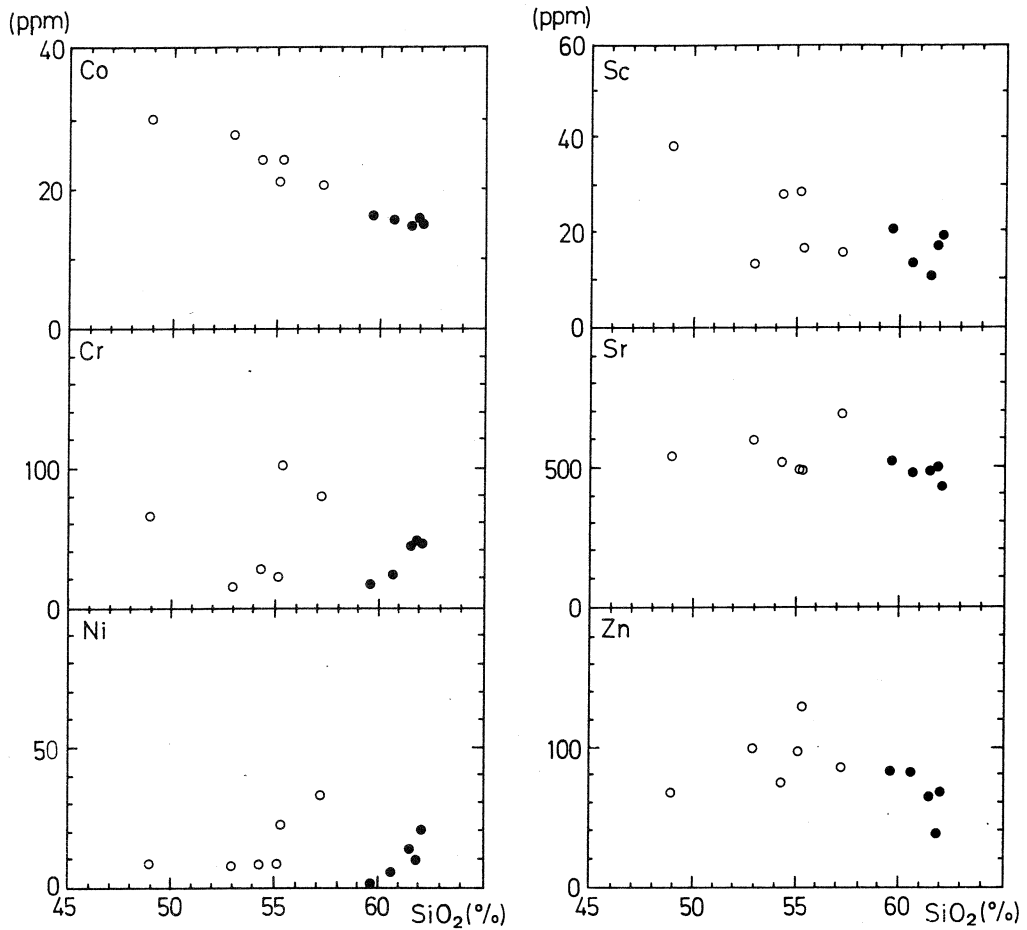
第4図 b : コンパティブル元素。

ものではない可能性がある。

なお、中野⁹⁾によれば、斑晶-石基の鉱物組み合わせにより乗鞍岳火山噴出物を5つのグループに分け、全岩組成上でも区別がつくことを述べているが、今回は分析試料数が少なかったためか区別はできなかった。

§ 6. 乗鞍岳火山噴出物の地球化学的特徴

主成分元素で地球化学的特徴をみると、ホスト苦鉄質安山岩は $\text{FeO}^*/\text{MgO}-\text{SiO}_2$ 図 (第5図)¹²⁾ によれば、包有物の一部とともにソレアイト系列に分類され、他のホスト安山岩と包有物はカルク・アルカリ系列に分類される。そしてホストの苦鉄質安山岩～安山岩は FeO^*/MgO がほとんど変化しないまま、 SiO_2 に富んでいくトレンドを示す。これに対して



第4図 c : コンパティブル元素。

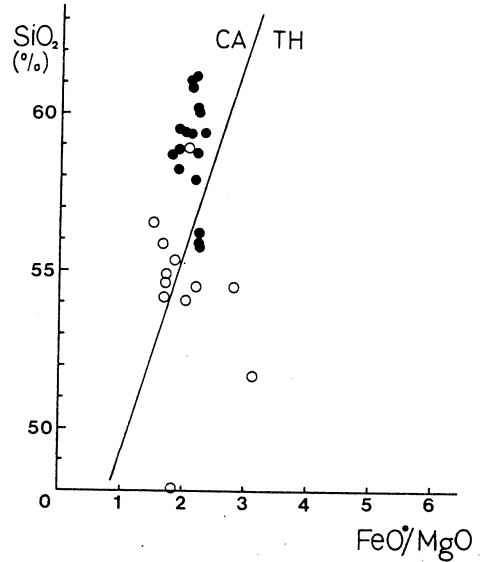
包有物は全体としてバラつき、はっきりした傾向は示さない。また、これらは、 SiO_2 - Total Alkali 図 (第6図) では高アルミナ玄武岩系およびそれに伴われるカルク・アルカリ岩系列の領域に点示される。包有物の一部はアルカリ玄武岩系列の領域に点示される。さらに微量元素について、N-type MORB 規格化図¹³⁾ (第7図) でその特徴を見ると、Nr-14を除いて明らかに、MORBよりも特にLIL元素に富んでおり、しかも、SrよりKやRbに富む島弧産カルク・アルカリ岩の特徴を明瞭に示している。

乗鞍岳火山噴出物について、ややアルカリの多いカルク・アルカリ岩であることが述べられている¹⁰⁾が、以上の主成分元素と微量元素の結果からも一部を除いて乗鞍岳火山噴出物のほとんどのものは包有物を含めて島弧に産するカルク・アルカリ岩の性質をもっていると結論される。

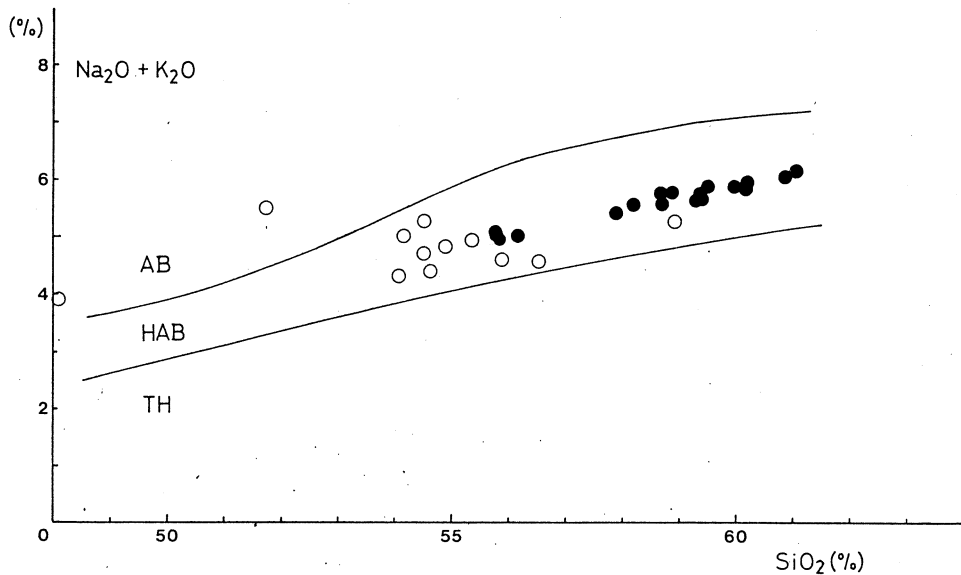
§ 7. 乗鞍岳火山噴出物とフォッサマグナ地域の第四紀火山噴出物の比較

乗鞍火山列に属している第四紀の主な火山としては北から立山火山, 焼岳火山, 乗鞍岳火山および御岳火山があげられる。これまでの乗鞍火山列の噴出物の全岩化学組成については, Kobayashi et al.¹⁵⁾, 中野⁹⁾ および Nakano et. al.¹⁶⁾ などで述べられている。乗鞍岳火山噴出物の組成はハーカー図上で, 御岳火山新期のものとほぼ同じ組成であり, また微量成分元素組成でも Nakano et. al.¹⁶⁾ は SiO_2 -微量成分元素図上で乗鞍火山列の各火山間で系統的な組成差はみられないことを述べている。

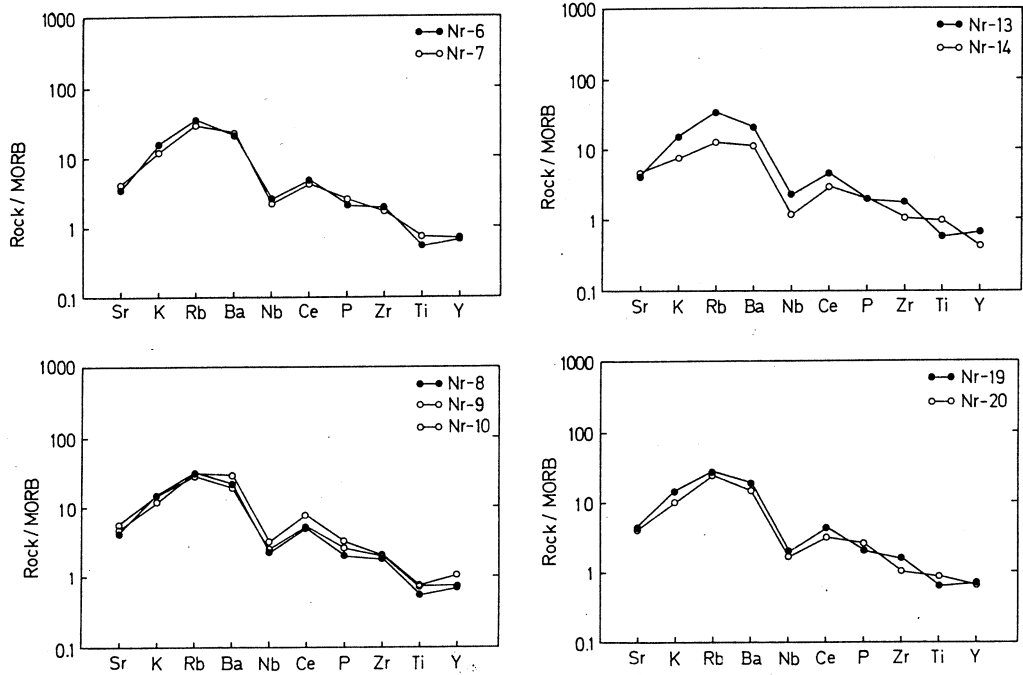
したがってここでは, 乗鞍岳火山の噴出物とフォッサマグナ地域の第四紀火山噴出物として



第5図 乗鞍岳火山噴出物の FeO^*/MgO - SiO_2 図。
記号は第3図と同じ。

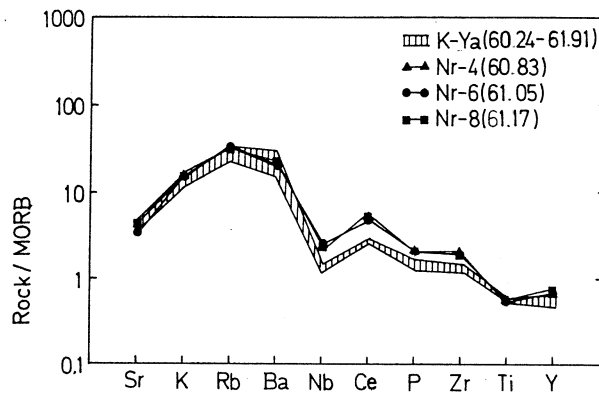


第6図 乗鞍岳火山噴出物の SiO_2 -Total Alkali 図。
記号は第3図と同じ。



第7図 乗鞍岳火山噴出物のN-type MORBの規格化図。

北八ヶ岳火山¹⁷⁾のものをえらび、その特徴を比較検討した結果を述べる。主成分元素組成では乗鞍岳火山と北八ヶ岳火山のものでは明瞭な差は見られないが、微量元素組成では明らかな違いが見られた。すなわち、双方の火山の噴出物のうち $\text{SiO}_2 = 60\%$ の安山岩組成について N-type MORB で規格化した図 (第8図) でみると、インコンパティブル元素のうち LIL 元素で



第8図 乗鞍岳火山の安山岩 ($\text{SiO}_2 = 60\%$ 程度) のN-type MORB 規格化図。比較のために、北八ヶ岳火山¹⁷⁾の同程度の SiO_2 含有量の安山岩のパターンを示してある。

