

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：24402

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540519

研究課題名(和文) 顕微メスbauer分光器の製作と地球科学への応用

研究課題名(英文) A Mossbauer micro-spectrometer and its application to geosciences

## 研究代表者

篠田 圭司 (Shinoda, Keiji)

大阪市立大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号：40221296

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：鉱物中の鉄イオンの価数比(2価3価比)は地球科学的に重要な意味を持つ。岩石薄片中の単一鉱物中の鉄の2価3価比を精度よく見積もるため、京都大学原子炉実験所共同利用を通じて、マルチキャピラリーX線レンズ(MCX)を用いた顕微メスbauer分光器を製作した。製作した顕微メスbauer分光器のガンマ線焦点を評価した結果、焦点の半値幅は400 $\mu$ mでピーク形状は等方的であることがわかった。顕微メスbauer分光器で単結晶の鉱物試料を測定する基礎データとして、黒雲母と磁鉄鉱の定方位薄片のメスbauerスペクトルを測定し、ピーク強度比を粉末試料と比較した。

研究成果の概要(英文)：The ratio of Fe<sup>2+</sup>/Fe<sup>3+</sup> in Fe-bearing minerals is an important value in Geosciences. In order to quantitatively evaluate the ratio of Fe<sup>2+</sup>/Fe<sup>3+</sup> in Fe-bearing single crystal in petrographic thin sections, Mossbauer micro-spectrometer using multi-capillary X-ray lens was constructed in Research Reactor Institute of Kyoto University. The full width at half maximum of the  $\gamma$ -ray focus was revealed to 400  $\mu$ m by scanning tungsten edge, and the peak distribution of the  $\gamma$ -ray focus was fairly isotropic. As basic data of Mossbauer spectra of single crystal, Mossbauer spectra of crystallographically oriented thin sections of biotite and magnetite were measured and relationships between peak intensity ratio and Fe<sup>2+</sup>/Fe<sup>3+</sup> ratio of two minerals were discussed.

研究分野：鉱物科学

キーワード：メスbauer分光 顕微分光 鉄含有鉱物



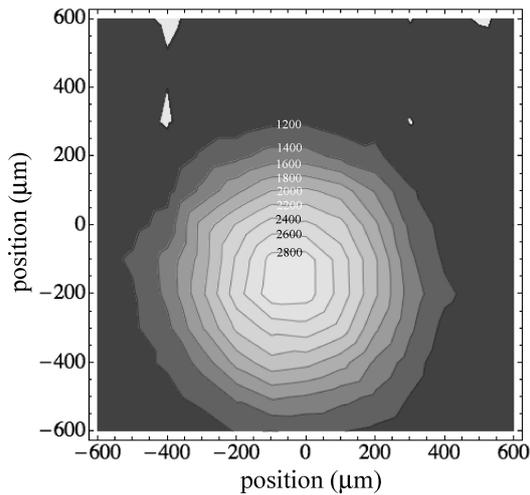


図2 290  $\mu\text{m}$   $\phi$  のピンホールを 100  $\mu\text{m}$  間隔、 $\pm 600 \mu\text{m}$  の範囲で二次元走査したときの 14.4 keV ガンマ線の強度分布

100  $\mu\text{m}$  間隔、 $\pm 600 \mu\text{m}$  の範囲で二次元走査したときのガンマ線の強度分布である。検出器には比例計数管を用いた。図2が示すようにビーム形状は同心円状の強度分布を持つ等方的な良質な焦点であることがわかった。

図3はタングステン製の刃を一次元走査したときの MCX 焦点位置でのガンマ線強度分布である。検出器には比例計数管を用いた。両端のバックグラウンド部の延長線と集光部の強度変化の直線回帰線の交点からビーム半値幅を推定したところ、14.4 keV のガンマ線半値幅は約 400  $\mu\text{m}$  と見積もられた。しかしエッジ走査により得た半値幅 400  $\mu\text{m}$  は、別に測定した二次元検出器による半値幅 150  $\mu\text{m}$  の間には大きな差があり、最終的な半値幅確定には至っていない。この差の原因としてエッジ走査で用いた検出器がエネルギー分解のあまり良くない比例計数管であったため、ピークのバックグラウンドがピーク強度評価に影響して半値幅が大きく見積もられた可能性と、二次元検出器測定では

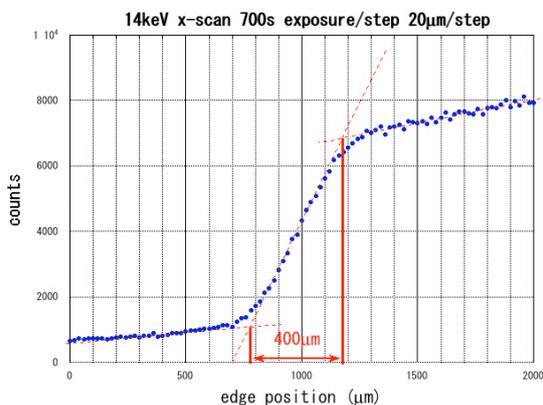


図3 タングステン製刃の一次元走査 (20  $\mu\text{m}$  幅で 2000  $\mu\text{m}$  範囲) したときの 14.4 keV のガンマ線強度分布。

17 keV のエックス線を用いたため、エネルギー差により半値幅が小さく出た可能性がある。

図4はガンマ線源から 14.4 keV のガンマ線と同時に発生する 6 keV のエックス線の一次元走査時の強度分布である。走査条件は図3と同じである。6 keV のエックス線に対する MCX 焦点の半値幅は 650  $\mu\text{m}$  と見積もられた。図3の 14.4 keV のガンマ線半値幅に比べてエネルギーの低い 6 keV のエックス線に対する MCX の集光径が明瞭に異なる結果を得た。これは MCX の性能評価の点で興味深い。