はほとんどその差が見られないのに対して、HFS 元素では乗鞍岳火山のほうが北八ヶ岳火山よりも明らかに富むパターンを示す。

Nakano *et al.*¹⁶⁾ は八ヶ岳—乗鞍—白山という海溝側から背弧側にかけて、単純には LIL 元素が濃集していないことを指摘している。今回の比較でも LIL 元素についてはほとんど乗鞍岳火山と北八ヶ岳火山では差がみられないという結果になった。しかし、HFS 元素では明瞭な差がみられる。玄武岩組成での比較はできないが、Ti や P を除けば、他の HFS 元素はどれも残液に濃集するとみられる。したがってもとのマグマにすでに HFS 元素の含有量に差があったと考えられる。

本研究にあたり、東北大学理学部原子核理学研究施設の榎本和義博士、大槻勤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。東北大学教養部蟹沢聰史教授、岩鉦教室の藤巻宏和助教授、長谷中利昭博士、土谷信高博士には、諸般にわたって御助力頂いた。なお、本研究の一部に文部省科学研究費補助金 (Nos. 02452063, 03452067) を使用した。以上の方々ならびに当局に深謝する。

参 考 文 献

- 1) H. Kuno : Bull. Volcanol. ser. II **20** (1959) 37.
- 2) H. Kuno : Bull. Volcanol. ser. II **29** (1966) 195.
- 3) Y. Masuda and K. Aoki : Earth Planet. Sci. Lett. **44** (1979) 139.
- 4) T. Yoshida and K. Aoki : Sci. Rep. Tohoku Univ. ser. III **16** (1984) 1.
- 5) S. Nohda and G. J. Wasserburg : Earth Planet. Sci. Lett. **52** (1981) 264.
- 6) S. Aramaki and T. Ui : J. Volcanol. Geotherm. Res. **18** (1983) 549.
- 7) 神津叔祐 : 震災予防調査会報告 **71** (1911) 1.
- 8) 中野 俊 : 日本地質学会第91年学術大会講演要旨 (1984) p. 362.
- 9) 山田直利, 足利 守, 梶田澄雄, 原田 智, 山崎晴雄, 豊 遥秋 : 地域地質研究報告, 高山地域の地質 (地質調査所, 1985) p. 111.
- 10) 原田 智, 棚瀬充史 : 山下 昇・紺野義夫・糸魚川淳二編, 日本の地質 5, 中部地方 II (共立出版, 1988) p. 184.
- 11) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki : J. Jpn. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol. **81** (1986) 406.

- 12) A. Miyashiro : Am. J. Sci. **274** (1974) 321.
- 13) J. A. Pearce : *Continental basalts and mantle xenoliths*. eds. C. J. Hawkesworth and M. J. Norry (Shiva, 1983) p. 230.
- 14) T. Kobayashi : J. Coll. Lib. Art. Toyama Univ., (Nat. Sci.) **7** (1974) 71.
- 15) 小林武彦, 大森江い, 大森貞子 : 地質調査所月報 **26** (1975) 497.
- 16) S. Nakano, T. Fukuoka and S. Aramaki : *Geochem. J.* **21** (1987) 159.
- 17) 井須紀文, 吉田武義, 青木謙一郎 : 核理研研究報告 **19** (1986) 321.

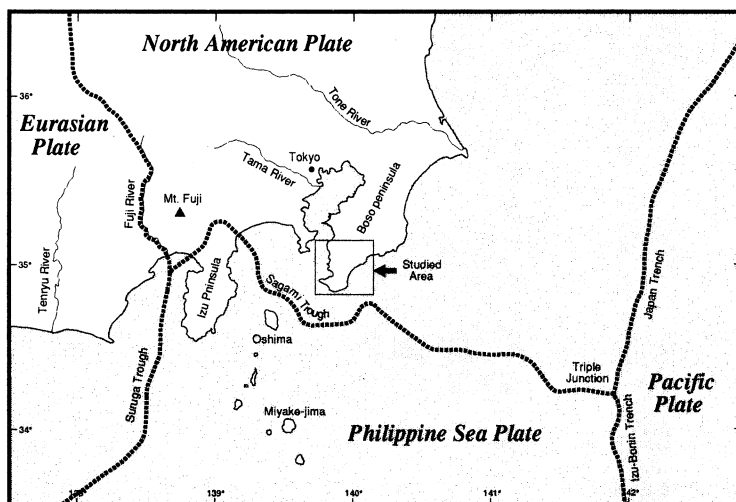
房総半島に発達する火山岩及び火砕岩類 の化学組成とそのテクトニクス上の意義

理学部地学, 教養部地学*

斎藤実篤・吉田武義*・青木謙一郎

§ 1. はじめに

関東地方南縁一帯は、南方からフィリピン海プレート、東方から太平洋プレートがそれぞれ沈み込む北米プレートの南東縁部にあたり（第1図）、現在激しい地殻変動を受けている地域の一つである。房総半島南東沖における世界唯一のT-T-T型海溝三重点の存在¹⁾や、伊豆半島北方のプレート収斂境界における島弧-島弧の衝突現象²⁾は、この地域におけるテクトニクスの特異性を物語っている。日本列島の地体構造上、この地域は四万十南帯及び南部フォッサマグナ地域の東方延長部に相当し³⁾、北米プレートあるいはユーラシアプレートの南縁の付加体と前弧海盆の複合体によって構成される⁴⁾。南関東の地質体を構成する物質の大部分は始新世以来の火砕岩であり、これらの火砕岩から始新世以来の供給源の変遷や火山活動の記録を読み取ることができる。また、房総半島は東北日本弧、西南日本弧、伊豆小笠原弧の会合部に位置しているため、3つの島弧の記録をとどめていると考えられる。それらの記録から各島弧の相互関係やその時間的変遷を明らかにすることは新生代の日本列島の発達史を復元する上で重



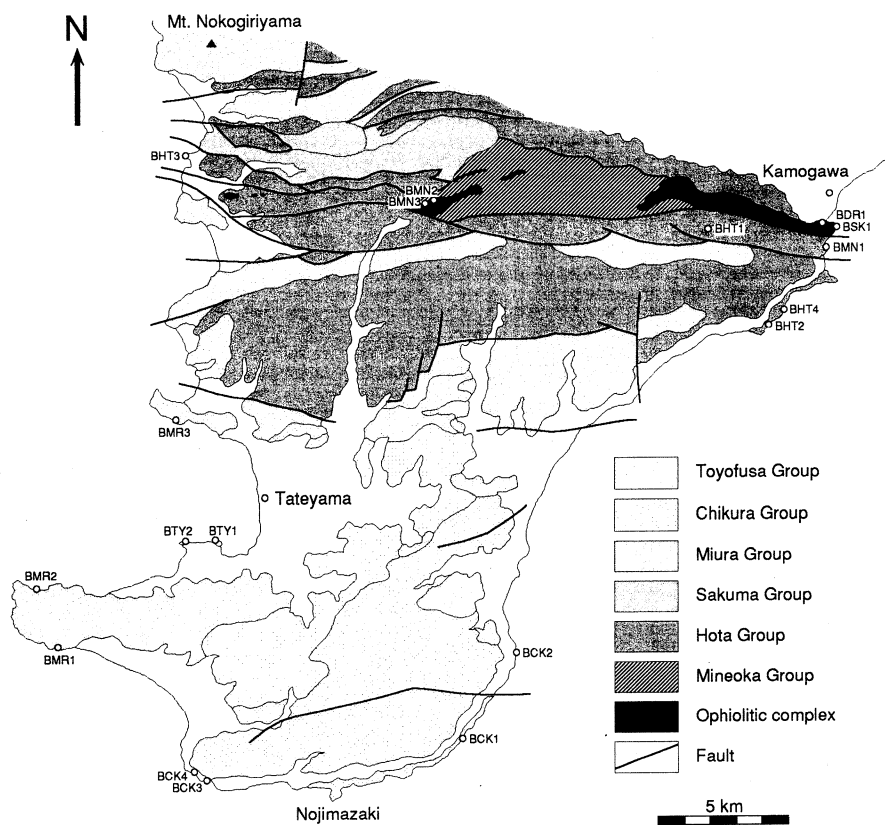
第1図 調査位置図。プレート境界は Renard et al.¹⁾ による。

要である。

今回、房総半島の地層中に挟在する火山岩や火砕岩について、光量子放射化法等によりその化学分析を行った。本報告ではそれらの地球化学的特徴を述べ、そのテクトニックな位置づけを検討した。

§ 2. 地質概説

房総半島南部の地層群は下位から嶺岡層群、保田層群、佐久間層群、三浦層群、千倉層群、豊房層群に区分される⁵⁾ (第2図)。嶺岡層群は、下部中新統下部の珪質泥岩、泥岩、砂質ター



第2図 房総半島南部の地質図。丸印は試料の採取地点を示す。

ビダイトからなる嶺岡付加体⁶⁾を形成している。嶺岡付加体は四万十南帯に対比され、古第三系の石灰岩・チャート岩塊を含む嶺岡オフィオリティック複合岩体とともに嶺岡構造体を構成する。嶺岡層群の一部同時異相である下部中新統保田層群は江見付加体⁶⁾を構成する。保田層

群の最下部は本州弧に由来する古期岩類礫や火砕物を含む粗粒砂岩からなり、上方へ帯緑色の泥岩を挟むようになる。上部は白色細粒凝灰岩、凝灰質泥岩、凝灰質砂岩が卓越する。同時期でこの層序を持つ地層群は西南日本には存在しないが、東北日本弧前弧側、例えば常磐地域の下部中新統には普通に認められる。嶺岡・保田両層群を不整合に覆う佐久間層群は崖錐角礫岩、砂質タービダイト、帯緑色泥岩からなり、岩相の側方変化が著しい。同層群は中期中新世初期に形成された地溝群を短期間に埋積した⁷⁾。同時期でこの層序を持つ地層群は、関東地方の秩父盆地、東北地方の西黒沢期の半地溝群をはじめ日本列島に広く発達している。中期中新世中期以降の三浦層群、千倉層群、豊房層群は火山ガラスと石灰質微化石からなる半遠洋性泥岩を主体とし、スコリアやパミスからなる火砕岩を頻繁に挟む。三浦層群は江見付加体上の前弧海盆を埋積すると同時に、江見付加体以南では石堂付加体⁶⁾を構成している。さらに千倉層群は石堂付加体上の前弧海盆を埋積し、石堂付加体以南では布良付加体⁶⁾を構成している。以上のように房総半島の前弧地質体は嶺岡付加体、江見付加体、石堂付加体、布良付加体と南方へ順次配列しており、同時異相として前弧海盆が発達している。付加体の年代は四万十南帯から南海トラフ付加体⁸⁾に相当するが、付加体の層序シーケンスは、玄武岩+遠洋性堆積岩+砕屑岩（嶺岡層群）、砕屑岩+酸性凝灰岩（保田層群）、半遠洋性泥岩+パイモータル火砕岩（三浦層群）と変化しており、岩相上それぞれ四万十南帯相、東北日本前弧相、伊豆・小笠原前弧相⁹⁾に対応していると考えられる。

§ 3. 各火山岩及び火砕岩の産状と岩石学的特徴

今回化学分析を行った岩石試料のリストを第1表に示す。嶺岡層群の試料は鴨川オフィオリティック複合岩体⁵⁾中の玄武岩（BMN 1）、八丁層⁵⁾基底部の玄武岩質礫岩中の玄武岩礫（BMN 3）、その礫岩中に挟在するピクライト質玄武岩のブロック（BMN 2）の3試料である。BMN 1は枕状溶岩からなる無斑晶玄武岩で、斑晶として斜長石を極少量含む。BMN 3は付加体層序の基底部をなす玄武岩質砕屑岩で、細礫大から巨礫大の良く円磨された玄武岩礫からなり、基質は細粒の玄武岩岩片と方解石からなる。玄武岩岩片は斑晶鉱物として斜長石、単斜輝石を含む。BMN 2はピクライト質玄武岩の数m大のブロックで、方解石や緑泥石で充填されたカンラン石の仮像が多く認められる。保田層群の試料は火山砕屑性砂岩3試料（BHT 1, BHT 2, BHT 3）と砂質凝灰岩1試料（BHT 4）である。BHT 1, BHT 2, BHT 3は保田層群下部の前島層⁵⁾と高鶴層⁵⁾、及び青木山層⁵⁾に頻繁に挟在する不淘汰な火山砕屑性砂岩で、構成粒子には火山ガラス、軽石、斜長石、及び少量の石英、輝石、角閃石、黒雲母、不透明鉱物

第1表 化学分析を行った岩石試料のリスト。

試料番号	層群名	地層名	産地	岩相	産状	年代(Ma)	年代決定法
BMN1	嶺岡	鴨川オフィオリティック複合岩体	新屋敷	玄武岩	岩体	30~50	K-Ar 法
BMN2	嶺岡	八丁層	平久里中	ピクライト質玄武岩	岩体	Paleogene?	-
BMN3	嶺岡	八丁層	平久里中	玄武岩	火山岩礫	Paleogene?	-
BHT1	保田	高鶴層	高鶴山	火山砕屑性砂岩	火砕岩	20~22	放散虫化石
BHT2	保田	青木山層	吉浦	火山砕屑性砂岩	火砕岩	18~20	放散虫化石
BHT3	保田	青木山層	亀ヶ崎	火山砕屑性砂岩	火砕岩	18~20	放散虫化石
BHT4	保田	青木山層	太夫崎	砂質凝灰岩	火砕岩	18~20	放散虫化石
BSK1	佐久間	荒島層	荒島	デイサイト質凝灰岩	火砕岩	14~16	岩相対比
BDR1	-	-	心厳寺	閃緑岩	貫入岩体	14	K-Ar 法
BMR1	三浦	天津層	伊戸	玄武岩	火山岩礫	6~8	石灰質ナノ化石
BMR2	三浦	天津層	州崎	安山岩	火山岩礫	6~8	石灰質ナノ化石
BMR3	三浦	鏡ヶ浦	大房	安山岩質凝灰岩	火山岩礫	3~5	岩相対比
BCK1	千倉	白浜層	白間津	玄武岩	火山岩礫	3	石灰質ナノ化石
BCK2	千倉	布良層	千倉港	安山岩	火山岩礫	3	石灰質ナノ化石
BCK3	千倉	布良層	布良	流紋岩	火山岩礫	3	石灰質ナノ化石
BCK4	千倉	布良層	布良	安山岩	火山岩礫	3	石灰質ナノ化石
BTY1	豊房	東長田層	鷹の島	安山岩	火山岩礫	0.5	石灰質ナノ化石
BTY2	豊房	東長田層	沖の島	デイサイト	火山岩礫	0.5	石灰質ナノ化石

が含まれる。BHT 4 は保田層群中上部に普遍的に見られる白色砂質凝灰岩で、火山ガラスと軽石からなる。佐久間層群の試料は荒島層⁵⁾の凝灰岩 (BSK 1) 1 試料である。また、佐久間層群とはほぼ同時期の岩石で、鴨川オフィオリティック複合岩体中に貫入している閃緑岩体 (BDR 1) の分析も行った。BSK 1 は緑青色を呈するデイサイト質凝灰岩で主に火山ガラス、軽石、斜長石、輝石からなり、稀に角閃石を含む。BDR 1 は中粒、塊状の閃緑岩で、主に斜長石と褐色角閃石からなり、変質鉱物として緑泥石、ぶどう石等が見られる。三浦層群の試料は凝灰岩中の玄武岩~安山岩角礫 2 試料 (BMR 1, BMR 2) と安山岩質凝灰岩 1 試料 (BMR 3), 千倉層群の試料は凝灰岩中の玄武岩~流紋岩角礫 4 試料 (BCK 1, BCK 2, BCK 3, BCK 4), そして豊房層群の試料は凝灰岩中の安山岩~デイサイト角礫 2 試料 (BTY 1, BTY 2) である。三浦層群以降の試料は非常に新鮮で、斑晶鉱物として斜方輝石、単斜輝石、斜長石、不透明鉱物を含む。

§ 4. 各火山岩及び火砕岩の年代

今回化学分析を行った火山岩類及び火成岩体に関して、いくつかの放射年代の値が得られている。鴨川オフィオリティック複合岩体中の新屋敷の玄武岩岩体 (BMN 1) に関しては K-Ar 法で 30–50Ma¹⁰⁾ 及び 30–45Ma¹¹⁾ の年代値が、心巖寺付近の閃緑岩岩体 (BDR 1) に関しては同じく K-Ar 法で 14Ma の年代値が得られている¹²⁾。その他の岩石に関しては放射年代の報告例はない。堆積岩類に挟在する火砕岩類や火山岩岩片に関しては堆積岩中に産出する微化石 (浮遊性有孔虫, 放散虫及び石灰質ナノ化石) から間接的に年代を決定することができる。各試料を含む地層が対比される化石帯のおおよその年代値⁵⁾ を第 1 表に示す。

§ 5. 全岩主成分及び微量成分元素組成

全岩組成のうち, SiO_2 , TiO_2 , Al_2O_3 , 全鉄, MnO , MgO , CaO , Na_2O , K_2O , P_2O_5 については蛍光 X 線分析法¹³⁾ により分析を行い, FeO は過マンガン酸カリ滴定法により, Na_2O , K_2O は蛍光光度法, H_2O は灼熱減量法により分析を行った。BHT 3 については Nb, Zr, Y, Sr, Rb, Th, Pb, Ga, Zn, Cu, Ni, Co, Cr, V, Ba, Ce の分析を蛍光 X 線分析法により行った。それ以外の試料に関しては光量子放射化法を用いて, Ba, Ce, Co, Cr, Cs, Nb, Ni, Rb, Sc, Sr, Zn, Zr, Y の 13 微量成分元素の分析を行った。分析方法と条件は Yoshida et al.¹⁴⁾ によった。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。照射試料についての γ 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を行った。分析結果を第 2 表に示す。また各種のプロットを第 3 図～7 図に示す。

今回の分析試料には, 凝灰岩～火山性碎屑岩や, 一部に緑泥石や方解石などを含む変質した火山岩を含む。これらの岩石の分析にあたっては可能な限り新鮮な試料, あるいは異質物の混入が少ないものを用いるべく努めたが, 一部の試料におけるアルカリや LIL 元素濃度に関しては変質の影響等が無視できないと思われる。しかしながら, 多くの試料においては移動し難いと思われる, HFS 元素を用いた岩系判別と, 記載岩石学的特徴, およびアルカリや LIL 元素が示す特徴とが調和的であり, 少なくとも今回の試料に関しては, その全岩組成を用いた地球化学的研究の有意性が示された。

(1) 嶺岡層群に産する岩石の岩石化学的特徴

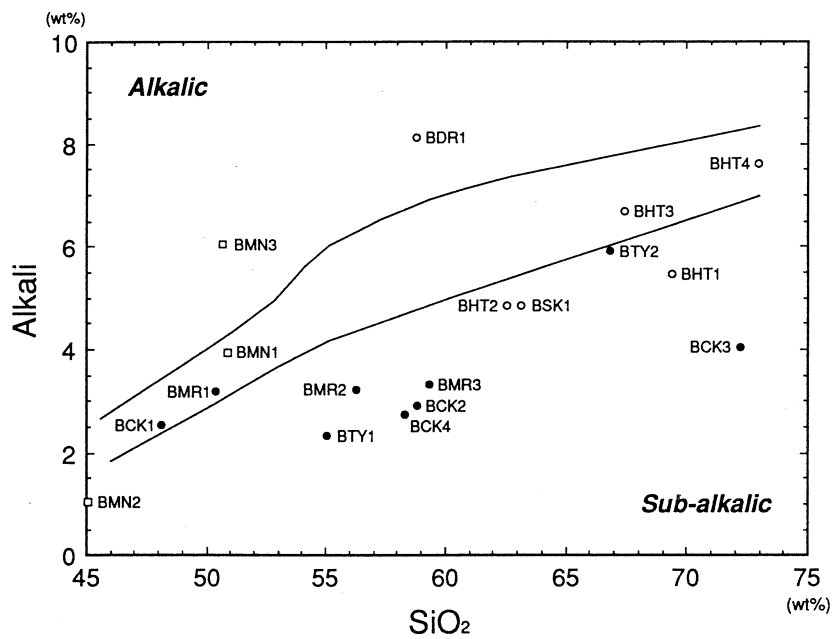
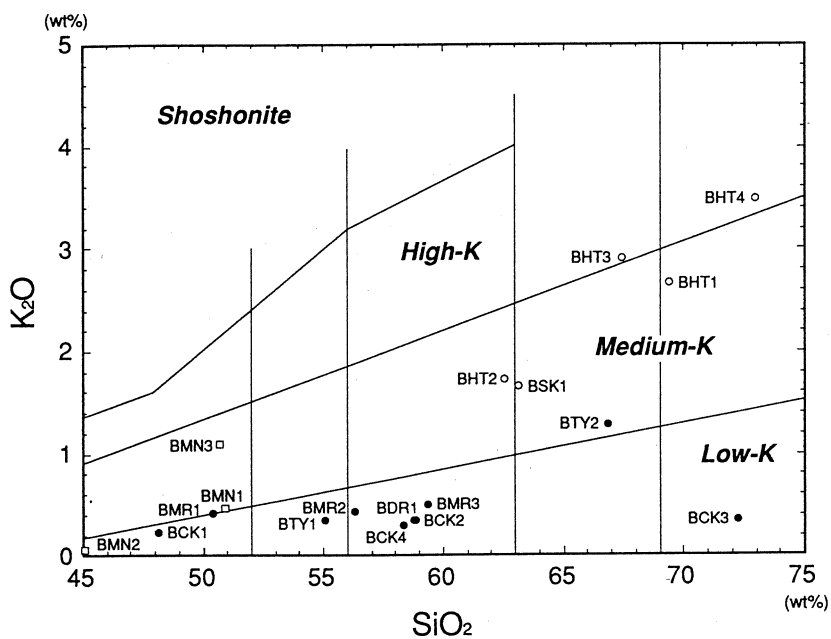
久野¹⁵⁾ の SiO_2 -Alkali 図では BMN 1 は高アルミナ玄武岩の領域に, BMN 2 はサブアルカリ岩の領域に, BMN 3 アルカリ岩の領域に入る (第 3 図)。BMN 1 と BMN 3 の分析値を