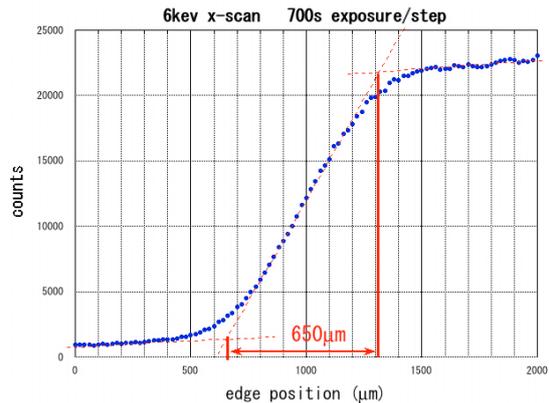


図4 タングステン製刃の一次元走査 (20  $\mu\text{m}$  幅で 2000  $\mu\text{m}$  範囲) したときの 6 keV のエックス線強度分布。

平成 25 年度終了時点で以上の顕微メスbauer分光器はほぼ完成したが、この時期から京大原子炉実験所の研究原子炉と顕微メスbauer分光器設置のトレーサー棟を含む施設が運転停止及び管理区域の変更に伴う原子力規制庁の再審査期間に入り、トレーサー棟での密封線源を使用した実験ができなくなった。この再審査期間は当初平成 26 年度 6 月程度には終了する予定であったが、結局再審査が長引き現在も実験不能である。従って顕微メスbauer分光器を用いて天然試料のメスbauerアスペクトル測定を数こなすことはできなかった。そこで将来顕微メスbauer分光器を用いて岩石薄片中の鉱物単結晶のメスbauerアスペクトル測定の際の基礎データとして、磁鉄鉱と黒雲母の単結晶定方位薄片のメスbauerアスペクトル測定を、密封線源を用いた実験が可能な京大原子炉実験所ホットラボで行った。Fe<sup>2+</sup>/Fe<sup>3+</sup>比の異なる黒雲母単結晶のメスbauerアスペクトルと黒雲母粉末のメスbauerアスペクトルを比較したところ、両者から求められる Fe<sup>2+</sup>/Fe<sup>3+</sup>比はほぼ 1 対 1 相関を持つことがわかった。また空孔量の異なる 2 つの産地の磁鉄鉱単結晶を用いて (100), (110), (111) 薄片を作成し、それぞれのメスbauerアスペクトルを測定し、磁鉄鉱の磁気分

裂による6本のメスバウアーピークの強度比を比較した。粉末試料の場合6本の磁気分裂ピークの強度比は3:2:1:1:2:3と平均化されるが、単結晶定方位試料の測定ではこの比から大きくはずれた。磁鉄鉱における磁化容易軸は<111>方向で、その磁化容易軸を持つ磁区の存在確率に試料の形状異方性を考慮するとこの比を説明できることがわかった。これらの結果は岩石薄片中の単結晶を顕微メスバウアー分光器を用いて測定する際の基礎データとなる。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計9件)

①メスバウアー分光法による定方位試料と粉末試料から求めた黒雲母中の $Fe^{3+}$ 比の比較、日高伸也、篠田圭司、小林康浩 (日本鉱物科学会2014-9-19、熊本市熊本大学)

②顕微メスバウアー分光器の製作とビーム評価2、篠田圭司、小林康浩、副島啓義 (日本鉱物科学会2014-9-19、熊本市熊本大学)

③ Measurements of the vacant sites in titanomagnetite by Mössbauer spectroscopy. Chihiro Tomita, Keiji Shinoda. American Geophysical Union, 2012 Fall Meeting. 2012/12/7, Moscone center, San Francisco (USA)

④顕微メスバウアー分光器の製作とビーム評価、篠田圭司、小林康浩、副島啓義 (日本鉱物科学会2013-9-12、つくば市筑波大学)

⑤顕微メスバウアー分光器の製作と地球科学への応用 (招待講演)、篠田圭司、小林康浩、副島啓義 (日本地球惑星科学連合2013年大会、千葉市幕張メッセ5月22日)

⑥チタノマグヘマイトの酸化度測定、谷口隆文、篠田圭司、小林康浩 (日本鉱物科学会2012-9-20、京都市京都大学)

⑦メスバウアー分光法による天然マグネタイトの空孔量測定、富田千尋、篠田圭司、小林康浩 (日本鉱物科学会2012-9-20、京都市京都大学)

⑧顕微メスバウアー分光器の製作と地球科学への応用、篠田圭司、副島啓義、小林康浩 (日本鉱物科学会2012-9-21、京都市京都大学)

⑨メスバウアー分光法による天然マグネタイトの空孔量測定、富田千尋、篠田圭司、小林康浩 (日本地球惑星科学連合2012年大会5月20-25日、千葉市幕張メッセ)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

篠田 圭司 (SHINODA Keiji)  
大阪市立大学・大学院理学研究科・准教授  
研究者番号：40221296

### (2) 研究分担者

小林 康浩 (KOBAYASHI Yasuhiro)  
京都大学・原子炉実験所・助教  
研究者番号：00303917

### (4) 研究協力者

富田 千尋 (TOMITA Chihiro)  
谷口 隆文 (TANIGUCHI Takafumi)  
日高 伸也 (HIDAKA Shinnya)  
上領 卓也 (KAMIRYO Takuya)