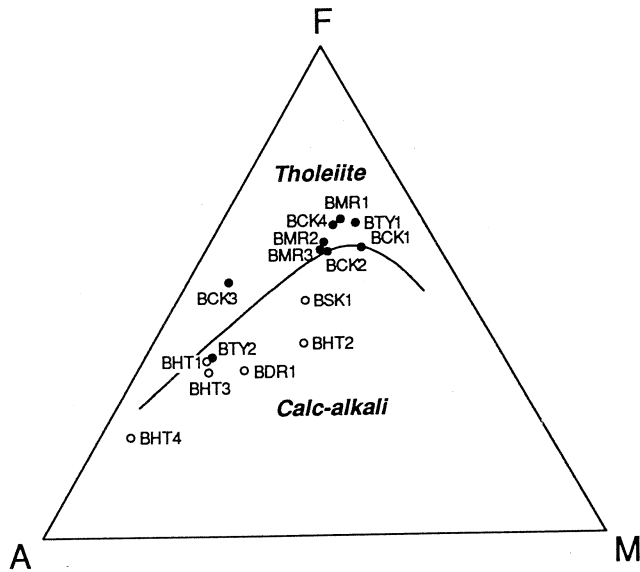
第2表 房総半島の火山岩及び火砕岩の全岩化学組成。

Sample	BMN1	BMN2	BMN3	BHT1	BHT2	BHT3*	BHT4	BSK1	BDR1	BMR1	BMR2	BMR3	BCK1	BCK2	BCK3	BCK4	BTY1	BTY2
wt. %																		
SiO ₂	50.92	45.06	50.68	69.41	62.59	67.42	72.97	63.16	58.76	50.37	56.28	59.36	48.18	58.88	72.21	58.36	55.08	66.87
TiO ₂	2.38	2.48	4.27	0.53	1.05	0.89	0.45	0.82	0.56	1.19	0.97	0.92	1.13	0.74	0.47	0.90	0.88	0.64
Al ₂ O ₃	15.71	9.32	17.90	16.33	15.41	15.47	14.36	14.45	18.83	16.85	17.06	15.95	19.54	17.54	13.81	14.98	15.36	15.96
Fe ₂ O ₃	3.92	4.03	6.95	2.37	2.57	2.65	1.96	2.34	2.10	2.69	2.50	2.44	5.72	2.24	2.01	2.43	2.39	2.18
FeO	6.62	9.12	3.42	1.54	3.30	1.76	0.33	5.96	3.96	12.01	7.64	6.97	5.99	6.35	3.30	8.39	9.92	2.24
MnO	0.20	0.24	0.27	0.07	0.12	0.08	0.09	0.17	0.11	0.37	0.20	0.20	0.17	0.14	0.10	0.20	0.22	0.12
MgO	6.43	19.39	3.71	1.19	3.87	1.60	0.55	3.87	3.28	4.69	3.36	3.18	5.17	3.14	0.73	3.36	4.56	1.38
CaO	9.63	9.08	6.14	2.96	6.08	3.23	1.60	4.32	4.19	8.60	8.69	7.53	11.36	7.97	3.30	8.59	9.23	4.52
Na ₂ O	3.47	0.98	4.96	2.80	3.11	3.80	4.13	3.19	7.78	2.76	2.76	2.82	2.33	2.57	3.69	2.46	1.97	4.62
K ₂ O	0.46	0.06	1.09	2.66	1.73	2.90	3.49	1.66	0.35	0.41	0.44	0.50	0.22	0.35	0.34	0.29	0.35	1.29
P ₂ O ₅	0.26	0.25	0.60	0.13	0.17	0.19	0.07	0.09	0.06	0.10	0.09	0.18	0.18	0.06	0.05	0.04	0.05	0.18
Total	100.00	100.01	99.99	99.99	100.00	99.99	100.00	100.03	99.98	100.00	100.00	99.96	99.99	99.98	100.01	100.00	100.01	100.00
Alkali	3.93	1.04	6.05	5.46	4.84	6.70	7.62	4.85	8.13	3.17	3.20	3.32	2.55	2.92	4.03	2.75	2.32	5.91
FeO*/MgO	1.58	0.66	2.61	3.09	1.45	2.59	3.81	2.08	1.78	3.08	2.94	2.88	2.15	2.66	7.00	3.15	2.65	3.04
ppm																		
Ba	65		401		575	820		429	62		491					139		274
Ce	19.9		64.0		41.2	59.5		5.9	6.8		9.8					2.8		27.5
Co	45.5		85.9		21.8	5.5		14.6	20.4		29.4					29.3		7.3
Cr	109		61.7		122	16.5		111	66.4		18.9					4.8		3.0
Cs	-		0.07		1.59	-		0.14	0.32		0.73					0.19		0.69
Nb	5.5		45.7		7.2	8.4		0.5	1.0		1.4					-		3.0
Ni	57.3		147		25.8	2.3		13.2	35.7		8.7					9.6		2.1
Rb	7.9		8.8		48.6	45.4		9.7	1.3		6.9					1.3		16.7
Sc	56.2		50.9		27.4	-		16.8	22.4		35.6					40.7		14.8
Sr	151		394		466	356		428	300		174					183		294
Y	58.5		33.4		22.1	29.8		26.2	17.6		32.1					22.5		32.1
Zn	105		202		90	80.3		76	32		92					81		68
Zr	157		285		165	181		41.9	41.3		67.2					29.6		150

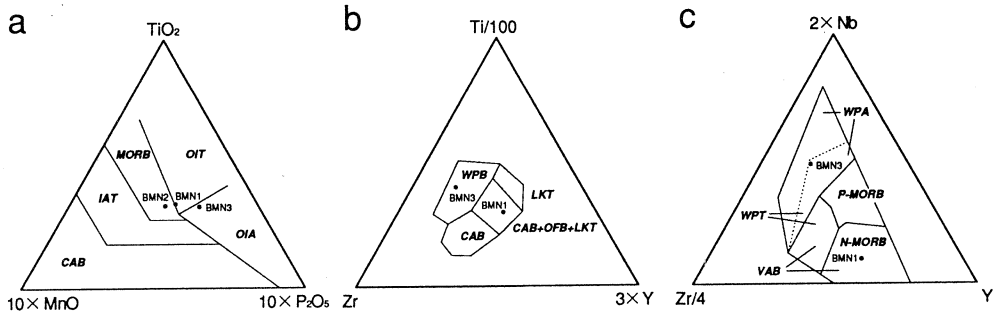
* Th, 6.0 ; Pb, 9.6 ; Ga, 18.3 ; Cu, 10.4 ; V, 86.5を含む。

TiO₂-10×MnO-10×P₂O₅ 図¹⁶⁾, Ti/100-Zr-3×Y 図¹⁷⁾, 2×Nb-Zr/4-Y 図¹⁸⁾ にプロットしたものを第6図に, インコンパティブル元素のN-MORB規格化パターンを第7図-aに示す。

第3図 SiO₂-Alkali 図。第4図 SiO₂-K₂O 図。

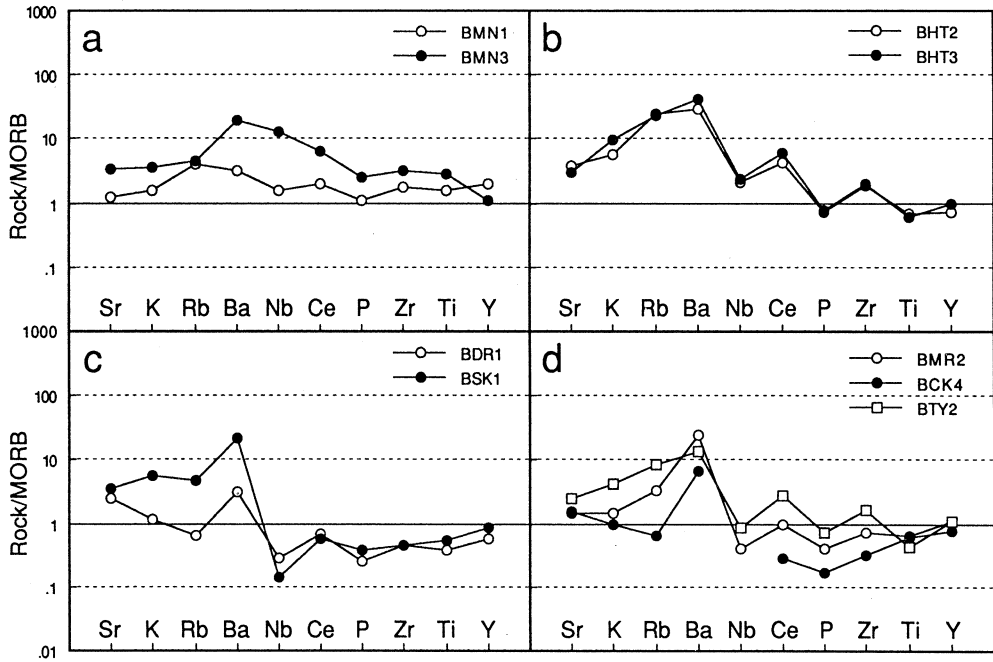


第5図 AFM図。



第6図 テクトニック・セッティングの判定図。
 a : $TiO_2-10 \times MnO-10 \times P_2O_5$ 図。 b : $Ti/100-Zr-3 \times Y$ 図。
 c : $2 \times Nb-Zr/4-Y$ 図。

BMN1は多くの判別図で海洋性玄武岩の領域にプロットされる。またN-MORB規格化パターンではほぼフラットなパターンを示す。この岩石は高Ti、Yで特徴づけられ、Srの含有量が少ない。これは島弧のソレアイトにはみられない特徴である。また、N-MORB規格化図においてRb、Ba位置で弱いピークをもち、また全体に規格化値が1よりも高目であることから、本岩は典型的なN-MORBよりもE-MORBに近い性格を示している。但し、高アルミナ玄武岩領域にプロットされ、 Na_2O にかなり富むという特徴が生来のものであるならば、これは、BaとCeに対してNbの規格化値が低い点とともに、典型的なE-MORBとは異なる特徴



第7図 N-MORBで規格化したインコンパティブル元素のスパイダーグラム。
 a: 嶺岡層群。b: 保田層群。c: 佐久間層群。
 d: 三浦層群, 千倉層群, 豊房層群。

である。これらの特徴から一つの可能性として、BMN 1の起源を背弧海盆玄武岩に求めることができる。

BMN 3は多くの判別図でプレート内玄武岩の領域にプロットされる。またN-MORB規格化パターンではBaをピークとした山型のパターンを示している。これらの特徴は海洋島などのプレート内に産するアルカリ岩の示す特徴である。

(2) 保田層群に産する岩石の岩石化学的特徴

保田層群の試料は SiO_2 wt%が58%~73%の岩石からなる。 SiO_2 - K_2O 図¹⁹⁾ではBHT 1, BHT 2がMedium-K系列, BHT 3, BHT 4がHigh-K系列の領域にプロットされる(第4図)。また, AFM図ではすべての岩石がカルクアルカリ系列の領域に入る(第5図)。インコンパティブル元素のN-MORB規格化パターンではLIL元素(Sr, K, Rb, Ba)に富み, HFS元素(Nb, Ce, P, Zr, Ti, Y)に乏しい。本岩が示すBaの正異常が最も大きく, Nbが負異常を示す規格化パターンは島弧火山岩に特徴的なものである(第7図-b)。また, K, Rb, Ce, Zrの濃集度が比較的高く, 黒雲母や角閃石が斑状鉱物として認められることなどから判断す

ると、保田層群の岩石は島弧の背弧側に産するカルクアルカリ岩の特徴を示しているといえる。

(3) 佐久間層群に産する岩石の岩石化学的特徴

微量の角閃石を含む BSK 1 は SiO_2 -Alkali 図においてはサブアルカリ岩の領域に入り (第 3 図), SiO_2 - K_2O 図においては Medium-K 系列にプロットされる (第 4 図)。また AFM 図においてはカルクアルカリ岩の領域に入る (第 5 図)。インコンパティブル元素についての N-MORB 規格化パターンでは, LIL 元素 (Sr, K, Rb, Ba) に富み, HFS 元素 (Nb, Ce, P, Zr, Ti, Y) に乏しい。本岩の N-MORB 規格化パターンが示す, Ba の正異常が大きく, Nb が負異常を示すパターンは島弧マグマに普遍的に認められる特徴である (第 7 図-c)。

BDR 1 は Na_2O に富んだ閃緑岩である。おそらく主に変質の影響で Na_2O に異常に富んでいるために, SiO_2 -Alkali 図上ではアルカリ岩の領域に, AFM 図上ではカルクアルカリ岩の領域にプロットされているが, K_2O は少なく Low-K 領域におちる。その N-MORB 規格化パターンが示す, Y, Ti に対して Nb の規格化値が低い点や, Ba, Sr が正異常を示し, Rb, K の規格化値がそれらに対して相対的に低いという特徴は東北本州弧火山フロント側火山に産するソレライト系列岩が示す特徴に最も似ている。

(4) 三浦層群, 千倉層群, 豊房層群に産する岩石の岩石化学的特徴

三浦層群, 千倉層群, 豊房層群の岩石は SiO_2 -Alkali 図においては BMR 1, BCK 1 が高アルミナ玄武岩の領域に, BMR 2, 3, BCK 2, 3, 4, BTY 1, 2 がサブアルカリ岩の領域に入る (第 3 図)。 SiO_2 - K_2O 図, AFM 図においては豊房層群の 1 試料 (BTY 2) のみが, Medium-K 系列, カルクアルカリ系列に入るほかは, すべての試料が Low-K 系列及びソレライトの領域に入る (第 4, 5 図)。インコンパティブル元素についての N-MORB 規格化パターンでは, LIL 元素 (Sr, K, Rb, Ba) に富み, HFS 元素 (Nb, Ce, P, Zr, Ti, Y) に乏しい。この, Ba に正のピークを持ち, Nb に負のピークを持つパターンは島弧火山岩に特徴的なものである (第 7 図-d)。

§ 6. 火山岩及び火砕岩のテクトニックな位置づけ

房総半島に分布する火山岩の地球化学的特徴は時代ごとにそれぞれ異なり, 大きく 3 つのステージに区分することができる。すなわち古第三紀の海洋性の玄武岩の活動期, 前期中新世から中期中新世前期までのカルクアルカリ岩を中心とする活動期, そして中期中新世中期以降のソレライト質岩の活動期である。

鴨川オフィオリティック複合岩体中に見られる玄武岩類について, 小川・谷口²⁰⁾ は一部に

はホットスポットタイプのアルカリ玄武岩を含むものの、大半は MORB 起源の玄武岩であると報告した。今回、海洋性と思われる玄武岩の地球化学的特徴を検討した結果、典型的な N-MORB 玄武岩よりは E-MORB 玄武岩に近い性格を持ち、しかも典型的な E-MORB 玄武岩とも少し異なる性格を持っていることが判明した。この玄武岩の起源としては背弧海盆玄武岩を考えることも可能であり、これは始新世から中新世にかけてのテクトニクスを復元する上で重要である。また付加体層序の基底を構成する玄武岩類はプレート内で形成されたアルカリ玄武岩の特徴を示している。この玄武岩の上位には浅海性の貝化石を含む玄武岩質礫岩及び砂岩、半遠洋性泥岩、泥岩、陸源砂岩と重なる。この層序は沈み込む海洋プレート上で海山が崩壊し、沖合いから陸側に近づいていく過程を示している。このような海洋プレート層序を持つ嶺岡層群は前期中新世までに四万十南帯の東方延長部として嶺岡付加体を形成した。

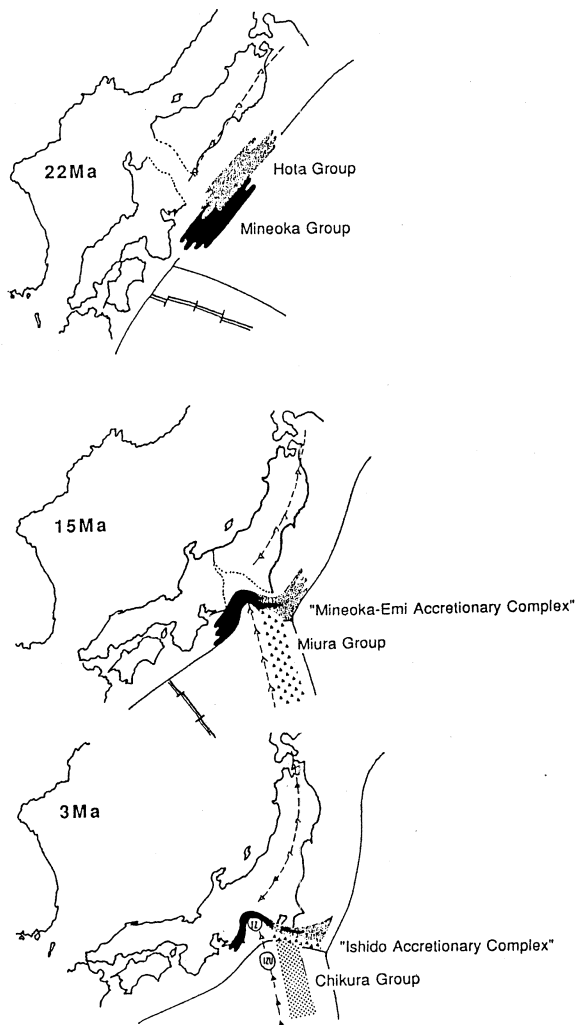
それに対し、保田層群中には海洋性の玄武岩は認められず、堆積の初期から陸源物質を含み、酸性の火砕岩を頻繁に挟む。火砕岩はカルクアルカリ系列の安山岩～デイサイトを主体とし、現在の伊豆・小笠原弧の火山フロントに見られるような低カリウムソレイトの要素は認められない。また、ODP Leg 126によって明らかにされた伊豆・小笠原弧北部での火山活動史^{21, 22)}によると、保田層群堆積期(約17～23Ma)には、そこでの火山活動は不活発であり、主に石灰質ナノチョークが堆積していた。従って、保田層群の火砕岩が伊豆・小笠原弧から直接もたらされたとは考えにくい。一方、前期中新世の東北日本弧においては、カルクアルカリ系列の酸性火砕岩の活動が卓越していたことから、保田層群中の酸性火砕岩は、むしろ東北本州弧側からもたらされたと考える方が自然である。なお、三浦半島においてはこの時期の現地性貫入岩体として23Maのカルクアルカリ安山岩が報告されている²⁵⁾。

前期中新世までに嶺岡層群が嶺岡付加体を形成する一方で、下部中新統の保田層群もほぼ同時期までに江見付加体を形成した。嶺岡付加体と江見付加体は佐久間層群によって不整合に覆われることから、付加作用は佐久間層群の堆積開始時(約16Ma)以前に完了した。佐久間層群中の火砕岩から推定される中期中新世初期の火山活動もやはりカルクアルカリ系列安山岩～デイサイトを主体としていた。ただし、ほぼ同時期に活動した閃緑岩質貫入岩体の、少なくともその N-MORB 規格化パターンが示す特徴は、現在の東北本州弧火山フロント側火山に産するソレイト系列岩のそれに最も近い。

Arai²⁶⁾は嶺岡帯の蛇紋岩類を含む環伊豆地塊蛇紋岩類²⁷⁾の起源を、海洋底に類似し初生的に水が供給され得るような環境、すなわち背弧海盆の上部マントルに由来するかもしれないと考えている。そして、これらの蛇紋岩(カンラン岩)類の上昇が24-15Maに拡大していた四

国海盆北端でのすれ違いプレート境界に沿って起こり、引き続く日本海の拡大（15～14Ma）で堆積物中に付加されるというモデルを示している。佐久間層群に大量のオフィオリティックな碎屑岩が発達することから、蛇紋岩の貫入開始時期は16Ma以前であることが推定される。この蛇紋岩類は始新世の海洋性玄武岩や遠洋性堆積物の断片を取り込みながら上昇し、嶺岡付加体及び江見付加体に貫入している。これらの蛇紋岩類が背弧海盆の上部マントルに由来するかもしれないという考えは蛇紋岩中に取り込まれた玄武岩質岩片の少なくとも一部が背弧海盆玄武岩起源かもしれないという考えと調和的である。しかしながら、これらの蛇紋岩類が上昇したと推定される前期中新世において、房総半島の南方に、古伊豆・小笠原弧やその背後にあった四国海盆が到達した証拠は今のところ見あたらない（第8図参照）。

小川・谷口²⁰⁾は蛇紋岩中の海洋性玄武岩は、四国海盆に先だってユーラシア・プレートに沈み込んだ海洋プレートの断片であろうと考え、また、それらが始新世のMORBであることから、太平洋プレートとは異なる“嶺岡プレート”の存在を仮定した。いま仮に、この始新世の海洋底（嶺岡プレート）が背弧海盆であると考えた場合にはこれに対応する島弧が必要となる。そのような島弧の存在は現在の房総地域では確認できないが、その候補の一つとして、前期中新世に東北本州の東方に存在が推定されている親潮古陸²³⁾をあげることができる。同古陸はデイサイト質マグマの火山活動で特徴づけられている。DSDP Site 439で得られた同古陸起源と思われる火山岩礫の地球化学的特徴は、Fujioka²⁴⁾によると、一部にソレライト系列岩も



第8図 構造発達概念図。

認められるものの、多くは Medium-K 系列のカルクアルカリ岩である。東北本州の東方に位置していたそのような古陸（古島弧）が南方に延びていたとすると、そこからの保田層群への酸性火砕岩の供給の可能性もあり得る。保田層群中の火砕物が東方ほど厚く集積している事実はこの考えと調和的である。

三浦層群堆積期になると、火山岩はそれ以前とは性質が一変し、低カリウムソレイトが主体となることから、伊豆大島の噴出物²⁸⁾等に代表される現在の伊豆・小笠原弧と類似の火山フロントから供給を受けるようになったと推定される。三浦半島においても三浦層群三崎層（上部中新統～鮮新統）中の降下火山礫は低カリウムソレイト系列の玄武岩～玄武岩質安山岩である^{29, 30)}。また、ODP Leg 126による伊豆・小笠原弧北部の火山活動史によると、現在に引き続く低カリウムソレイト系列の火山活動が開始したのは中期中新世以降である^{21, 22)}。従って三浦房総半島地域の三浦層群中に記録されている約14Ma以降の火山活動は、伊豆・小笠原弧北部の火山活動の記録そのものであると考えられる。供給源となった火山は伊豆弧の北上に伴い沈み込み、その前弧側に集積した火砕岩が本州弧側へ付加したのが三浦層群及びそれ以降の堆積物であると考えられる。

§ 7. ま と め

房総半島南部に発達する嶺岡付加体、江見付加体、石堂付加体及び布良付加体は、現在本州弧南縁の付加体をなしている。それらの地質年代、付加年代、及び構造的な接触関係は、16–15Maまでに嶺岡付加体と江見付加体が会合し、15–14Ma以降ににそれらの南方に石堂付加体が、3Ma以降に布良付加体が付加を開始したことを示している。

これらの各付加体を構成している物質は、それぞれ起源が異なることが岩石学的・地球化学的データから示された。嶺岡付加体は海洋性玄武岩とその上に堆積した半遠洋性堆積物と陸源堆積物からなる付加体である。江見付加体は陸源堆積物とカルクアルカリ系列の火砕岩を主とする付加体である。石堂付加体以降はソレイト系列の島弧火砕岩と半遠洋性堆積物からなる付加体である。

以上のことから、房総半島付近において、西南日本弧に対して東北日本弧、伊豆・小笠原弧が16–14Maという短期間に相次いで会合したと結論された（第8図）。また、今後の詳しい検討を要するが、今回新たに、嶺岡層群の海洋性玄武岩の起源、保田層群の火砕岩の供給源、及びそれらの付加作用の様式について、これまでの考えとは異なる可能性が指摘された。

光量子放射化分析を行うにあたって、東北大学理学部核理研の榎本和義博士、大槻 勤博士

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。また東北大学理学部地球物質科学科の藤巻宏和助教授，長谷中利昭博士，土谷信高博士，ならびに教養部地学科の蟹沢聰史教授，石川賢一博士には化学分析の諸般にわたって御協力頂いた。東北大学理学部地圏環境科学科の大槻憲四郎助教授，遅沢壮一博士，ならびに教養部地学科の山路 敦博士には貴重な助言をして頂いた。以上の方々に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) V. Renard, K. Nakamura, J. Angelier, J. Azema, J. Bourgois, C. Deplus, K. Fujioka, Y. Hamano, P. Huchon, H. Kinoshita, P. Labaume, Y. Ogawa, T. Seno, A. Takeuchi, M. Tanahashi, A. Uchiyama and J. L. Vigneresse : *Earth Planet. Sci. Lett.* **83** (1984) 243.
- 2) T. Matsuda : *J. Phys. Earth* **26** (1979) 409.
- 3) 木村政昭 : 南関東周辺の地質構造, (奈須紀幸編, 「海洋地質」, 東大出版会, 1976) p. 155.
- 4) 斎藤実篤, 酒井豊三郎, 尾田太良, 長谷川四郎, 田中裕一郎 : 月刊地球 **13** (1991) 15.
- 5) 斎藤実篤 : 地質学古生物学教室研究邦文報告 **93** (1992) 1.
- 6) 斎藤実篤 : 日本地質学会第99年学術大会講演要旨集 (1992) p. 193.
- 7) 斎藤実篤 : 構造地質 **36** (1991) 83.
- 8) A. Taira, I. Hill, J. Firth, *et al.* : *Proc. ODP Init. Repts.* **131** (1991). p. 306.
- 9) Y. Ogawa, K. Horiuchi, H. Taniguchi, J. Naka : *Tectonophysics* **119** (1985) 349.
- 10) 滝上 豊, 兼岡一郎, 平野 真 : 火山 **23** (1980) 308.
- 11) S. Tonouchi : Ph. D. Thesis, Univ. Tokyo.
- 12) 吉田善亮 : 地質ニュース **233** (1974) 30.
- 13) 土谷信高, 長谷中利昭, 石川賢一 : 岩鉱 準備中。
- 14) T. Yoshida, K. Masumoto and K. Aoki : *J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol.* **81** (1986) 150.
- 15) H. Kuno : *Bull. Volcanol.* **29** (1966) 195.
- 16) E. D. Mullen : *Earth Planet. Sci. Lett.* **62** (1983) 53.
- 17) J. A. Pearce and J. R. Cann : *Earth Planet. Sci. Lett.* **19** (1973) 290.
- 18) M. Meschede : *Chem. Geol.* **56** (1986) 207.
- 19) J. B. Gill : *Orogenic andesites and plate tectonics*. (Springer-Verlag, 1981) p. 390.

- 20) 小川勇二郎, 谷口英嗣 : 九大理学部研究報告地質学 **15** (1987) 1.
- 21) B. Taylor, K. Fujioka, et al. : Proc. ODP Init. Repts. **126** (1990). p. 1002.
- 22) B. Taylor, K. Fujioka, et al. : Proc. ODP Scientific Results **126** (1992). p. 709.
- 23) R. Von-Huene : Geol. Soc. Am. Bull. **93** (1982) 829.
- 24) K. Fujioka : Init. Repts. DSDP 56, **57** (1980) 1075.
- 25) 谷口英嗣, 小川勇二郎, 堀内一利 : 火山, 第2集 **33** (1988) 59.
- 26) S. Arai : Ophiolite Genesis and Evolution of the Oceanic Lithosphere (Kluwer, 1991) 807.
- 27) 荒井章司, 石田 高 : 岩鉱 **82** (1987) 336.
- 28) 藤井敏嗣, 荒牧重雄・金子隆之・小沢一仁・川辺禎久・福岡孝昭 : 火山, 第2集 **33** (1988) 234.
- 29) 谷口英嗣, 徐 垣, 小川勇二郎 : 月刊地球 **13** (1991) 31.
- 30) 有馬 真, 平田大二, 猪俣道也, 相原延光 : 月刊地球 **13** (1991) 35.

Ⅲ. 加 速 器 · 測 定 装 置

コヒーレント遷移放射によるサブミリ・ミリ波分光

科研, 工学部応物*, 核理研**

大坂俊明・伊師君弘・柴田行男

高橋俊晴・金井利喜・荒井史隆

木村真一・蔦谷 勉・池沢幹彦

近藤泰洋*・小山田正幸**

浦澤茂一**・中里俊晴**

加藤龍好**・庭野 智**

吉岡正裕**

§1. はじめに

サブミリ・ミリ波ないし遠赤外の波長領域は谷間の領域といわれて久しい。それは一にこの領域に強力な光源がないことに因っている。実験室においてはここ100年来、高圧水銀灯がこの波長領域の光源として通常使用されている。また、通常のシンクロトロン放射光もX線や真空紫外だけでなく、遠赤外領域においても分光測定用光源として使用されている。放射光は高輝度性、安定性において大変優れた光源であり、わが国の分子科学研究所のUVSOR施設に設置されている遠赤外分光測定装置は、広く共同利用に供されている¹⁾。高圧水銀灯にせよ、シンクロトロン放射光にせよ、そのスペクトル強度は波長が長くなるにつれ弱くなるので、測定できる波長に限界があり、實際上波長1 mm ないし3 mm 程度が限界である。このため、サブミリからミリ波の領域において強力な光源の出現が望まれている。

最近、核理研の電子ライナックを用いて、短いバンチの高速電子ビームからコヒーレントなシンクロトロン放射や遷移放射が発せられていることが確認され²⁾、その発生のメカニズムや基礎的性質の研究がなされている^{3), 4)}。コヒーレントな放射はサブミリ・ミリ波の領域、特に高圧水銀灯や通常の放射光の弱くなる波長1 mm 以上で桁違いに強い強度を示し、新しい高輝度光源として分光計測分野への利用が期待されている。光源としてのコヒーレントな放射は1) 高輝度, 2) 波長連続, 3) パルス, 4) 高偏光度など、優れた特徴を有している。特にその高輝度性により光束を小さく絞れるので、固体分光測定用光源に適している。

本研究では、上記のような特徴を有するコヒーレントな放射を実際に光源として用い、サブミリ・ミリ波の波長領域の分光測定を行い、その結果と、高圧水銀灯を光源とした分光測定の結果とを比較し、新しい光源としての利用可能性を検討する。次に、実際のスペクトル測定例として非晶質の典型物質の1つであるAs₂S₃ ガラスをとりあげ、その吸収スペクトルを測定

し、やはり高圧水銀灯を光源として得られた同じ試料の吸収スペクトルと比較検討する。ガラスには非晶質特有の低エネルギー状態の存在が30年以上も前から知られているが⁵⁾、その起源に関してはいまだに明らかにされていない。このためこの低エネルギー状態に関し、光散乱や中性子非弾性散乱、熱測定など⁶⁻⁸⁾により、最近盛んに研究されている。しかしながら、ちょうどそのエネルギーに相当するサブミリ・ミリ波の領域における分光測定は、測定の困難さからあまりなされていない。

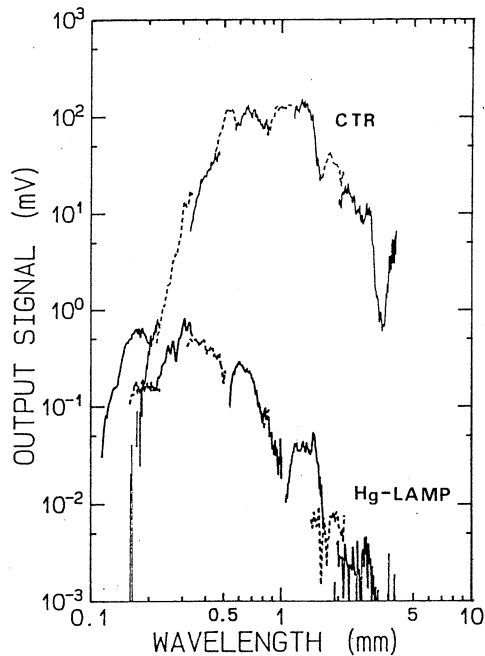
§2. 実験と結果

コヒーレントな放射を光源としたサブミリ・ミリ波の分光測定実験は、核理研の電子ライナックを用いて行った。前述した如く、コヒーレントな放射としてシンクロトン放射と遷移放射が観測されているが、それらの放射強度スペクトルはほとんど同じなのでここでは実験上簡便な遷移放射を光源とすることにした。遷移放射が分光測定装置⁹⁾に導入され、分光されて出射スリットに到達するまでの実験配置は今までと同じである¹⁰⁾。放射体としてアルミニウム箔を用い、これを最初の集光鏡の前方872mmの所に置いた。分光測定装置⁹⁾はコヒーレント放射スペクトルを測定するために製作した装置で、光源として高圧水銀灯(ウシオ電機製100W, 有効口径10mm)を内蔵し、格子定数の異なる6個の回折格子と短波長カットフィルター、長波長カットフィルターを適当に組み合わせることにより、波長0.1mmから4mmまでの範囲を測定できる回折格子型分光計である。検出器は液体ヘリウム冷却型Siボロメータを用いた。

ライナックの運転条件は次の通りである: 電子のエネルギーは150MeV, そのエネルギー幅は0.2%, 電子ビームの繰り返し周期は300pps, 各パルスの幅は2 μ sec, 実験時の平均ビーム電流は1 μ Aである。ライナックの加速条件から1つのバンチの長さは約2mm, 1バンチ内に含まれる電子数は、ビーム電流を1 μ Aとすると 3.6×10^6 と見積もられる。

2.1 高圧水銀灯との強さの比較

コヒーレントな放射を光源として用いる場合、高圧水銀灯と同じ実験配置で実際に分光スペクトルを測定し、高圧水銀灯と較べてどれ位光強度が強いかということが重要である。前記の実験条件で、光源としてコヒーレント遷移放射(ライナックの電流値1 μ Aの場合)と高圧水銀灯を用いた場合のスペクトル強度を検出器の出力として比較して示したのが第1図である。図から分かるように、コヒーレントな放射は高圧水銀灯に較べて波長の長い方で強く、例えば波長1mmのところでは3桁つまり1000倍以上も強い。このようにコヒーレントな放射は、強力



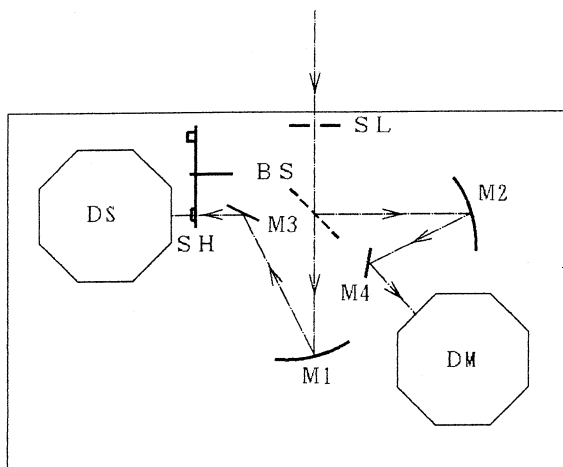
第1図 コヒーレント遷移放射 (CTR) と高圧水銀灯 (Hg-LAMP) の光源としての光の強さの比較。コヒーレント放射の方が例えば、波長 1 mm で 3 桁以上も強い。

で波長連続な光源のないミリ波の領域において画期的な光源となりうることを示している。

2.2 光強度変動の補正

電子ビームからの放射光の強度はビーム電流に比例する。電子ライナックのビーム電流は時刻刻々変化する。したがって、ビーム電流の変動に応じて変動する光強度を何らかの方法で補正しなければならない。遷移放射が完全にコヒーレントであれば光強度はビーム電流の2乗に比例するので、ビーム電流を測定することにより、光強度の変動を補正することも可能である。しかしながら、遷移放射は必ずしも完全にコヒーレントではなく、波長に依存してビーム電流の1乗から2乗に比例する。したがって光強度の変動をビーム電流によって正確に補正することはできない。そこでここでは以下に述べるような光学的方法で補正することを試みた。

第2図は光学的に光変動を補正するための光学系を示している。この光学系を前述した分光装置の出射スリットの後に取り付ける。図において、分光されて出射スリット (SL) から出てきた光はワイヤグリッド製のビーム・スプリッタ (BS) により、透過光と反射光の2つの光束に分けられ、それぞれ試料測定部、モニター部に導かれる。透過光は球面鏡 M1 により集光され、試料ホルダー (SH) を通って信号検出器 DS に到達する。一方、ビーム・スプ



第2図 試料測定部と光強度変動を補正するための光学系。
 SL: 分光計の出射スリット, BS: ビーム・スプリッタ, M1, M2: 球面鏡, M3, M4: 平面鏡,
 SH: 試料ホルダー, DS: 信号用検出器, DM: モニター用検出器。

リッタで反射された光は球面鏡 M2 により集光され、モニター用検出器 DM に到達する。

さて一般に、波長 λ の放射の強さはビーム電流を J とすると

$$I(\lambda, J) = K(\lambda, J) \cdot J^n$$

と表されよう。ここで、 $K(\lambda, J)$ は波長と電流に依存する比例係数、 n は 1 から 2 の間の任意の値である。

(1) 図2の光学系の効率を考える際、ビーム・スプリッタ以後の光学系の効率は検出器も含めて考えなくともよい。なぜならば、分光スペクトルを求める際、光学的に常に同じ測定条件下で、試料のある場合とない場合との両検出器の出力比をとるので打ち消してしまうからである。ビーム・スプリッタの波長 λ での透過率、反射率をそれぞれ $T(\lambda)$, $R(\lambda)$ とする。

いま、ビーム・スプリッタに入射する放射の強さを $I(\lambda, J)$ とし、試料ホルダーに試料のない場合の信号、モニター両検出器の出力をそれぞれ $V_s(\lambda)$, $V_m(\lambda)$ とすると、その比は次のように表される：

$$\frac{V_s(\lambda)}{V_m(\lambda)} = \frac{I(\lambda, J) \cdot T(\lambda)}{I(\lambda, J) \cdot R(\lambda)} = \frac{T(\lambda)}{R(\lambda)}$$

すなわち、両検出器の出力比は光強度の電流依存性やその時々の電流変動に無関係に、基本的にはビーム・スプリッタの透過率、反射率の比で決まる。

(2) 次に試料ホルダーに試料（波長 λ での透過率を $T_s(\lambda)$ とする）を取り付ける。上と

同様に、入射光の強度を $I_s(\lambda, J)$ とし、そのときの信号、モニター両検出器の出力をそれぞれ $V_{ss}(\lambda)$, $V_{sm}(\lambda)$ とすると、その比は

$$\frac{V_{ss}(\lambda)}{V_{ms}(\lambda)} = \frac{I_s(\lambda, J) T(\lambda) T_s(\lambda)}{I_s(\lambda, J) R(\lambda)}$$

となる。したがって、試料の透過率 $T_s(\lambda)$ は

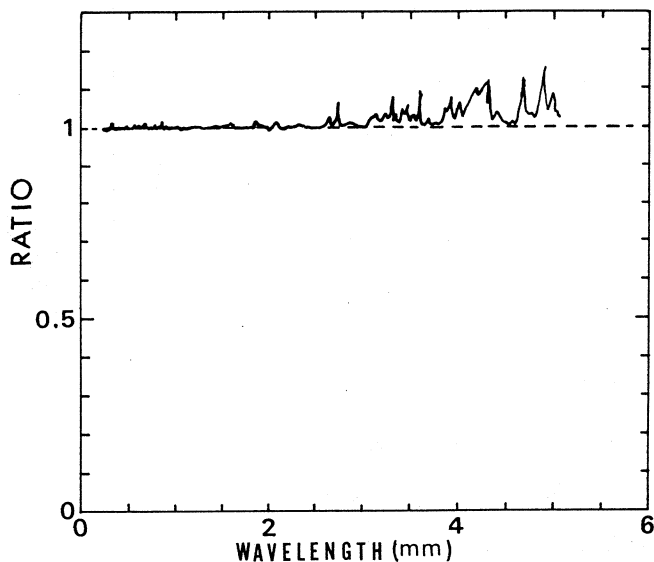
$$T_s(\lambda) = \frac{V_{ss}(\lambda)}{V_{ms}(\lambda)} \bigg/ \frac{V_s(\lambda)}{V_m(\lambda)} \quad (1)$$

となる。すなわち、試料の透過率は試料のある場合の両検出器の出力比 V_{ss}/V_{ms} と、試料のない場合の出力比 V_s/V_m の比をとることによって求められる。この方法によれば、放射の電流依存性やビーム電流の変動による放射強度の変動も正しく補正され、原理的に正確なスペクトルを求めることができる。

2.3 測定精度

物性測定においてはスペクトルの強度の精度と純度が重要である。強度の精度の目安としてここでは背景スペクトル (100% line) を測定し、その S/N を調べた。第3図にコヒーレント遷移放射を光源として、前述の実験配置で測定した100% lineの結果を示す。これは試料のない場合を数回測定し、式(1)を用いて得られたものである。理想的には、このスペクトルは全ての波長に対して1である直線

に一致すればよい。図をみると、波長0.3mmから3mmまでは1の直線からのズレは1%程度におさまっているが、波長が3mmより長くなると3%程度のズレが生じてくるのが分かる。このズレの多くはビーム・スプリッタの透過率と反射率の不釣り合い (大きいところで1:3) による S/N の悪化のためと思われる。したがって、S/N は透過率と反射率がほぼ同程度のビーム・スプリッタを用いればもっ



第3図 コヒーレント放射を光源とした背景スペクトル (100% line)。

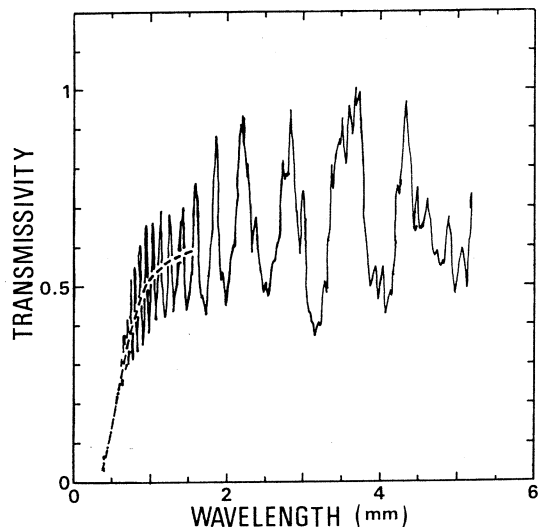
と改善されるであろう。

次に、回折格子型分光計で注意しなければならないのは光の純度（迷光）の問題である。迷光の目安として試料ホルダーのところに光遮蔽板を入れて、いわばスペクトルのゼロレベルの測定を行った。その結果、全波長域で信号用検出器の出力は実質的にゼロで、迷光の心配はないと考えられる。

2.4 吸収スペクトルの測定

スペクトルの実測例として As_2S_3 ガラスの吸収を測定した。 As_2S_3 ガラス試料は次のようにして作成された¹¹⁾。6 N のヒ素と 5 N の硫黄粉末を As_2S_3 の組成になるように秤量し、これを内径10mm のシリカガラス製のアンプールに真空封入し、揺動電気炉で溶融反応させた後、ガラス転移点より 10°C 高い温度で十分熱処理した。このようにして得られた棒状の試料をワイヤソーで薄板に切断し、両面を光学研磨した。厚さの異なる何種類かの平行平面の円板を作成し、測定用試料とした。

第4図は厚さ2 mm の As_2S_3 ガラスの透過率スペクトルを示す。実線はコヒーレント遷移放射を光源として吸収を測定し、(1)式を用いて得られたスペクトルであり、点線は同じ試料を高圧水銀灯を光源としてマーチン・パレット型の干渉分光計¹²⁾を用いて測定した同様のスペクトルである。図に見られるように、コヒーレント放射によるスペクトルは波長0.3mm から5 mm まで測定されており、また平行平面板による干渉パターンがはっきりと見られるのに対し、高圧水銀灯による場合は1.5mm 程度が限界であり、干渉パターンは見られない。干渉パターンの有無は単に分解能の問題で、コヒーレント放射の場合は約 0.1cm^{-1} と高分解測定であるのに対し、干渉計では 1cm^{-1} の低分解測定であることによる。両スペクトルは光源も、分光法も異なる装置で測定したにもかかわらず、驚くほどよく対応している。厚



第4図 As_2S_3 ガラス（厚さ2 mm）の吸収スペクトル。実線はコヒーレント放射，点線は高圧水銀灯を光源とした場合のスペクトル。

さの異なる他の As_2S_3 ガラス試料の吸収測定も行ったが、やはり同様の結果を得た。このことはコヒーレント放射はサブミリ・ミリ波の波長領域分光用光源として実際に利用できるということを示している。

回折格子型分光計ではフィルターと回折格子との関係で、現在のところ 4 mm より長い方は正しく測定することはできないが、コヒーレント放射の強度からいえばもっと長波長まで測定できるものと思われる。

§3. まとめ

光源としてコヒーレント遷移放射と高圧水銀灯を用いサブミリ・ミリ波の波長領域の分光測定を行った結果をまとめると次のようになる：

(1)コヒーレント遷移放射と高圧水銀灯を光源としてスペクトル強度を測定・比較した結果、コヒーレント放射の方が長波長で極めて強く、例えば波長 1 mm で 3 桁以上強いことが分かった。高圧水銀灯の場合、波長が ~ 1 mm 以上では強度が弱く、分光測定が実質的に非常に困難であることを考えると、コヒーレント放射はミリ波の領域における画期的に強い光源であるといえる。

(2)電子ライナックの電子ビームの変動に伴う光強度の変動を光学的方法で補正することにより、波長 0.3—3 mm の間で約 1%、3 mm 以上では約 3% のスペクトル強度の精度が得られた。また迷光も問題にならなかった。

(3)コヒーレント放射を光源として As_2S_3 ガラスの吸収スペクトルを 0.3—5 mm の波長領域で測定した。その結果と、高圧水銀灯による同じ試料の吸収スペクトルを比較した結果、両者は驚くほどよい対応を示した。

以上の結果から、コヒーレント放射はサブミリ・ミリ波における新しい高輝度光源として実際に利用できることが分かった。

今後の課題としては

(1)今回は吸収の測定だけであったが、反射測定もできる光学系を組み、かつその光学系を真空容器に納める。

(2)遷移放射を光源とする場合、実際的な最適条件（波長範囲と受光鏡の大きさ、位置、角度など）を確定する。

(3)吸収・反射スペクトルの温度変化を測定できるようにする。

最後に、光学系の製作、ガラス試料の光学研磨に当たり、科研の機械・光器械工場の方々に

お世話になりました。また本実験に際しては核理研のスタッフの方々にお世話になりました。ここに感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) T. Nanba, T. Urashima, M. Ikezawa, M. Watanabe, E. Nakamura, K. Fukui and H. Inokuchi : *Int. J. Infrared and Millimeter Waves* **7** (1986) 1769.
- 2) T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, O. Konno, A. Kagaya, R. Kato, T. Kamiyama, Y. Torizuka, T. Nanba, Y. Kondo, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka and M. Ikezawa : *Phys. Rev. Lett.* **63** (1989) 1245.
- 3) K. Ishi, Y. Shibata, T. Takahashi, H. Mishiro, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, S. Urasawa, N. Niimura, R. Kato and M. Oyamada : *Phys. Rev.* **A43** (1991) 5597.
- 4) S. 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) P. Flubacher, A. J. Leadbetter, J. A. Morrison and B. P. Stoicheff : *J. Phys. Chem. Solids* **12** (1959) 53.
- 6) A. Fontana and F. Rocca : *Phil. Mag.* **B56** (1987) 251.
- 7) V. K. Malinovsky, V. N. Novikov, P. P. Sokolov and M. G. Zemlyanov : *Europhys. Lett.* **11** (1990) 43.
- 8) N. Ahmad, K. W. Hutt and W. A. Phillips : *J. Phys.* **C19** (1986) 3765.
- 9) 伊師君弘, 柴田行男, 高橋俊晴, 蔦谷 勉, 大坂俊明, 池沢幹彦 : 東北大科研報告 **39** (1990) 19.
- 10) 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, 浦澤茂一, 小山田正幸 : 核理研究報告 **24** (1991) 331.
- 11) 大坂俊明, 渡辺昭輝, 長谷川泰 : 窯業協会誌 **82** (1974) 78.
- 12) 大坂俊明, 柴田行男, 蔦谷 勉, 柳 和雄 : 東北大科研報告 **39** (1990) 1.

コヒーレント遷移放射における発光長と強度の関係

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

井原泰介・佐藤康彦・蔦谷 勉

大坂俊明・池沢幹彦・近藤泰洋*

加藤龍好**・浦沢茂一**・中里俊晴**

吉岡正裕**・梅津陽一郎**

小山田正幸**・山川達也**

§ 1. 序 論

これまで我々は, 150MeV に加速された短パンチの電子を用いて, コヒーレント遷移放射の基礎的性質を明らかにしてきた^{1,2)}。放射強度と発光長の関係については前回測定を行ない, 強度が発光長の二乗に比例する結果を得た²⁾。これは, 電子エネルギーが 150MeV と高く, 発光長が形成層の長さよりも十分短いためである。電子エネルギーを低くすれば形成層の長さは短くなり, 発光長と同程度の長さになるので, 高エネルギーの場合とは異なった関係を示す。

一個の電子が真空中に置かれた金属箔を通過するときに放射する光を, 電子ビームの軌道上に置かれた金属鏡で取り出す場合を考える。遠赤外領域では, 金属の誘電率が 1 よりも大きいということを考慮すると, この系で観測される遷移放射の強度は次のように与えられる³⁻¹⁰⁾。但し, 放射強度は, 単位波長, 単位立体角あたりのフォトン数で表されている。

$$P=2p_f \{ 1 - \cos(L/Z) \} \quad (1)$$

$$p_f = \frac{\alpha \beta^2 \sin^2 \theta \cos^2 \theta}{\pi^2 \lambda (1 - \beta^2 \cos^2 \theta)^2} \quad (2)$$

$$Z = \frac{\beta \lambda}{2 \pi (1 - \beta \cos \theta)} \quad (3)$$

ここで, α は微細構造定数, β は電子の速度と真空中の光速の比, θ は電子の進行方向から測った角度, λ は波長であり, Z が形成層の長さである。また L は発光長で, 金属箔と金属鏡との間の距離である。

高エネルギー電子ビームの場合, 例えば 150MeV では, 波長 1mm, $\theta = 1/\gamma = (1 - \beta^2)^{1/2}$ での形成層の長さ Z は, 約 14m である。我々の実験においては実際の測定系でとり得る最大

の発光長は、1m程度であるので、 $L \ll Z$ となり、(1)式は

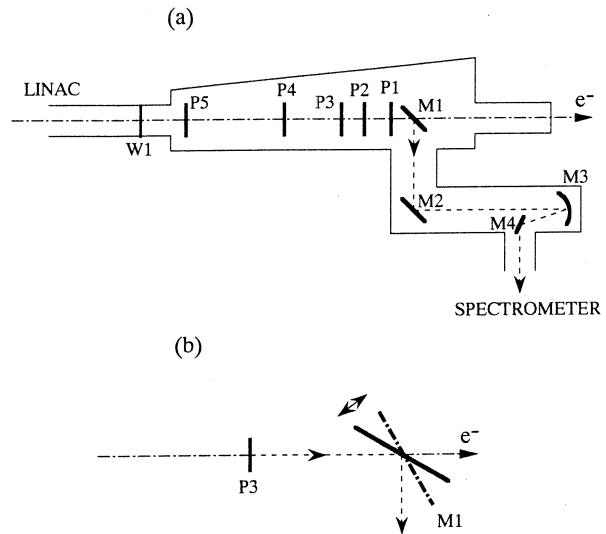
$$P = p_f(L/Z)^2$$

と近似することができる。高エネルギーの場合には、放射強度が発光長の二乗に比例する。発光長 L と形成層の長さ Z が同程度となるような低エネルギー電子ビームの場合には、(1)式に沿った極大値を持つ変化が期待される。

今回我々は、25MeVと60MeVの二種類のエネルギーでコヒーレント遷移放射の測定を行ない、放射強度と発光長との関係を調べた。

§ 2. 実験方法

測定系の模式図を第1図(a), (b)に示す。(a)は、ライナック下流の真空容器内の光学系である。真空容器は、厚さ $50\mu\text{m}$ のチタン箔W1を用いて、ライナック側の真空と切り離されている。この容器内の真空度は約10Paである。遷移放射を発生させる金属箔には、厚さ $15\mu\text{m}$ 、幅と高さがそれぞれ50mm、100mmのアルミ箔を用いた。発光長と放射強度との関係を調べるため、遠隔操作によりアルミ箔の位置を変えることができるようにした。移動した位置はP1, P2, P3, P4, P5であり、反射鏡M1からの距離すなわち発



第1図 測定系の模式図。(a)通常配置。M1, M2, M4, :平面鏡, M3:集光鏡(集光角70mrad), W1:チタン箔の仕切り(厚さ $50\mu\text{m}$), P1, P2, P3, P4, P5:アルミ箔を置く位置(M1との距離はそれぞれ40, 90, 165, 350, 865mm)。(b)発散角を測定するための機構。電子ビームの軌道を中心にしてアルミ箔鏡M1を回転させる。

光長は、それぞれ40, 90, 165, 350, 865mmである。集光鏡M3の集光角は70mradである。P3の位置が集光系の焦点に当り、放射された光が最も効率良く集光される。

第1図(b)は、遷移放射の発散角を調べるために用いた機構の拡大図である。反射鏡(口径68mm)には、厚さ $15\mu\text{m}$ のアルミ箔を平らに張ったものを用いた。反射鏡は、電子ビームの軌道と鏡の中心軸が一致するように置かれ、この軸を中心にして回転させることにより、あ

る発散角で放射された光を集光系に導く。どの発散角の測定においても、常に電子ビームは反射鏡を通過する。

この実験で用いた分光器は、従来の実験で使用してきた回折格子型の遠赤外分光器であり、遷移放射の遠赤外領域の検出器として、シリコンボロメーターを用いた。また、放射強度の較正は、1200Kの黒体放射で行なった¹⁾。

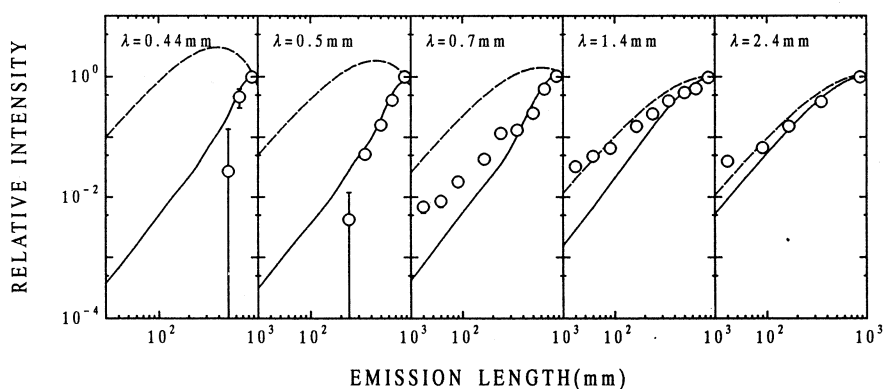
電子は、加速RF周波数2856MHzで、25MeV及び60MeVに加速される。パルス幅 $2\mu\text{s}$ 、パルスの繰り返し300pps、エネルギー幅は0.2%である。実験を通して二次電子放出モニターで測定した平均ビーム電流は、約 $8\mu\text{A}$ である。

§ 3. 結果と考察

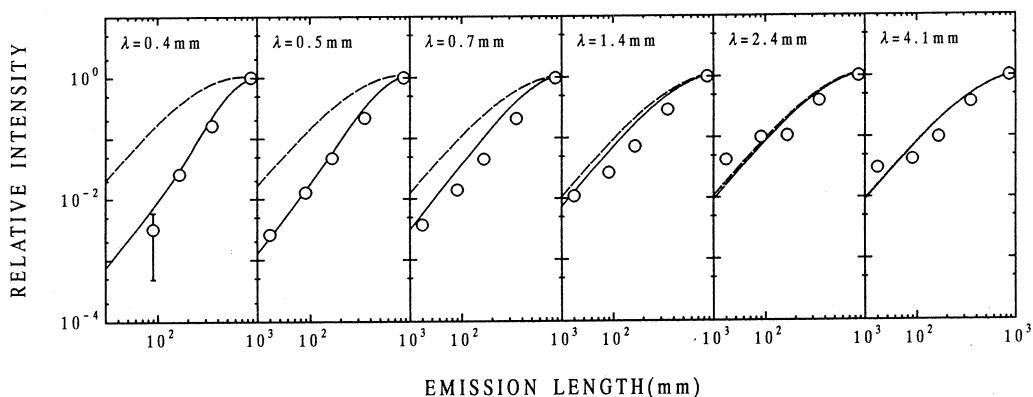
3.1 放射強度と発光長との関係

アルミ箔を第1図(a)のP1からP5の間を移動させ、波長0.4, 0.5, 0.7, 1.4, 2.4mmにおける放射強度を測定した。エネルギー25MeVでの測定結果を第2図に、60MeVの測定結果を第3図に、それぞれ白抜きの円で示す。図中の破線は、測定パラメーターを用いて(1)式を計算した結果である。縦軸は、発光長が865mmでの強度で規格化した。測定データは計算結果と異なり、特に短波長では、放射強度が発光長の三乗に近い変化をしている。

上の計算では、電子ビームの横方向の広がりには考慮されていない。横方向の広がりがあると、強度及び発散角に変化が生じることが前回の実験により確認された²⁾。厚さ $50\mu\text{m}$ チタン箔による電子の平均散乱角は、エネルギー25MeVで19mrad、60MeVで7.7mradとなるので、ア



第2図 エネルギー25MeVでの強度と発光長の関係。各波長とも、 $L=865\text{mm}$ での強度で規格化してある。破線は、ビームの広がりを無視したときの理論からの計算値。実線はさらに電子ビームの横方向の広がりを考慮したときの計算値。

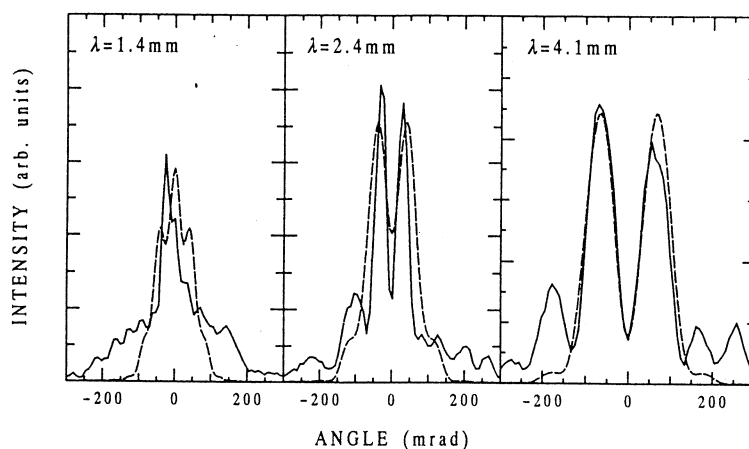


第3図 エネルギー 60MeVでの強度と発光長の関係。各波長とも、 $L=865\text{mm}$ での強度で規格化してある。破線は、ビームの広がりを無視したときの理論からの計算値。実線はさらに電子ビームの横方向の広がりを考慮したときの計算値。

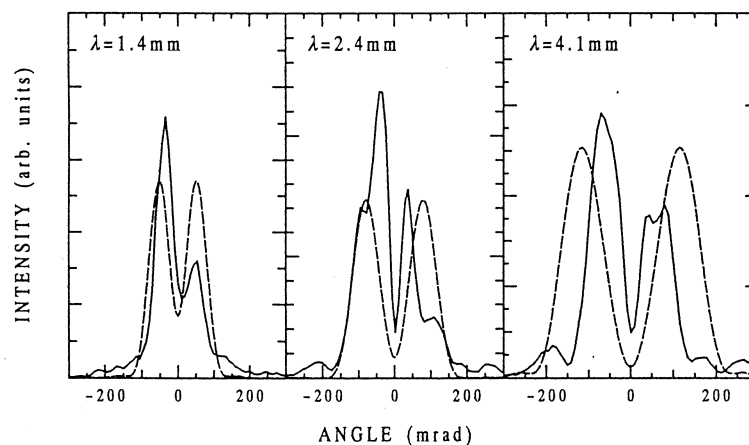
ルミ箔及び反射鏡の位置では、電子ビームの広がりが無視できない大きさになっている。エネルギーが低いほど顕著になってくるのである。そこで、電子ビームの横方向の広がりを含んだ理論計算を行なった。電子ビームはチタン箔より上流では広がりがなく、それを通過した後、上で述べた散乱角で広がるものとする。また、電子は横方向に一樣に分布するものとする。その計算結果を、第2図、第3図に実線で示した。電子ビームの広がりを考慮することにより、強度については大部分の測定結果を説明できる。このビーム広がりを含めた解析を行なうことにより、発散角の測定値も説明できなければならない。また、第2図の中には、測定値と計算値が大きく違っているデータがあるが、理由についての考察は§3.2で触れることにする。

3.2 放射の発散角

アルミ箔を第1図のP3の位置(発光長165mm)に置いたときの、遷移放射の発散角の測定結果を第4図、第5図に実線で示す。測定波長は0.7, 1.4, 2.4, 4.1mmであり、反射鏡M1の回転軸と電子の軌道が作る面に垂直な方向の偏光成分のみを示した。図中の破線は電子ビームの横方向の広がりを考慮したときの計算値である。主ピークの位置はほぼ一致している。但し、測定値には細かい構造がはっきりと見られる。この原因は、上流のチタン箔からの遷移放射の回り込みや、アルミ箔からの放射が真空容器の内壁で反射した光の可能性が高い。強度と発散角の計算値と測定値の間に違いが生じる理由としては、このような迷光が重畳している可能性が考えられる。より精密な解析を行なうには、迷光を最小限に抑える必要がある。考えられる相違のもう一つの理由は、ここで行なった理論計算には電子ビームの広がりは含まれているが、遷移放射を発生するときに全ての電子の軌跡が平行であるという仮定が含まれてい



第4図 エネルギー 25MeVでの遷移放射の発散角。反射鏡 M1の回転軸に垂直な方向の偏光成分である。実線は波長 1.4, 2.4, 4.1mmでの測定値。破線は電子ビームの横方向の広がり を考慮したときの計算値。



第5図 エネルギー 60MeVでの遷移放射の発散角。反射鏡 M1の回転軸に垂直な方向の偏光成分である。実線は波長 1.4, 2.4, 4.1mmでの測定値。破線は電子ビームの横方向の広がり を考慮したときの計算値。

ることである。実際には、ほぼチタン箔による散乱角に相当する角度でアルミ箔を通過しているので、その効果も考慮する必要があるだろう。

§ 4. 結 論

低エネルギーの電子ビームを用いて、遷移放射の強度と発光長との関係を測定した。その結果は、電子ビームの横方向の広がり を理論計算に含めることで、測定値を説明することができた。

最後に、ライナックの運転などに御協力戴いた核理研の皆様 に、感謝の意を表する。

参 考 文 献

- 1) 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: 核理研究報告 **24** (1991) 331.
- 2) 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, 浦沢茂一, 中里俊晴, 庭野 智, 吉岡正裕, 小山田正幸: 核理研究報告 **25** (1992) 120.
- 3) Y. Shibata, K. Ishi, T. Takahashi, T. Kanai, M. Ikezawa, K. Takami, T. Matsuyama, K. Kobayashi, and Y. Fujita : Phys. Lev. A **45** (1992)R8340.
- 4) V. L. Ginzburg and I. M. Frank : Zh. Eksp. Teor. Fiz. **16** (1946) 15.
- 5) F. G. Bass and V. M. Yakovenko : Sov. Phys. Usp. **8** (1965) 420.
- 6) G. M. Garibian : Sov. Phys. JETP. **6** (1958) 1079 and **10** (1960) 372.
- 7) L. C. L. Yuan, C. L. Wang, H. Uto, and S. Prunster : Phys. Rev. Lett. **25** (1970) 1513.
- 8) L. Durand : Phys. Rev. D **11** (1975) 89.
- 9) L. A. Vardanyan, G. M. Garibyan, and C. Yang, Izv. AN Armyanskoi SSR, Fizika, **10** (1975) 350.
- 10) L. Wartski, S. Roland, J. Lasalle, M. Bolore, and G. Filippi : J. Appl. Phys. **46** (1975) 3644.
- 11) K. Ishi, Y. Shibata, T. Takahashi, H. Mishiro, T. Tsutaya, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, S. Urasawa, N. Niimura, R. Kato, and M. Oyamada, Phys. Rev. A **43** (1991) 5597.

編 集 委 員

齋 藤 悌二郎 (委員長) 寺 沢 辰 生
新 村 信 雄 梶 本 和 義

核 理 研 研 究 報 告 第 25 卷 第 2 号

1992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 25 Number 2 December 1992

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